

平成 29 年 6 月 13 日現在

機関番号：82706

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26400527

研究課題名(和文) マントル深部由来の炭素と揮発性成分の検出

研究課題名(英文) Detection of carbon from deep mantle

研究代表者

羽生 毅 (HANYU, Takeshi)

国立研究開発法人海洋研究開発機構・地球内部物質循環研究分野・主任研究員

研究者番号：50359197

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：炭素を含む揮発性成分の地球表層とマントル間の循環過程はよく分かっていない。マントルに地球表層由来の炭素が存在するかどうかを検証するために、火山岩に含まれる炭素濃度と同位体を分析する技術開発を行った。二酸化炭素は火山岩が噴出するときに容易に脱ガスするため、ガスを保持していると考えられる海底噴出急冷ガラス試料を対象とした全岩分析と、火山岩中の斑晶に含まれるメルト包有物を対象とした局所分析を行った。この手法をマントル深部由来の海洋島玄武岩に応用した結果、一部の海洋島玄武岩には地球表層由来の炭素が含まれている可能性が示唆された。

研究成果の概要(英文)：Carbon has been exchanged between Earth's surface and mantle, but the mechanism for carbon cycle and the amount of carbon in the mantle are not understood. In order to assess the existence of carbon derived from Earth's surface in the mantle, we studied carbon dioxide in the ocean island basalts that are sourced from the deep mantle. Because carbon dioxide is easily degassed from erupting magmas, we developed the method to measure carbon dioxide in the quenched submarine glasses and melt inclusions in olivine phenocrysts in volcanic rocks. Applying this method for some ocean island basalts, it is inferred that mantle contains some carbon from Earth's surface.

研究分野：マントル地球科学

キーワード：炭素 マントル 物質循環 揮発性元素

1. 研究開始当初の背景

マンツルのダイナミクスを理解する上で、マンツルの組成、構造、物質循環過程を解明することは必要不可欠である。研究代表者らは本研究課題の実施以前よりマンツル深部由来と考えられる海洋島の火山岩を対象に研究を行い、特に固体元素濃度と同位体比を分析することでマンツルの化学組成とその進化の解明に取り組んできた。その成果として、地球内部物質は地殻 - マンツル間を大規模に循環し、かつて地球表層にあった堆積物や海洋地殻は沈み込むスラブにより運搬されてマンツル最下層に貯蔵されているとするモデルを提唱してきた。

それでは、水や二酸化炭素といった揮発性成分も地球表層 - 地殻 - マンツル間で大規模に循環しているのであろうか。これまでの研究では、揮発性成分はスラブの沈み込みによってマンツルに持ち込まれようとしてもそのほとんどがスラブの融解や脱水反応によって地球表層に戻されてしまうと考えられてきた。それに対して、最近の高温高压実験研究からは揮発性成分を含む安定鉱物がスラブ内に存在し得ることが示され、従って堆積物や海洋地殻等の地球表層物質に含まれる揮発性成分の一部はスラブによりマンツル内に持ち込まれる可能性が指摘されていた。また、大陸下マンツル由来のダイヤモンドには表層起源の揮発性成分が取り込まれているという証拠も示され、少なくとも上部マンツルまでは表層の揮発性成分が持ち込まれていることが示唆されていた。しかし、沈み込んだ揮発性成分がマンツル深部まで循環しているのかどうか、岩石学・地球化学からの物証は得られていなかった。

2. 研究の目的

地球表層の揮発性成分は沈み込むスラブによりマンツル深部まで運ばれるのか、そしてマンツル深部は揮発性成分の貯蔵庫になっているのか。これを検証するため、本研究では揮発性成分のうち炭素(二酸化炭素)を研究対象とした。沈み込むスラブによって地球表層の炭酸塩や有機物に含まれる炭素がマンツルに運搬されていたとしたら、そのようなスラブが貯留されている部分のマンツルはそれ以外の部分に比べて高い炭素量を示すはずである。また、炭酸塩(及びそれを含む変質した海洋地殻)や有機物(及びそれを含む堆積物)はマンツルとは異なる特徴的な炭素同位体比を持つので、スラブが貯留した部分のマンツルはそれ以外の部分と異なる炭素同位体比を持つはずである。

マンツル深部の岩石を直接得ることはできないが、マンツル対流における上昇流として形成されるマンツルプルームは深部マンツル物質をマンツル浅部まで運搬してくる。そして、そのような物質は最終的に融解してマグマとして噴出し海洋島火山を形成するため、海洋島火山岩から深部マンツルの物質的

情報を読み取ることができる。これまでの研究代表者らの研究で、スラブが貯留されている深部マンツル由来であると考えられる海洋島火山が分類されているので、そのような海洋島の火山岩に含まれる二酸化炭素の分析を行い、そこに地球表層起源の炭素の痕跡が見られるかどうか、上述の仮説を検証することが本研究の目的である。

3. 研究の方法

火山岩中の二酸化炭素の分析にはいくつかの問題がある。二酸化炭素は揮発性であるがために、脱ガス作用によりマグマから容易に逃散し得る。特に陸上に噴出した溶岩にはほとんど二酸化炭素は残っておらず、分析試料として用いることはできない。二酸化炭素を保持している可能性がある試料としては、海底急冷ガラスと斑晶(例えばかんらん石)中のメルト包有物が挙げられる。

両試料には一長一短がある。海底急冷ガラスは海底噴出火山に見られ、高い水圧下で揮発性成分が逃散する前に急冷固結するため揮発性成分を保持している。しかし、船舶により試料採取を行う必要があるため、そのような試料は希少である。一方、メルト包有物はマグマだまりの中で斑晶が成長するときに結晶の中に取り込まれたメルトであり、揮発性成分を保持している。メルト包有物は海洋島の火山岩には多く存在するが、大きさが数十~数百ミクロンと小さいため、局所分析技術が必要である。

本研究では全岩試料として海底急冷ガラスから二酸化炭素を抽出・分析する手法と、微小なメルト包有物の二酸化炭素を分析する手法の開発を行った。前者の全岩試料分析については、揮発性成分を全岩試料から抽出し、そこから二酸化炭素を分離する装置の製作を行った。この装置は、抽出された二酸化炭素量を絶対圧力計で測定する。また、二酸化炭素の炭素同位体比を測定するため、二酸化炭素を精製した後に冷却トラップに捕捉し、オフラインでレーザー分光炭素同位体測定器に導入できるようにした。さらに、抽出した揮発性成分の一部を用いて希ガスの含有量を測定できるようにした。これは、脱ガス分別の有無を希ガスを用いて評価、あるいは補正するためである。実際に海底急冷ガラスは一部の二酸化炭素を脱ガスにより失い、その時に炭素同位体比が分別してしまうことが知られている。脱ガスの際に希ガスの含有量比(ヘリウム/ネオン比、ヘリウム/アルゴン比)も分別することが分かっているので、炭素同位体比と希ガスの含有量比を同時に測定して脱ガス分別の影響を補正し、脱ガス前の炭素同位体比を求める手法を確立することが本研究の主眼の一つである。

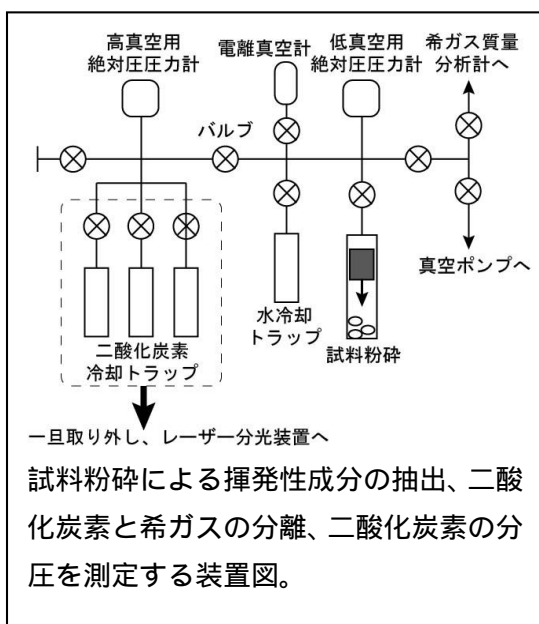
一方、後者の局所分析については、二次イオン質量分析計を用いてメルト包有物内の数十ミクロンの領域で二酸化炭素の濃度分析を行った。海洋島の火山岩に含まれるメルト

包有物は斑晶に囲まれていることにより脱ガスの影響を受けないので、メルト包有物が形成されたときの揮発性成分組成をそのまま測定することができる。しかし問題点としては、メルト包有物の大多数は微結晶が晶出しており組成的に不均質であるため、局所分析を行ったときにデータのばらつきに反映される可能性があることである。これを改善する方法としては、不均質なメルト包有物を一度加熱溶解させて、その後急冷させることにより均質なガラス質にしてから分析することである。しかし、この再加熱実験はかなり手間のかかる作業を伴う。そこで、代表的な試料について加熱均質化したメルト包有物としていないメルト包有物を準備し、二酸化炭素や他の揮発性成分の濃度の測定値を比較することで均質化が必要かどうかを評価した。

以上の手法を南太平洋に産出する海洋島の火山岩に適用した。この海洋島には、固体元素を用いた先行研究により沈み込んだスラブの影響を強く受けたマグマとあまり受けていないものの二種類のマグマが存在することが分かっている。そこで両マグマに含まれる二酸化炭素組成の比較を行った。もし沈み込むスラブがマントルに揮発性成分を運搬していたとしたら、スラブの影響を強く受けたマグマの方が系統的に高い揮発性成分量を持つはずである。両者のマグマに含まれる二酸化炭素組成に差が見られるかを調べ、マントルを循環する二酸化炭素の検出を試みた。

4. 研究成果

全岩試料としての海底急冷ガラスから二酸化炭素を抽出・分離する装置を製作し、それにより二酸化炭素の量を測定し、また二酸化炭素と希ガスをそれぞれ回収することができるようになった。製作した装置の概要と操作手順は以下のようなものである（下図）。



装置はステンレスの配管が複数のバルブで仕切られ、装置内部はターボ分子ポンプにより高真空に保たれている。数百～数グラムのガラス試料を真空配管中で粉碎することで揮発性成分を抽出する。抽出された揮発性成分には水（水蒸気）が多量に含まれていることがあるので冷却トラップで除去する。火山岩から抽出したガスの場合には残存ガスの大部分は二酸化炭素であるので、測定レンジの異なる二種の絶対圧力計を用いて二酸化炭素量を測定する。その後、抽出したガスの半量をバルブを用いて仕切り、そこからヘリウム、ネオン、アルゴンを冷却トラップを利用して分離する。それらの分離されたガスを順次希ガス質量分析計に導入して、ヘリウム、ネオン、アルゴンの含有量と同位体比をオンラインで測定する。残りの半量はオフライン分析のために液体窒素で冷却したトラップに集め、バルブで仕切って装置から外す。それをレーザー分光装置に接続、二酸化炭素を導入し、炭素同位体比を測定する。

この装置を用いて標準ガス試料の分析を行いながら、装置のさらなる改良を行った。希ガスについては、二酸化炭素と分離した以降はルーチン的に行っている作業であり、希ガス含有量の測定は問題なく行えることを確認した。二酸化炭素含有量の測定は、同濃度、あるいは異なる既知の濃度の標準ガス試料の繰り返し測定から、5%程度の再現性で測定が可能であることを確認した。また、二酸化炭素の同位体比測定についても、火山岩に含まれると想定される二酸化炭素量で繰り返し測定を行い、二けたの濃度範囲で測定を行うことができることを確認した。

一方、メルト包有物を対象にした二酸化炭素の局所分析については、二次イオン質量分析計による分析手法は確立していたものの、上述したように微結晶の晶出した組成的に不均質なメルト包有物を分析に用いることができるかが問題であった。そこで、同一の火山岩に含まれるかんらん石を多数用意し、半分はそのまま、残り半分はメルトが溶解する温度まで再加熱してから急冷することで均質なガラス質のメルト包有物を作り、両者の二酸化炭素と他の揮発性成分の濃度分析を行った。その結果、両者のメルト包有物は互いに重なりあう組成トレンドを示すものの、均質化していないメルト包有物はトレンドの幅が広く、またトレンドから顕著に外れるメルト包有物も複数存在した。均質化していないメルト包有物では、岩石学的な議論に必要な確度のデータを得ることは難しく、従って時間と手間がかかっても再加熱実験を行いメルト包有物を均質化することが必要であるという結論を得た。

この手法を南太平洋に産出する海洋島の火山岩に応用した。火山岩は鉛同位体比が顕著に異なる二つのグループに分けられ、研究代表者らのそれまでの研究によって鉛同位体比が高い火山岩は沈み込んだスラブ成分の

影響を強く受けたものであることが分かっている。そこで、それぞれに含まれるメルト包有物の揮発性成分組成を測定し比較した。その結果、二酸化炭素を含む揮発性成分濃度は両者で異なることが分かった。スラブ成分の影響を強く受けた火山岩中のメルト包有物は、より高い二酸化炭素濃度を持っていた。また二酸化炭素と同じ分配係数を持つ固体元素との濃度比についても相対的に高い値を持つことが分かり、スラブの影響を強く受けた火山岩のマグマ源は二酸化炭素に富んでいたことになる。このことから、炭素がスラブの沈み込みによって地球表層からマントルに持ち込まれている可能性が示唆された。また二酸化炭素に加えて他の揮発性成分についても同様の傾向が見られ、沈み込んだスラブにより各種揮発性成分がマントルへ同時に持ち込まれている可能性が見いだされた。

揮発性成分のマントル循環は地球物質進化研究の分野において最近注目を浴びているトピックスである。以前は、地球表層の揮発性成分が沈み込むスラブにより地球内部に持ち込まれることはなく、揮発性成分はマントルから地球表層へ一方的に供給されると信じられていた。しかし、最近の高温高压実験研究による成果から、二酸化炭素を含む揮発性成分は沈み込むスラブに含まれる安定鉱物に取り込まれ、地球深部まで持ち込まれる可能性が示されている。このような理論的予測に対して、地球表層由来の揮発性成分がマントルに存在することを実証することが求められており、本研究の成果はその足掛かりになるものと言える。

今後の研究の方向性として、同様の研究を世界中の各種海洋島玄武岩及び大洋中央海嶺玄武岩に適用し、揮発性成分に関するデータセットを構築して、マントルのどのような場所に揮発性成分が濃集しているのかを明らかにしていく必要がある。また、二酸化炭素に加えて水、塩素、フッ素、硫黄といった揮発性成分についてもデータセットを増やし、これらの揮発性成分の挙動の違いを利用して揮発性成分がマントルを循環するプロセスを解明していく必要がある。このような研究を通じて、未だに分かっていないマントルに存在する揮発性成分量、マントルから地球表層へ、また地球表層からマントルへ供給される揮発性成分フラックス、マントルの進化における揮発性成分の果たした役割、地球表層における揮発性成分量がマントルによってコントロールされる仕組みの解明が期待される。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計2件)

Weiss, Y, C. Class, S. L. Goldstein and T. Hanyu, Key new pieces to the HIMU puzzle from olivines and diamond inclusions, *Nature*, 537, 666-670, 2016,

doi:10.1038/nature19113、査読有
Hanyu, T., K. Shimizu and T. Sano, Noble gas evidence for the presence of recycled material in magma sources of Shatsky Rise, in Neal, C. R., W. Sager, E. Erba, and T. Sano, eds., *The Origin, Evolution, and Environmental Impact of Oceanic Large Igneous Provinces: Geological Society of America Special Paper*, 511, 57-67, 2015, doi:10.1130/2015.2511(03)、査読有

〔学会発表〕(計7件)

Hanyu, T., K. Shimizu, T. Ushikubo, J. Yamamoto, K. Kimoto, Y. Nakamura, J.-I. Kimura, Q. Chang, M. Hamada, M. Ito, H. Iwamori and T. Ishikawa, Volatiles in olivine-hosted melt inclusions in HIMU basalts from Raivavae, South Pacific, 日本地球惑星科学連合大会、2017年5月23日、幕張メッセ(千葉県千葉市)

Ozawa, T., T. Hanyu, H. Iwamori, M. Hamada, T. Ushikubo, K. Shimizu, M. Ito, J.-I. Kimura, Q. Chang and T. Ishikawa, Geochemistry of olivine melt inclusions in Pitcairn Island basalts: A multiple-instrument approach, 日本地球惑星科学連合大会、2017年5月23日、幕張メッセ(千葉県千葉市)

Hanyu, T., Geochemical constraints on the age of HIMU mantle reservoirs, The 1st Asia-Pacific Workshop on Lithosphere and Mantle Dynamics, 2016年9月25日、台北(台湾)

Hanyu, T., H. Kawabata, J.-I. Kimura, T. Miyazaki, R. Senda, Q. Chang, Y. Hirahara, T. Takahashi, B. S. Vaglarov and Y. Tatsumi, Possible carbonated melts from a mantle plume; a study of Raivavae, Goldschmidt Conference 2016, 2016年6月28日、パシフィコ横浜(神奈川県横浜市)

Hanyu, T., K. Shimizu, T. Ushikubo, M. Ito, J.-I. Kimura, Q. Chang, M. Hamada, T. Ozawa, H. Iwamori and T. Ishikawa, Volatile element compositions of HIMU basalts; a study of Raivavae in the South Pacific, 日本地球惑星科学連合大会、2016年5月25日、幕張メッセ(千葉県千葉市)

Hanyu, T., M. L. G. Tejada, K. Shimizu, O. Ishizuka, J.-I. Kimura, Q. Chang, R. Senda, T. Miyazaki, K. Goto and A. Ishikawa, A seamount on top of Ontong Java Plateau was created by remelting of plateau lithosphere by plate flexure, 日本地球惑星科学連合大会、2016年5月23日、幕張メッセ(千葉県千葉市)

小澤 恭弘、岩森 光、羽生 毅、浜田 盛

久、清水 健二、牛久保 孝行、木村 純一、
常 青、石川 剛志、伊藤 元雄、南太平洋
ピトケアン島におけるメルト包有物の地
球化学的研究、日本地球惑星科学連合大
会、2016年5月23日、幕張メッセ（千
葉県千葉市）

〔その他〕

研究論文の紹介記事

科学新聞：2016年9月16日号（4面）

所属機関プレスリリース：

<http://www.jamstec.go.jp/j/about/press-release/quest/20160906>

6．研究組織

(1)研究代表者

羽生 毅（HANYU, Takeshi）

国立研究開発法人海洋研究開発機構・地球
内部物質循環研究分野・主任研究員

研究者番号：50359197

(2)研究分担者

小川 奈々子（OGAWA, Nanako）

国立研究開発法人海洋研究開発機構・生物
地球化学研究分野・主任技術研究員

研究者番号：80359174

(3)連携研究者

大河内 直彦（OHKOUCHI, Naohiko）

国立研究開発法人海洋研究開発機構・生物
地球化学研究分野・分野長

研究者番号：00281832