

ポストイオン化を新機軸とした サブミクロンスケール局所同位体分析手法の開発

Development on next-generation SIMS based on the post-ionization

大阪大学 寺田健太郎

太陽系や生命の起源と進化を探る上で、岩石／化石試料の局所同位体測定は最も重要な分析手法の1つであり、これまで市販の2次イオン質量分析計(SIMS: Secondary Ion Mass Spectrometer)によって精力的に行われてきた。しかしSIMSでは、1次イオンの酸素ビームでスパッタされた試料由来の原子がイオン化効率が約1%以下と低いことが弱点であった(すなわち、残りの99%の中性原子は分析されることなく真空ポンプに廃棄されていた)。そこで、申請者等は2012年より、スパッタされた中性原子を高出力フェムト秒レーザーで「ポストイオン化」する基礎実験に取り組み、レーザー照射がない時と比べ、2次イオン強度を約1500倍に増大させることに成功した。本研究では、同システムにさらに改良を加え、天然試料の同位体分析の実用化を目指した。

まず初めに、フェムト秒レーザーの光学系を最適化した。ビームを集光することで、ビーム密度をあげ、さらにサンプル表面に近づけることが可能になり、2次イオン強度を約20000倍(本研究実施前の約10倍)に増大させることに成功した。また、信号処理部に時間分解能の高いコンバーターを導入し、2次イオンを電流値としてではなく、閾値を超えたイベント計測(イオンカウンティング法)で検出するシステムを立ち上げ、S/N比を劇的に改善させた。これにより、検出限界が1wt.%から数十ppm程度へと2桁以上改善でき、天然鉱物(例えば、ジルコン(ZrSiO₄))に100ppm程度に含まれるウランや鉛の局所同位体分析が可能になった。

次に、本装置の高い空間分解能と高い質量分解能を活かし、始原的炭素質コンドライト隕石(Murchison)から酸処理して抽出した1-2μmサイズのSiC粒子の炭素とケイ素の同位体分析を試みた。正確に²⁹Si/²⁸Siの同位体比を算出するためには、²⁹Si⁺(28.97649Da)と²⁸SiH⁺(28.98475Da)の0.08Da(原子質量)の違いを分離することが必要不可欠である。そこで阪大で開発した多重周回飛行時間型質量分離法(MULTUM)で40周回させることにより(飛行距離約52mに相当)、質量分解能15000を達成し、干渉ピークを分離した。これによりSiC粒子のケイ素同位体比は、太陽系の平均同位体組成と比べ、重いケイ素に富んだ同位体組成を示すことが明らかになった($\delta^{29}\text{Si} / {^{28}\text{Si}} = 0\sim 150\text{\textperthousand}$ 、 $\delta^{30}\text{Si} / {^{28}\text{Si}} = 0\sim 100\text{\textperthousand}$)。また、¹²C/¹³C比は太陽系の平均組成よりも有意に小さいことが明らかになった。これらのことから、Murchison隕石から単離したSiC粒子は、太陽系誕生時の同位体比の均質化を免れた、炭素星の一種であるAGB星(Asymptotic Giant Branch Star)の星周ダストであることが明らかになった。今後、分析感度をもう一桁向上させることができれば、SrやBaなどの重元素の同位体比分析可能になり、AGB星内He層で起こっている「遅い中性子捕獲反応("slow" neutron capture process)」の物理環境(温度や中性子密度)の情報をダイレクトに引き出せることから、太陽系の元素の起源解明に迫ることができると期待される。