

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 11 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23740403

研究課題名(和文)大規模火成作用に伴う強親鉄性元素移動プロセスの実態解明

研究課題名(英文)Highly siderophile element behaviors in large volcanic activities

研究代表者

石川 晃(Ishikawa, Akira)

東京大学・総合文化研究科・助教

研究者番号：20524507

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円、(間接経費) 1,020,000円

研究成果の概要(和文)：本研究課題では、地球上最大の巨大火成岩岩石区であるオントンジャワ海台やその他の海洋島/海台玄武岩のオスミウム同位体、強親鉄性元素濃度に関する系統的データを取得することにより、大規模火成活動に伴うマントル-地殻-大気海洋に渡る物質元素移動モデルを構築することを目的とした。必要となる高精度分析手法を確立し、海洋島/海台玄武岩の分析に応用した結果、大規模火成活動はマントルから地殻へ効率的に強親鉄性元素を運搬するが、通常の噴出条件では大気-海洋系への放出までには至らないことが判明した。

研究成果の概要(英文)：In order to understand the mechanism of material transportation and elemental behaviors associated with large volcanic activities, we obtained highly siderophile element concentrations and ¹⁸⁷Os/¹⁸⁸Os isotopic data of wide variety of ocean island and oceanic plateau basalts. For this purpose, we developed a new analytical protocol which is suitable for small amounts of low-level samples. The results demonstrated that large volcanic activities leading to the formation of large igneous provinces effectively transport highly siderophile elements from mantle budget to crustal levels. On the other hand, current dataset suggests that degassing and alteration processes in normal conditions cannot be responsible for the significant release of highly siderophile elements into the ocean-atmospheric reservoir.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：地球惑星科学・地球宇宙化学

キーワード：強親鉄性元素 オスミウム同位体比 玄武岩 大規模火成活動 オントンジャワ海台 巨大火成岩岩石区

1. 研究開始当初の背景

生物大量絶滅事件や海洋無酸素事変をはじめとする、主に顕生代地質境界に記録されている地球表層環境の大規模変動の支配要因として、「地球外天体衝突説(隕石衝突説)」と「地球内部変動説(大規模火山説)」の相反する仮説の是非が広く議論されている。白亜紀末の大量絶滅事件に関する論争は、アルバレスによるイリジウム濃縮層の発見・隕石衝突説の提唱から30年間に渡る検証作業の結果、チチュルブクレータの発見を軸とした多彩な証拠を基に、隕石衝突説の優位性が再認識されている。その一方で浮き彫りになったのは白亜紀末の特異性であり、古生代末から中生代に渡ってイベント的に認められる全球規模の劇的な環境変動は、むしろ巨大火成岩岩石区(LIPs)を形成した大規模火成活動と同期していたと考える研究者が多い。

白亜紀中期(122Ma)に活動した地球上最大のLIPsであるオントンジャワ海台は、その形成に伴い海洋無酸素事変(OAE1a)を引き起こした可能性が指摘されている。近年、両者の相関を示す証拠として、OAE1a 黒色頁岩とその上下層の解析から、当時の海水のオスミウム同位体比がマンテル側に大幅にシフトしていたことが Tejada et al. (2009)により示された。この結果を得た Tejadaらは、オントンジャワ火成活動に伴い、約5メガトンものオスミウムが玄武岩と海水との高温反応により海洋に放出されたと推定した。しかし、この膨大なオスミウム量は海台地殻全体積(およそ $6 \times 10^7 \text{ km}^3$)に含まれる30%にも相当し、海水と反応した玄武岩量の見積もりを考慮した場合非現実的な値となってしまう。一方、Ingle and Coffin (2004)は直径約20kmの隕石衝突がオントンジャワ海台形成の引き金となったとするモデルを展開している。海水に放出された5メガトンのオスミウムは直径20kmのコンドライト隕石に含まれる15%程度に換算されるため、大雑把な試算の上では、「隕石衝突説」の方が「大規模火山説」より最もらしい説明が与えられる。

2. 研究の目的

研究代表者はこれまでに、オントンジャワ海台直下マンテルに由来する捕獲岩を精査し、海台下リソスフェアの岩石層構造を復元する手法から、海台地殻の直下85km以浅にはジュラ紀海洋プレート(160Ma)が

現存することを明らかにした。この事実は、地殻-マンテル最上部の大規模な改変が期待される「隕石衝突説」を強く否定する。また更に注目すべきことに、深度85-90km付近に玄武岩質マグマを放出した融け残りハルトバージャイト層が存在し、そこがオスミウムの異常枯渇帯となっていることを見出した。このことから、表層に放出された大量オスミウムは深部マンテルに由来すると推測される。しかし、この「オスミウム地球内部起源説」を確立するためには、マンテルから海洋に至るオスミウムの移動プロセスとその規模を明らかにする必要がある。現状では、マグマ形成・進化過程における強親鉄性元素(オスミウムやイリジウム等)の挙動に関する知識が乏しく、オスミウム枯渇帯が形成される機構・条件、マグマの結晶分化に伴う濃度変動、海水/熱水変質による移動度、など全てが不明といっても過言ではない。そこで本研究では、マンテル-地殻-大気海洋系を包括的に取り扱い、強親鉄性元素の挙動がLIPs火成活動に伴うどのようなメカニズムに支配されていたのかを理解する。

3. 研究の方法

オスミウムやイリジウムは固相濃集性が強く、通常のマンテル融解時にはマグマ中に極微量しか分配されない。マグマ結晶分化過程においても、さらに濃度が低下すると考えられており、そのような仮定の下、適当な分配係数を適用してマグマ発生・進化モデリングが成されてきた。しかし、オントンジャワ海台下マンテルに存在する枯渇層は、オスミウムがマグマ発生時に液相濃集元素として振る舞ったことを示す。すなわち、大規模火成活動に伴うマグマ生成・進化における強親鉄性元素の挙動は、中央海嶺など他のセッティングと根本的に異なるプロセスに支配された可能性が高い。このような視点の下、本研究では海台を構成する各種玄武岩を対象に、強親鉄性元素濃度(Os, Ir, Ru, Pt, Pd, Re)及びオスミウム同位体比測定を期間内にできるだけ多く行い、大量マグマ生成/進化/噴出に伴う強親鉄性元素の移動メカニズムを理解する。具体的には以下の二点に重点を置く。

- (1) カリアスチューブ、高温高圧灰化装置、マイクロ波分解システムによる分解法の比較から、最適分解条件を決定し、玄武岩試料に対する高精度・高確度データの系統

的取得方法を確立する。

- (2) 主要・微量元素の組成変動と、強親鉄性元素濃度変動(分別パターン)・オスミウム同位体比の相関関係から、マグマ進化過程における元素移動の支配プロセスを特定する。

4. 研究成果

- (1) 玄武岩試料の強親鉄性元素濃度分析手法の最適化

玄武岩の強親鉄性元素濃度-オスミウム同位体比測定手法を確立するため、比較的多くの公表値がある玄武岩質標準試料(TDB-1:カナダ産粗粒玄武岩、BIR-1:アイスランド産玄武岩)の繰り返し分析データから、迅速且つ精度・確度とも良好な分解条件を決定する基礎実験を行った。「カリアスチューブ法」「マイクロウェーブ法」「高温高压灰化法」の異なる分解デバイスを利用し且つ、分解時間、温度、試料量、使用する酸などを変化させることで得られたデータを比較検討した結果、以下に示す重要な知見が得られた。マ

強親鉄性元素の逆王水への抽出効率は温度・分解時間・試料量に依存しており、各元素、各試料においても明瞭に異なる傾向にある。ルテニウムは逆王水への抽出効率が著しく低い(約50%)、リーチング後の残渣に対するフッ酸処理が本質的かつ有効である。レニウムはフッ酸により低温でも効果的に試料から抽出されるが、逆王水のみでは温度・分解時間・試料量に応じて回収率が変動する。オスミウム、イリジウムに関しては逆王水への抽出効率は高いが、粉末試料の不均質程度によってデータの再現性が規定される。白金、パラジウムは逆王水への抽出効率も高いが、ブランクも多元素に比べ桁高く、分解条件に応じて大きく異なる

上記の観察結果と作業効率を踏まえ、本研究課題で対象とする玄武岩試料に最適な分解法を決定し、強親鉄性元素濃度-オスミウム同位体比測定手法を確立するに至った。本手法を用いたBIR-1の繰り返し分析(N=9, 1RS)では、オスミウム6.9%、イリジウム5.1%、ルテニウム2.0%、白金5.1%、パラジウム1.5%、レニウム0.7%、187/188オスミウム同位体比0.5%のデータ再現性が得られており、従来手法に比べて精度が格段に向上したといえる。この成果は、2013年ゴールドシュミット国際会議で口頭発表を行

い、現在、論文受理目前の段階(若干の修正中)にある。

- (2) オスミウムブランクの低減化

玄武岩中に含まれるオスミウムの濃度や同位体($^{187}\text{Os}/^{188}\text{Os}$)比の高精度・高確度分析を行うためには、化学分離操作に伴うブランク量の低減化が鍵となる。海台を構成する玄武岩の多くは<100 ppt以下の濃度であることが期待されるため、ブランク量は<1 ppt以下に押さえることが望ましい。本研究ではICP-QMSによるスパージング法を適用し、Osの分離濃縮に使用する各種試薬のOsブランクを測定することにより、その起源の特定を試みた。その結果、主なブランク源は岩石粉末試料の分解の際に使用する硝酸と環境中に浮遊して存在するOsであることが判明した。硝酸については、硝酸の酸化剤である性質を生かした高温での蒸発や窒素や空気中のガスを通じつつ加熱を行う方法で硝酸内のOsを揮発性の高い四酸化Osとして除去し、Osブランクを半減させることができた。環境中のブランクについては、実験室の空気圧をあげることでOsを多量に使用する他の実験室からの空気流入量を制限するとともに、溶液の蒸発乾固を閉鎖環境で行うことなどで試料への混入を最小限にとどめた。これらの結果、現在では数pptレベルのOs分析が可能になるほどOsブランクを減少させることが可能となった。この成果は、原著論文としてまとめられ、JAMSTEC Report of Research and Developmentにおいて公表済である。

- (3) 海台/海洋島玄武岩の強親鉄性元素濃度・オスミウム同位体比

本研究課題で確立した手法を用いて、太平洋域に分布する海洋島/海台玄武岩試料中に含まれる強親鉄性元素濃度、オスミウム同位体($^{187}\text{Os}/^{188}\text{Os}$)比の高精度・高確度分析を行った結果、以下に示す新たな知見が得られた。

海洋底における変質作用に伴う各元素の移動度はそれほど高くないが、パラジウム、レニウムに関しては地表付近の脱ガス作用により大気-海洋系に放出されうる。レニウム-オスミウム壊変系に基づくアイソクロン年代は、元素移動の効果が小さい点、変質作用と岩石形成の年代差が小さい点を反映し、玄武岩噴出年代と調和的な結果を与える場合が多い。オントンジャワ海台、シャツキー海台、カリビアン海台などの主体を成しているソレライト質玄武岩は、中央海嶺玄武岩に比べて、高濃度の強親鉄性元素

を含有するのに対し、ルイビル海山列あるいはピットケルン諸島などの海洋島を構成するアルカリ玄武岩は、中央海嶺玄武岩に比べて同程度もしくはさらに低濃度となる特徴がある。以下の観察結果を基にすると、大規模火成活動はマントルから地殻へ効率的に強親鉄性元素を運搬するが、通常の噴出条件では大気-海洋系への放出までには至らないことが期待される。この成果の一部は 2014 年ゴールドシュミット国際会議で発表予定であり、現在論文執筆中である。

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7件)

仙田 量子、石川 晃、試薬および環境中のオスミウム blanks 低減についての試み: blanks 測定方法と起源の解明. *JAMSTEC Report of Research and Development*, 18, 17-28, 2014. [査読有]

Tejada, M. L. G., Suzuki, K., Hanyu, T., Mahoney, J. J., Ishikawa, A., Tatsumi, Y., Chang, Q., Nakai, S., Cryptic lower crustal signature in the source of the Ontong Java Plateau revealed by Os and Hf isotopes. *Earth and Planetary Science Letters*, 377-378, 84-96, 2013. [査読有]

石川 晃、マントル中の強親鉄性元素にまつわる3つの謎. *岩石鉱物科学*, 41, 203-211, 2012. [査読有]

仙田 量子、石川 晃、鈴木 勝彦、海洋底かんらん岩のオスミウム同位体組成. *岩石鉱物科学*, 41, 211-221, 2012. [査読有]

Sano, T., Shimizu, K., Ishikawa, A., Senda, R., Chang, Q., Kimura, J.-I., Widdowson, M., Sager, W.W. Variety and origin of magmas on Shatsky Rise, northwest Pacific Ocean, *Geochemistry Geophysics Geosystems*, 13, Q08010, doi:10.1029/2012GC004235, 2012. [査読有]

Maruyama, S., Utsunomiya, A., Ishikawa, A. Ontong-Java Plateau, the world's largest oceanic plateau, has been subducted 50%, with the remaining 50% on the surface, and with a < 1% accretion on the hanging wall of the Solomon Islands. *Journal of Geography (地学雑誌)*, 120, 1035-1044, 2011. [査読有]

Ishikawa, A., Spectacular mantle xenoliths derived from "oceanic kimberlite", Malaita,

Solomon Islands a unique window into the Earth's deep interior. *Journal of Geography (地学雑誌)*, 120, 1026-1034, 2011. [査読有]

(学会発表)(計8件)

Ishikawa, A., Sano, T., Senda, R., Suzuki, K. Highly siderophile element mobility during oceanic LIP emplacements: implications from subaerial and submarine basalts on Shatsky Rise. *Goldschmidt conference 2014*. 2014年6月25-30日, アメリカ・サクラメント

Ishikawa, A., Senda, R., Suzuki, K., Dale, C.W., Re-evaluation of digestion methods for accurate Re-Os isotope and highly siderophile element analyses. *Goldschmidt conference 2013*. 2013年8月25-30日, イタリア・フローレンス

Senda, R., Hanyu, T., Ishikawa, A., Kawabata, K., Takahashi, T., Suzuki, K., The possible source mantle and magma genesis of basalts from Pitcairn island: implication from highly siderophile elements and Os isotope ratios. *Goldschmidt conference 2013*. 2013年8月25-30日, イタリア・フローレンス

Tejada, M., Hanyu, T., Ishikawa, A., Senda, R., Suzuki, K., Re-Os isotope and platinum group element composition of Louisville seamounts chain, Pacific Ocean. *Goldschmidt conference 2013*. 2013年8月25-30日, イタリア・フローレンス

石川 晃、仙田 量子、鈴木 勝彦、標準岩石試料の強親鉄性元素濃度およびオスミウム同位体比の再評価 日本地球惑星科学連合 2013 年度連合大会, 2013 年 5 月 19-24 日, 日本・幕張メッセ

Ishikawa, A., Sano, T., Senda, R., Suzuki, K. Highly siderophile element behavior during oceanic LIP emplacement. 日本地球惑星科学連合 2012 年度連合大会. 2012 年 5 月 20-25 日, 日本・幕張メッセ

Ishikawa, A., Dale, C.W., Pearson, D.G. Ontong Java Plateau lithosphere and its relation to craton formation. 日本地球惑星科学連合 2012 年度連合大会. 2012 年 5 月 20-25 日, 日本・幕張メッセ

石川 晃、仙田 量子、鈴木 勝彦、玄武岩質試料に対する強親鉄性元素定量法の再検討 2011 年日本地球化学会第 58 会大会, 2011 年 9 月 16 日, 日本・札幌

6. 研究組織

(1)研究代表者

石川 晃 (ISHIKAWA, Akira)
東京大学・大学院総合文化研究科・助教
研究者番号: 20524507

(2)研究分担者

なし

(3)連携研究者

なし

(4)研究協力者

鈴木 勝彦 (SUZUKI, Katsuhiko)
独立行政法人海洋研究開発機構・地球内部ダイナミクス領域・主任研究員
研究者番号: 70251329

仙田 量子 (SENDA, Ryoko)
独立行政法人海洋研究開発機構・地球内部ダイナミクス領域・技術研究副主任
研究者番号: 50377991

テハダ マリア・ルイサ (TEJADA, Maria L G)
独立行政法人海洋研究開発機構・地球内部ダイナミクス領域・研究員
研究者番号: 40598778

佐野 貴司 (SANO, Takashi)
独立行政法人国立科学博物館・地学研究部・研究主幹
研究者番号: 40329579

デイル クリストファ- (DALE, Christopher)
ダラム大学地球科学科 (イギリス)・Lecturer