

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年5月28日現在

機関番号：12102

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2008～2011

課題番号：20340149

研究課題名（和文） 花崗岩深部地下水に対する流体包有物組成の影響に関する研究

研究課題名（英文） Studies on effect of fluid inclusion compositions on groundwater chemistry in granite

研究代表者

黒澤 正紀（KUROSAWA MASANORI）

筑波大学・生命環境系・講師

研究者番号：50272141

研究成果の概要（和文）：

島弧花崗岩から放出される熱水流体の組成を明らかにするため、山梨県甲府花崗岩と長崎県対馬花崗岩の石英に含まれる流体包有物中の元素を粒子線励起X線分析法（PIXE）で分析した。甲府岩体と対馬岩体の多相包有物は高塩濃度で、多数の金属元素を高濃度で含む。また、甲府岩体に湧出する鉱泉の元素組成は岩体に含まれる流体包有物の平均組成を天水で希釈した値と一致することが分かった。

研究成果の概要（英文）：

Major and trace elements of single fluid inclusions in quartz from bodies at Kofu, Yamanashi, and Tsushima, Nagasaki, Japan were analyzed by particle-induced X-ray emission (PIXE). Polyphase inclusions from both granite bodies contained considerably chlorines and transition-metal elements. In addition, metal contents of spring waters from mineral springs in the Kofu granite almost agreed with diluted solution of the average metal contents of the fluid inclusions in the body.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	7,600,000	2,280,000	9,880,000
2009年度	1,100,000	330,000	1,430,000
2010年度	1,200,000	360,000	1,560,000
2011年度	500,000	150,000	650,000
年度			
総計	10,400,000	3,120,000	13,520,000

研究分野：鉱物学・地球化学

科研費の分科・細目：地球惑星科学、岩石・鉱物・鉱床学

キーワード：元素分別濃集過程

1. 研究開始当初の背景

花崗岩は日本の地表部に約12%露出し、堆積物直下の地殻内部で推定約7割の体積を占める重要な構成岩石である。そのため、花崗岩の固結の際に放出される流体は鉱床や温泉形成だけでなく、表層環境や花崗岩の深部地下水の組成にも大きな影響を与える。

通常、花崗岩から発生する流体は、花崗岩や周囲の岩石を構成する鉱物の内部に微小な「流体包有物」として一部が捕獲される。この流体包有物の組成は、地球内部流体の化学組成を知る直接的手がかりとして有用である。但し、1つの鉱物には様々な起源と組成を持つ包有物が過去の流体通過により残

されているため、包有物から流体履歴を定量的に解読するには、大きさ 30 ミクロン以下の包有物を個別に分析する必要がある。我々のグループは、地球内部流体の定量的把握を目指して、これまで粒子線励起 X 線分析法 (PIXE) による流体包有物組成の定量分析法の開発を進めてきた。その結果、世界で最も高精度の分析が可能となり、国内の花崗岩の流体包有物分析も予察的に進めてきた。

花崗岩体の深部地下水の組成は、①岩体の地表水、②外来流体の流入、③岩体の割れ目に保存された流体(地下水)の放出、④岩石中の鉱物と水の相互作用、⑤岩体の変形に伴って流体包有物から放出される流体などによって支配されている。通常は、①～④の要因が重要となるが、スウェーデンやフィンランドの放射性廃棄物地層処分用に掘られた花崗岩の縦坑では、⑤の流体包有物によって影響されたと考えられる深部地下水が大量に湧出していることが報告されている。これが事実とすれば、深部地下水組成は今後数万年にわたって流体包有物の漏出流体の影響を受け続ける可能性があるため、包有物組成から将来発生する地下水組成を予測できることにもなる。

2. 研究の目的

花崗岩は日本の地殻内部の重要な構成岩石で、花崗岩から放出される流体は鉱床や温泉形成だけでなく、表層環境や花崗岩の深部地下水の組成にも大きな影響を与える。花崗岩体は高レベル放射性廃棄物の地層処分のモデル岩体としても重要で、地層処分に影響する深部地下水組成の支配機構の解明も急がれている。そこで、本研究では、日本列島の花崗岩中の流体包有物の組成を明らかにし、さらに花崗岩体の深部地下水組成との関係を解明することを目的に、花崗岩の流体包有物に含まれる溶存元素の分析を行うことを試みた。また、花崗岩起源流体の組成から日本の熱水鉱床形成の研究にも寄与するものである。

3. 研究の方法

本研究では、(1)地質学的条件の異なる複数の島弧花崗岩体の流体包有物について、顕微鏡やマイクロサーモメトリーによる特徴を把握、(2)その組成を主に筑波大設置の PIXE を用いて分析し、(3)花崗岩体の湧水や鉱泉水の組成との比較から、流体包有物と深部地下水の関係について検討した。

(1) では、花崗岩体内部での流体包有物の分布と組成変化を検討するため、風化が少なく岩体の中心から周辺部が広く露出する新第三紀の 2 種類の花崗岩体 (山梨県甲府岩体・長崎県対馬内山岩体) を研究対象とした。甲府岩体は、削剥と露出が進んだ黒雲母花崗

岩と花崗閃緑岩からなる複合岩体で、地質状況が明瞭で、鉱脈・鉱泉が豊富で過去の流体挙動が追い易い。周辺に鉱床は少なく、小規模な鉱脈鉱床や銅鉄タイプのスカルンを伴うのみである。固結深度は約 5~8 km である。今回は黒雲母花崗岩を主とする御岳昇仙峡型花崗岩を調査した。対馬岩体は黒雲母花崗岩を主とし、岩体上部が露出する小規模岩体で、周囲に日本有数の鉛-亜鉛鉱床を多数伴うが、温泉や鉱泉等の湧出が殆ど無い。日本海拡大の伸張場で固結したため、貫入深度が 2~6 km と浅い。今回は内山地域に分布する花崗岩を研究対象とした。

一般に、花崗岩は岩体固結から現在までに発生・通過した全ての流体を捕獲しているため、流体包有物の形成過程の検討が困難である。そこで、今回は形成時期が明瞭な花崗岩中の晶洞と石英脈さらに岩体周囲の鉱脈の流体包有物を試料とした。晶洞は花崗岩固結時に発生した流体が集合して形成され、石英脈は集合した流体が岩体内部を移動する過程で形成されたもの、岩体付近の鉱脈は流体が岩体外へ移動する過程で形成されたものである。したがって、それらの中の流体包有物を調べれば、花崗岩での流体発生から移動までの間の流体組成の変化を検討できる。今回は各岩体の晶洞・石英脈・鉱脈の石英に捕獲された流体包有物を調査・分析した。

これらの花崗岩体で、岩体の中心から周辺部まで調査と試料採取を行い、主にマイクロサーモメトリーと PIXE で流体包有物組成を明らかにした。(3)では、甲府花崗岩体の鉱泉水と流体包有物組成の比較を行い、湧水に対する包有物の影響の有無を検討した。

4. 研究成果

両岩体の花崗岩・晶洞・石英脈・鉱脈の石英には、2相・多相・気相・低濃度 2相・CO₂ の 5 種類の流体包有物が含まれていた。2相包有物は塩濃度数%の塩水+気泡からなり、多相包有物は塩濃度 26%の塩水+岩塩結晶+気泡、気相包有物は少量の塩水+巨大な気泡、低濃度 2相包有物は塩濃度 5%以下の塩水+微小な気泡、CO₂ 包有物は液体炭酸ガスを主とする包有物である。これらは、花崗岩の固結に伴って発生した NaCl-H₂O-CO₂ 流体から、流体の移動過程での温度圧力低下・減圧沸騰・希釈などで分離した流体から形成されたものである。5 種類の流体包有物の存在割合や分布は各岩体で異なっている。

甲府花崗岩体は、岩体全域で塩濃度約 8wt.%の塩水を含む 2相包有物が卓越しており、低濃度 2相・CO₂ の包有物は比較的少ない。多相と気相包有物は標高 800~2000m 付近の岩体上部の石英脈と花崗岩および付近の熱水鉱脈にのみ存在する。多相包有物の塩濃度は約 30wt.%である。これらの包有物は、

花崗岩マグマが固結する際に放出された流体が周囲へ移動する過程で花崗岩本体に捕獲されてきたものである。これらの流体包有物を PIXE で分析したところ、Cl, K, Ca, Mn, Fe, Cu, Zn, Pb, Br, Sr, Rb が検出された。塩濃度が 30wt. %NaCl の多相包有物は、K, Ca, Fe を 1 万 wt. ppm 以上、Mn, Cu, Zn, Pb, Br を数百～数千 ppm の濃度で含んでいた。花崗岩体の形成温度圧力条件から流体の発生条件を推定した結果、高塩濃度・高金属濃度の流体包有物は初生的な塩濃度 8wt. %の流体が沸騰してきていたことが分かった。

対馬岩体は岩塩・方解石を含む多相包有物を多量に含み、他に気相・2相包有物、少量の低濃度2相・CO₂包有物を含む。このうち前3者の組成を分析した。初生流体に近い晶洞の多相包有物の均質化温度は約 200°C～800°C (塩濃度 26%～55%)と幅広く、大多数は約 450°C (塩濃度 40 %)を示す。圧力補正をすると、形成温度は 500°Cを超える。多量の多相・気相包有物の存在から、流体の形成時は沸騰状態にあったことが分かる。分析の結果、晶洞の多相包有物は平均で約 25 wt%の Cl・約 1-5 %の K・Ca・Mn・Fe、数百～数千 ppm の Ba・Zn・Pb・Br、200-700 ppm の Cu と Rb、百 ppm 以下の Sr・Ge を含んでいた。岩体内石英脈の多相包有物は晶洞よりも Fe・Cu・Ba が高く、鉱床石英脈のものは晶洞より Zn・Pb・Br が高い。これらの元素濃度の多くは Cl 濃度に正比例し、多くの元素同士でも正の相関を示す。但し、晶洞・岩体内石英脈・鉱床石英脈の元素濃度相関の傾向は異なっており、流体の形成条件の違いを示唆する。

流体の形成起源を考える上で重要な Br/Cl 比を見てみると、対馬岩体の晶洞の2相包有物の Br/Cl 比(重量比)はほぼ 0.0014、鉱床石英脈の値は 0.0027、岩体内石英脈はその中間で、いずれも海水の値の 0.0034 より低い。それぞれの気相包有物の値も2相包有物とほぼ同じである。一方、多相包有物の Br/Cl 比は、晶洞の石英単結晶内部で 0.0015～0.0043 に変化し、さらに岩体内石英脈の多相包有物では 0.0020～0.108、鉱床石英脈では 0.0020 から 0.0120 に達することが分かった。このような包有物の種類や産状による Br/Cl 比の違いはこれまで明瞭に示されてはいなかった。また、単結晶内部での Br/Cl 比の変化は世界的に初めて報告される結果である。これらの Br/Cl 比の変化は、流体発生でのマグマ-流体間の Cl と Br 分配および沸騰の際の Cl と Br 分配に対する温度圧力条件の違いを考慮するとほぼ説明可能なことが分かった。晶洞の流体は、深部で生じた高 Br/Cl 流体が断裂等に沿って浅所に上昇し、より浅い部分で生じた低 Br/Cl 流体と混合することによって形成されたと解釈できる。石英脈・鉱床石英脈の流体も同様に部で生じた高 Br/Cl

流体と浅部で生じた低 Br/Cl 流体との混合で説明できることが示された。

甲府岩体と対馬岩体の熱水流体の発生温度圧力条件を推定すると、甲府岩体の流体は基本的に沸騰条件でない温度圧力下で発生し、その後一部流体だけが岩体上部に移動して減圧沸騰したことが分かった。流体の沸騰によって高塩濃度・高金属濃度の流体が形成されるので、沸騰していない初生流体の低い金属濃度が甲府岩体で金属鉱床が少ない理由に繋がったと推定できる。一方、対馬岩体は固結深度が浅いために流体は沸騰条件で形成されたことが明らかとなった。沸騰による流体の金属濃度の上昇が大規模な鉱床形成に結びついたと考えられる。

また、大陸地域花崗岩の流体包有物と比較すると、対馬岩体の多相包有物は大陸地域の多相包有物に比べて Ti と Ge に富み、Rb に乏しい。甲府岩体の多相包有物も Ge に富み、Rb に乏しい特徴を示す。これらは島弧の花崗岩起源流体の化学的特徴である可能性がある。

地下水と流体包有物の組成の関係をみると、甲府岩体に湧出する鉱泉の Br/Cl 比は、海水の値や堆積岩に湧出する温泉の値とは異なり、流体包有物の平均的な Br/Cl 比とほぼ一致することが示された。さらに、流体包有物の平均的な金属元素濃度を天水で希釈すると、甲府岩体の鉱泉の金属元素濃度とほぼ一致することも分かった。これらの結果は、鉱泉を形成する地下水が、流体包有物の破砕により漏出した流体の影響を受けている可能性を示唆することが分かった。

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6件)

- ① Mori, R., Ogawa, Y., Hirano, N., Tsunogae, T., Kurosawa, M., and T. Chiba, Role of plutonic and metamorphic block exhumation in a forearc ophiolite mélange belt: An example from the Mineoka belt, Japan, Geological Society of America Special Papers, 査読有, 2011, vol. 480, 95-115.
- ② Kurosawa, M., Ishii, S., and Sasa, K., Trace-element analysis of fluid inclusions in the Tsushima granite, Japan, Annual Report, Tandem Accelerator Center, University of Tsukuba, 査読無, 2011, vol. 79, 37-38.
- ③ Yoshiasa, A., Ito, T., Sugiyama, K., Nakatsuka, A., Okube, M., Kurosawa, M., and Katsura, T., A peculiar site preference of boron in MgAl_{2-x}B_xO₄ (x = 0.0, 0.11, and 0.13) spinel under

high-pressure and high-temperature, Zeitschrift für Anorganische und Allgemeine Chemie, 査読有, 2010, vol. 636, 472-475.

- ④ Kurosawa, M., Ishii, S., and Sasa, K., Trace-element compositions of single fluid inclusions in the Kofu granite, Japan: Implications for compositions of granite-derived fluids, Island Arc, 査読有, 2010, vol. 19, 40-59.
- ⑤ Tominaga, A., Kato, T., Kubo, T., and Kurosawa, M., Preliminary analysis on the mobility of trace incompatible elements during the basalt and peridotite reaction under uppermost mantle conditions, Physics of the Earth and Planetary Interiors, 査読有, 2010, vol. 174, 50-59.
- ⑥ Kurosawa, M., Ishii, S., and Sasa, K., Trace-element analysis of fluid inclusions in the Tsushima granite, Japan. Annual Report, Tandem Accelerator Center, University of Tsukuba, 査読無, 2010, vol. 78, 33-35.

[学会発表] (計12件)

- ① 黒澤正紀, Shin Ki-Cheol, 笹公和, 石井聡, 日本の新第三紀花崗岩の熱水流体の組成と挙動. 日本鉱物科学会, 2011年9月10日, 茨城大学
- ② 岡本和明, 飯島千尋, 黒澤正紀, Chan Yu Chang, 寺林優, 衝突帯大断層流体の化学—台湾 L i s h a n 断層中の石英脈流体包有物の化学組成—. 日本鉱物科学会, 2011年9月10日, 茨城大学
- ③ 黒澤正紀, PIXEによる微量元素分析. 第1回材料フォーラム・レアメタル研究会(招待講演), 2011年6月7日, 産業技術総合研究所
- ④ 黒澤正紀, Shin Ki-Cheol, 石井聡, 笹公和, 長崎県対馬の浅所貫入花崗岩体の熱水流体の組成. 地球惑星科学連合大会(招待講演), 2011年5月25日, 千葉県幕張メッセ
- ⑤ 齋藤拓也, 渋谷岳造, 小宮剛, 北島宏輝, 山本伸次, 西澤学, 上野雄一郎, 丸山茂徳, 黒澤正紀, 22億年前の流体包有物分析による全球凍結の真核生物への影響力に対する解釈. 地球惑星科学連合大会, 2011年5月24日, 千葉県幕張メッセ
- ⑥ 黒澤正紀・Shin Ki-Cheol・笹公和・石井聡, 流体包有物のBr/Cl比から見た対馬花崗岩の流体形成. 日本鉱物科学会, 2010年9月23日, 島根大学
- ⑦ 黒澤正紀・笹公和・石井聡, 粒子線励起X線分析法による流体包有物の微量元素分析. 日本地球惑星科学連合大会, 2010年

5月25日, 千葉県 幕張メッセ国際会議場

- ⑧ 齋藤拓也・渋谷岳造・小宮剛・北島宏輝・山本伸次・西澤学・上野雄一郎・丸山茂徳・黒澤正紀, 22億年前オングレック累層における熱水性石英中流体包有物分析による当時の海水組成の推定. 地球惑星科学連合大会, 2010年5月25日, 千葉県幕張メッセ
- ⑨ 黒澤正紀・Shin Ki-Cheol・笹公和・石井聡, 対馬花崗岩体の流体包有物の微量成分分析. 日本鉱物科学会, 2009年9月23日, 北海道大学
- ⑩ 富永愛子・加藤工・久保友明・黒澤正紀, ウォズリアイト多結晶体中の不適合元素拡散. 日本鉱物科学会, 2009年9月23日, 北海道大学
- ⑪ 黒澤正紀・笹公和・石井聡, 筑波大学1MVタンデム加速器による流体包有物の分析. 第22回タンデム加速器及びその周辺技術の研究会, 2009年7月16日, 筑波大学
- ⑫ 黒澤正紀・Shin Ki-Cheol・石井聡・笹公和, 粒子線励起X線分析法(PIXE)による対馬花崗岩の流体包有物分析. 日本地球惑星科学連合大会, 2009年5月16日, 千葉県幕張メッセ

[図書] (計1件)

- ① 黒澤正紀, 古今書院、鉱物・岩石、地球学シリーズ3「地球学調査・解析の基礎」(上野健一・久田健一郎編)(分担執筆)、2011、99-143

6. 研究組織

(1) 研究代表者

黒澤 正紀 (KUROSAWA MASANORI)
筑波大学・生命環境系・講師
研究者番号: 50272141

(2) 研究分担者

笹 公和 (SASA KIMIKAZU)
筑波大学・数理物質系・講師
研究者番号: 20312796

小松原 哲郎 (KOMATSUBARA TETSURO)
筑波大学・数理物質系・講師
研究者番号: 10195852

安間 了 (ANMA RYO)
筑波大学・生命環境系・講師
研究者番号: 70311595

辻村 真貴 (TSUJIMURA MAKI)
筑波大学・生命環境系・教授
研究者番号: 10273301