

# 最近落下した隕石ならびに南極やまと隕石の $^{14}\text{C}$ 濃度測定

南 雅代<sup>1)</sup>・照井 敦<sup>1)</sup>・中村俊夫<sup>2)</sup>

1) 名古屋大学大学院環境学研究科

〒464-8602 名古屋市千種区不老町

TEL: 052-789-3030 FAX: 052-789-3033

e-mail: minami@eps.nagoya-u.ac.jp

2) 名古屋大学年代測定総合研究センター

## 【はじめに】

隕石の地上落下年代は、隕石が地上に落下してから現在までの歴史を知る重要な手がかりを与える。南極隕石は広い範囲に落下したものが氷河の流れに乗って集積地まで運搬され、裸氷上に出るといった集積機構をとるため、ほかの隕石と比べて古い落下年代を示す。南極隕石が落下後、氷河の中へ埋没する期間は短いので、落下年代は氷河中の運搬の期間と裸氷帯に出てから回収されるまでの期間を合わせたものと考えてよい。南極隕石は、太古に落下した隕石が風化をほとんど受けずに発見回収されるため、落下年代を詳しく調べることで、隕石集積機構や雪氷学・隕石のペアリング・落下頻度の時代変遷等を調べることが可能である。南極やまと山脈の氷原上で採取される隕石は 50~60 kyr までの若い落下年代を示すものが多く、 $^{36}\text{Cl}$  や  $^{81}\text{Kr}$  に比べて短い半減期を持つ  $^{14}\text{C}$  はこれらの落下年代を決定するために有用である。

名古屋大学年代測定総合研究センターにおいては、高周波加熱炉 (RF 炉) による試料加熱部と  $\text{CO}_2$  分離・精製部をガラス管で接続し、系全体を真空に引けるように改良した装置を用いて、3 年程前から隕石中の  $^{14}\text{CO}_2$  抽出の試みを行っている。炭素濃度が既知の標準鉄を用いて行った炭素抽出実験の結果、炭素含有量が低い試料においても約 90% の抽出効率が得られ、また得られた  $^{14}\text{C}$  年代値は大気への混入等による現代炭素の汚染のない、信頼できるものであった (南・中村, 2000; Minami and Nakamura, 2001)。しかし、この炭素抽出ラインにはわずかながらある一定のブランク値が存在し、炭素含有量が非常に低い隕石を分析する場合にはこのブランク値が影響することがわかった (南・中村, 2001)。そこで、ブランク値を下げる、試料からの炭素抽出効率を上げる、などの分析技術の改良が望まれた。また、本抽出ラインを用いて最近落下した隕石の saturated activity を測定し、他の研究室が出している値と同じ値が得られるかどうか調べる必要があった。そこで本研究では、隕石加熱時に流す酸素のトータル量が常に一定になるようにガス流量計を設置し、さらに RF 炉内に入るつぼを置くためにセットする土台を、陶器製のものに変えて石英製のものに変更することにより、ブランク値を低減、ならびに一定にする試みを行った。また、今までは炭素を含まない高純度

鉄を助燃剤として用いて隕石を加熱し、隕石試料から  $^{14}\text{C}$  を抽出し、精製した後に  $^{14}\text{C}$ -free の  $\text{CO}_2$  を加えて希釈するという操作を行っていたが、本研究では助燃剤として  $^{14}\text{C}$ -free に近い炭素を 0.052% 含有する標準鉄を用いることで、隕石を加熱すると同時にガス希釈するという方法をとった。今までの方法では希釈時に大気  $\text{CO}_2$  によるコンタミのおそれがあるが、新しい方法ではその影響が軽減されると思われる。また加熱と同時に希釈、つまりガスを多くしておくことで、システムブランクが無視できると考えられる。この改良した方法を用いて、最近落下した L-隕石の分析を行い、saturated  $^{14}\text{C}$  activity を求めた。

本研究のもう 1 つの目的として、隕石のペアリングがある。南極隕石には 1 個の母隕石が壊れて生じたと思われる破片が多数含まれていることが多い。隕石の破壊は雪氷上への衝突、水中での破壊、氷原上での風化、および大気突入時の破碎（隕石シャワー）などによる。隕石のペアリングの判断材料は化学組成、主成分組成、同位体組成などがあり、放射性核種もその 1 つである。Y-74190, Y-75097, Y-75102, Y-75108, Y-75271 の 5 つの南極隕石はすべて L6 であり、鉱物組成や主成分組成の類似性から同一の隕石であった可能性が高いとされている (Table 1)。Y-75102 と Y-75271 に関しては残念ながら試料が手元に無いため、本研究においては Y-74190, Y-75097, Y-75108 の 3 試料の落下  $^{14}\text{C}$  年代測定を行い、ペアであるかどうかを探る。

## 【実験方法】

最近落下した隕石、南極やまと隕石については、Jull *et al.* (1998) に従い、試料表面に付着した有機物を取り除く為、酸処理を行った。サンプル約 1g を秤りとり、遠沈管にリン酸 (85%) とともに入れて良く混合させ、振とう器で 24h まわす。ここで強い酸を使用すると cosmogenic  $^{14}\text{C}$  も放出してしまうのでリン酸を用いた。その後、遠沈管を遠心分離器にかけて上澄み液と残渣を分離し、遠沈管に残った残渣に蒸留水を加え、再び遠心分離器にかけて上澄み液と残渣を分離する。この操作を 2 回ほど繰り返して洗い、残渣からリン酸を完全に除去する。その洗浄された残渣を乾燥器で約  $80^\circ\text{C}$  で 24h 乾燥させた。

その後の実験手順は Jull *et al.* (1989) の手順に従った。乾燥した残渣を約 0.5g、助燃剤 (JSS 170-7, minor element series B, carbon steel for minor elements determination No. 3) を約 3g 秤り取り、 $1000^\circ\text{C}$  で 10h 焼き出したアルミナ製のるつぼに入れてよく混合させ、マッフル炉で  $500^\circ\text{C}$  で 1h, preheat する。この preheat により、大気にさらされたことで吸着した atmospheric  $^{14}\text{C}$  が取り除かれる (Jull *et al.*, 1989; Lifton *et al.*, 2001)。

Preheat したるつぼを、炭素抽出ガラスラインに接続した RF 炉にセットし、ガス流量計によって一定の流量にされた酸素を流しながら約  $1700^\circ\text{C}$  で加熱する。この加熱により試料と助燃剤中の炭素が  $\text{CO}$ ,  $\text{CO}_2$  として抽出される。あらかじめ  $\text{CO}_2$  抽出ラインは真空に引いておき、抽出・精製は全て真空下で行う。抽出された  $\text{CO}$ ,  $\text{CO}_2$  は二酸化マンガントラップを通して硫化物を取り除き、さらに  $450^\circ\text{C}$  の酸化銅トラップを通して  $\text{CO}$  を  $\text{CO}_2$  に酸化する

Table 1 Chemical compositions, major element compositions, ( $^3\text{He}/^{21}\text{Ne}$ ), ( $^{22}\text{Ne}/^{21}\text{Ne}$ ) and  $^{53}\text{Mn}$  of the Antarctic meteorites of Y-75097 group.

	Y-74190	Y-75097	Y-75102	Y-75108	Y-75271
	L6	L6	L6	L6	L6
Olivine <sup>1)</sup>	24.5	24.2	24.3	24.4	24.3
Pyroxene <sup>2)</sup>	20.6	20.1	20.9	20.8	20.5
SiO <sub>2</sub>	39.24	39.71	39.33	-	-
TiO <sub>2</sub>	0.10	0.21	0.07	-	-
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	2.83	2.60	2.61	-	-
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	-	-	0	-	-
FeO	14.05	15.77	14.01	-	-
MnO	0.32	0.34	0.34	-	-
MgO	25.86	26.03	25.37	-	-
CaO	1.91	1.82	1.63	-	-
Na <sub>2</sub> O	0.97	0.95	0.92	-	-
K <sub>2</sub> O	0.12	0.08	0.07	-	-
H <sub>2</sub> O(-)	0.00	0.02	0.03	-	-
H <sub>2</sub> O(+)	0.1	0.0	0.0	-	-
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.25	0.26	0.32	-	-
Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.51	0.58	0.53	-	-
NiO(ppm)	-	0.590	-	-	-
FeS	6.13	5.94	6.12	-	-
Fe	6.55	4.88	7.39	-	-
Ni(ppm)	1.11	0.73	1.12	-	-
Co(ppm)	0.04	0.008	0.042	-	-
S	-	-	-	-	-
Total	100.09	100.51	99.90	-	-
Total Fe	21.36	20.91	22.17	-	-
$^3\text{He}/^{21}\text{Ne}$	2.2	4.6	4.8	4.0	4.7
$^{22}\text{Ne}/^{21}\text{Ne}$	1.053	1.087	1.079	1.089	1.095
$^{53}\text{Mn}$ (dpm/kg Fe)	441	424	452	407	424

1) Olivine composition in mole percent

2) Pyroxene composition in mole percent

The data are from "Catalog of the Antarctic meteorites".

そして三箇所において液体窒素で CO<sub>2</sub> を回収し、余分な O<sub>2</sub> をポンプで引く。その後、エタノールを用いたトラップ（約-100℃）で H<sub>2</sub>O を取り除く。最後にペンタンを用いたトラップ（約-130℃）で、二酸化マンガントラップで取り除ききれなかった硫化物を取り除き、抽出された CO<sub>2</sub> の体積をマンメーターによって測定する。得られた CO<sub>2</sub> を鉄-水素還元法によりグラファイト化し、名古屋大学年代測定総合研究センターに設置されているタンデトロンの加速器質量分析計を用いて <sup>14</sup>C 測定を行った。この時スタンダードとして用いるシュウ酸

標準試料 (NIST, RM-49) も同様にグラファイト化を行い,  $^{14}\text{C}$  測定を行った。

実験は, 1) ブランク値を見積もるための助燃剤のみの加熱, 2) *in situ* 効果の影響を探るための quartz の加熱, 3)  $\text{SiO}_2$  の O が C に置き換わった SiC から本実験手順で実際に炭素が抽出されるかどうかを確かめるための SiC の加熱, 4) 宇宙空間での  $^{14}\text{C}$  濃度を知るための最近落下した隕石の加熱, 5) 隕石の地上落下年代を得ると同時に, ペアリングの可能性を追求するための南極やまと隕石の加熱, の 5 種類について行った。

## 【結果と考察】

### ブランク値

助燃剤として用いる炭素含有量 0.052%の標準鉄のみをるつぼに入れて RF 炉で加熱させ,  $\text{CO}_2$  を抽出した結果を Table 2 に示す。そのうち不備があるなど AMS 測定で測定できなかったものなどを除き, 得られたデータの中から信頼性が高いと思われる 14 個のデータの平均値をこの抽出系のブランク値としてみなす。収率の平均値は  $84.9 \pm 2.6 \%$ ,  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$  値の平均値は  $(1.926 \pm 0.206) \times 10^{-2}$  であった。収率の値に多少ばらつきが生じたものの, RF 炉の電圧針の振れ方は実験を通して一致しており, 加熱温度に変化はなかったため, 標準鉄の加熱状態は一定であったと考えられる。用いた標準鉄は炭素含有量が  $(5.19 \pm 0.12) \times 10^{-2} \%$  であり, 2.3%の誤差を含んでいる。助燃剤の含有炭素が不均質であるということが収率のばらつきの原因と考えられるが, 抽出系での抽出ガスの損失の度合いの違いによる可能性も考えられる。しかし前述したように, 加熱と同時に抽出ガスは希釈されているため, ガスの損失自体は  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$  値にはあまり効いてこない。

*in situ*  $^{14}\text{C}$  を算出するために行った quartz の加熱実験においては, quartz を約 0.5g 混ぜたときと約 1.0g 混ぜたときの両方において, 助燃剤のみを燃焼させたときよりも炭素抽出量が減少するという結果が得られた。同じ条件で助燃剤のみを加熱したときよりも quartz との混合物を加熱したときの方が加熱温度が下がった結果, 抽出される炭素量が減少してしまい, その減少量が quartz からの炭素抽出による増加量よりも大きかったため, 全体として抽出量が下がってしまったと考えられる。よってこの方法では *in situ*  $^{14}\text{C}$  を測定することは難しい。助燃剤と試料の混合により, 加熱時の助燃剤からの炭素抽出量が低下するとすれば, 隕石の抽出実験の際にも同じ現象が起こると考えられる。つまり隕石の抽出実験におけるブランク値としては, 助燃剤のみを加熱させたときの値を用いるよりも quartz と混合させたものを加熱させた時の値を用いたほうがより真実に近いと考えられる。

SiC と助燃剤の混合物を用いた実験では, この実験手順で SiC から炭素が抽出されることが証明された (Table 2)。炭素含有量がかかなり多いので用いた量はかなり少なかったが,  $\text{CO}_2$  として問題なく抽出された。平均収率は 80.5 %であり, quartz 1.0g を加熱した時と同程度の収率である。よって, 隕石の加熱実験におけるブランク値として, 助燃剤と 1.0g の quartz を加熱した際の収率の平均  $80.3 \pm 3.8 \%$  を用いることにする。

Table 2 Result of CO<sub>2</sub> extraction experiment for determinating blank value.

No.	Sample	Mass of	Mass of combus-	Extracted C	Yield	$(^{14}\text{C}/^{12}\text{C})_{\text{sample}}$	Lab.code#	$\delta^{13}\text{C}$
		sample	tion accelerator			$(^{14}\text{C}/^{12}\text{C})_{\text{standard}}$		
		(g)	(0.052%Fe) (g)	(mg)	(%)		(NUTA2-)	(‰)
1	-	-	3.008	1.32	84.3	0.02368 ± 35	4283	-24.9
2	-	-	3.003	1.28	82.0	0.02055 ± 33	4284	-25.3
3	-	-	3.007	1.31	83.8	0.01919 ± 31	4285	-25.2
4	-	-	3.000	1.30	83.1	0.01862 ± 44	4286	-25.3
5	-	-	3.003	1.35	86.6	0.02081 ± 50	4290	-25.5
6	-	-	3.010	1.35	86.0	0.02061 ± 47	4291	-25.4
7	-	-	3.001	1.27	81.3	0.01720 ± 43	4292	-25.7
8	-	-	3.005	1.33	84.9	0.02164 ± 344	4293	-
9	-	-	3.016	1.35	85.9	0.01970 ± 34	4455	-25.2
10	-	-	3.003	1.30	83.1	0.01686 ± 32	4456	-
11	-	-	3.001	1.39	89.2	0.01909 ± 32	4457	-24.9
12	-	-	3.003	1.28	82.0	-	-	-
13	-	-	3.006	1.31	83.9	0.01683 ± 31	4458	-
14	-	-	3.009	1.33	85.2	-	-	-
15	-	-	3.004	1.38	88.2	0.02026 ± 34	4463	-25.1
16	-	-	3.020	1.29	81.8	-	-	-
17	-	-	3.002	1.35	86.4	0.01678 ± 31	4465	-24.9
18	-	-	3.004	1.41	90.2	0.01709 ± 32	4466	-24.7
average					84.9	0.01926		
1 $\sigma$					2.6	0.00206		
1	quartz	1.002	3.000	1.30	83.5	0.02145 ± 35	4467	-24.8
2	quartz	1.000	3.003	1.18	75.4	0.01995 ± 34	4470	-25.3
3	quartz	1.002	3.012	1.33	84.7	0.01953 ± 33	4471	-25.2
4	quartz	1.004	3.001	1.23	78.7	0.01866 ± 32	4472	-25.6
5	quartz	1.003	3.003	1.24	79.2	0.01981 ± 33	4473	-25.4
average					80.3	0.01988		
1 $\sigma$					3.8	0.00101		
1	quartz	0.500	3.001	1.34	85.9			
2	quartz	0.500	3.003	1.31	83.8			
3	quartz	0.500	3.000	1.33	85.1			
average					84.9			
1 $\sigma$					1.0			
1	SiC	0.0050	3.016	2.91	82.0	0.00991 ± 25	4474	-26.7
2	SiC	0.0051	3.000	2.83	78.3	0.00730 ± 22	4475	-26.8
average					80.2			
1 $\sigma$					2.6			

### 最近落下した隕石

Holbrook (L6) と Mt.Tazerzait (L5) の 2 つの隕石から saturated activity を求めた。結果を Table 3 に示す。Holbrook は 1912 年 7 月 19 日に Navajo Country, Arizona, USA に落下 (全重量 218 kg), Mt.Tazerzait は 1991 年 8 月 21 日に Mount Tazerzait, Niger に落下 (全重量 110 kg) した L-隕石である。隕石中の  $^{14}\text{C}$  は  $^{14}\text{N}$  からの壊変ではなく,  $\text{SiO}_2$  の O に宇宙線が照射して, O の核破碎反応によって  $^{14}\text{C}$  が生成すると考えられている。隕石ごとに化学組成, 酸素含有量が異なっており, また母隕石が大きい場合は, 照射された宇宙線強度が隕石の外側と内側で大きく異なっている (Born and Begemann, 1975), 個々の隕石が保持している saturated activity はそれぞれ異なる。しかし, 同じ L-隕石においては saturated activity について大きな相違はないと考えられるため, Holbrook と Mt.Tazerzait の  $^{14}\text{C}$  activity を宇宙空間にある L-隕石が保持している saturated activity とみなすことにする。

Holbrook について, Jull *et al.* (1989) では L6,  $^{14}\text{C}$  activity は 58.9 dpm/kg と報告されているのに対し, 後の彼の論文 (Jull *et al.*, 1998) では H6, 44 dpm/kg と報告されている (Table 4)。さらにリン酸処理を実験手順に追加したその後の彼の論文 (Jull *et al.*, 2000) でも Jull *et al.* (1998) の値が引用されており, Holbrook は H6 として認識されていることがわかる。しかし著者らが分析に用いた Holbrook は Hori Mineralogy から L6 として購入したものであり, H6 として報告しているのは Jull *et al.* (1998) のみである。構成成分からも Holbrook は一般的には L6 とされているので, 本研究においても L6 とみなして後の考察を進める。

Holbrook と Mt.Tazerzait の  $^{14}\text{C}$  activity はそれぞれ  $54.0 \pm 0.6$ ,  $59.0 \pm 1.6$  dpm/kg であり, 明らかな差が見られた (Table 3)。過去の研究では L6 の代表例として Bruderheim を挙げることが多く, その  $^{14}\text{C}$  activity は 50 dpm/kg 前後の値である (Table 4)。また, 報告されている L6 の saturated activity の平均は  $52.7 \pm 4.3$  であり, 本実験の Mt.Tazerzait と Holbrook の平均値  $56.5 \pm 3.2$  dpm/kg は過去のデータに比べると若干高い。しかし, 誤差範囲内で一意しているため, この値を本実験の L6 の 3 つの南極隕石の落下年代算出の際に用いても問題ないと考えられる。

Table 3  $^{14}\text{C}$  activities of two recently fallen meteorites

Sample	Mass of sample (g)	$\text{CO}_2$ ( $\text{cm}^3\text{STP}$ )	$\frac{(^{14}\text{C}/^{12}\text{C})_{\text{sample}}}{(^{14}\text{C}/^{12}\text{C})_{\text{standard}}}$	Lab.code # (NUTA2-)	$^{14}\text{C}$ (dpm/kg)
Holbrook (L6)	0.502	0.072	$31.491 \pm 0.04$	4673	$53.6 \pm 0.2$
	0.501	0.116	$19.626 \pm 0.04$	4674	$54.4 \pm 0.2$
					av. $54.0 \pm 0.6$
Mt.Tazerzait (L5)	0.501	0.146	$16.634 \pm 0.04$	4675	$57.8 \pm 0.2$
	0.501	0.228	$11.086 \pm 0.04$	4680	$60.1 \pm 0.2$
					av. $59.0 \pm 1.6$

Table 4 Saturated activities data measured on recently fallen meteorites.

Meteorite	Class	Fall	$^{14}\text{C}$ (dpm/kg)	Reference
Holbrook	L6	1912	$58.9 \pm 0.5$	Jull <i>et al.</i> (1989)
	(H6)		$(44 \pm 1)$	Jull <i>et al.</i> (1998, 2000)
Bruderheim	L6	1962	$49.8 \pm 1.8$	Brown <i>et al.</i> (1984)
			$54.6 \pm 1.8$	Cresswell <i>et al.</i> (1993)
			$46.8 \pm 1.4$	Jull <i>et al.</i> (1989)
			$47.6 \pm 2.0$	Knauer <i>et al.</i> (1995)
			$51.9 \pm 0.3$	Jull <i>et al.</i> (1993)
Leedey	L6	1943	$50.0 \pm 1.7$	Jull <i>et al.</i> (1989)
Mbale	L6	1996	$58.1 \pm 0.4$	Jull <i>et al.</i> (1998)
Peace River	L6		$55.1 \pm 1.0$	Cresswell <i>et al.</i> (1993)
Peekskill	L6	1992	$51.1 \pm 0.4$	Graf <i>et al.</i> (1996)
			av. $52.7 \pm 4.3$	

### 南極隕石

用いた南極隕石は Y-74190 (L6), Y-75097 (L6), Y-75108 (L6) である。それぞれの隕石の  $^{14}\text{C}$  activity, ならびに上記の saturated activity を用いて落下年代を算出した結果を Table 5 に示す。quartz 0.5g と 1.0g を加熱した時の両者の収率の平均値を用いて隕石の落下年代を算出した結果, quartz 1.0g の収率の平均値を用いて算出した年代値と 1yr 程度しか違いがなく, プランクの誤差に比べてかなり小さい。したがって Table 5 に示した値で考察を進める。南極隕石の  $^{14}\text{C}$  activity の値は, Minami and Nakamura (2002) の結果と比較すると高い値を示し, 約 2 kyr 若い落下年代を示した。Minami and Nakamura (2002) との実験手順の主な相違点は, 隕石試料のリン酸処理と, 隕石加熱時に同時に  $^{14}\text{C}$ -free  $\text{CO}_2$  で希釈することの 2 点である。隕石を酸処理することにより, 今まででは取り除ききれなかった weathering product がより多く取り除かれたことが考えられる。さらに  $^{14}\text{C}$ -free  $\text{CO}_2$  で希釈する際のコンタミネーションの低減や, 試料加熱時の炭素量増加に伴う隕石炭素損失の減少も要因であると考えられる。

Minami and Nakamura (2002) においてはこの 3 つの隕石試料に Y-75102 を加えた 4 つの隕石試料は Y-74190 のみ若干若い年代を示すものの, ペアである可能性があるとされている。本研究でも Y-75097 と Y-75108 の落下年代はほぼ一致しており, ペアである可能性が示された。したがって, Y-75097, Y-75102, Y-75108 は同一隕石起源と考えられる。一方で, Y-74190 の落下年代は約 1 kyr 程の違いがあり (Table 5), ペアとは言い難い結果が示された。しかし  $^3\text{He}/^{21}\text{Ne}$ ,  $^{22}\text{Ne}/^{21}\text{Ne}$ ,  $^{53}\text{Mn}$  の値から, Y-74190 は他の 2 つの隕石に比べて母隕石の深くに位置していた可能性が報告されている (Takaoka, 1987)。母隕石の深くに位置するほど saturated activity は高い値を示すため (Reedy, 1985; Graf *et al.*, 1990; Wieler *et al.*, 1996), Y-74190 に対

して遮蔽効果に対する補正をすると Y-75097, Y-75102, Y-75108 と同程度の年代を示す可能性はある。 $^{10}\text{Be}$  (半減期 160 万年) は  $^{14}\text{C}$  と同様, O の核破砕反応で生成し,  $^{10}\text{Be}$  と  $^{14}\text{C}$  の生成率はほぼ一定と考えられるので,  $^{10}\text{Be}$  を測定することにより, 母隕石における深度を明らかにすることが可能である。名古屋大学年代測定総合研究センターにおいては現在, タンデロン加速器質量分析計第 1 号機による  $^{10}\text{Be}$  測定が稼動しつつある。今後, 隕石の  $^{14}\text{C}$ - $^{10}\text{Be}$  測定を実施し, さらに詳細な落下年代を求めていく必要がある。

Table 5  $^{14}\text{C}$  terrestrial age measurements on some Antarctic Yamato meteorites.

sample	$\frac{(^{14}\text{C}/^{12}\text{C})_{\text{sam}}}{(^{14}\text{C}/^{12}\text{C})_{\text{standard}}}$	Lab. code # (NUTA2-)	$^{14}\text{C}$ (dpm/kg)	Terrestrial age (kyr)	Reference
Y-74190	$22.247 \pm 0.04$	4681	$51.0 \pm 1.0$	$0.8 \pm 0.5$	This work
(L6)	-	-	$40.8 \pm 1.2$	$2.8 \pm 0.7$	Minami and Nakamura (2002)
Y-75097	$9.653 \pm 0.03$	4683	$45.6 \pm 1.0$	$1.7 \pm 0.5$	This work
(L6)	-	-	$37.5 \pm 1.2$	$3.5 \pm 0.6$	Minami and Nakamura (2002)
Y-75108	$23.704 \pm 0.03$	4686	$45.2 \pm 1.0$	$1.8 \pm 0.5$	This work
(L6)	-	-	$35.9 \pm 0.8$	$4.1 \pm 0.4$	Minami and Nakamura (2002)
Y-75102	-	-	-	$4.1 \pm 0.7$	Minami and Nakamura (2002)
(L6)	-	-	$46.3 \pm 1.4$	$1.74 \pm 0.25$	Jull <i>et al.</i> (1984)
	-	-	$34.1 \pm 2.7$	$4.3 \pm 1.0$	Fireman (1983)

### 【まとめ】

南極隕石の地上落下  $^{14}\text{C}$  年代測定の試みを行った。RF 炉での隕石加熱時の酸素ガス流量を一定にし, 石英製の土台を使用することにより, 炭素抽出ラインのブランク値を低減ならびに一定化した。また,  $^{14}\text{C}$ -free に近い炭素を 0.052%含む標準鉄と隕石試料を RF 炉で同時に加熱し, 助燃と希釈を同時に行う方法に変更するなどの改良を加えた。従来の方法では, 炭素含有量が非常に低い隕石を分析する場合には炭素抽出ラインのブランク値がかなり影響していたが, これらの改良により, ブランクの影響がない, 信頼できる分析が可能となった。この炭素抽出ラインで最近落下した Holbrook と Mt. Tazerzait の炭素抽出を行い, saturated  $^{14}\text{C}$  activity を測定した。得られた  $56.5 \pm 3.2$  dpm/kg は今までに L-隕石で報告されている値に比べて若干高いものの, 誤差範囲内で一致した。この saturated activity を用いて Y-74190, Y-75108, Y-75097 の 3 つの南極隕石の落下年代を算出した。その結果, Minami and Nakamura (2002) の報告値に比べて約 2 kyr 若い落下年代を示したが, Jull *et al.* (1984) の値とはほぼ一致した。隕石試料のリン酸処理, ならびに隕石加熱時に同時に  $^{14}\text{C}$ -free  $\text{CO}_2$  で希釈する改良を行った



ことにより、より信頼性の高い落下年代が得られたと考えられる。このことから、名古屋大学の炭素抽出ラインが隕石の落下年代測定に十分な性能をもつようになったといえる。ペアリングについては、Y-75097 と Y-75108 は落下年代がほぼ一致し、同一隕石起源である可能性が示唆された。Y-74190 の落下年代は他の 2 つの隕石に比べて約 1 kyr 若く、ペアとは言い難い結果が示されたが、遮蔽効果に対する補正をすると同程度の落下年代を示す可能性があるため、今後  $^{10}\text{Be}$  を同時に測定し、母隕石における深度を明らかにすることが必要である。

#### 【謝 辞】

国立極地研究所からは貴重な隕石試料を分けていただきました。九州大学理学部の高岡宣雄教授には、多々御助言をいただきました。名古屋大学年代測定総合研究センターの吉岡茂雄氏には、破損した炭素抽出ガラスラインを修復していただき、同センターの丹生越子博士にはタンデトロン 2 号機による試料の測定をしていただきました。ここに厚く感謝申し上げます。

#### 引用文献

- Born, W. and Begemann, F. (1975)  $^{14}\text{C}$ - $^{39}\text{Ar}_{\text{Me}}$  correlations in chondrites and their pre-atmospheric size. *Earth Planet. Sci. Lett.* **25**, 159-169.
- Brown, R.N., Andrews, H.R., Ball, G.C., Imahori, Y., Milton, J.C.D. and Fireman, E.L. (1984)  $^{14}\text{C}$  content of ten meteorites measured by Tandem Accelerator Mass Spectrometry. *Earth Planet. Sci. Lett.* **67**, 1-8.
- Fireman, E.L. (1983) Carbon-14 ages of Antarctic meteorites. *Lunar Planet. Sci.* **14**, 195-196.
- Graf, Th., Signer, O., Wieler, R., Heppers, U., Sarafin, R., Vogt, S., Fieni, Ch., Pellas, P., Bonani, G., Suter, M. and Wolfli, W. (1990) Cosmogenic nuclides and nuclear tracks in the chondrite Knyahinya. *Geochim. Cosmochim. Acta* **54**, 2511-2520.
- Graf, Th., Marti, K. and Xue, S. (1997) Exposure history of the Peekskill (H6) meteorite. *Meteoritics and Planetary Science* **32**, 25-30.
- Jull, A.J.T., Donahue, D.J., Zabel, T.H. and Fireman, E.L. (1984) Carbon-14 ages of Antarctic meteorites with accelerator and small-volume counting techniques. *Proc. Lunar. Planet. Sci. Conf. 15th, J. Geophys. Res.* **89**, C329-335.
- JULL A. J. T. and DONAHUE D. J. (1988) Terrestrial age of the Antarctic shergottite, EETA 79001. *Geochim. Cosmochim. Acta* **52**, 1309-1311.
- Jull, A.J.T., Donahue, D.J. and Linick, T.W. (1989) Carbon-14 activities in recently fallen meteorites and Antarctic meteorites. *Geochim. Cosmochim. Acta* **53**, 2095-2100.

- JULL A. J. T., DONAHUE D. J., REEDY R. C. and MASARIK J. (1994) Carbon-14 depth profile in the L5 chondrite Knyahinya. *Meteoritics and Planetary Science* **29**, 649-738.
- Jull, A.J.T., Cloudt, S. and Cielaszyk, E. (1998)  $^{14}\text{C}$  terrestrial ages of meteorites from Victoria Land, Antarctica, and the infall rates of meteorites. In: Grady, M.M. et al., editors. *Meteorites: flux with time and impact effects. Geol. Society of London Special Publication* **140**, 75-91.
- Jull, A. J. T., Lal, D., Burr, G. S., Bland, P. A., Bevan, A. W. R. and Beck, J. W. (2000) Radiocarbon beyond this world. *Radiocarbon* **42**, 151-172.
- Lifton, N. A., Jull, A. J. T. and Quede, J. (2001) A new extraction technique and production rate estimate for in situ cosmogenic  $^{14}\text{C}$  in quartz. *Geochim. Cosmochim. Acta* **65**, 1953-1969.
- 南 雅代・中村俊夫 (2000) 南極隕石の落下  $^{14}\text{C}$  年代測定の試み. 名古屋大学加速器質量分析計業績報告書, **XI**, 100-112.
- Minami, M. and Nakamura, T. (2001) An extraction system to measure carbon-14 terrestrial ages of meteorites with a tandem AMS at Nagoya University. *Radiocarbon* **43**, 263-269.
- 南 雅代・中村俊夫 (2001) 南極隕石の落下  $^{14}\text{C}$  年代測定. 名古屋大学加速器質量分析計業績報告書, **XII** 134-145.
- Minami, M. and Nakamura, T. (2002) Carbon-14 terrestrial ages of meteorites. *Antarctic Meteorites*, **XXVII**, 86-88.
- National Institute of Polar Research. *Catalog of the Antarctic Meteorites*.
- Reedy, R.C. (1985) A model for GCR-particle fluxes in stony meteorites and production rates of cosmogenic nuclides. *Proc. Lunar. Planet. Sci. Conf. 15th, J. Geophys. Res.* **90**, C722-728.
- 高岡宣雄 (1987) 南極隕石の宇宙線生成核種と落下年代. 国立極地研究所編: 南極の科学. 6. 南極隕石. 古今書院. 228-242.
- Wieler, R., Graf, Th., Signer, P., Vogt, S., Herzog, G.F., Tuniz, C., Fink, D., Fifield, L.K., Klein, J., Middleton, R., Jull, A.J.T., Pellas, P., Masarik, J. and Dreibus, G. (1996) Exposure history of the Torino meteorite. *Meteoritics and Planetary Science* **31**, 265-272.

## Carbon-14 activities in recently fallen meteorites and Antarctic Yamato meteorites

Masayo Minami<sup>1)</sup>, Atsushi Terui<sup>1)</sup> and Toshio Nakamura<sup>2)</sup>

- 1) Department of Earth and Environmental Sciences, Graduate School of Environmental Studies, Nagoya University, Furo-cho, Chikusa-ku, Nagoya 464-8602, Japan
- 2) Center for Chronological Research, Nagoya University, Furo-cho, Chikusa-ku, Nagoya 464-8602, Japan

The storage time of a meteorite on the Earth's surface, its terrestrial age, can be determined by the decay of cosmic-ray-produced radionuclides. The radionuclide  $^{14}\text{C}$  is very useful for determining the age, especially younger age than  $\sim 30$  kyr. We have attempted measuring reliable  $^{14}\text{C}$  terrestrial ages of Antarctic meteorites by AMS at Nagoya University. There was a problem that a fixed blank exists when carbon was extracted from meteorite, and the blank effect was large due to little  $^{14}\text{C}$  in meteorite. So we improved the previous carbon extraction method to combust the mixture of a meteorite sample and an iron standard including nearly  $^{14}\text{C}$ -free carbon of 0.052% in the RF furnace (LECO HF-10) and extracted  $^{14}\text{CO}_2$  was diluted at the same time when the meteorite was combusted. The  $^{14}\text{C}$  activities of recently fallen meteorites of Holbrook (L6) and Mt. Tazerzait (L5) were measured by using the method. The mean value was  $56.5 \pm 3.2$  dpm/kg. This value is suitable, compared with the reported value of  $52.7 \pm 4.3$  dpm/kg for recently fallen L6 chondrites.

Terrestrial ages were measured for three Antarctic Yamato meteorite samples:  $0.8 \pm 0.5$  kyr of Y-74190 (L6),  $1.7 \pm 0.5$  kyr of Y-75097 (L6), and  $1.8 \pm 0.5$  kyr of Y-75108 (L6). These values are younger than the data by Minami and Nakamura (2002) but agree with the value reported by Jull *et al.* (1984). The five samples of Y-74190, Y-75097 and Y-75108, together with Y-75102 and Y-75271, are considered the same origin (Takaoka, 1987). From the results in this study and Minami and Nakamura (2002), Y-75097 and Y-75108 could be originated from the same meteoroid, while Y-74190 could have the different origin because its terrestrial age is younger. However, the large difference is not observed in major element compositions of these meteorites. Furthermore, there is a possibility that Y-74190 existed at deeper depth of a meteoroid than the other two samples from the data of  $^3\text{He}/^{21}\text{Ne}$ ,  $^{22}\text{Ne}/^{21}\text{Ne}$  and  $^{53}\text{Mn}$  (Takaoka, 1987). Y-74190 could have the near terrestrial age to Y-75097 and Y-75108, by shielding or depth corrections in a meteoroid. The shielding or depth corrections are needed for  $^{14}\text{C}$  terrestrial age determination of a meteorite sample if the meteoroid was very large or very small. By normalizing the saturated activity of  $^{14}\text{C}$  to that of  $^{10}\text{Be}$  in a meteorite, more correct terrestrial age for the meteorite could be obtained.