

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 22 日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2011～2013

課題番号：23684042

研究課題名(和文) 蛇紋岩化作用の反応機構と海洋リソスフェアにおける流体輸送プロセス

研究課題名(英文) Mechanism of serpentinization and fluid transport in oceanic lithosphere

研究代表者

岡本 敦 (Atsushi, Okamoto)

東北大学・環境科学研究科・准教授

研究者番号：40422092

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 16,600,000円、(間接経費) 4,980,000円

研究成果の概要(和文)：蛇紋岩化作用は地球内部に水を持ち込む重要なプロセスであるが、その反応メカニズムや実効的な反応速度はよく分かっていない。本課題では、かんらん石の粉末、および焼結体を用いた水熱反応実験を行い、蛇紋岩化反応の進行と破壊と物質移動の関係を検討した。粉末を用いた実験では、かんらん石粒子が割れながら反応が進行すること、また、焼結体の実験では空隙率によって高反応帯の幅が変化することを見いだした。実験で生成した反応組織は天然の蛇紋岩組織と多くの類似点を持つ。本実験結果は、海洋リソスフェアの蛇紋岩化作用において、反応に伴う体積膨張と破壊、物質移動(流体の供給速度)が反応の進行に重要であることを示唆する。

研究成果の概要(英文)：Serpentinization is an important process for global water circulation; however, the mechanism of serpentinization is still poorly understood. In this study, we carried out the hydrothermal experiments on serpentinization in the olivine-H₂O system, by using both olivine powder and olivine sintered aggregate. We found that serpentinization proceeds effectively with fracturing of olivine grains, and reaction progress of sintered olivine aggregate changes depending on initial porosity. Similarity in the reaction texture between natural and synthetic serpentinites indicates that volume expansion, fracturing and effective mass transport becomes important during the hydration of oceanic lithosphere.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：地球惑星科学・岩石・鉱物・鉱床学

キーワード：蛇紋岩化作用 水熱反応実験 加水反応 焼結体 かんらん石 反応一体積膨張

1. 研究開始当初の背景

海洋リソスフェア、ウェッジマントルにおいて進行する蛇紋岩化作用は、地球内部における水循環、地震の発生、火成活動に非常に大きな影響を与える。蛇紋岩化作用は最大50%もの固体の体積膨張を伴う典型的な加水反応であるが、固体地球内部でどのように反応が広域的に進行するかは明らかではない。その理由は、個々の反応メカニズムとともに、物質移動や体積膨張がどのように関連しているかが明確ではないためである。

2. 研究の目的

本研究では、マントル物質（かんらん石、輝石の粉末、焼結体）と流体の水熱反応実験をおこない、詳細な反応機構と、反応-体積膨張-周囲の岩石の変形との関係性を評価し、反応の進行をコントロールする要因を明らかにする。最終的に、海洋底における蛇紋岩化作用の進行過程と流体の輸送過程をモデル化することを目的とする。

3. 研究の方法

本研究では、水熱条件下においてバッチ式の水熱反応実験を行う。蛇紋岩化作用を調べるために、かんらん石-水系、また、斜方輝石-水系を対象とした。実験条件としては、温度が200°C、250°C、300°C（主に250°C）、飽和蒸気圧下である。実験後の固体試料から加水反応の進行度を熱重量測定で明らかにすると同時に、溶液組成を詳細に分析し、反応の時間発展を明らかにする。実験時間は最大で1800時間である。焼結体を用いた実験では、かんらん石粉末を出発物質として、ピストンシリンダーを用いて（1200°C、1GPa、4日間）、異なる空隙率（1、3、10、25%）の焼結体を作成し、水熱実験に用いた。

また、蛇紋岩化反応進行と破壊との関係を明らかにするために離散要素法 (DEM) を用い

たモデルの開発を行った。

4. 研究成果

<かんらん石粉末-水系の水熱実験>
かんらん石-水系において、閉鎖系であっても、蛇紋岩化反応は時間とともに変化することを明らかにした。はじめは蛇紋石+マグネタイトであるのに対して、蛇紋石+ブルース石+マグネタイトと反応生成物が変化し、同時に溶液組成のシリカ濃度が減少する。このことは、天然の蛇紋岩化作用においても、フレッシュな水と接する反応の初期には蛇紋石のみが形成し、反応が進行するとブルース石ができる反応に変わることを示唆している。また、斜方輝石-水系の反応では、シリカ濃度がかんらん石-水系と比べて1-2桁大きくなることが分かった。このことは、斜方輝石とかんらん石のどちらも含む系ではシリカ濃度の大きな勾配ができることを示唆している。また、蛇紋岩化の過程においてかんらん石粒子が割れてその中で蛇紋石などの生成物によって充填されることが観察された。これは、外力がなくても反応とともに破壊が進行するプロセスが蛇紋岩化の進行に重要であることを示唆している。また、内管の中に粉末を封入して実験を行うと、管内において均質に反応が進行すること明らかになり、高空隙の粉末の条件では、水の流入は律速過程にはならないことが分かった。

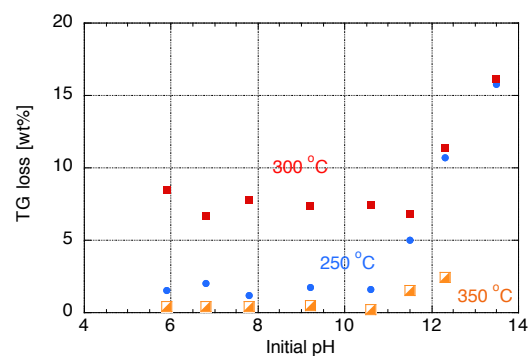


図1 反応進行度の初期 pH 依存性. TG loss は生成物の含水量を表す.

<pH 変化による反応速度の影響>

かんらん石-水の系で、溶液の初期 pH を 5.8-13.5 まで変化させて実験を行いその反応速度と生成する蛇紋石形状を検討した。温度は 250℃, 300℃, 350℃、飽和蒸気圧である。表面観察と EDS の結果、主な生成物はどれも蛇紋石±ブルース石であった。初期 pH が低い条件では反応率が 10-15% であるのに対して、一方で、pH が 10 を超えると反応率は線形に増大し、初期 pH 13.5 では 90% 程度まで上昇するということが明らかになった (図 1)。また、低 pH では平板上のリザダイトであるのに対して、高 pH では針状のクリソタイルに変化した。海洋底の熱水変質においてメッシュ組織にリザダイトが、クリソタイルは亀裂を充填する脈としてよく観察される。本実験の結果から、脈中のクリソタイルは高 pH 流体が外部から流れてきた可能性を示唆する。また、pH が 9 から 13.5 に変化すると蛇紋岩化の速度が 5 倍以上速くなる。

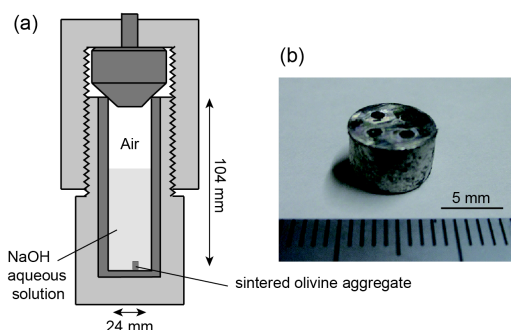


図 2 (a) 水熱実験用オートクレーブ。(b) かんらん石焼結体。

<かんらん石焼結体-水系の水熱実験>

水熱実験の出発物質は、異なる空隙率 (1, 3, 10, 25%) をもつかんらん石の焼結体であり、水熱実験の条件は、250℃、飽和蒸気圧、pH 13.5 のアルカリ水溶液である (図 2)。4 本の焼結体は Pt ジャケットに覆われ、1 方向のみから水がアクセスする。鉍物粉末を用いた実験では、反応管内部で一様に蛇紋石、ブルース石、マグネタイトが生成していたのに対して、焼結体を用いた実験

では、水の供給源から近い反応管の入り口ではブルース石が多く生成し、遠い部分では蛇紋石のみが生成するという系統的な変化が観察された。ブルース石はかんらん石を置換する組織を示した。今回の実験条件では、水/岩石比が大きいこと、またアルカリの溶液を使っているために、水溶液中にシリカが溶脱する形で反応が進行したと考えられる。また、かんらん石を置換してできたブルース石の周りには細粒の蛇紋石が形成していた。このような組織は、大西洋中央海嶺の低速拡大軸の蛇紋岩化した海洋底のマントル岩で報告されているものと非常によく似ている。ブルーサイト帯の厚さは初期の空隙率が小さくなるほど薄くなり (図 3)、空隙率が小さくなるにしたがって、拡散速度が遅くなり、全体の反応が表面反応律速から拡散律速へと変化していることを示唆する。

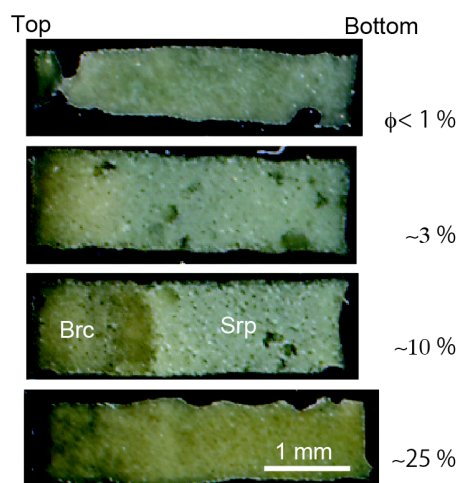


図 3 かんらん石焼結体の水熱実験後試料の薄片写真。入り口付近はブルース石に富み、離れると蛇紋石のみとなる。

一方、反応管の底の部分では蛇紋石のみが形成した。ブルース石が出来ない反応としては、かんらん石にシリカが加わる反応と、かんらん石から Mg が選択的に溶脱する反応が考えられる。今回の実験の特徴は、焼結体の周りが Ni カバーで覆われており、容易に体積膨張することが出来ない点である。体積膨張という視点からすると、シリカ付加の反応は蛇紋石+ブルース石のみが出来る反応よ

りも体積膨張率が大きいものに対して、Mg の溶脱反応は体積膨張率がそれほど大きくない。すなわち、体積膨張が制約される焼結体においてかんらん石の加水分解反応の駆動力が大きい際に、体積変化の小さい反応経路を選択している可能性がある。今回の実験により、蛇紋岩化の際の周囲の環境によって、シリカの溶脱と Mg の溶脱がどちらも起こり得ることが明らかになり、逆に反応組織から形成条件（溶液組成など）が読み取れるのではないかと期待される。

<反応 - 変形 - 流体流動シミュレーション>

蛇紋岩化反応の進行は、表面反応だけでなく、水の流入と体積膨張などの兼ね合いによって決定される。また、反応に伴う破壊する組織は蛇紋岩化した岩石には普遍的に観察される。こうした相互の関係を理解するために、破壊のシミュレーションを得意とする2次元の離散要素法に、固体体積が増加する加水反応をくみこんだモデルを開発に取り組んだ。境界条件として、一方向のみの流体が入ってくる自由境界を考えると、亀裂が発生しても、体積膨張によってすぐに流路がふさがってしまい、反応が進行することが出来ない。一方で、すべての面で変形および水の流入が自由な境界が与えられた場合、岩石の外部から加水反応が進行して、体積が膨張することにより亀裂が発生し、その部分でまた反応が進行するという正のフィードバックが起こることが確認された。これは蛇紋岩に観察されるメッシュ組織に類似しており、天然での反応プロセスをよく再現していると考えられる。

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 3件)

- ① Ogasawara Y., Okamoto A., Hirano N., Tsuchiya N. Coupled reaction and silica

diffusion during serpentinization. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 査読有 119, 2013, 212-230. 10.1016/j.gca.2013.06.001

- ② Okamoto A., Ogasawara Y., Hirano N., Tsuchiya T., Effect of silica transport on serpentinization in 01-0px-H₂O system. *Procedia Earth and Planetary Science, Water-rock interaction*, 2013, 624-628 査読有 doi: 10.1016/j.proeps.2013.03.015.
- ③ 岡本敦, 海洋リソスフェアにおける蛇紋岩化作用の速度：水熱実験からの制約。岩石鉱物科学、査読有、41, 2012, 185-192.

[学会発表] (計 10件)

- ① Okamoto A., Oyanagi R., Tsuchiya N., 2014. Coupled mass transport and serpentinization at crust/mantle boundary: Insights from hydrothermal experiments. 日本地球惑星科学連合大会 4/28-5/2 Yokohama, Invited.
- ② 岡本 敦、清水 浩之 (2014) 加水・脱水反応に起因するフラクチャーパターン：個別要素法によるアプローチ。日本地球惑星科学連合大会 4/28-5/2, 横浜.
- ③ 大柳良介・岡本 敦・土屋範芳 (2014) かんらん石-石英境界における熱水変質の反応進行度と空隙率変化。日本地球惑星科学連合大会 4/28-5/2, 横浜.
- ④ Okamoto A., Oyanagi R., Tsuchiya, N., 2014. Coupled of mass transport and serpentinization reactions. 11th international symposium on Water dynamics. March 12 - 14. Sendai. Invited
- ⑤ Okamoto A., Oyanagi R., Tsuchiya, N., 2014. Coupling of mass transport and serpentinization reactions. *Geofluid 3: Nature and Dynamics of fluids in subduction zones*. Feb 28 - March 3.

Tokyo. Invited

- ⑥ Oyanagi R., Okamoto A., Tsuchiya N, 2013. Hydrothermal experiment on serpentinization at crust/mantle boundary, American Geophysical Union 2013 Fall meeting, San Francisco, USA, 9-13 Dec.
- ⑦ 岡本 敦・大柳良介・清水浩之・土屋範芳 (2013) 蛇紋岩化作用進行度の空間分布と物質移動. 日本地質学会, 仙台 9/14-9/16.
- ⑧ Okamoto, A., Ogasawara, Y., Hirano, N., Tsuchiya, N., 2013. Effect of Silica Transport on Serpentinization in the $01\text{-Opx-H}_2\text{O}$ System. *the Fourteenth International Symposium on Water-Rock Interaction, WRI14*, Avinion, France, June 9-14.
- ⑨ 岡本 敦・大柳良介・土屋範芳 (2013) 蛇紋岩化反応とシリカの拡散とのカップリング. 日本地球惑星科学連合大会 5/20-5/24, 幕張.
- ⑩ 大柳良介、岡本 敦、土屋範芳 (2013) 水熱実験による蛇紋岩化作用における pH とシリカの影響についての検討. 日本地球惑星科学連合大会 5/20-5/24 幕張.

[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

岡本 敦 (OKAMOTO, Atsushi)
東北大学・大学院環境科学研究科・准教授
研究者番号：40422092

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：