

令和 6 年 6 月 19 日現在

機関番号：82706

研究種目：若手研究

研究期間：2019～2023

課題番号：19K14834

研究課題名（和文）流体包有物分析から読み解く大気CO₂分圧の変動研究課題名（英文）Secular change of atmospheric pCO₂ based on bulk fluid inclusion analysis

研究代表者

齋藤 拓也（Saito, Takuya）

国立研究開発法人海洋研究開発機構・超先鋭研究開発部門（超先鋭研究開発プログラム）・准研究員

研究者番号：50760617

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、地球の歴史を通じた大気中の二酸化炭素（pCO₂）変動を明らかにするために、4500万年前から35億年前までの熱水性石英中の流体包有物を分析を行った。流体包有物の溶存ガス分析やAr同位体分析、溶存イオン分析を組み合わせることにより、24億年前と35億年前のpCO₂を推定した。特に、35億年前の試料では高いCO₂濃度が確認され、pCO₂が太古代から原生代にかけて減少していることが示唆された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究の成果は、地球温暖化などの目の前にある環境問題を、地球の46億年の歴史を通じて理解を深める上で重要です。また、太陽系外で地球型惑星を調査する際にも、本研究の様に地球環境の変動の幅を理解することは重要です。

本研究手法は、既存の古土壌やモデル計算に基づいたpCO₂推定とは独立しているため、pCO₂変動の経年変化を補強もしくは、新たな変動パターンを提供することができます。さらに幅広い時代の試料が産しているため、広範な年代幅の推定値を提供することができます。

研究成果の概要（英文）：In this study, to reveal the variations in atmospheric carbon dioxide (pCO₂) throughout Earth's history, we analyzed fluid inclusions in hydrothermal quartz ranging from 45 million to 3.5 billion years old. By combining analyses of dissolved gases in fluid inclusions, Ar isotopic ratios, and dissolved ions, we estimated pCO₂ levels for 2.4 billion and 3.5 billion years ago. Notably, the samples from 3.5 billion years ago exhibited high CO₂ concentrations, suggesting that pCO₂, a driver of global warming, has decreased from the Archean to the Proterozoic eons.

研究分野：地球化学

キーワード：熱水性石英 流体包有物 大気CO₂濃度 海洋底熱水活動 地球史

1. 研究開始当初の背景

近年、 $p\text{CO}_2$ の増加に伴う地球温暖化が注目されているが、地球の歴史を見渡すと、40~30 億年前の地球環境は、当時の $p\text{CO}_2$ が現在の 100 倍程度であるため、太陽輝度が弱かったにも関わらず、温暖であったと考えられている[1]。この様に、 $p\text{CO}_2$ は、地球表層の環境を左右する重要なパラメーターである。しかし、地質学的証拠に基づく $p\text{CO}_2$ 変動の推定は、古土壌を用いた推定[2]に限られているため、この推定の確度は独立した手法により検証されておらず、また、古土壌が産する時代制約から 28 億年前以前の $p\text{CO}_2$ を推定できない。これらの問題点を克服し、 $p\text{CO}_2$ 変動を明らかにするためには、次の 2 つの条件を満たす $p\text{CO}_2$ 変動の推定法が必要である。(ア) 古土壌とは独立した推定である。(イ) 古土壌より広い年代幅の $p\text{CO}_2$ が推定できる。

28 億年前以前の大気 N_2 分圧や大気中の希ガス同位体組成の推定は、海洋底熱水変質作用により沈殿した熱水性石英中の流体包有物の溶存ガス分析、Ar 同位体分析により行われてきた。しかし、 CO_2 は N_2 や希ガスと異なり、海水に多量に溶解込み、その溶解度も海水組成に強く影響されるので、 $p\text{CO}_2$ を見積もるためには、流体包有物の溶存ガス分析、Ar 同位体分析による流体包有物の CO_2 濃度の推定に加え、溶存イオン分析を行い、海水主成分組成を推定する必要がある。また、研究代表者は、この熱水性石英に着目し、これまで 4500 万年~35 億年前までの試料採取してきたため、この $p\text{CO}_2$ 推定手法を確立することにより、地球史を通した $p\text{CO}_2$ 変動の推定が可能となる。

2. 研究の目的

4500 万年前の流体包有物の溶存ガス分析、Ar 同位体分析、溶存イオン分析による $p\text{CO}_2$ 推定法を確立すること。6~35 億年前の熱水性石英中の流体包有物を用いた $p\text{CO}_2$ 変動の推定することとした。

3. 研究の方法

熱水性石英試料に対し、記載並びに前処理を行う。その後、石英試料をガス分析ラインに接続された破砕機に導入し、試料を破砕し、流体包有物からガス成分を抽出する。 CO_2 、 H_2O 量の定量には差圧計を用い、Ar 同位体比分析には四重極型質量分析計 (Pfeiffer Vacuum 社製 Prisma Plus QMG 220) を用いる。ガス分析後の石英試料を回収し、超純水を加えて晶出した塩を溶かし、イオンクロマトグラフィー (Dionex 社製 ICS1600、ICS2100) による溶存イオン分析を行い、包有物中の溶存イオンを定量した。

4. 研究成果

試料の記載及び前処理については、4500 万年前、6 億年前、24 億年前、26 億年前、32 億年前、35 億年前の試料に対して行った。流体包有物の均質化温度測定を行ったところ、4500 万年前の試料の均質化温度が 110-420 であったのに対し、他の時代の流体包有物の均質化温度が 80-180 であった。4500 万年前の試料は沸騰した流体を捕獲していることを示唆しており、他の時代の流体包有物とは形成環境が異なっていることを示唆した。また、32 億年前と 35 億年前の試料には、液体 CO_2 が包有物として保存されていた。

記載した試料の中から 4500 万年前、24 億年前、35 億年前の試料に対し、流体包有物のガス分析、Ar 同位体比分析、溶存イオン分析を行った。4500 万年前の試料では Ar 同位体比を得ることはできたが、水と CO_2 が微量であったため、これらの定量には至らなかった。他の試料の $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ と CO_2 濃度に関しては、35 億年前の試料は $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ が下がるに従い、 CO_2 濃度が高くなる傾向を示した。24 億年前の試料では、この様な相関が見られず、 CO_2 濃度はほぼ一定であった(図 1)。

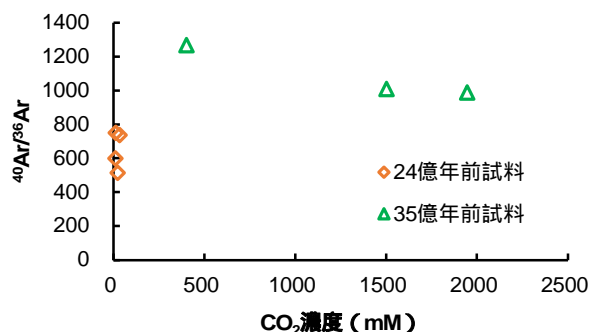


図 1 流体包有物の Ar 同位体比と CO_2 濃度

続いて、粉砕した石英試料を用いて、流体包有物の溶存イオン分析を行った(図 2)。4500 万年前の試料については、氷点測定の結果から海水と同程度の塩濃度であることがわかっていたので、Cl 濃度を海水と合わせる様に補正した。

結果、4500 万年前の流体包有物は Na と K がほぼ海水と同じで、Ca と Mg が枯渇した組成を持っていることが分かった。24 億年前の試料と 35 億年前の試料において、Na/K や Mg 濃度から海水組成の復元を試みたが、これらの値と Ca 濃度の間に相関は見られなかった。溶存イオン分析とガス分析を組み合わせることによって、流体包有物の CO₂ 濃度と Ca 濃度を比較することができた(図 3)。結果、35 億年前の試料において CO₂ 濃度と Ca 濃度が相関することが分かった。一般に CO₂ は火山ガスからの寄与を想定するが、太古代においては海洋の CO₂ 濃度が高かったことも考慮に入れる必要がある。海水と熱水を区別する指標となる Na/K や Mg 濃度と、CO₂ 濃度や Ca 濃度の間に相関が観察されなかったため、現状では海水組成を復元するには至らなかった。

仮に、35 億年前の CO₂ 濃度を 500mM、Ca 濃度を 200mM、塩濃度を 15wt%、海水温を 2 とした場合、この当時の pCO₂ は 5 bar 程度となる。一方で、24 億年前の CO₂ 濃度を 20mM、Ca 濃度を 500mM、塩濃度を 15wt%、海水温を 2 とした場合、当時の pCO₂ は 0.1 bar 程度となる。モデル計算による pCO₂ 濃度の推定値と比較すると、本研究の推定値は 35 億年前では高く、24 億年前では調和的な値となっている。また、古土壌による古原生代の pCO₂ の推定値と本研究の 24 億年前の推定値も調和的である。

4500 万年前の試料のガス分析の一部が達成できなかったため、研究目的の一つである、pCO₂ 推定法の確立を達成することができなかった。しかし、24 億年前と 35 億年前の試料については pCO₂ の推定し、時代とともに pCO₂ が低下していることを示唆する結果を得ることができた。今後、各時代の測定試料を増やすことや、炭素同位体測定などの同位体のデータを追加することにより、当時の熱水環境が明らかにされるとともに海水の CO₂ 濃度や塩濃度や金属元素濃度が明らかになると期待される。また、他の時代の試料に本研究手法を適用することにより、過去の pCO₂ の経年変化や熱水環境の変化が明らかになることが期待される。

< 引用文献 >

- [1] Kasting et al., 1992, Science 259, 922-926
- [2] Kanzaki and Murakami, 2015, Geochim. Cosmochim. Acta 159, 190-219

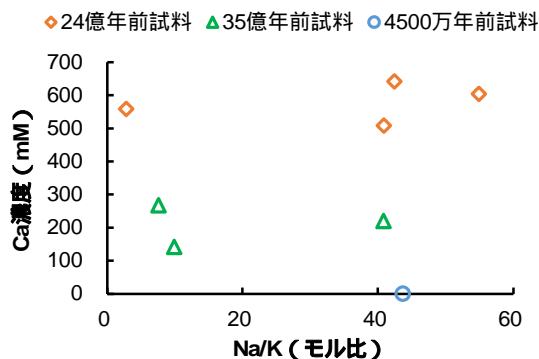


図 2 流体包有物の Na/K と Ca 濃度

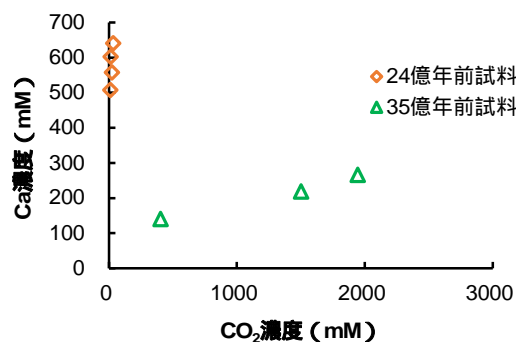


図 3 流体包有物の CO₂ 濃度と Ca 濃度

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Nishizawa Manabu, Saito Takuya, Makabe Akiko, Ueda Hisahiro, Saitoh Masafumi, Shibuya Takazo, Takai Ken	4. 巻 11
2. 論文標題 Stable Abiotic Production of Ammonia from Nitrate in Komatiite-Hosted Hydrothermal Systems in the Hadean and Archean Oceans	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Minerals	6. 最初と最後の頁 321 ~ 321
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3390/min11030321	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計10件（うち招待講演 1件/うち国際学会 6件）

1. 発表者名 関根 康人, ポストバーグ フランク, 丹 秀也, 渋谷 岳造, 齋藤 拓也
2. 発表標題 エンセラダス地下海のリン濃集と太陽系での前生命化学進化の多様性
3. 学会等名 日本惑星科学会2022年秋季講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 SEKINE YASUHIRO, Postberg FRANK, Klenner Fabian, Glein Christopher R, Zou Zenghui, Abel Bernd, Hillier Jon, Khawaja Nozair, Kempf Sascha, Nolle Lenz, SAITO TAKUYA, Schmidt Juergen, SHIBUYA TAKAZO, Srama Ralf, Tan Shuya
2. 発表標題 Detection of Phosphate in Enceladus' Ocean: Its Implications for Geochemistry and Habitability
3. 学会等名 AGU Fall Meeting 2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 工藤 久志, 上田 修裕, 齋藤 拓也, 渋谷 岳造
2. 発表標題 エンケラドスの天体形成時の条件を模擬したメタン生成実験
3. 学会等名 日本地球化学会 第68回年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 須田 好、阿瀬 貴博、宮入 陽介、横山 祐典、松井 洋平、上田 修裕、齋藤 拓也、佐藤 友彦、澤木 佑介、中井 亮佑、玉木 秀幸、高橋 浩、森川 徳敏
2. 発表標題 Radiocarbon and noble gas isotope study to constrain origin of methane in Hakuba Happo serpentinite-hosted hot spring
3. 学会等名 JpGu - AGU Joint Meeting 2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 渋谷 岳造、沼保 壮太、上田 修裕、菊池 早希子、高谷 雄太郎、齋藤 拓也、阿部 真理子、富田 勝、高井 研
2. 発表標題 エンセラダスの水素に富む海底熱水環境
3. 学会等名 JpGu - AGU Joint Meeting 2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 西澤 学、齋藤 拓也、眞壁 明子、渋谷 岳造、高井 研
2. 発表標題 海底熱水環境における非生物学的硝酸還元反応と初期地球窒素循環
3. 学会等名 JpGu - AGU Joint Meeting 2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 西澤 学、齋藤 拓也、眞壁 明子、渋谷 岳造、高井 研
2. 発表標題 初期地球深海熱水環境における非生物学的硝酸還元反応とその意義
3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2019年大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 西澤 学, 斎藤 拓也, 眞壁 明子, 渋谷 岳造, 高井 研
2. 発表標題 コマチアイト熱水環境における非生物学的硝酸還元と初期地球窒素循環
3. 学会等名 日本地球化学会第65回年会 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Saito, T., Qiu, H-N., Shibuya, T., Komiya, T. & Maruyama, S.
2. 発表標題 Constraints on the origin of fluid trapped in hydrothermal quartz from 2.4 Ga Ongeluk Fm., South Africa
3. 学会等名 Goldschmidt 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Suda K, Aze T, Miyairi Y, Yokoyama Y, Matsui Y, Ueda H, Saito T, Sato T, Sawaki Y, Nakai R, Tamaki H, Takahashi H & Morikawa N
2. 発表標題 Origin of Methane in Hakuba Happo Serpentinite-Hosted Hot Spring: 14C and Noble Gas Study
3. 学会等名 Goldschmidt 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------