

令和 3 年 6 月 8 日現在

機関番号：12701

研究種目：若手研究

研究期間：2018～2020

課題番号：18K13633

研究課題名（和文）花崗岩から探る沈み込みを通した硫黄循環の追跡

研究課題名（英文）Sulfur cycle through subduction using granitoids

研究代表者

青山 慎之介（Aoyama, Shinnosuke）

横浜国立大学・大学院環境情報研究院・日本学術振興会特別研究員

研究者番号：50814232

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：沈み込んで表層にリサイクルされる硫黄の起源を探るため、花崗岩に含まれる硫化鉱物の産状を記載するとともに、全岩の四種硫黄同位体比を分析した。観察する限りほとんどの花崗岩試料の硫化鉱物は苦鉄質な鉱物（黒雲母や角閃石）に包有・隣接しており、初生的な同位体情報を保持すると考えた。多種硫黄同位体分析ではいずれの試料・時代でも0.3‰を超えるような大きな同位体異常は得られなかった。同位体比のバリエーションは全岩元素組成から得られた花崗岩成因論と調和的に解釈することができた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究により、沈み込みを通して一部の硫黄が表層にリサイクルされることが明らかとなった。また、このようなリサイクルが地球史を通して起きていたことを示唆する結果を得た。表層にリサイクルされた硫黄は例えばスカルンのような金属資源となる鉱床を生成することが知られており、その形成の大元となるプロセスの一端を明らかにすることができた。

研究成果の概要（英文）：In order to investigate the origin of the sulfur that is subducted and recycled to the surface, we describe sulfide minerals in the granite and analyze the quadruple sulfur isotope of the whole rock. The sulfide minerals in most of the granite samples were inclusions of mafic minerals (biotite and hornblende), and were considered to retain their primary isotopic information. Multiple sulfur isotope analysis did not reveal large sulfur isotopic anomalies exceeding 0.3‰ in any of the samples or periods. The variations in isotopic ratios can be interpreted with the genesis of granite, which is derived from the whole rock compositions.

研究分野：地質学

キーワード：花崗岩 四種硫黄同位体 沈み込み 硫黄循環

1. 研究開始当初の背景

現在、地球表層における硫黄の大きなリザーバーは海水硫酸である。その多くは大陸の酸化的風化、一部は火山・熱水反応によって供給される一方、蒸発岩(硫酸塩)として晶出、あるいは硫酸還元反応により硫化鉱物として堆積物や海洋地殻に固定され海洋から取り去られる。これらプロセスのうち、微生物硫酸還元は最大-60%を超える大きな硫黄同位体分別($d^{34}\text{S}$)を起こす。これまでの研究により過去の堆積岩の硫酸塩・硫化鉱物の硫黄同位体比が分析され、太古代でも硫酸還元菌が活動していたことが明らかとなっている(図)。一方、近年の硫黄同位体研究は従来の $^{34}\text{S}/^{32}\text{S}$ ($=d^{34}\text{S}$)に加えて存在度の低い ^{33}S 、 ^{36}S ($=D^{33}\text{S}$ 、 $D^{36}\text{S}$)の分析が行われ、特異な反応が起きたことを示す非質量依存同位体分別(Mass Independent Fractionation: 以下 MIF)が太古代の硫黄化学種から発見された(図)。MIF の原因は貧酸素大気下での SO_2 の光化学反応であることが室内実験により検証されており、約 23 億年前に大気酸素濃度が上昇した証拠となっている。ところが、従来硫黄同位体研究の多くは堆積岩を対象としており、海洋地殻を含めたグローバルな表層硫黄循環、例えば沈み込みによってどのような硫黄が深部に持ち込まれ、表層にリサイクルされるのかを解読するには至っていない。

2. 研究の目的

日本の顕生代花崗岩中の硫化鉱物の硫黄同位体比($d^{34}\text{S}$)に $\pm 10\%$ 程度のバリエーションがあり、当時の海水硫酸や堆積物の硫化物などの表層地殻物質が花崗岩に取り込まれていることから明らかとなっている (Sasaki & Ishihara, 1979)。一方で特に太古代の堆積岩の硫化鉱物は主に正の MIF、硫酸塩鉱物 (=海水硫酸)は負の MIF を示すことが明らかとなっている。マンツルの硫黄はほぼ初生的な同位体比 ($d^{34}\text{S} = D^{33}\text{S} = D^{36}\text{S} = 0$) を持つため、その異常の正負と大きさから、花崗岩に取り込まれた硫黄の起源を推定可能である。花崗岩は沈み込み帯深部で形成される深成岩であり、沈み込んだ海洋地殻・堆積物の情報を一部保持し、また沈み込みを通じた過去の硫黄リサイクルを記録している。そこで沈み込みを含めたグローバルな硫黄循環を解読するため、花崗岩の四種硫黄同位体比を分析した。

3. 研究の方法

花崗岩は硫化鉱物として硫黄を含む。その産状を薄片観察にて記載した上で、岩石粉末は Cr 還元法を用いて硫化銀として全岩から硫黄を抽出する。この硫化銀はキュリー点加熱装置を用いた迅速フッ化法を用い、 SF_6 ガスにする。ガスクロマトグラフィーを用いて SF_6 を精製後、同位体比質量分析計に導入、四種硫黄同位体比を分析する。硫黄同位体比($d^{34}\text{S}$)のみではマグマ形成時の脱ガスやその後の変成作用によって二次的な影響を受ける可能性があるが、同位体異常 ($=D^{33}\text{S}$ 、 $D^{36}\text{S}$)はこれらプロセスでは変化しないため、花崗岩が形成した時代での、沈み込みを通して表層にリサイクルされた硫黄の起源を知ることができる。また 23 億年前以降の地質記録は MIF を示さないが、しかし 23 億年前以降では海水硫酸とこれを微生物が還元した硫化水素との間の大きな同位体分別($d^{34}\text{S}$)、そして僅かに異なる $D^{33}\text{S}$ 、 $D^{36}\text{S}$ 値を持つことが培養実験、地質記録から明らかとなっている。すなわち高精度四種硫黄同位体分析により、太古代に限らず、原生代、顕生代においても表層地殻物質における生物地球化学的循環と、沈み込みを通じた硫黄リサイクルを明らかにすることができると期待される。

4. 研究成果

対象試料として本邦・飛騨帯の花崗岩類、本邦・北上帯の花崗岩類、西オーストラリア・カプリコーン地域に産する中期原生代の花崗岩、グリーンランド・海岸地域の原生代-太古代境界の花崗岩類、南インド・ダルワール地塊の後期太古代の花崗岩類を用いた。また、これまで硫黄同位体分析を行ってきたカナダ・アカスタ花崗片麻岩、西オーストラリア・ピルバラ地塊のマウントエドガー花崗岩類、南インド・ダルワール地塊の花崗岩類についてはその同位体比が初生的かどうかを検証するため、薄片作成とその記載を行った。これら硫化鉱物はその産状から、(1) 珪長質な鉱物 (石英や長石類)に包有されるもの、(2) 鉱物の粒間に存在するもの、(3) 苦鉄質な鉱物 (黒雲母や角閃石)に包有・隣接するものの 3 つのタイプに分類した。観察する限りほとんどの花崗岩試料の硫化鉱物は(3)に分類された。マグマ中での硫化鉱物の成因を考慮するとタイプ 3 の硫化鉱物は初生的だと考えられるが、変質によって硫黄が付加された可能性は否定できない。そこで変質の評価を行い、多種硫黄同位体比と比較したが、特に明瞭な傾向・関係性は見られなかった。また特に 40 億年前の花崗片麻岩は変成作用を被っているものの、包有される硫化鉱物の多くはタイプ 3 であり、片麻岩であっても初生的な同位体情報を保持していることが薄片観察から示された。

また、多種硫黄同位体分析では飛騨帯の花崗岩類中の硫黄は主にマンツル中の硫黄が主な起源であること、北上帯の花崗岩類中の硫黄は沈み込んだ海洋地殻起源の硫黄が主な起源である

ことを示唆した。これは全岩元素組成から得られた花崗岩成因論と調和的に解釈することができた。また、後期太古代は表層地殻物質に大きな硫黄同位体異常が観測される時代であるが、この時代に対応するこれら花崗岩には大きな同位体異常は観測されず、古い地殻の再溶融が影響していることを示唆した。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Raiki YAMADA, Hikaru SAWADA, Shinnosuke AOYAMA, Wataru OUCHI, Sota NIKI, Mitsuhiro NAGATA, Toshio TAKAHASHI, Takafumi HIRATA	4. 巻 25
2. 論文標題 Zircon U–Pb ages and whole–rock geochemistry from the Hida granites: implications for the geotectonic history and the origin of Mesozoic granites in the Hida belt, Japan	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Mineralogical and Petrological Sciences	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2465/jmps.201125	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 Seki Kaori, Ohba Takeshi, Aoyama Shinnosuke, Ueno Yuichiro, Sumino Hirochika, Kanda Wataru, Yaguchi Muga, Tanbo Toshiya	4. 巻 81
2. 論文標題 Variations in thermal state revealed by the geochemistry of fumarolic gases and hot-spring waters of the Tateyama volcanic hydrothermal system, Japan	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Bulletin of Volcanology	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s00445-018-1264-7	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 -

〔学会発表〕 計20件（うち招待講演 2件 / うち国際学会 8件）

1. 発表者名 M. Satish-Kumar & 青山 慎之介
2. 発表標題 Microvolume stable isotope measurements and its application for high-pressure high-temperature experimental run products
3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2019年大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 青山 慎之介, M. Satish-Kumar
2. 発表標題 新潟大での学術成果：四種硫黄同位体分析法の確立
3. 学会等名 第4回コアマントル若手会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 青山 慎之介, M. Satish-Kumar
2. 発表標題 四種硫黄同位体比迅速計測法の開発と花崗岩試料への応用
3. 学会等名 2019年度日本地球化学会年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 山田 来樹, 沢田 輝, 青山 慎之介, 大内 航, 仁木 創太, 長田 充弘, M. Satish-Kumar, 高橋 俊郎, 平田 岳史
2. 発表標題 飛驒花崗岩類のジルコンU-Pb 年代と全岩化学組成
3. 学会等名 日本地質学会第126年学術大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 青山 慎之介
2. 発表標題 新潟大学で自作したFluorination lineについて
3. 学会等名 装置自動化に関するワークショップ
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 青山 慎之介
2. 発表標題 花崗岩の硫黄同位体比から読み解く40億年前の全球的微生物硫酸還元活動
3. 学会等名 湘南地球科学の会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 青山 慎之介, M. Satish-Kumar
2. 発表標題 四種硫黄同位体比迅速計測法の開発と花崗岩試料への応用
3. 学会等名 第5回コアマントル若手会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 青山 慎之介
2. 発表標題 太古代挟み撃ち大作戦
3. 学会等名 第1回地球化学討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 大内 航, 青山 慎之介, 村居 呂一, 上野 雄一郎 & M. Satish-Kumar
2. 発表標題 Hydrogen and Oxygen isotopes study on serpentinite from the Happo-one area: Implications for the water cycle in subduction zone
3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2018年大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 青山 慎之介, 西澤 学, 宮崎 純一, 渋谷 岳造, 上野 雄一郎 & 高井 研
2. 発表標題 Recycled Archean sulfur in the mantle wedge of the Mariana Forearc
3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2018年大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 青山 慎之介
2. 発表標題 四種硫黄同位体比分析法の開発
3. 学会等名 第3回コアマントル若手回
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 青山 慎之介, M. Satish-Kumar
2. 発表標題 Stable isotopes as tracers in Deep Earth Process
3. 学会等名 核マントルの相互作用と共進化 A01-2, A02, A03-1合同班会議
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Ueno Y., Aoyama S.
2. 発表標題 Isotopic signatures of global-scale biological activity
3. 学会等名 ELSI Workshop "Puzzles and Solutions in Astrobiology" (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Aoyama S., Ueno Y., Komiya T., Iizuka T., Kamei A., Satish-kumar M.
2. 発表標題 Evidence from Archean granitoids for microbial sulfate reduction before 4.0 Ga
3. 学会等名 The 28th Goldschmidt Conference (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Ueno Y., Kaoru M., Endo Y., Aoyama S.
2. 発表標題 Tokyo Institute of Technology fluorination facility and application to Early Earth systems
3. 学会等名 Latest advances in the application of multiple sulfur isotopes in multi-scale exploration targeting, CET (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Aoyama S.
2. 発表標題 Sulfur isotopic signature of granitoids: link to the crustal evolution through Earth's history
3. 学会等名 Interaction and Coevolution of the Core and Mantle International School 2019 (国際学会)
4. 発表年 2018年～2019年

1. 発表者名 Seki K., Ohba T., Aoyama S., Ueno Y., Sumino H., Kanda W., Shinohara H., Yaguchi M., Tanbo T.
2. 発表標題 The chemical and isotopic changes of the hot springs and fumaroles in the Jigokudani Valley, Tateyama Volcano, Japan
3. 学会等名 CVL10 WORKSHOP (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Aoyama S., Oneyama T., Ouchi W., Ueno Y., Satish-Kumar M.
2. 発表標題 Surface sulfur in Archean granitoids from Dharwar craton, Southern India constrained by multiple sulfur isotopes
3. 学会等名 Progress and perspective of the studies on the crustal evolution of the Indian Peninsula from Archean to the present by geochemical, chronological and geological approaches (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Aoyama S., Oneyama T., Ouchi W., Ueno Y., Satish-Kumar M.
2. 発表標題 Multiple sulfur isotopes constraints on the origin of sulfide sulfur in Archean granitoids from Dharwar craton, Southern India
3. 学会等名 Integration and Coevolution of the Core and Mantle Towards Deep Earth Science International Symposium and Annual General Meeting, (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Aoyama S.
2. 発表標題 Subseafloor biosphere in the ancient Earth: constraint from multiple S isotopes records
3. 学会等名 JpGU - AGU Joint Meeting 2020 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関