

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 4 月 18 日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K05345

研究課題名(和文)ジルコン・アパタイトを用いた迅速マルチ同位体測定システムの確立・検証・応用

研究課題名(英文) Establishment of rapid multiple isotope measurements using zircon and apatite

研究代表者

中野 伸彦 (Nakano, Nobuhiko)

九州大学・比較社会文化研究院・講師

研究者番号：20452790

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円

研究成果の概要(和文)：本課題ではジルコン分離の際の副産物であり、従来破棄されるアパタイトからSrおよびNd同位体比測定手法を確立した。測定は従来の同位体分析が必要である岩石の溶解や元素の分離を必要とせず、迅速・高精度に分析可能である。また、本課題で最も重要な点は、本手法を天然の花崗岩で検証したところである。本手法を用いて測定したSr, Nd, Hf同位体比は、天然の岩石試料から得られたデータとほぼ同じ値を示した。

研究成果の概要(英文)：This project aimed to set up and evaluate a new method for measuring multiple isotopes of Hf, Nd, and Sr using LA-MC-ICP-MS. Apatite as waste during zircon separation was used for Sr and Nd measurements that (reuse of apatite) is the most important point in this study. As the result, we got very good Sr and Nd data from standard apatite indicating the method was set up correctly. We also measured Hf, Nd, and Sr isotopes of zircon and apatite separated from natural granitic samples. The data are in good agreement with the data obtained from wet analyses using TIMS.

研究分野：地質学・岩石学

キーワード：アパタイト ジルコン Sr同位体 Nd同位体 Hf同位体 LA-MC-ICP-MS

# 様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19 (共通)

## 1. 研究開始当初の背景

一般に岩石学分野では、Sr, Nd, Hf 同位体比が解析に使用される。しかしながら、近年の岩石学的検討においては圧倒的に Hf 同位体比が使用される。理由の一つは、ジルコンが成長プロセスを累帯構造として記録することであり、変成岩中のジルコンに対してもコアから容易にマグマ形成時の情報を得ることが可能な点である。二つ目が最大の要因と考えられるが、前処理～測定 of 簡便さである。Hf 同位体比は、一般にレーザー溶出型四重極誘導結合プラズマ質量分析計 (LA-QP-ICP-MS) もしくは二次イオン質量分析計 (SIMS) によって、U-Pb 年代を測定した後のジルコンに対して、主に多重検出器誘導結合プラズマ質量分析計 (LA-MC-ICP-MS) を用いて測定され、その年代と Lu・Hf 含有量から Hf 同位体比初生値を算出する。従って、ジルコン分離～測定という非常にシンプルな手法となる。一方、Sr・Nd 同位体比初生値を得るためには、1) 何らかの方法で年代値を決定、岩石の融解、ICP-MS 等による定量分析、対象元素を抽出、表面電離型質量分析計 (TIMS) による同位体比分析、年代値・定量値・同位体比から初生値を求める。2) 複数鉱物を分離、溶解、対象元素を抽出、同位体希釈法を用いた TIMS による定量、同位体比分析、鉱物アイソクロン法により同位体初生値と年代を同時に取得する。いずれの方法でも、鉱物分離・融解・抽出という前処理が必要不可欠となる。そこで、本研究ではジルコン分離の副産物として濃集するアパタイトに注目した。

## 2. 研究の目的

ジルコンとアパタイトは重鉱物であり、容易に岩石から濃集可能である。中でもジルコンは、局所 U-Pb 年代や Hf 同位体比測定に有用であるため、近代岩石学における最重要鉱物の 1 つである。一方、アパタイトはジルコン分離の際には邪魔者であり、多くの場合ジルコン分離後の残砂として破棄される。しかしながら、アパタイトは高 Sr/Rb 比・高 Nd 含有量という特性から、局所分析を用いた同位体測定に高いポテンシャルを持つ。本研究は、ジルコン分離の際の副産物であるアパタイトを有効活用し、ジルコンと併せた U-Pb 年代、Sr・Nd・Hf 同位体測定システムの確立、その有効性の検証と実用化を目的とした。

## 3. 研究の方法

ジルコンとアパタイトのマルチ同位体測定手法を確立、ルーチン化し、それを天然の火成岩で検証した。具体的には、1) アパタイトの Sr、ジルコンの Hf 同位体比分析における空間分解能の向上、2) アパタイトの Nd 同位体比分析の立ち上げを行った。これには、多様な標準試料アパタイトを使用し、

主要・微量元素の累帯構造や同位体的不均質性を検出し、最適の標準試料を決定した。さらに感度を最大限まで高め、最も良い分析条件を決定した。また、その分析条件の下、3) 様々な年代と同位体比初生値をもつ国内花崗岩体のアパタイト・ジルコンの分析を行い、TIMS のデータと比較した。

## 4. 研究成果

本課題ではジルコン分離の際の副産物であるアパタイトから LA-MC-ICP-MS を用いた局所分析により、Sr および Nd 同位体比測定手法を確立した。分析精度は、粗粒アパタイトの表面電離型質量分析計 (TIMS) での比較分析により検証し、正確度や誤差において、岩石学的に十分に議論できる値であると確認した (図 1・図 2)。

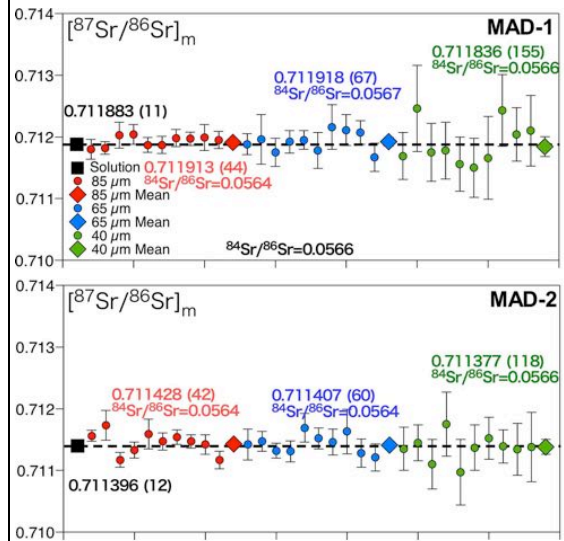


図1. 標準試料のSr同位対比組成の結果の一例。60ミクロン系で十分な精度が得られている。

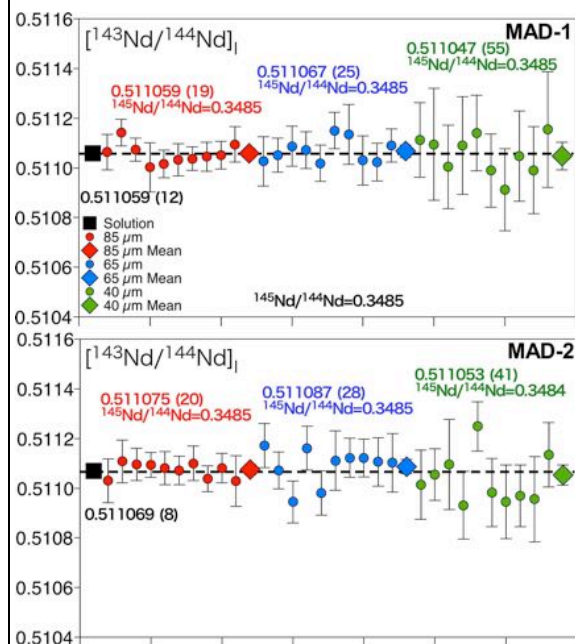


図2. 標準試料のNd同位対比組成の結果の一例。60ミクロン系で十分な精度が得られている。

さらに本課題で最も重要な点は、本手法を天然の花崗岩で検証したところである。天

然の花崗岩の Sr および Nd 同位体比を、粉碎・溶解・元素分離後 TIMS にて測定し、同じ岩石試料からアパタイトおよびジルコンを分離した。分離した両鉱物から、Sr, Nd, Hf 同位体比を測定した。得られたデータは、一部の不均質な Sr 同位体比をしめしたアパタイト（不均質性は上述した3つの理由が想定できる）を含む岩石を除いて、Sr や Nd とも TIMS で測定した結果と類似した値をしめしたとともに（図3・図4）、Hf 同位体比についても良好な値を得た。

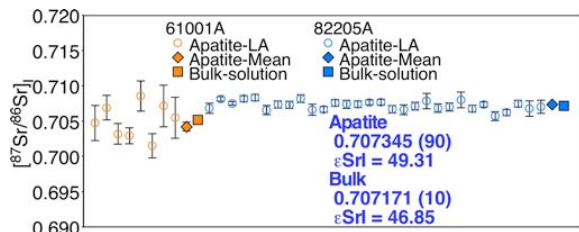


図3. 花崗岩中のアパタイトのSr同位体比組成の結果の一例。82205Aは全岩Sr同位体比と同じ組成をしめすが、61001Aは非常に不均質な組成をしめす。

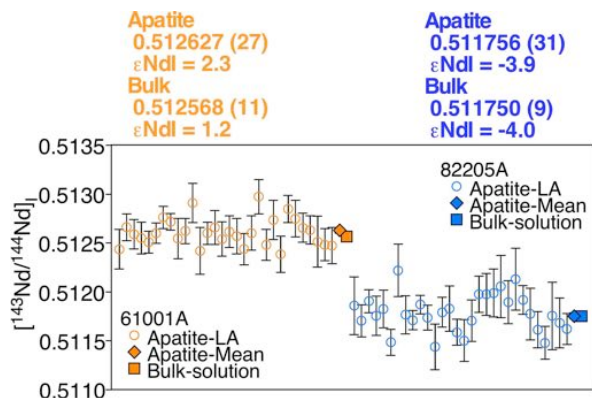


図4. 花崗岩中のアパタイトのNd同位体比組成の結果の一例。両試料ともは全岩同位体比とほぼ同様の値をしめす。

このことは、年代測定のために分離したジルコン+残渣に濃集したアパタイトを用いることで Sr, Nd, Hf 全ての同位体比を得ることが可能であることをしめすとともに、それらが、岩石の同位体比とほぼ同じであり、起源マグマやマグマの多様性の議論に非常に有用であることをしめしたといえる。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕 (計 20 件)

1. 土谷信高・武田朋代・足立達朗・中野伸彦・小山内康人・足立佳子 (2015) 北上山地の前期白亜紀アダカイト質火成活動とテクトニクス. 岩石鉱物科学, 44, 69-90.
2. Nakano, N., Osanai, Y., Owada, M., Satish-Kumar, M., Adachi, T., Jargalan, S., Yoshimoto, A., Syeryekhan, K., Boldbaatar, Ch. (2015) Multiple growth of garnet, sillimanite/kyanite and monazite during amphibolite facies metamorphism: implications for the P-T-t and tectonic evolution of the western Altai Range,

Mongolia. Journal of Metamorphic Geology, 33, 937-958.

3. Akasaki, E., Owada, M., Kamei, A. (2015) Crustal differentiation due to partial melting of granitic rocks in an active continental margin, the Ryoke Belt, Southwest Japan. Lithos, 230, 82-91.
4. 中野伸彦 (2016) ベトナムに分布する変成岩類の多様性とその形成過程. 岩石鉱物科学, 45, 26-32.
5. Setiawan, I.N., Osanai, Y., Nakano, N., Adachi, T., Yonemura, K., Yoshimoto, A. (2016) Prograde and retrograde evolution of eclogites from the Bantimala Complex in South Sulawesi, Indonesia, Journal of Mineralogical and Petrological Sciences, 111, 211-225.
6. Nakano, N., Osanai, Y., Nguyen Van Nam, Tran Van Tri (2016) Low-temperature eclogite-facies bauxite from the Red River shear zone in Vietnam: Its evolution and significance, Journal of Mineralogical and Petrological Sciences, 111, 196-210.
7. Owada, M., Osanai, Y., Nakano, N., Adachi, T., Kitano, I., Tran Van Tri, Kagami, H. (2016) Late Permian plume-related magmatism and tectonothermal events in the Kontum Massif, central Vietnam, Journal of Mineralogical and Petrological Sciences, 111, 181-195.
8. Otsuji, N., Satish-Kumar, M., Kamei, A., Takazawa, E., Tsuchiya, N., Grantham, G.H., Kawakami, T., Ishikawa, M., Osanai, Y. (2016) Sr and Nd isotopic evidence in metacarbonate rocks for an extinct island arc-ocean system in East Antarctica. Journal of Mineralogical and Petrological Sciences, 111, 170-180.
9. Osanai, Y., Sajeev, K., Nakano, N., Kitano, I., Kehelpannala, W.K.V., Kato, R., Adachi, T., Malaviarachchi, S.P.K. (2016) UHT granulites of the Highland Complex, Sri Lanka II: Geochronological constraints and implications for Gondwana correlation, Journal of Mineralogical and Petrological Sciences, 111, 157-169.
10. Osanai, Y., Sajeev, K., Nakano, N., Kitano, I., Kehelpannala, W.K.V., Kato, R., Adachi, T., Malaviarachchi, S.P.K. (2016) UHT granulites of the Highland Complex, Sri Lanka I: Geological and petrological background, Journal of Mineralogical and Petrological Sciences, 111, 145-156.
11. Kitano, I., Osanai, Y., Nakano, N., Adachi, T. (2016) Detrital zircon provenances for metamorphic rocks from southern Sor Rondane Mountains, East Antarctica: A new report of Archean to Mesoproterozoic zircons, Journal of Mineralogical and

- Petrological Sciences, 111, 118-128.
12. Satish-Kumar, M., Kawakami, T., Nakano, N. (2016) Metamorphism and continental growth: Introduction, Journal of Mineralogical and Petrological Sciences, 111, 47-49.
  13. 寺林 優・山本啓司・亀井淳志 (2017) 岩国一柳井地域の領家帯：島弧地殻における花崗岩質マグマの生成と流体の挙動. 地質学雑誌, 123, 599-612.
  14. Tsukada K., Yuhara M., Owada M., Shimura T., Kamei A., Kouchi Y., Yamamoto K. (2017) A low-angle brittle shear zone in the western Sør Rondane Mountains, Dronning Maud Land, East Antarctica — Implication for assembly of Gondwanaland. Journal of Geodynamics 111, 15-30.
  15. Watanabe Y., Kon Y., Echigo T., Kamei A. (2017) Differential fractionation of rare earth elements in oxidized and reduced granitic rocks: Implication for heavy rare-earth enriched ion-adsorption mineralization. Resource Geology 67, 35-52.
  16. Imaoka T., Kawabata H., Nagashima M., Nakashima K., Kamei A., Yagi K., Itaya T., Kiji M. (2017) Petrogenesis of an Early Cretaceous lamprophyre dike from Kyoto Prefecture, Japan: implications for the generation of high-Nb basalt magmas in subduction zones. Lithos 290-291, 18-33.
  17. 小山内康人・中野伸彦・足立達朗 (2017) 島弧—大陸地殻深部現象の研究進展：超高温変成作用の精密解析. 地質学雑誌, 123, 879-906.
  18. Miyahigashi, A., Hara, H., Hisada, K.I., Nakano, N., Charoentitirat, T., Charusiri, P., Khamphavong, K., Martini, R., Ueno, K. (2017) Middle Triassic foraminifers from northern Laos and their paleobiogeographic significance. Gribios, 50, 441-451.
  19. Nakano, N., Osanai, Y., Nguyen V. Nam, Tran V. Tri (2018) Bauxite to eclogite: Evidence for late Permian supracontinental subduction at the Red River shear zone, northern Vietnam. Lithos, 302-303, 37-49.
  20. Kitano, I., Osanai, Y., Nakano, N., Adachi, T., Fitzsimons, I.C.W. (2018) Detrital zircon and igneous protolith ages of high-grade metamorphic rocks in the Highland and Wannu Complexes, Sri Lanka: Their geochronological correlation with southern India and East Antarctica, Journal of Asian Earth Sciences, 156, 122-144.

[学会発表] (計 47 件)  
代表的なもののみ記載

1. Nobuhiko Nakano, Yasuhito Osanai, Nguyen Van Nam, Tran Van Tri, Metamorphosed bauxites from the Red River Shear zone, northern Vietnam: inferences and geological significance, 日本地球惑星科学連合 2015 年連合大会, 2015.05.
2. 中野伸彦, ベトナム, モンゴル, 南極地域における大陸の離合集散のテクトニクスの解明, 日本鉱物科学会 2015 年年会, 2015.09.
3. Nobuhiko Nakano, Yasuhito Osanai, Masaaki Owada, M. Satish-Kumar, Tatsuro Adachi, Jargalan Sereenen, Aya Yoshimoto, Syeryekhan Kundyz, Boldbaatar Chimedtseia, Puntsagdamba Nomintsetseg, Boldbaatar Dolzodmaa, Contrasting pressure-temperature records from the Altai Range, Mongolia; constraints from multiple growth of garnet, aluminosilicates and monazite, 日本地球惑星科学連合 2016 年連合大会, 2016.05.
4. 中野伸彦, 小山内康人, 足立達朗, 大和田正明, M. Satish-Kumar, S. Jargalan, K. Syeryekhan, モンゴル・アルタイ山脈, 粗粒藍晶石を含む泥質変成岩中の紅柱石と珪線石, 日本地質学会大 123 回学術大会, 2016.09.
5. Nobuhiko Nakano, Yasuhito Osanai, Masaaki Owada, M. Satish-Kumar, Tatsuro Adachi, Jargalan Sereenen, Syeryekhan Kundyz, Boldbaatar Chimedtseie, Paleozoic multiple thermal events in the Altai Range, Mongolia, JpGU-AGU Joint Meeting 2017, 2017.05.
6. 中野伸彦・亀井淳志・足立達朗・小山内康人, LA-MC-ICP-MS を用いたアパタイトの Sr/Nd 同位体比測定と花崗岩類への応用, 日本鉱物科学会 2017 年年会, 2017.09.

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
出願年月日：  
国内外の別：

○取得状況 (計 0 件)

名称：  
発明者：  
権利者：

種類：  
番号：  
取得年月日：  
国内外の別：

〔その他〕  
ホームページ等

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

中野伸彦 (Nakano, Nobuhiko)  
九州大学大学院比較社会文化研究院・講  
師

研究者番号：20452790

### (2) 研究分担者

亀井淳志 (Kamei, Atsushi)  
島根大学理工学研究科・教授

研究者番号：60379691

### (3) 連携研究者

( )

研究者番号：

### (4) 研究協力者

( )