

令和元年6月10日現在

機関番号：82626

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2017～2018

課題番号：17H07395

研究課題名(和文)炭質物を利用した新しい地質温度圧力速度計の開発と地球科学への応用

研究課題名(英文) Development of new geothermobarometry and geospeedmetry based on the kinetics of carbonaceous material

研究代表者

中村 佳博 (Yoshihiro, NAKAMURA)

国立研究開発法人産業技術総合研究所・地質調査総合センター・研究員

研究者番号：60803905

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、炭質物の反応速度論に基づく新しい地質温度圧力計と速度計を開発することを目的として研究を行った。この指標は日本に広く露出する低変成度岩に有効であり、野外調査と反応速度実験を組み合わせた研究を実施した。

(1)野外調査では、詳細な地質図を作成することによって領家と三波川帯の変成岩が地下深部ですでに接合していたことを明らかにした。(2)次に活性化体積を見積もる反応速度実験を実施した。この実験では-33.7から-1.5 cm³mol⁻¹の活性化体積を得ることができた。この我々の実験データは天然の石墨化は従来の実験結果よりもずっと早く反応が進行することを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究によって明らかにした活性化体積によって、自由に変成温度・圧力と被熱時間を炭質物の結晶構造進化から推定できるようになった。つまり、天然に広く産する炭質物の結晶構造を分析するだけで様々な地質情報を読み取れる新しい指標の構築が可能となった。今後さまざまな地域で実験と天然の炭質物結晶構造進化を比較し、より高精度な地質学的指標の構築を目指す。

研究成果の概要(英文)：This study aims to develop a new type of geothermobarometry and geospeedmetry based on the kinetics of carbonaceous materials. This indicator is particularly suitable for low-grade metamorphic rocks in the Japanese island. Hence, two different approaches by (1) experimental and (2) field studies were conducted for this purpose.

(1) Based on the detailed field study, we found the Ryoike and Sambagawa belts were already amalgamated before exhumation. This may suggest subduction zone and volcanic front were fluctuated by the plate motion. (2) We conducted for kinetic experiments of graphitization at various pressures and durations at 1200 °C. Activation volumes of -21.7 to -33.7 (0.5-2 GPa), and -1.5 to -4.0 cm³ mol⁻¹ (2-8 GPa) are obtained. Our data demonstrated that natural graphitization might proceed much more rapidly than previously estimated, owing to the large negative activation volumes of the reaction.

研究分野：鉱物学

キーワード：反応速度論 炭質物 石墨化 低変成作用 顕微ラマン分光分析

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

日本列島に広く分布する付加体～弱変成岩は、過去の沈み込みから上昇の一連の変成作用と変形作用を詳細に履歴している。これらの岩石を解析することで、過去の地震発生域の物理化学特性から沈み込み帯テクトニクスの解明まで様々な地球科学の課題を解釈する重要な地質情報となりえる。従来の地球科学分野では、高変成度の岩石や強い変形を履歴しているごく一部の岩石を利用して大きなテクトニクスの解釈を目指してきた。そのため日本列島の大部分を占める低変成度岩がおろそかになっている現状がある。

<課題点1: 解析手法の制約>

これまでの付加体地質学・変成岩岩石学では、異なる温度圧力領域の岩石を対象に研究が行われてきた。付加体地質学では、チャートや珪質泥岩に含まれる放散虫生層序を基礎に様々な地質帯の年代が構築されてきた。一方で、放散虫によってすべての年代が構築されてきた弊害のため、放散虫が算出しない低変成度岩は付加体地質学の研究対象から外れてきた。また変成岩岩石学においても主要な変成鉱物が産出しないことから、研究対象として研究されてこなかった経緯がある。

<課題点2: 地質構造の複雑性>

付加体から弱変成岩が露出している地域は、単純な沈み込みに関する温度構造や熱源に対して一方的な温度構造を有する地域はまれである。様々な変形ステージで流体・熱変成・延性・脆性変形を履歴した岩石を対象とするため、様々な地質情報を総合する必要がある。これは単純なサンプル採集と分析だけでは地質構造の解釈ができないことを強く示唆している。

このように、これまで有効な分析法が確立されていなかったため研究が遅れている地域が日本には広く分布する。このような問題を解決するためにも、低変成度の岩石に広く適用可能な地質温度圧力計の開発が急務である。

2. 研究の目的

申請者は野外地質調査と反応速度実験を組み合わせることで、沈み込み帯に対応した温度圧力履歴(150~650 / 0.3~2 GPa)を解析可能な「炭質物」を利用した新しいアレーニウス式温度圧力速度計の開発と地球科学への応用を目指す。岩石中の炭質物は他の変成鉱物と異なり、全岩化学組成に依存せず微量ながら一定量が含まれる利点がある。また汎用的な装置(XRD, 顕微ラマン分光装置)を用いて分析可能という特色もある。本研究では反応速度実験と野外地質調査という異なるアプローチから炭質物の温度・圧力・速度依存性を正確に決定する。そして実験値から反応速度式を構築することで複雑な地質構造を有する地域の弱変成岩・断層岩・付加堆積物がどのような温度圧力履歴と被熱時間を経験したのか議論をおこなう。この2つの検討結果から、様々な弱変成岩地域で利用可能な指標として活用していく。

3. 研究の方法

本研究目標を達成するために 1)野外地質調査と 2)反応速度実験から炭質物の結晶構造進化の素過程の解明を目指す。野外地質調査では、長野県大鹿村地域に分布する付加体から弱変成岩の変成作用と変形作用の詳細な議論をおこなう。採取した天然炭質物に関しては鉱物学的・地球化学的(TEM・XRD・顕微 FTIR/Raman 分光)な分析を行う。そして複雑な地史を有する地域において温度-圧力-被熱時間を考慮することで炭質物の結晶構造進化を再現することが可能か議論する。また同時に天然炭質物を利用した場合反応速度実験を行う。天然炭質物の結晶構造進化に対応する適切な温度圧力条件にて、グラフアイトへ変化する場合の反応速度定数を決定する。この実験定数を利用し様々な変成帯にてアレーニウス式温度圧力速度計を適用することで、高精度な温度推定と圧力・速度(被熱時間)の定量が可能か議論を行う。

4. 研究成果

(1) 大鹿村における詳細な野外地質調査

大鹿村地域における野外地質調査では、これまで150日以上野外地質調査を実施し、広域の地質図の作成をおこなった。この詳細な地質図を作成することで、中央構造線に産する領家変成岩起源マイロナイトと三波川変成岩の関係性を明らかにすることができた。そして両変成岩が中央構造線を境界に低温型マイロナイト化を同時に受けたことを明らかにした。さらにマイロナイトのU-Pb年代測定を実施することで、最後期に貫入しウルトラマイロナイトに変形した源岩の固結年代を69 Maと特定することに成功した。鹿塩時階における左横ずれ変形年代が83 Maより古いとしていた従来の報告(Kubota and Takeshita, 2008)よりもずっと源岩が若いことを明らかにした。この源岩年代をもとに、これまで報告されている鉱物の放射年代をコンパイルすると図1の通りになる。源岩の形成年代は69 Maであり、この固結年代から冷却すると、中温型のマイロナイト化年代は66-67 Ma、低温型のマイロナイト化年代は64-65 Maであることが明らかにした。後者の年代は中部・関東地方の三波川変成岩のK-Ar年代と一致しており、三波

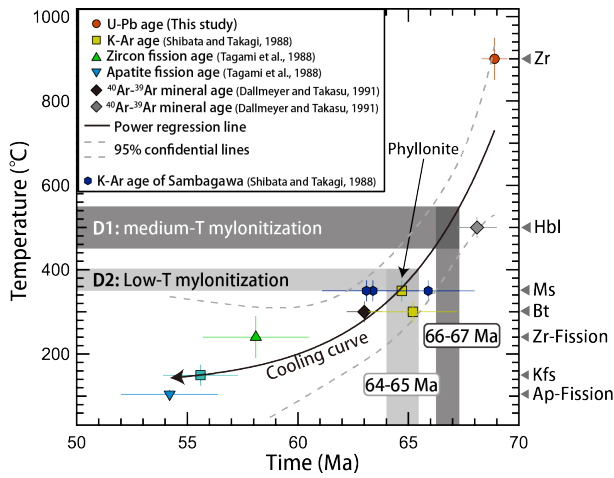


図 1. マイロナイト源岩の冷却カーブから推定する 2 つのマイロナイト化年代 . D1 変形(中温型マイロナイト)は 66-67 Ma, D2 変形(低温型マイロナイト)は 64-65 Ma に形成した .

(2) 反応速度実験から炭質物の結晶構造進化の素過程の解明

反応速度実験に基づく炭質物の結晶構造進化を解明するために、昨年度に引き続き圧力依存性を決定する高温高压実験を実施した . 計 17 回の実験を実施することで、圧力ごとの反応速度係数を決定することに成功し、0.5 GPa から 8 GPa における反応速度定数より活性化体積を見積もった . 活性化体積は累乗則に則って連続的に値が変化することから、低圧側(0.5-2.0 GPa)と高圧側(2-8 GPa)でそれぞれ、 -21.7 ± 3.0 から $-33.7 \pm 17.3 \text{ cm}^3 \text{ mol}^{-1}$ 、 -1.5 ± 0.3 から $-4.0 \pm 1.7 \text{ cm}^3 \text{ mol}^{-1}$ の活性化体積をえることができた . 負の活性化体積を有しており、低圧側でより顕著な圧力依存性を示す . つまり、沈み込み帯においては低圧条件でも地質学的な温度圧力条件でグラファイトを合成できることを示唆している . そこでより具体的な温度圧力速度条件をインプットし、結晶構造進化をモデル化した .

Nakamura et al. (2017)で報告している反応速度定数と速度依存性をインプットすると以下の式によって炭質物の結晶化度を定量化することが可能である .

$$f(P, T, t) = C_{\min} + (C_{\max} - C_{\min}) / [1 + \{A_1 \exp((-Ea + P V) / RT) / t\}^h],$$

C_{\min} , C_{\max} はシグモイド関数の上限と下限である A_1 は前値定数, R は気体定数, h はヒル係数, そして温度 T , 圧力 P , 活性化体積 V , 活性化エネルギー Ea , 被熱時間 t を代入すると図 2 のモデルを構築できた . この反応速度論に基づく結晶化度の定量化によって 1000 万年の被熱時間をインプットすると 480-700 の変成温度でかつ 0.5-1.0 GPa の変成圧力でグラファイトを合成できることを明らかにした . この温度圧力条件は、天然に産する変成グラファイトの形成温度ともよく一致している . つまり、上の反応速度式を用いることで温度-圧力-速度依存性を考慮した地質温度圧力計を構築できることを示唆している . 今後さまざまな地域でこの反応速度式を用いて炭質物の結晶化度を再現し、実験と天然の結晶構造進化を比較していきたい .

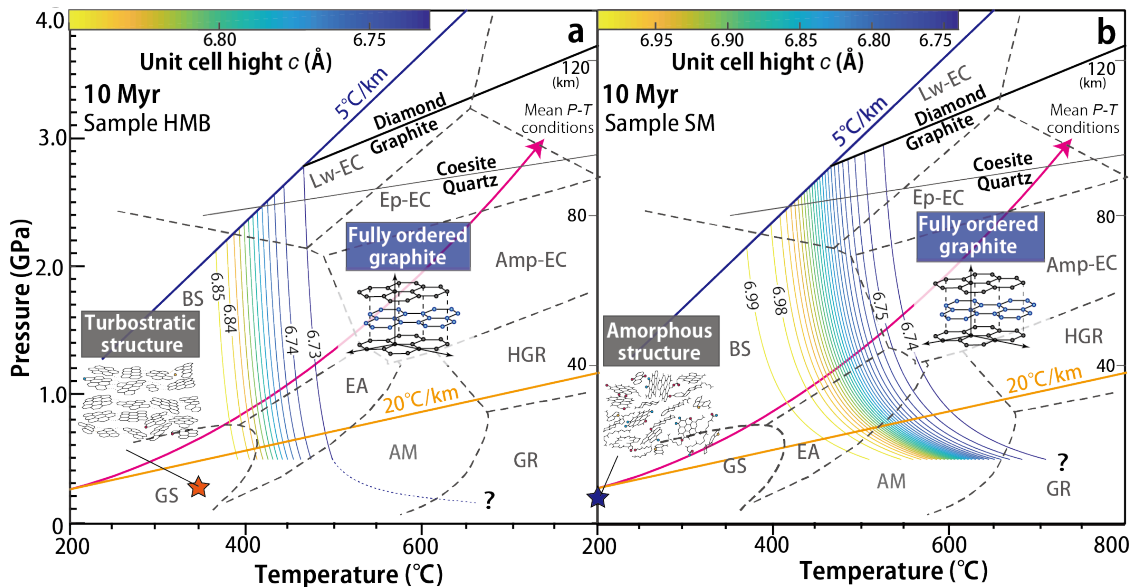


図 2. アレーニウス則に基づく温度-圧力-結晶化度プロット . グラファイトの理想的な結晶構造である 6.73 \AA の構造になるまでのコンター図をプロットしている .

川変成作用が起きているときに低温型のマイロナイトが上盤と下盤で形成していたことを明らかにした . つまり、三波川変成岩の上昇時に接合したと考えられてきた両変成岩が、三波川変成岩の形成場所である沈み込み帯まで大規模なせん断変形によって移動し、地下深部で接合していたことを示唆している .

この研究成果は、沈み込み帯における低温高压型と高温低圧変成岩の形成過程を考える上で極めて重要な研究データであり、今後変形・変成作用をまとめて論文を投稿する . この研究に関する学会発表は計 5 件実施している .

上記2つ主要な研究成果の他に、グラファイトを含むシュードタキライトの化学組成と溶融に伴う流体の発生に関する研究成果を *Tectonophysics* に誌上発表した(Nakamura et al. 2018)。そして実験で使用した出発物質の一つである四万十付加体中の有機物の結晶構造進化についても詳細な分光分析に関する研究成果を *Island Arc* に誌上発表した(Nakamura et al. in press)。

<参考文献>

Paleocene large-scale normal faulting along the Median Tectonic Line, western Shikoku, Japan, Kubota, Y., Takeshita, T., *Island Arc*, 17, pp.129-151, 2008.

An experimental kinetic study on the structural evolution of natural carbonaceous material to graphite, Nakamura, Y., Yoshino T., M. Satish-Kumar, *American Mineralogist*, 102, pp.135-148, 2017.

5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 3 件)

Nakamura, Y., Hara, H., Kagi, H., Natural and experimental structural evolution of dispersed organic matter in mudstones: the Shimanto accretionary complex, southwest Japan. *Island Arc*, in press. [査読あり] DOI: 10.1111/iar.12318

Nakamura, Y., Toyoshima, T., Satish-Kumar, M., Microstructure and geochemical signatures of metasedimentary origin pseudotachylyte: Implications for fluid activity during paleoseismicity. *Tectonophysics*, v. 745, 2018, 170-182 [査読あり]
<https://doi.org/10.1016/j.tecto.2018.07.010>

Hewathilake, H.P.T., Balasooriya, N.W.B., Nakamura, Y., Pitawara, H.M.T.G.A., Wijayasinghe, H.W.M., M. Satish-Kumar. Geochemical, structural and morphological characterization of vein graphite deposits of Sri Lanka: Witness to carbon rich fluid activity. *Journal of Mineralogical and Petrological Science*, v.113, 2018, 96-105. [査読あり] doi:10.2465/jmps.170721

〔学会発表〕(計 7 件)

Y. Nakamura, Y. Takahashi, T. Danhara, H. Iwano, and T. Hirata, *P-T* estimations of Kashio mylonite in Oshika, Nagano, Japan: Constraints on the amalgamation of Ryoke and Sambagawa belts, JpGU meeting 2019, 幕張メッセ(千葉県千葉市), 2019年5月29日

Y. Nakamura, T. Yoshino, and M. Satish-Kumar, Pressure dependence of graphitization: Implications for rapid recrystallization of carbonaceous material in Earth's crust, Joint symposium of Misasa 2019 & CMC, 20th March, プランナールみささ(鳥取県三朝町).

Y. Nakamura, Y. Takahashi, T. Danhara, H. Iwano, and T. Hirata, *P-T* estimations of Kashio mylonite in Oshika, Nagano, Japan: Constraints on the amalgamation of Ryoke and Sambagawa metamorphic belts, JSPS-DST Japan-India forum for Advanced Study 14th March, 新潟大学(新潟県新潟市)

中村 佳博, 長野大鹿村地域鹿塩マイロナイトに記録された2つの延性変形作用: 温度圧力条件の制約とテクトニクスへの示唆, 日本地質学会, 産業技術総合研究所(茨城県つくば市), 2018年12月02日

中村 佳博, 長野県鹿塩地域に分布する中央構造線泥質岩マイロナイトの変成温度圧力条件の見積もり, 鉱物科学会, 山形大学(山形県山形市), 2018年09月21日

中村佳博, Tectono-metamorphic evolution of Kashio mylonite in Oshika area, Nagano, Japan, JpGU Meeting 2018, 幕張メッセ(千葉県千葉市), 2018年5月21日

森 宏, 原 英俊, 中村 佳博, Detection of shear heating on an out-of-sequence thrust using Raman CM geothermometry and constraints on the fault strength and total displacement by thermal modeling, JpGU Meeting 2018, 幕張メッセ(千葉県千葉市), 2018年05月23日

〔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：
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：
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名：
ローマ字氏名：
所属研究機関名：
部局名：
職名：
研究者番号（8桁）：

(2) 研究協力者

研究協力者氏名：
ローマ字氏名：

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。