

平成 30 年 6 月 2 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2017

課題番号：16K13910

研究課題名(和文) 超塩基性岩のウラン-鉛年代測定

研究課題名(英文) U-Pb dating of ultramafic rocks

研究代表者

飯塚 毅 (Iizuka, Tsuyoshi)

東京大学・大学院理学系研究科(理学部)・准教授

研究者番号：70614569

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,700,000円

研究成果の概要(和文)：初期太陽系の進化を理解するためには当時の環境を保存した岩石試料の精確な年代測定が必要不可欠である。本研究では輝石を対象鉱物とした高精度ウラン-鉛年代測定を可能とするため、非放射性鉛を効率良く除去する酸洗浄法を開発した。さらに、この酸洗浄法を塩基性～超塩基性の隕石及び太古代の地球岩石試料に適用することにより、高精度でその結晶化年代を決定可能であることを示した。

研究成果の概要(英文)：Precise and accurate chronological information on rock samples is essential to decode the early evolution of our solar system. In this study, we have developed acid washing method for high-precision U-Pb dating of pyroxenes. The developed acid washing method can remove non-radiogenic Pb from pyroxenes, resulting in the improvements of precision and accuracy of U-Pb dating. This method has been applied to terrestrial and meteoritic samples with mafic to ultramafic compositions. The results reveal the versatility of the dating technique.

研究分野：宇宙地球化学

キーワード：ウラン-鉛年代 超塩基性岩 輝石 隕石

### 1. 研究開始当初の背景

固体地球惑星の熱史や化学的分化過程を理解する上で、地球惑星の地殻-マントルを構成する岩石について、高精度・高確度でその形成年代を決定することは必要不可欠である。ウラン-鉛年代法は、ウランから鉛への二つの放射壊変系列 ( $^{238}\text{U} \rightarrow ^{206}\text{Pb}$  半減期 45 億年,  $^{235}\text{U} \rightarrow ^{207}\text{Pb}$  半減期 7 億年) に基づく年代法で、3つのウラン-鉛同位体比  $^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$ ,  $^{207}\text{Pb}/^{235}\text{U}$ ,  $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$  からそれぞれ年代値を決定できるため、他の同位体年代法よりも高精度且つ信頼性の高い年代情報を与える。このため、これまでに様々な酸性～塩基性の地球岩石及び隕石試料の高精度ウラン-鉛年代測定が行われてきた。特に近年では、同位体質量分析法の高感度化 (Huyskens, Iizuka & Amelin, *Journal of Analytical Atomic Spectrometry* 2012), 鉛ダブルスパイク法の確立 (Kuritani & Nakamura, *Journal of Analytical Atomic Spectrometry* 2003; Amelin & Davis, *Journal of Analytical Atomic Spectrometry* 2006), 試料の酸洗浄法の改良に伴い、ジルコンやリン酸塩鉱物などの高ウラン含有量鉱物を含まない玄武岩質隕石試料についても、単斜輝石などを用いた高精度ウラン-鉛年代測定が可能となりつつある (Iizuka et al., *Geochimica et Cosmochimica Acta* 2014)。一方、 $\text{SiO}_2$  含有量が 45% 以下の岩石である超塩基性岩については、高精度ウラン-鉛年代測定は殆ど行われていない。これは主に、超塩基性岩中にはジルコンやリン酸塩鉱物が一般的には見られず、また、液相濃集元素であるウランが極微量にしか含まれないことに因る。

超塩基性岩は、地球上ではマントルを構成する最も主要な岩石であり、地殻中にもコマチアイトなどとして産する。また、多くのエコンドライト隕石は超塩基性であり、それらは微～原始惑星のマントル～深部地殻由来と考えられる。したがって、超塩基性岩の高精度ウラン-鉛年代測定が可能となれば、地球惑星のマントル～地殻の進化について重要な知見が新たに得られると期待できる。

### 2. 研究の目的

本研究では、超塩基性岩の高精度ウラン-鉛年代測定法を確立し、地球岩石及び隕石試料に適用する。特に、単斜輝石が含まれる超塩基性岩を対象とする。単斜輝石は高いウラン/鉛比を有するため高精度鉛-鉛年代測定のターゲットとなる。しかし、その低いウラン濃度のために複数粒子の収集と付着相として存在する非放射起源の鉛相の選択的な除去が必要となる。酸洗浄法は複数の酸を組み合わせて効果的に非放射起源鉛を取り除けることが知られているが、現在のところ酸洗浄中に生じている素過程についての研究はなされていない。さらに近年、その過程において同位体変動が引き起こされることが

報告されている (Amelin et al., *Earth and Planetary Science Letters* 2010)。もしこれが正しければ、酸洗浄によって不正確で精度の低い鉛-鉛年代が導かれることになる。そこで本研究では、非放射起源の鉛相の溶出過程の理解を深め、さらに酸洗浄過程における同位体変動の原因究明を目指す。

### 3. 研究の方法

超塩基性岩のウラン-鉛年代測定は、これまでジルコンなどの高ウラン含有量鉱物を含むキンバーライト試料などに限られていた。しかし、これらの試料は極めて特異な超塩基性岩であり、より一般的な(ウラン濃集鉱物を含まない)超塩基性岩である地球上部マントルを構成するカンラン岩、太古代火成岩を特徴づけるコマチアイト、超塩基性エコンドライト隕石については、ウラン-鉛年代測定は実施されていない。一方、近年の同位体質量分析装置の高感度化、ウラン-鉛ダブルスパイク法の確立、試料の酸洗浄法の改良により、玄武岩質隕石中の単斜輝石について高精度ウラン-鉛年代測定が可能となっている。そして、単斜輝石は多くの超塩基性岩中にも見られ、玄武岩中の単斜輝石に比べウラン濃度は低いものの、高精度ウラン-鉛年代測定に利用しうる。

超塩基性岩中の単斜輝石は、塩基性岩中のそれに比べて、低いウラン含有量をもつことが予測される。このため、これまでの酸洗浄法よりもより効率良く、単斜輝石以外の鉱物から由来する非放射性起源の鉛を除去する必要がある。この非放射性起源の鉛を除去するために、段階的酸洗浄法の開発を行う。段階的酸洗浄法は、様々な反応性を有する酸を用いて、岩石試料を構成する鉱物を段階的に溶解させる方法であり、隕石試料や地球岩石試料の高精度同位体分析に用いられてきた (例えば、Iizuka et al., *Geochimica et Cosmochimica Acta* 2014)。しかし、具体的にどのような種類の酸をどのような濃度で用いるのが最適なのかについては、未だに良く分かっていない。そこで本研究では、まず隕石や地球岩石に含まれる鉱物の酸に対する融解挙動を明らかにする。その結果に基づいて、単斜輝石から他の鉱物、特に非放射性起源の鉛を高濃度で含む鉱物を除去する段階的酸洗浄法を確立する。さらに、酸洗浄により不純物を取り除いた単斜輝石について、鉛のダブルスパイクを添加した上で、鉛分離を行い、高感度プラズマイオン源質量分析法 (ICPMS) により鉛同位体測定を行う。

### 4. 研究成果

酸洗浄における鉱物の溶出過程を明らかにするため、3つの隕石試料 (アングライト隕石 D'Orbigny, 未分類隕石 Ibitira 及び Northwest Africa 6704) の構成鉱物 (単斜輝石, 斜方輝石, 斜長石, スピネル, トロイライト, カンラン石, 燐酸塩鉱物, メタル) に、硝酸,

塩酸，フッ化水素酸，臭化水素酸を用いた酸洗浄を適用し，それぞれの過程における鉱物の組織の変化を観察し，さらに酸洗浄液の化学組成分析を実施した．鉱物の走査型電子顕微鏡（SEM）による観察から，輝石は酸洗浄の早い段階では大きな変化を見せない一方で，組成分析からはさまざまな相の溶出が確認された．得られた結果から，酸洗浄の第一段階ではリン酸塩鉱物の溶解に伴って金属/硫化物および輝石表面に存在する非放射起源鉛の大部分が選択的に取り除かれ，第二段階ではアルミニウムに富む斜長石の溶解により非放射起源の鉛がさらに溶出し，第三段階のフッ酸の使用においてナトリウムに富む斜長石が溶解していくという描像を得た．また，先行研究で同位体変動が報告されている第三段階のフッ化水素酸の使用において，輝石の部分的な溶解が確認された．さらに，この段階の輝石に対して SEM 像の詳細な観察を行なったところ，輝石中に存在する離溶ラメラのうち高カルシウム側の輝石が選択的に溶解する様子を発見した．モデル計算により，同位体的不均質を有するサンプルの選択的な溶解によって先行研究で報告されていた見かけ上の同位体分別が説明できることを示した．

次に，この酸洗浄法を地球の太古代試料のうち南アフリカ・カープバルクラトン・バーバートングリーンベルトに産出するコマチアイトおよび西オーストラリア・ピルバラクラトン・ノースポールに産出する玄武岩様岩中に含まれる輝石に対して適用し，高精度鉛-鉛年代を得ることができるか評価した．その結果，バーバートン，コマチアイトからは  $3294 \pm 310$  Ma (MSWD=0.27)，ノースポールクラトンの玄武岩からは  $3313 \pm 14$  Ma (MSWD=0.67)の鉛-鉛年代を得た．コマチアイトおよび中央海嶺玄武岩の年代は先行研究の全岩から得られたサマリウム-ネオジウム年代と調和的であると同時に，本研究で得られた鉛-鉛年代の精度は先行研究の全岩サマリウム-ネオジウム年代より高精度であった．太古代緑色岩帯の塩基性～超塩基性岩に関する鉛-鉛年代の報告例は現在のところほとんど存在しないが，これらの結果は単斜輝石の鉛-鉛年代がこれらの岩石試料に対して広い適用可能性を有していることを示す．

#### 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 1 件)

Piers Koefoed., Yuri Amelin, Qing-Zhu Yin, Josh Wimpenny, Matthew Sanborn, Tsuyoshi Iizuka, Anthony J. Irving (2016) U-Pb and Al-Mg systematics of the ungrouped achondrite Northwest Africa 7325. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **183**, 31–45, [doi.org/10.1016/j.gca.2016.03.028](https://doi.org/10.1016/j.gca.2016.03.028). 査読あり

#### 〔学会発表〕(計 5 件)

伊藤健吾, 飯塚 毅 (2018) Evaluation of acid leaching methods for high precision meteorite Pb-Pb chronology. 日本地球惑星科学連合 2018 年大会 .

Tsuyoshi Iizuka, Fred Jourdan, Piers Koefoed, Yuki Hibiya, Yuri Amelin, Akira Yamaguchi (2018) Thermal history of basaltic eucrites as recorded by lead and argon isotopes. 49th Lunar and Planetary Science Conference.

Kengo Ito and Tsuyoshi Iizuka (2017) Evaluation of the acid-leaching technique for high-precision Pb-Pb dating of meteorite pyroxenes. Goldschmidt Conference 2017.

伊藤健吾, 飯塚 毅 (2016) MC-ICPMS による高精度 Pb 年代測定. 日本質量分析学会同位体比部会 2016 .

Yuri Amelin, Qing-Zhu Yin, Piers Koefoed, Renaud Merle, Magda H. Huyskens, Tsuyoshi Iizuka (2016) Fractionation of radiogenic Pb isotopes induced by acid leaching: a pervasive phenomenon in Pb-isotopic dating of meteorites. Goldschmidt Conference 2016.

#### 〔図書〕(計 0 件)

なし

#### 〔産業財産権〕

なし

#### 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〕

東京大学大学院理学系研究科地球惑星科学専攻 伊藤健吾修士論文 Evaluation of acid leaching methods for Pb-Pb chronology and its application to ancient terrestrial rocks.

#### 6．研究組織

(1)研究代表者

飯塚 毅 (IIZUKA, Tsuyoshi)  
東京大学・大学院理学系研究科・准教授  
研究者番号：70614569

(2)研究分担者

小澤 一仁 (OZAWA, Kazuhito)  
東京大学・大学院理学系研究科・教授  
研究者番号：90160853

三河内 岳 (MIKOUCHI, Takashi)  
東京大学・大学院理学系研究科・准教授  
研究者番号：30272462

(3)連携研究者

( )

研究者番号：

(4)研究協力者

( )