

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 5 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(A)

研究期間：2010～2013

課題番号：22244067

研究課題名(和文)多相固体包有物を用いた深部流体活動の実態解明

研究課題名(英文) Investigation of deep fluid using multi-solid-phase inclusions

研究代表者

平島 崇男(Hirajima, Takao)

京都大学・理学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：90181156

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 37,100,000円、(間接経費) 11,130,000円

研究成果の概要(和文)：キルギス共和国マクバル岩体産の変成泥質片岩のザクロ石に包有される緑簾石・藍晶石などから成る多相固体包有物(MSI)の主要元素組成を復元したところ、MSIは超高压時(ca. 3 GPa and 550C)にはローソン石であったことを見出した。さらに、ICP-MS分析で得たMSIを構成する緑簾石に含まれるREE元素の濃度割合は、ローソン石のそれと類似していた。岩石学的解析から、研究対象とした変成泥質片岩は超高压条件から等温的に減圧したことが判明した。これらの事実から、ローソン石を含む超高压変成岩が地表に上昇する過程で、地下50km付近でローソン石の分解により多量の流体が放出されたと察できた。

研究成果の概要(英文)：Multi-solid phase inclusions (MSIs) composed of clinozoisite (Czo) + ky + qz have been found within garnets and in the matrix of metapelites from the Makbal complex in Kyrgyz. The reconstructed compositions of MSIs are consistent with lawsonite (Lws). Petrological study showed that Lws was stable at UHP stage (ca. 3 GPa and 550C) and decomposed to the MSIs during isothermal decompression around 1.6 GPa and 550C. Trace element characteristics of Czo grains in the MSIs show a flat REE chondrite-normalized pattern, identical to the typical REE pattern of Lws. Thus, the REE content of Czo in the MSIs included in garnet was likely inherited from the former Lws as the decomposition reaction took place isolated from the matrix. Lws decomposition and Czo-forming reactions accompany fluid release during the isothermal decompression stage, implying that the fluids can be generated not only during subduction, but also during exhumation of UHP rocks in cold subduction settings.

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：変成岩 深部流体 多相固体包有物 ICP-MS

## 1. 研究開始当初の背景

プレート境界近傍での地震やマグマの発生には深部流体が大きく寄与しているとの考えが広く支持されているが、地下深部流体活動のどのような要素が、これら諸現象の誘因になっているかを考察するに足りる、地下深部流体に関する情報は得られていないのが実情である。

その根本的な理由は、これまでに得られた地下深部流体の情報は島弧火山岩や地表温泉水等の間接的な証拠に基づいて推察されているに過ぎないからである。

地下深部流体活動の直接的な証拠として、岩石に含まれる流体包有物が知られている。しかし、流体包有物は数ミクロンサイズと微小であり、かつ、流体包有物が母岩に取り込まれる時期やその発生深度を確定することが困難であるとともに、獲得時期の異なる微小な流体を分析する技術は未だ確立されていなかったなどの理由により、流体包有物そのものから、各種情報を引き出す研究は停滞していると言わざるを得ない。

21世紀に入ってから、「地下深部で形成された鉱物に含まれる多相固体包有物は地下深部流体あるいはメルトが固化したもの」との考えが提示された(e.g., Ferrando et al., 2005; *Chemical Geology*, 223,68-81, Malaspina et al., 2006; *EPSL*, 249, 173-187)。この前提に基づくと、MSIが有する鉱物化学的情報から、間接的ではあるが、どのような組成の流体あるいはメルトが(what)、地下深部のどこで(when)、いつ(when)、どのように(how)活動したかを知ることができ、プレート収束域の流体活動に関する重要な情報を獲得できることになる。

## 2. 研究の目的

プレート収束帯における固体・流体物質循環過程の実態解明を目指すため、地下深部流体あるいはメルトの化石であると考えられている“多相固体包有物 (Multi solid inclusions, 以下 MSI)”をナノ～サブミクロン・サイズで観察するシステムを新たに構築し、MSIと母相の微量元素濃度や MSI が母相に取り込まれた時期の温度圧力条件、放射年代値などの情報を獲得する。この成果に、母岩の含水量や島弧前弧域の地表温泉水組成データを総合し、沈み込み帯での深部流体組成の時間的・空間的発展過程を明らかにする事を目指す。

また、京都大学の温泉水研究グループは、温泉水の Li/B 比と温泉地下のプレート上面深度とに相関性があることを見いだしている。本研究では、形成深度が明らかな地下深部岩石から流体包有物をクラッシュリーチング法で抽出し、その Li/B 比等を分析する。この抽出流体は複数回の流体活動の積分値であるので、流体包有物岩石学を展開し、Li/B 比を意味づけするための具体的なデータを収集する。これらの結果を、火山活動を受けていない地域で得られる深層温泉水のデータと比較検討することにより、プレート沈み込み帯での流体循環過程に大きな制約条件を与えることを2つ目の目標とした。

上記の研究で得られる成果は、沈み込み帯での流体相を介したマンテルー地殻物質間の化学的相互作用や物質循環過程の理解にとどまらず、現在の沈み込み帯深部での地震の発生メカニズムの解明・発生数値シミュレーションなどへの現実的な境界条件の提示を行える点でも重要な意義を持つ。

## 3. 研究の方法

室内実験では、本経費によりエキシマレーザーアブレーション微小領域試料加熱装置 (Model NWR193-KSP) を導入し、平田研究室の誘導結合プラズマ質量分析装置 (ICP-MS) に組み込み、MSI を構成する鉱物や含水鉱物の微量元素や希土類元素を分析するシステムの構築を目指した。しかし、H22年12月に、キシマレーザーアブレーション微小領域試料加熱装置に出荷段階の不具合 (基盤のコンピューターのウィルス感染など) が判明し、その後も分析試料室の改良、電源ケーブルの損傷など、予想外のトラブルが頻発し、研究開始当初に目指した分析は H24 年度の後半以降にまでずれ込んだ。

ICP-MS を用いた室内実験以外に、クラッシュリーチング法を用いて流体包有物の抽出し、その Li/B 比等を分析した。さらに、Ramann 分光計を用いた流体包有物を構成する物質の同定、石英脈と流体包有物の配列関係の解析から、流体包有物が母岩に取り込まれた時期の推定を行った。あわせて、Ramann 分光計を用いた流体包有物の新しい分析手法を開発した。

上記の室内実験を実施するための研究試料を採集するために、日本国内やキルギス共

和国等での現地調査を実施した。

#### 4. 研究成果

本研究での第一目標として設定していた MSI を構成する鉱物群の微量成分分析は、キルギス共和国 Makbal Complex の超高压変成岩中のザクロ石に包有される緑簾石 + 石英 ± 藍晶石 ± Na 雲母から成る MSI と、キルギス共和国 Aktyuz complex のエクログャイトに含まれる主として Na-rich な雲母類 + 十字石 + Fe 酸化鉱物類で構成される MSI について実施した。

Makbal Complex の藍晶石を含む MSI 全体の主要元素組成を復元したところ、MSI は、かつてローソン石であり、それは超高压時に安定であったことを見出した。そして、これらローソン石は、岩体が地下 60km (2GPa) 程度まで上昇・減圧した際に MSI 構成鉱物に分解するとともに、相当量の流体が上昇する超高压変成岩から放出されたとの考えを得た。さらに、H24 年度の後半に実施した ICP-MS を用いた MSI 構成鉱物の微量成分分析結果を文献値データと比較することにより、MSI を構成する緑簾石中に含まれる微量元素の濃度割合は、ローソン石から転移した緑簾石のそれと類似することを見出した。ICP-MS で得られた所見は、MSI の起源がローソン石であったことを強く支持した。これらの成果は、地球惑星科学連合大会 2013 年大会（講演要旨 4）、第 10 回国際エクログャイト会議、Courmayeur, Italy, 2013 年（講演要旨 11）などで講演するとともに、著者：Rustam Orozbaev, Takao Hirajima, Apas Bakirov, Akira Takasu, Kenshi Maki, Kenta Yoshida, Kadyrbek Sakiev, Azamat Bakirov, Takafumi Hirata, Michio Tagiri, Asel Togonbaeva、題目：Trace element characteristics of clinozoisite pseudomorphs after lawsonite in talc-garnet-chloritoid schists from the Makbal UHP Complex, northern Kyrgyz Tian-Shan. として、Lithos 誌に投稿中である。

発表論文 5 OROZBAEV et al. (2011) でその存在を報告していた Aktyuz complex のエクログャイトに含まれる MSI を構成する Na-rich な雲母類と十字石についても ICP-MS を用いて微量成分分析を実施した。その結果、これらの鉱物には Li が高濃度で含まれていることが判明し、MSI の形成には深部流体が深く

関わっていることが判明した。その成果の一部は第 10 回国際エクログャイト会議、Courmayeur, Italy, 2013 年（講演要旨 12）で発表した。

クラッシュリーチング法を用いた流体包有物抽出液の Li/B 比等の分析結果を考察するための基礎データとして、地下 15–60km で形成された三波川変成岩に含まれる流体包有物とその母相の組織の形態観察、マイクロサーモメトリー法と Raman 分光法を駆使し組織ごとの流体包有物の塩濃度と構成元素や状態を詳細に検討する基礎研究を実施した。その結果、研究試料に含まれていた流体は総じて高い塩濃度を示すにもかかわらず、Li と B に富み、その大半の流体は  $Li/Cl > 0.001$  の値を示した。これらの傾向はスラブ由来流体として注目を集めている有馬型熱水の特徴の一つ（風早ほか、2013）と一致した。更に地下 30–60km 付近で形成された変成岩に累進時に取り込まれた深部流体は、すなわち、変成時のピーク時に活動した流体の組成は、海水より高い NaCl 濃度であり、かつ、Li/B 比が 1 を超える高い値であることを見出した。これらの成果は速報として、発表論文 4, YOSHIDA et al. (2011) と発表論文 6, YOSHIDA AND HIRAJIMA (2012) でその成果の一部を公表するとともに、研究成果の総括を、著者：Kenta Yoshida, Takao Hirajima, Shinji Ohsawa, Tomoyuki Kobayashi, Taketoshi Mishima and Yoshiteru Sengen, 題目：Geochemical features and relative B-Li-Cl compositions of deep-origin fluids trapped in high-pressure metamorphic rocks として、Lithos 誌に投稿中である。

Ramann 分光計を用いた流体包有物の新しい研究手法の一つとして、流体包有物として出現する CO<sub>2</sub> のラマンシフトを用いて圧力を推定する方法が注目されている。その基礎研究の一環として、伝統的なアイソコア法で推定した流体包有物が捕獲された圧力値と、CO<sub>2</sub> のラマンシフトを利用した圧力計の整合性について研究し、その成果を発表論文 9, Kobayashi et al. (2012) として公表した。

Ramann 分光計を用いた新たな研究をノルウェーとスロバキアの研究者と開始した。その最初の成果として、ノルウェー産の高压変成岩中の微細包有物を Ramann 分光計で検討した結果、変成ダイヤモンドを発見することができた。この研究によって、ノルウェー北

部のトロムセ・ナツプ地域が新たな超高压変成帯として認識されるようになった。この成果の一部は発表論文 14Janak et al. (2013)として公表した。その後、この研究はスロバキアで高く評価され、Slovak Mineral Wing Award, 2014 を受賞した。

#### 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 16 件)

1. Ibuki, M., Ohi, S., Tsuchiyama, A. and Hirajima, T., (2010) Analysis of Mn-bearing lawsonite occurring in meta-siliceous rocks in Hakoishi serpentinite mélange of Kurosegawa Belt, Central Kyushu, Japan. *Journal of Mineralogical and Petrological Sciences*. 105, 340-345.
- 2, Kobayashi, T., Hirajima, T., Kawakami, T. & Svojtka, M. (2011) Metamorphic history of garnet-rich gneiss at Ktiš in the Lhenice shear zone, Moldanubian Zone of the southern Bohemian Massif, inferred from inclusions and compositional zoning of garnet. *Lithos*, 124, 46-65.
- 3, Naemura, K., Ikuta, D., Kagi, H., Odake, S., Uyeda, T., Ohi, S., Kobayashi, T., Svojtka, M., and Hirajima, T. (2011) Diamond and other possible ultra-deep evidence discovered in the orogenic spinel-garnet peridotite from the Moldanubian Zone of the Bohemian Massif, Czech Republic. In "Ultrahigh-Pressure Metamorphism: 25 Years After the Discovery of Coesite and Diamond" Eds: L. Dobrzhinetskaya, S.W. Faryad, S. Wallis and S. Cuthbert, 77-111, Elsevier insights,
- 4, YOSHIDA, K., SENGEN, Y., TSUCHIYA, S., MINAGAWA, K., KOBAYASHI, T., MISHIMA, T., OHSAWA, S., and HIRAJIMA, T. (2011) Fluid inclusions with high Li/B ratio in a quartz vein from the Besshi area of the Sambagawa metamorphic belt: implications for deep geofluid evolution. *Journal of Mineralogical and Petrological Sciences*, 106, 164-168.
- 5, OROZBAEV, R.T., YOSHIDA, K., BAKIROV, A.B., HIRAJIMA, T., TAKASU, A., SAKIEV, K.S. and TAGIRI, M. (2011) Preiswerkite and högbomite within garnets of Aktyuz eclogite, Northern Tien Shan, Kyrgyzstan. *Journal of Mineralogical and Petrological Sciences*. 106, 320-325.
- 6, YOSHIDA, K. and HIRAJIMA, T. (2012) Annular fluid inclusion found from a quartz vein intercalated with metapelites from the Besshi area of the Sanbagawa belt, SW Japan. *Journal of Mineralogical and Petrological Sciences*, 107, 50-55.
- 7, KAMIMURA, K., HIRAJIMA, T. and FUJIMOTO, Y. (2012) Prehnite-pumpellyite facies metabasites found from the Kurosegawa belt in Yatsushiro area, Kyushu, Japan. *Journal of Mineralogical and Petrological Sciences*, 107, 99-104.
- 8, Spengler, D., Obata, M., Hirajima, T., Ottolini, L., Ohfuji, H., Tamura, A. & Arai, S. (2012) Exsolution of garnet and clinopyroxene from high-Al pyroxenes in Xugou peridotite, E China. *Journal of Petrology*, 53, 1477-1504.
- 9, Kobayashi, T., Yamamoto, J., Hirajima, T., Ishibashi, H., Hirano, N., Lai, Y., Prikhod'kog, V.S. and Arai, S. (2012) Conformity and precision of CO<sub>2</sub> densimetry in CO<sub>2</sub> inclusions: microthermometry versus Raman microspectroscopic densimetry. *Journal of Raman Spectroscopy*, 43, 1126-1133.
- 10, Compagnoni, R., F. Rolfo, F. Groppo, T. Hirajima and R. Turello, (2012) Geological map of the ultra-high pressure Brossasco-Isaca Unit, (Western Alps). *Journal of Map*, 8, 465-472.
- 11, Hafiz Ur Rehman, Katsura Kobayashi, Tatsuki Tsujimori, Tsutomu Ota, Hiroshi Yamamoto, Eizo Nakamura, Yoshiyuki Kaneko, Tahseenullah Khan Masaru Terabayashi, Kenta Yoshida, Takao Hirajima (2013) Ion microprobe U-Th-Pb geochronology and study of micro-inclusions in zircon from the Himalayan high- and ultrahigh-pressure eclogites, Kaghan Valley of Pakistan. *Journal of Asian Earth Sciences*, 63, 179-196
- 12, Makoto Kimura, Naoji Sugiura, Takashi Mikouchi, Takao Hirajima, Hajime Hiyagon, and Yoshie Takehana (2013) Eclogitic clasts with omphacite and pyrope-rich garnet in the NWA 801 CR2 chondrite. *Am. Min.*, 98, 387-393.
- 13, Shigeki TSUCHIYA and Takao HIRAJIMA (2013) Evidence of the lawsonite eclogite facies metamorphism from an epidote-glaucophane eclogite in the Kotsu area of the Sanbagawa belt, Japan. *Journal of Mineralogical and Petrological Sciences*, 108, 166-171.
- 14, Marian Janák, Erling Krogh Ravna, Kåre

Kullerud, Kenta Yoshida, Rastislav Milovský and Takao Hirajima (2013) Discovery of diamond in the Tromsø Nappe, Scandinavian Caledonides (N.Norway) Journal of metamorphic Geology, 31, 691-703. Slovak Mineral Wing Award, 2014 受賞

- 15, Kawakami, T., Yamaguchi, I., Miyake, A., Shibata, T., Maki, K., Yokoyama, T. D. & Hirata, T. (2013) Behavior of zircon in the upper-amphibolite to granulite facies schist/migmatite transition, Ryoke metamorphic belt, SW Japan: constraints from the melt inclusions in zircon. *Contributions to Mineralogy and Petrology*, **165**, 575-591.
- 16, Higashino, F., Kawakami, T., Satish-Kumar, M., Ishikawa, M., Maki, K., Tsuchiya, N., Grantham, G. & Hirata, T. (2013) Chlorine-rich fluid or melt activity during granulite facies metamorphism in the Late Proterozoic to Cambrian continental collision zone – an example from the Sør Rondane Mountains, East Antarctica. *Precambrian Research*, **234**, 229-246.

[学会発表] (計 15 件)

地球惑星科学連合大会 2013 年大会, 千葉, 幕張メッセ国際会議場, 5 月 20-24 日

- 1, Yoshida Kenta and Hirajima Takao: Na に富む白雲母の組成変化から読み取った三波川変成帯上昇期の流体流入  
Exhumation stage fluid migration recorded in Na-rich phengite in Sanbagawa metamorphic rocks.
- 2, Atsushi YASUMOTO, Takao Hirajima & Daisuke Nakamura : Variation and significance of chemical zoning pattern of Grt in Nove Dvory eclogite, Moldanubian Zone of the Bohemian Massif.
- 3, 東野文子, 河上哲生, サティシユ・クマール, 石川正弘, 土屋範芳, ジェフ・グランサム, Behaviour of REE-rich minerals during Cl-rich fluid activity under granulite facies metamorphism.
- 4, Orozbaev, R., Hirajima, T., Bakirov, A., Takasu, A., Maki, K., Yoshida, K., Sakiev, K. and Hirata, T. "Rare-earth and trace element characteristics of pseudomorphs

after lawsonite in Tlc-Grt-Cld schists of Makbal Complex."

Goldschmidt 2013 (Florence) 8 月 29 日

- 5, Higashino, F., Kawakami, T., Satish-Kumar, M., Ishikawa, M., Tsuchiya, N., Grantham, G.H.: Multi-stage Cl-rich fluid activity and behavior of REE-bearing minerals in a Neoproterozoic granulite terrane., *Mineralogical Magazine*, 77(5) 1298.

X International Eclogite Conf. Abstract , Courmayeur, Italy, 2013 年 9 月 2-10 日,

- 6, Takao HIRAJIMA, Shigeki TSUCHIYA' First evidence of the lawsonite eclogite facies metamorphism from an epidote-glaucophane eclogite in the Kotsu area of the Sanbagawa belt, Japan
- 7, Marian Janák, Erling J. Krogh Ravna, Kåre Kullerud, Kenta Yoshida, Rastislav Milovský, Takao Hirajima: Microdiamonds in crustal rocks of the Tromsø Nappe, Scandinavian Caledonides (N.Norway)
- 8, T. KOBAYASHI, S. L. HARLEY, Y. HIROI, T. HIRAJIMA, and M. SVOJTKA' High-pressure melting and rapid exhumation of Grt-rich gneiss at Ktiš in the Lhenice shear zone (Moldanubian Zone of the southern Bohemian Massif).
- 9, Daisuke Nakamura, Norimasa Shimobayashi, Tadashi Usuki, Takao Hirajima, Martin Svojtka' Garnet zonings created under open-system environments and short-lived heating of Nové Dvory UHP-UHT eclogite
- 10, Naemura, K., Hirajima, T., Wei' C.J. and Svojtka, M.: Subduction history of the garnet lherzolites in the Moldanubian zone of the Bohemian Massif
- 11, Orozbaev, R., Hirajima, T., Bakirov, A., Takasu, A., Maki, K., Yoshida, K., Sakiev, K. and Hirata, T. : "Trace element characteristics of lawsonite pseudomorphs in talc-garnet-chloritoid schists, Makbal UHP complex, Kyrgyz Tien-Shan."
- 12, Orozbaev, R., Hirajima, T., Bakirov, A., Takasu, A., Maki, K., Yoshida, K., Sakiev, K. and Hirata, T. "Trace element characteristics of multiphase solid inclusions in garnets of

Aktyuz eclogite, Kyrgyz Tien-Shan: implications for fluids activity at high-pressure conditions.

13, Atsushi YASUMOTO, Takao HIRAJIMA, Daisuke NAKAMURA, Martin Svojtka: Variation and significance of chemical zoning patterns of garnet in Nove Dvory eclogite, Moldanubian Zone of the Bohemian Massif

14, YOSHIDA, K., T. HIRAJIMA, S. OHSAWA, T. KOBAYASHI, T. MISHIMA, and Y. SENGEN: Chemical facies and B-Li-Cl relative compositions of deep-fluids trapped in HP/LT metamorphic rocks: a case study in the Sanbagawa metamorphic belt, SW Japan

日本鉱物科学会 2013 年年会, つくば, 9 月 14 日

15, 東野文子, 河上哲生, サティシユ・クマール, 土屋範芳, 石川正弘, ジェフ・グランサム. 2013, 大陸衝突帯で見られる複数段階の塩素に富む流体活動と希土類元素に富む鉱物の挙動.

[図書] (計 0 件)  
なし

[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

平島崇男 (HIRAJIMA TAKAO)

研究者番号: 90181156

(2) 研究分担者  
平田岳史 (HIRATA Takefumi)

研究者番号: 10251612

(2) 研究分担者  
大沢信二 (OHSAWA Shinji)

研究者番号: 30243009

(2) 研究分担者  
河上哲生 (KAWKAMI Tetsuo)

研究者番号: 70415777

(2) 研究分担者  
下林 典正 (SHIMOBAYASHI Norimasa)

研究者番号: 70235688

(2) 研究分担者  
三宅 亮 (MIYAKE Akira)

研究者番号: 10324609

(3) 連携研究者  
( )

研究者番号: