

令和元年6月9日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2018

課題番号：16K13903

研究課題名(和文) フォッシルフルイドを用いた上部マントルの流体組成マッピング

研究課題名(英文) Mapping fluid composition in the upper mantle based on fluid geometry

研究代表者

中村 美千彦 (Nakamura, Michihiko)

東北大学・理学研究科・教授

研究者番号：70260528

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,600,000円

研究成果の概要(和文)：カンラン石と、NaClおよびCO₂を含む流体間の二面角を、最上部マントル条件(圧力1～4 GPa 温度800～100 °C)で決定した。沈み込み帯流体の主要な塩成分であるNaClは、低濃度(3～5 wt%)でも、高濃度(15～27.5 wt%)でも、二面角を優位に60°以下まで低下する効果を持つことがわかった。CO₂は1GPaでは二面角を増加させるが、マグネサイト・輝石と平衡に共存する2 GPa以上では、二面角は逆にCO₂を含まないH₂O流体の場合よりも低下させることがわかった。この結果、捕獲岩の粒間流体形状から流体組成を求めるのは難しいものの、幅広い条件で流体相は連結することが明らかとなった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

沈み込み帯などでは、マントルのような地下深部にも地下水(熱水)が存在しており、マグマの生成やマントルの流動などに大きな役割を果たしています。しかしどれだけの量で、どのように分布しているのか、よくわかっていません。それを理解するには、熱水が、岩石を構成する鉱物に弾かれて水滴のように分布するのか、それとも、鉱物をよく濡らして沁み込みやすいのかを知ることが重要です。この研究では、従来よりも幅広いマントルの条件を再現し、熱水が岩石中によく染み込むことを明らかにしました。この結果は、絶縁体であるはずの岩石からなるマントルが、電気を良く通すという最近の観測結果をうまく説明できます。

研究成果の概要(英文)：We precisely obtained dihedral angles between olivine and NaCl- (up to 27.5 wt%) and CO₂ (XC₂= 0.33 and 0.5)- bearing aqueous fluids at 1-4 GPa and 800-1100 °C to reveal the fluid connectivity in the upper mantle. NaCl is now recognized as an important solute in fluids in subduction zone. We found that NaCl significantly decreases the dihedral angle down to < 60° at the pressure and temperature conditions corresponding to the shallow mantle wedge. We found that only 3-5 wt% of NaCl has similarly large effects on the dihedral angle with olivine to that of 15-27.5 wt%. The CO₂ increases the dihedral angle at 1 GPa, but at pressures >2 GPa, where magnesite and pyroxene are stable, dihedral angles were smaller than those for pure H₂O fluid. Although these results show that it is difficult to obtain the fluid composition from the pore geometry of xenoliths, it is revealed that aqueous fluids are highly connectable in a wide range of the uppermost mantle conditions.

研究分野：岩石学・火山学

キーワード：二面角 流体 カンラン石 捕獲岩 塩濃度 二酸化炭素 連結度

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

(1) 地球内部に存在する水 (H_2O , OH) は、テクトニクスや地震発生、マグマ生成、地球の化学進化から生命の起源に至るまで、さまざまな地球科学現象においてきわめて重要な役割を果たしている。近年の揮発性成分の研究は、さらに二酸化炭素に代表される炭素成分を含んだ CHO 系としての挙動に、その主流が移りつつある。地球深部に行くほど炭素の役割は増加し、「Deep Carbon Cycle」は、地球の大気組成やその進化とも密接に関係する、21 世紀の地球深部科学の極めて重要な研究分野となっている。

(2) 揮発性成分の存在量や分布を調べる主なアプローチには、電気伝導度などの地球物理学的観測値から推定する方法、マグマの融解関係や岩石のレオロジーなどに関する高圧実験と理論から制約する方法、実際の岩石試料を直接分析する方法、の三種類があり、それぞれに発展することが期待されている。このうち岩石試料を用いる方法では、揮発性成分はその名の通り、地球深部の高圧条件下に存在した岩石やマグマが地表にもたらされる間に多くが揮発して失われてしまうため、鉱物中の流体包有物やメルト包有物、あるいは結晶構造内中に微量に固溶した成分を直接分析することが一般的である。しかし、鉱物中の水素の拡散は非常に速いため、包有物形成当時の正確な揮発性成分組成は保持されにくいという問題も指摘されている。また流体・メルト包有物は、鉱物に取り込まれた時期が必ずしも明確でないという課題もあった。

2. 研究の目的

(1) そこで本研究では、捕獲岩の鉱物粒間に存在していた流体、いわば“Fossil fluid”の形状が、鉱物 流体間の二面角によって決定され、その値が流体組成を敏感に反映するという性質を用いて、流体相の組成を推定する方法の確立を目指した。そのために、まず CHO 系、CHO+NaCl 系流体と代表的なマントル鉱物間の二面角データを、高温高圧実験により拡充することを目的とした。さらにこの方法を世界各地の捕獲岩サンプルに適用し、上部マントルの流体組成マップを作成することを目指した。

(2) 後に記述するように、二面角測定実験を進めることによって、NaCl が二面角を下げる効果は極めて大きく、僅か 3~5 wt% でも 15~27.5 wt% に迫る大きな効果があることが判明した。これは、二面角は一定以上の塩濃度には鈍感であることを示し、フォッシルフルイドの形状から流体組成を求めるといった当初の目的からいえばネガティブな結果である。一方、マントルに流体が少量でも存在すれば連結してしまうことになるので、沈み込み帯の楔形マントルをはじめとする、上部マントルの電気伝導度の観測結果を解釈するためには、極めて大きな重要な結果である。そこで、実験の圧力範囲を当初予定よりも倍に拡大し (2 GPa ~ 4GPa)、多成分系流体の二面角を、より徹底的・系統的に調べることにした。

3. 研究の方法

(1) カンラン石 - CHO 系流体、カンラン石 - NaCl 水溶液の二面角測定実験を行う。電気的極性の強い H_2O と無極性の CO_2 は、典型的に非理想性の強い混合挙動を示し、CHO 系の流体は、熱力学的な性質がその組成に大きく依存する。鉱物と粒界の界面エネルギーもそのような性質の一つであり、実際、石英やカンラン石と流体間の二面角は、 CO_2 濃度が増加するほど大きくなるとされていた。また地球深部流体中の代表的な塩類である NaCl は、その逆に二面角を小さくする可能性があることが知られている (e.g. Watson & Brenan, 1987)。 H_2O 一成分の流体やメルトと、鉱物との二面角データは多数報告されているが、 CO_2 や塩濃度の組成依存性の実験データになると、その数は激減して定性的に理解されている程度である。 CO_2 -NaO-NaCl 系では、全く実験データは存在せず、新たな実験が必要である。

(2) 二面角測定高圧実験は、手法が確立しているピストンシリンダー装置により、圧力：1.0 ~ 4.0 GPa、温度：800~1100、流体組成：NaCl 濃度 3, 5, 15, 25 wt%、 $X_{CO_2} = 0, 0.33, 0.5$ 、鉱物相：かんらん石 (Fo# ~ 90)、保持時間：72~192 時間の条件で行った。

CHO 流体は、マントル岩石のソリダス温度を大きく低下させ、その幅は流体組成 (CO_2/H_2O 比) に大きく依存する。実験温度はこの点に注意して設定した。出発物質は、ゾルゲル法により合成した極細粒の非晶質粉末を用いた。なお、2GPa 以上では、マグネサイト (菱苦土石) が形成される。

(3) 実験カプセルには、蓮根状の金属円筒を用いることで、一回の実験により、流体組成の異なる 2~4 種類の系について実験をすることを可能とした。二面角は、右図 1 の例に示すように、電界放出型走査電子顕微鏡を用いた高倍率観察を行い、一試料について、200 以上の二面角について反射電子像を撮影し、二次元断面効果の統計処理を行って求めた。ランダムに多数の

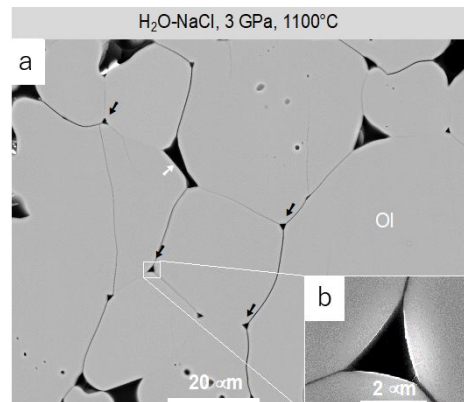


図 1 a) 1100 °C, 3 GPa における高温高圧実験産物の反射電子像の例。 b) カンラン石多結晶体の粒間に存在する H_2O -NaCl 系流体形状の拡大。

二面角を選択することで、結晶方位による異方性を含むデータの平均値として求めた。

4. 研究成果

(1) ドイツ西部・アイフェル火山で採取した 100 を超えるマントル捕獲岩を、表面と切断面の肉眼鑑定によって、全体のバリエーションを代表すると思われる約 20 のサンプルについて岩石薄片を作成し、偏光顕微鏡観察を行った。その結果、捕獲岩の多くは、直線的な外形を持ち、表面近傍に、healed crack タイプの流体包有物が特に多数存在することを見出した。これは、捕獲岩粒界に含まれる流体が、捕獲岩の破碎の際に取り込まれたことを示す。すなわち、捕獲岩に残されるフォッシルフルイドの形状は、ホストマグマの発生領域（部分熔融領域）の平均的な揮発性成分組成を反映していると考えられる。

(2) NaCl や CO₂ を含まない純 H₂O の系では、二面角は温度・圧力の上昇とともに低下した。また NaCl は、実験を行った上部マントルの温度 圧力の全ての領域において、カンラン石と流体間の二面角を大きく低下させる効果があることがわかった。下図 2 では、ほぼ飽和溶解度に相当する 27.5 wt% の実験結果を示す。H₂O-NaCl 系の二面角は、いずれの実験条件でも、60° より優位に低くなることがわかる。NaCl の効果は、より濃度が低くても大きな変化はなく、5 wt% 程度で最大を示すことが本研究によってわかっている。また、マントルを構成する主要なカンラン岩（レールゾライト・ハルツパージャイト）は、カンラン石の他に輝石やスピネルなどを含むが、多結晶岩石中の流体相の連結度は、60% 以上を構成する粒子と流体との二面角で判断できることがパーコレーション理論からわかっている。つまり、本実験の結果は、マントルカンラン岩中に流体相が存在すれば、ほぼ必ず連結することを意味している。本実験結果は国際学術誌に投稿し、現在査読結果を受けて改訂中である。

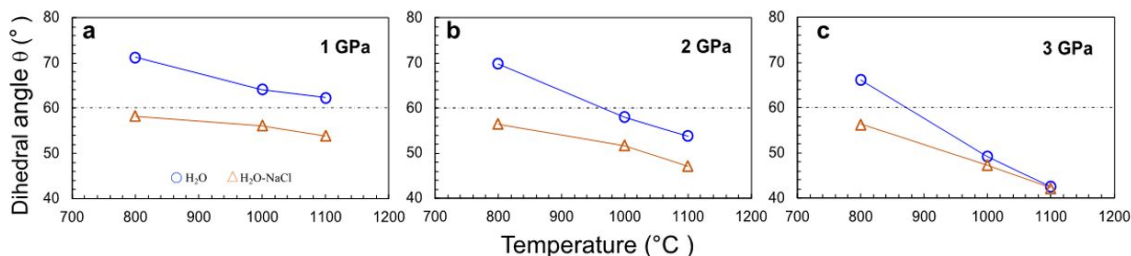


図 2 カンラン石と H₂O-NaCl 系流体 (NaCl 濃度 27.5wt%) との二面角測定結果

(3) CO₂ を含む流体の系では、2 GPa 以上ではマグネサイトが安定となり、CO₂ とカンラン石が反応して同時にエンスタタイトが生成した。マグネサイト・輝石が生成しない 1 GPa においては、二面角は先行研究で示されていた通り、CO₂ 濃度とともに増加した。また新たに、CO₂ 濃度が一定の場合には、二面角は温度・圧力の上昇とともに低下すること、ただしそれでも純水の系よりは大きいことが明らかとなった。さらに、H₂O-CO₂-NaCl 系では、NaCl が二面角を低下させる効果の方が、CO₂ が二面角を増加させる効果よりも大きいことがわかった。

(4) 一方、マグネサイトが共存する高压条件では、二面角は NaCl や CO₂ を含まない場合と同程度か、むしろ小さいことがわかった。これは CO₂ 成分の添加が、必ずしも二面角を増加させず、低下させる場合があることを示す。

(5) 研究の背景に記述したように、マントルに存在する水の存在量や存在形態をマッピングするには、地震波速度が重要な情報源の一つとなっている。とりわけ、縦波・横波速度の比、あるいはポアソン比は、地震波トモグラフィにおいて温度の不均質と流体の存在とを区別する上で重要である。前弧楔形マントルなど比較的低温のマントルでは、H₂O 流体はカンラン岩と反応して含水鉱物を形成するため、含水鉱物の地震波速度を理解することが重要となる。本研究の過程において、かんらん岩と流体との反応実験を行う中で、従来、アンチゴライトのみが平衡と考えられていた化学組成・温度圧力領域でも、斜方輝石が選択的に反応して、系の実効的な化学組成が SiO₂-rich となり、準安定相のタルク（滑石）が生成することを発見した。タルクは準安定相ながら、水の供給が不十分なリソスフェアでは安定に存在し得ると考えられ、たとえば西アルプス南部沈み込み帯などの地震波速度異常をうまく説明することができる。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 2 件)

- Nakatani T., Nakamura M., (2019) Preferential Orthopyroxene Serpentinization and Implications for Seismic Velocity Interpretation in the Fore Arc Mantle, *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, 124, <https://doi.org/10.1029/2018JB016853>
- Yasuhiro Yanagida, Michihiko Nakamura, Atsushi Yasuda, Takeshi Kuritani, Mitsuhiro Nakagawa, Takeyoshi Yoshida (2018) Differentiation of a Hydrous Arc Magma Recorded in Melt Inclusions in Deep Crustal Cumulate Xenoliths from Ichinomegata Maar, NE Japan, *Geochemistry, Geophysics, Geosystems* DOI:10.1002/2017GC007301

〔学会発表〕(計 6 件)

Yongsheng HUANG, Takayuki Nakatani, Michihiko Nakamura, Catherine McCammon, Fluid circulation in the forearc mantle wedge inferred from the dihedral angle in an olivine-H₂O-NaCl system, 日本地球惑星科学連合大会, 千葉, 2019年5月26 - 30日

T. Nakatani, M. Nakamura, Preferential Orthopyroxene Serpentinization and Implications for Seismic Velocity Interpretation in the Fore Arc Mantle, 日本地球惑星科学連合大会, 千葉, 2019年5月26 - 30日

Yongsheng HUANG, Takayuki NAKATANI, Michihiko NAKAMURA, Catherine McCAMMON, Experimental constraints on the dihedral angle in olivine-H₂O-CO₂ system in subduction zones, European Geosciences Union General Assembly, 7-12 April 2019, Vienna, Austria

Yongsheng HUANG, Takayuki NAKATANI, Michihiko NAKAMURA, Catherine McCAMMON, Shallow fluid circulation in mantle wedge inferred from the dihedral angle between olivine and NaCl-bearing aqueous fluid system, American Geophysical Union Fall Meeting, 10-14, December 2018, Washington, D.C. United States of America

Yongsheng HUANG, Takayuki Nakatani, Michihiko Nakamura, Catherine McCammon, Experimental constraints on the dihedral angle between olivine and multicomponent aqueous fluids in the upper mantle conditions, 日本地球惑星科学連合大会, 千葉, 2018年5月20 - 24日

中谷 貴之, 中村 美千彦, An experimental study on the serpentinization reaction in the olivine + aluminum-free orthopyroxene system under the antigorite-stable P-T conditions, 日本地球惑星科学連合大会, 千葉, 2018年5月20 - 24日

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等 <http://epms.es.tohoku.ac.jp/arcmag/>

6. 研究組織

(1) 研究分担者

なし

(2) 研究協力者

なし