

令和 2 年 6 月 17 日現在

機関番号：15301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K05706

研究課題名(和文)カンラン岩のリチウム同位体組成にみるマントル内同位体非平衡の時空間スケール

研究課題名(英文) Spatiotemporal scale of isotope disequilibria in the mantle, deduced from lithium isotope compositions of mantle peridotite

研究代表者

太田 努 (Ota, Tsutomu)

岡山大学・惑星物質研究所・助手

研究者番号：80379817

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：典型的なマントルカンラン岩を産する幌満岩体について、水流体と共に挙動する元素の分布を、水素のそれと合わせて調べた結果、同岩体には約十億年前の海洋底熱水変質と約一億五千万年前の沈み込み帯流体との反応が記録されていることがわかった。

岩体縁部は後のイベントによる再平衡に達しているが、岩体中央の幅約1キロメートルの領域では、約十億年前の熱水変質によるリチウム同位体比や微量元素濃度が保持されており、その水素濃度は典型的なマントルの十倍以上に相当する。幌満岩体の存在は、少なくとも十億年前以降のマントルにおいて、キロメートル規模の含水物質の不均質分布が、そのダイナミクスや化学進化に寄与していたことを示す。

研究成果の学術的意義や社会的意義

水素のような軽元素は、地球マントルの高温高压条件下では容易に拡散・均質化すると考えられるが、そのような含水(素)物質の質量や滞留時間といった情報を、地震学の間接的手法で得るのは難しい。

本研究では、地質学的・地球化学的手法を用いて、幌満カンラン岩体が典型的なマントルカンラン岩の十倍も水流体を保持していること、岩体内部のキロメートル規模の領域には約十億年前の水流体が保持されていた可能性があることを示した。マントル物質の物性は、含水量によって大きく変化するため、幌満岩体のような含水物質によるマントル内不均質の時空間的情報は、マントルのダイナミクスや化学進化を理解する上で重要な知見である。

研究成果の概要(英文)：The present study focused distributions of hydrogen and fluid-mobile elements including lithium isotopes in orogenic peridotites of the Horoman massif, Japan, to estimate spatiotemporal scales of mantle heterogeneity on light elements. The analytical results on the samples collected at various scales from kilometer (an entire massif) through meter (an outcrop) to submillimeter (a mineral) produced the following outcomes.

The Horoman peridotites were partly affected at 150 Ma by a subduction-zone fluid. However in the core of the massif, they have retained geochemical characteristics derived from sub-seafloor hydrothermal alteration at 1 Ga. The hydrogen abundances are more than 10-times higher than those of a typical residual mantle. The presence of the Horoman massif suggests that ancient oceanic mantle domains formed by sub-seafloor hydrothermal alteration could have survived in the mantle for at least 1 Gy, and have influenced to dynamics and chemical evolution of the mantle.

研究分野：岩石学，地球化学

キーワード：リチウム同位体 水流体 カンラン岩 マントル内物質循環 二次イオン質量分析計

1. 研究開始当初の背景

水惑星たる地球の進化を理解するには、水流体を介した表層物質とマントル物質の相互作用を定量的に解明する必要がある。この観点から、含水鉱物に含まれる元素が着目すべき対象となるが、含水鉱物が不安定な高温条件下では、ほとんどの元素が水流体やメルトとともに表層へ移動してしまう(課題番号 18740346; 若手研究 B「上部マントルにおけるホウ素循環経路の解明: 実験岩石学的アプローチ」)。そこで、水流体と挙動を共にする元素の中でも、マントル構成鉱物への分配係数が大きいリチウムに注目し、沈み込み帯深部に相当する高温高压条件でも、マントル鉱物と水流体との間で有意な同位体分別が起こることを確認した(課題番号 21540505; 基盤研究 C「沈み込み帯マントルにおけるリチウム同位体の挙動」)。これにより、地球表層由来物質とマントル物質との化学的相互作用やこれを通じたマントルの化学進化を解明していく上で、リチウム同位体を活用する手法の有効性が再確認された。また、沈み込み帯深部の含水条件下でカンラン石が再結晶する際には、リチウムとアルミニウムの置換を含む、元素の再分配が起こり、同時にリチウム同位体の分別が起こることも分かった(課題番号 24540513, 基盤研究 C「沈み込み帯マントルカンラン石の微量元素組成とリチウム同位体分別」)。このことは、水流体を介した物質間相互作用を読み解く上では、対象とする系の中では微量成分に相当する元素の挙動も含めて検討する必要があることを示唆している。

一方で、単純系で合成したカンラン石におけるリチウム同位体の挙動を、天然の多成分系におけるそれと比較するために、造山帯に産するカンラン岩(北海道幌満カンラン岩体)中のカンラン石について、二次イオン質量分析計(SIMS)によるリチウム同位体組成マッピングを行った。幌満カンラン岩体では、地質体規模から岩石薄片規模における岩石学的記載と各種同位体組成を含む地球化学的記載に基づいて約十億年に渡って経験してきた火成作用や、メルトあるいは水流体との化学的相互作用の履歴が復元されている(参考文献[1])。SIMSによるリチウム同位体組成マッピングの結果、典型的なマントルのリチウム同位体組成を中心に、最大 24 パーミル、岩石薄片の規模でも約 13 パーミルの不均質があることが確認された。このことは、幌満カンラン岩体には、表層物質との相互作用に代表されるプロセスによって、マントルよりも高いリチウム同位体組成を獲得した部分と、水流体との間に期待される同位体分別によって、マントルよりも低いリチウム同位体組成を獲得した部分が混在していること、そして、その組成不均質は、高温高压条件のマントル深度から大規模な構造運動を経て地表に露出してきたにもかかわらず、依然として保持されていることを示す。

このような地質学的・地球化学的特徴をもつ幌満カンラン岩体は、地球マントルにおける化学的不均質の時空間規模を評価する上で重要な知見をもたらすと考え、本研究を起案した。

2. 研究の目的

化学平衡論の上では、マントル物質に起こる相転移や元素分配がマントルのダイナミクスや化学進化を支配する。しかし、マントル内部で常に平衡な相転移や元素分配が起こっているのかを、限られた実験時間の中で検証することは極めて難しい。そこで、約十億年という時間をかけた実験の生成物、すなわち実際の地質現象を経た天然試料に注目した。リチウムや水素を含む微量元素の分布を、地質体の数キロメートルから構成鉱物の数十ミクロンの規模に渡って記載することで、特に軽元素についてのマントル内不均質・非平衡の時空間規模に関する情報を抽出し、地球マントルの軽元素組成を再評価する。

幌満カンラン岩体では、地質体規模から岩石薄片規模における岩石学的記載と各種同位体組成を含む地球化学的記載に基づいて、約十億年に渡って経験してきた火成作用や、メルトあるいは水流体との化学的相互作用の履歴が復元されている(参考文献[1])。このように、研究対象とする岩石試料の形成過程が精度よく復元されていれば、得られる分析結果の解釈に、必要以上の不確定要素を挟み込む余地を減らすことができる。リチウムの拡散や同位体分別に関する研究では、その挙動に関する理解が未だに不十分なので、本研究で用いるアプローチは、真にリチウム同位体の性質を理解することにも繋がる。

また、天然のマントルカンラン岩では、カンラン石だけでなく、共存する輝石や斜長石など他にもリチウムが分配される相があるため、リチウムの挙動を理解する上で考慮すべき元素は水素にとどまらない。単斜輝石や斜長石は、ルビジウム-ストロンチウム系においても主要な鉱物相であるが、水流体の関与によって、この同位体系も改変されることが期待される。したがって、水流体が対象の系に作用した時、リチウム同位体はどのように挙動したのか、それと同時に、ルビジウム-ストロンチウム同位体系はどのように改変されたのか、天然試料に記載されていると考えられる。カンラン石、輝石、斜長石における水素やリチウムなどの二次元マップを作製し、リチウムをはじめ、水流体と共に挙動する元素の分布を明らかにすることで、水流体との化学的相互作用がどのように記録・保持されるのか、水流体存在下における元素分配・拡散の機構を理解する上でも、貴重な知見が得られるものと期待される。

3. 研究の方法

(1) 試料の選出

先行研究(参考文献[1])による岩石学および同位体地球化学的記載によれば、北海道幌満カンラン岩体には、約十億年前の中央海嶺下での部分溶融とその後の海洋底熱水変質、約三億年前の中央海嶺下でのメルト交代作用、約五千万年前の沈み込み帯深部流体との交代作用が記録されている。それらの痕跡は、岩体全体、露頭、岩石薄片といった様々な空間規模で混在しているものの、記載岩石学的特徴や全岩化学組成から、約十億年前のイベントの保存が良好な岩石(あるいはその一部)を特定したり、後のイベントによる化学組成上の改変がどのように、あるいはどの程度進行しているのかを、追跡したりすることができる。

そこでまず、実際に扱う試料の岩石記載を行い、すでに得られている記載学的情報と照合することで、どの試料から、いつの時代のイベントが検出されるはずであるかを、作業仮説的に想定した上で各種分析を行い、結果を解析した。

(2) 試料の分析

選出した岩石試料から1インチ径の薄片を作成し、光学顕微鏡および電子顕微鏡による組織観察と、電子線マイクロアナライザによる構成鉱物の主要元素組成分析を行った。その後、汎用SIMSによるリチウムや水素を含む微量元素の濃度分析と、高分解能SIMSによるリチウム同位体組成分析を行った。

先行研究によれば(参考文献[2,3])、マントルカンラン岩の構成鉱物の含水量は1000~10wt.ppm程度であり、この程度の含水量を高精度に定量するには、適切な試料準備を行うとともに、有意に含水量が低い標準試料を整備する必要がある。そこで、SIMS分析の標準物質は金属インジウムに包埋し、分析時の水素イオンバックグラウンドの温床となる樹脂を使わずに準備した。また、典型的なマントルカンラン岩として知られるサンカルロス産マントルゼノリスのカンラン石を無水標準物質(~1wt.ppm; 参考文献[2])とし、実質的な検出限界や分析精度の評価、分析条件の最適化を行った。

(3) 分析結果の解析

岩石薄片を用いた組織観察と、構成鉱物(カンラン石、輝石、斜長石)の主要元素濃度分析、リチウム・水素を含む微量元素濃度分析、リチウム同位体組成分析を行い、リチウム同位体をはじめ、水流体と挙動を共にする元素の分布を、水素のそれと合わせて解析した。

なお、幌満カンラン岩は海嶺下での部分溶融を経験した溶け残りマントルであるが、典型的な溶け残りマントルの十倍以上もの水素を含むものがある(参考文献[4])。このことは、鉱物内部や粒間に微細な流体包有物や副次的な含水鉱物が存在する可能性を示唆する。それらの分布や存在量を精度良く見積もるために、一つの露頭から採取した複数の試料や、一つの岩石試料から作成した複数の薄片について一連の分析を行い、微細包有物や含水鉱物の分布や存在度の不均質の程度を評価した。

以上の行程を踏まえて、岩体規模、露頭規模、岩石薄片規模における水素および水流体と挙動を共にする元素の存在量や分布を明らかにし、元素分配や同位体分別の平衡状態がどの程度保持されているか、あるいはどのように改変されているのかについて解析した。

4. 研究成果

(1) 分析手法

水素濃度局所分析用の標準物質については、角閃石(1.3 wt.% H₂O)、玄武岩質ガラス(0.26 wt.% H₂O)、サンカルロス産マントルゼノリスのカンラン石(~1 wt.ppm H₂O)を用意した。これらを金属インジウムに包埋したマウントを作成して、水素濃度局所分析の実質的な検出限界や分析精度の評価、分析条件の最適化を行った。その結果、無水標準物質とした、サンカルロス産マントルゼノリスのカンラン石について、その含水量を誤差約20%で1-2 wt.ppm H₂Oと見積もることが可能になった。

リチウム同位体組成分析においては、主要元素組成の異なるカンラン石、輝石、斜長石の標準物質を用意し、質量分析計内での質量分別効果を評価した(参考文献[5])。そして、鉱物の種類や化学組成との間に相関がある質量分別効果(マトリクス効果)については、標準物質の分析結果に基づいて求めた係数を用いて、適宜補正した。

(2) 岩石試料の組織

幌満カンラン岩体には約十億年前の海嶺下での部分溶融とその後の海洋底熱水変質や、約五千万年前の沈み込み帯深部流体との交代作用が記録されているが、岩体中での位置や空間規模によって、後のイベントによる化学的改変の程度が異なる。そこで、肉眼的に後退的な変形や蛇紋岩化が顕著でない斜長石レルゾライトのうち、約十億年前の熱水変質の記録を最もよく残している試料と、後の沈み込み帯流体による交代作用の影響が最も顕著な試料について、特に詳細に結果の解析を行った。なお、以下では便宜上、前者を平衡試料、後者を非平衡試料と呼ぶ。

平衡試料は塊状緻密で、光学顕微鏡下でも顕著な蛇紋岩化は見られなかったが、電子顕微鏡による観察では、局所的な変形で細粒化したカンラン石の縁部や割れ目にフィルム状（幅数ミクロン）の蛇紋石が確認された。また、縁部や割れ目が沸石に置換されている斜長石も認められた。一方、非平衡試料では、光学顕微鏡下でカンラン石結晶の間や割れ目を埋めるように産する蛇紋石（幅約 10~100 ミクロン）が確認され、そのモード比は約 20 vol.% と見積もられた。

（ 3 ）水素およびリチウム同位体の分布

SIMS による元素濃度局所分析では、主要構成鉱物周辺の含水鉱物（蛇紋石や沸石）の分布に留意しながら分析箇所を選定したが、分析後に SIMS 分析跡を電子顕微鏡で観察し、含水鉱物からの二次イオン発生が疑われた場合、その分析値は除外して分析結果の解析を行った。その結果、主要構成鉱物のカンラン石（~10 wt.ppm H₂O）、斜方輝石（150~350 wt.ppm H₂O）、単斜輝石（250~750 wt.ppm H₂O）、斜長石（10~100 wt.ppm H₂O）の何れに関しても、非平衡試料の方が水素に富んでいることがわかった。また、元来リチウムに乏しい斜長石や、希土類元素に乏しい斜方輝石のリチウムや軽希土類元素の濃度も、平衡試料中のそれらに比べて高いことがわかった。リチウム同位体組成に関しては、平衡試料の全岩組成が典型的マントルのそれと区別できないのに対して、非平衡試料ではマントルよりも軽いリチウム同位体に富んでいたが（参考文献[4]）、各構成鉱物ごとに見た場合でも、同様の傾向が認められた。すなわち、後の沈み込み帯流体による交代作用の影響が顕著な非平衡試料では、全岩と構成鉱物といった異なる空間規模においても、リチウム同位体組成や水素を含む微量元素組成に、水流体との反応によって期待される変動が起きていることが確認できた。このことは、幌満カンラン岩の水素濃度が典型的溶け残りマントルよりも有意に高い主因が、最近の風化・変質に伴う蛇紋岩化ではなく、それ以前の幌満カンラン岩の履歴に求められることを示している。

（ 4 ）化学平衡の時空間規模

幌満岩体は、露出面積 8×10 平方キロメートル、層厚 3 キロメートルに及ぶ大規模なマントルカンラン岩体である。その地球化学的特徴を、岩体のキロメートルから、露頭の数メートル、さらに構成鉱物の数十ミクロンの規模に渡って解析し、リチウム同位体や水流体と挙動を共にする元素の存在量や分布を調べた結果、平衡試料が分布する、岩体中央の幅約 1 キロメートルの領域では、約十億年前の海洋底熱水変質の記録が、特徴的なリチウム同位体組成や微量元素濃度として保存されており、その水素濃度は典型的な溶け残りマントルの十倍以上に相当することがわかった。しかしながら、露出面積 8×10 平方キロメートルにおよぶ岩体全体としては、十億年前の化学平衡は保たれていない。一方で、非平衡試料が分布する岩体縁部の約 1 キロメートル幅の領域に限れば、全岩のルビジウム-ストロンチウム系は、約一億五千万年前の沈み込み帯深部流体との反応によって同位体平衡に達しており（参考文献[4]）、カンラン石・輝石・斜長石といった鉱物単位の空間規模でも、水流体との反応によって期待されるようなリチウム同位体や水素を含む微量元素の組成改変が進んでいる。

水素のような軽元素は、地球マントルの高温高压条件下では容易に拡散・均質化すると考えられる。しかしながら、本研究の結果は、幌満岩体ほどの空間規模のカンラン岩体ならば、周囲のマントル物質との間に 10 倍程度の水素存在量の勾配があっても、10 億年程度はその勾配が解消されないことを示す。このような、軽元素についてのマントル内不均質・非平衡の時空間規模に関する情報は、地球マントルのダイナミクスや化学進化を理解する上で不可欠であり、マントルカンラン岩に関する国内外の地球化学的研究の中でも類稀な成果である。

（ 5 ）成果の意義と今後の展望

地震学的な地球内部の描像は、現在の地球マントルにおける含水物質の不均質な分布を示唆しているが、そのような含水物質の質量や滞留時間といった情報を、地震学の間接的手法で得るのは極めて難しい。一方で、海洋プレートのマントルカンラン岩が広い範囲に渡って海洋底熱水変質を被ることは地球史を通じて普遍的な現象であり、幌満岩体のような含水マントル物質の生成もまた、地球史を通じて普遍的であったと考えられる。本研究の地質学的・地球化学的手法によって得られた知見が示すように、幌満岩体のような含水物質が十億年の時間規模で、高温高压のマントル内部を循環していたとすれば、地球マントルの水素をはじめとする軽元素の存在量は従来の見積りよりも有意に多く、マントルのダイナミクスや化学進化に大きな影響を与えてきたと考えられる。

本研究が幌満岩体に対して行ったような解析を、他のマントルカンラン岩を含む地質体に適用することができれば、地球マントルの軽元素組成やダイナミクスをより詳細に理解することが可能であろう。特に幌満岩体は、地球史の中では非常に若い地質体であるため、十億年前より以前の地球マントルを演繹することができない。ただし、太古代の海洋地殻に由来する地質体からも海洋底熱水変質の痕跡は報告されている（参考文献[6]）。原生代以前のマントルカンラン岩を含む地質体に対しても、同様な研究手法を適用することができれば、地球史を通じたマントルのダイナミクスやその変遷を解明する手がかりが得られるものと思われる。

参考文献

- [1] Yoshikawa and Nakamura (2000) doi:10.1029/1999JB900344, Malaviarachchi et al. (2008) doi:10.1038/ngeo363, Malaviarachchi et al. (2010) doi:10.1093/petrology/egq024
- [2] Aubaud et al. (2007) doi:10.2138/am.2007.2248
- [3] Hirschmann and Kohlstedt (2012) doi:10.1063/PT.3.1476
- [4] Ranaweera et al. (2018), doi:10.1038/s41598-018-28219-x
- [5] Kunihiro et al. (2019), doi:10.1016/j.gca.2019.02.038
- [6] Appel et al. (2001), doi:10.1016/S0301-9268(01)00169-3

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Ranaweera, L.V., Ota, T., Moriguti, T., Tanaka, R., Nakamura, E.	4. 巻 8
2. 論文標題 Circa 1 Ga sub-seafloor hydrothermal alteration imprinted on the Horoman peridotite massif	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 9887: 1-12
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41598-018-28219-x	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 -

1. 著者名 Kunihiro, T., Ota, T., Nakamura, E.	4. 巻 252
2. 論文標題 Lithium- and oxygen-isotope compositions of chondrule constituents in the Allende meteorite	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Geochimica et Cosmochimica Acta	6. 最初と最後の頁 107-125
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.gca.2019.02.038	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Nakamura, E., Kunihiro, T., Ota, T. and other 13 authors	4. 巻 95
2. 論文標題 Hypervelocity collision and water-rock interaction in space preserved in the Chelyabinsk ordinary chondrite	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Proceedings of the Japan Academy Series B - Physical and Biological Sciences	6. 最初と最後の頁 165-177
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.2183/pjab.95.013	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計0件

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

研究室ホームページ
<https://pml.misasa.okayama-u.ac.jp/>

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
研究協力者	国広 卓也 (Kunihiro Takuya)		
研究協力者	ラナウィーラ ラリンドラ (Ranaweera Lalindra)		