

## 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25年6月4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：20340148

研究課題名（和文） 下部地殻における流体の起源と挙動に関する総合的研究

研究課題名（英文） The origin and role of fluid associated with lower crustal metamorphism

研究代表者

角替 敏昭 (TSUNOGAE TOSHIAKI)

筑波大学・生命環境系・准教授

研究者番号：50252888

研究成果の概要（和文）：高度変成岩に含まれる流体包有物に着目し、下部地殻における流体の起源および役割を検討した。変成岩中に含まれる主な流体は CO<sub>2</sub> であり、その一部はマントル起源である。一方、H<sub>2</sub>O が卓越する場合でも流体が還元的前提下、斜方輝石を含む無水鉱物組み合わせが安定に存在できることが明らかになった。したがって、高度変成岩中の鉱物組み合わせは、流体中の CO<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O 比および酸化還元状態によって支配されている。

研究成果の概要（英文）：Fluid in lower crust probably plays an important role on the stability of mineral assemblages in various metamorphic and igneous rocks at high pressure and temperature. Although it is generally known that CO<sub>2</sub> is an abundant fluid component in middle to lower crust, while H<sub>2</sub>O is dominant in shallower level, the origin of the fluid and its role during P-T evolution of crustal rocks are not known. In this study we therefore focused on fluid inclusions in granulite to amphibolite facies rocks, identified fluid specimens, and attempted to unravel the role of fluid during high-grade metamorphism. All the analyzed rocks contain CO<sub>2</sub> trapped in various minerals such as garnet and quartz, which confirms that CO<sub>2</sub> is the dominant fluid in the lower crust. Carbon isotope study on some inclusions suggest that some CO<sub>2</sub> were derived from mantle. H<sub>2</sub>O bearing fluids were also identified, but they are mostly trapped in a retrograde stage. Phase equilibrium modeling of mineral assemblages on orthogneiss from southern India suggest that infiltration of H<sub>2</sub>O-bearing reduced fluid (probably H<sub>2</sub>O + CH<sub>4</sub>) during a retrograde (around 700°C) formed orthopyroxene-bearing granulite-facies assemblages, which indicates oxidation state, as well as H<sub>2</sub>O activity, of fluid probably controls mineral paragenesis during high-grade metamorphism in lower crust.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	5,300,000	1,590,000	6,890,000
2009年度	2,100,000	630,000	2,730,000
2010年度	2,000,000	600,000	2,600,000
2011年度	1,900,000	570,000	2,470,000
総計	11,300,000	3,390,000	14,690,000

研究分野：地質学

科研費の分科・細目：岩石・鉱物・鉱床学

キーワード：ゴンドワナ、グラニュライト、流体包有物、超高温変成作用、大陸地殻、造山帯

## 1. 研究開始当初の背景

地殻深部の岩石中に存在する流体は、岩石の鉱物組み合わせを支配するだけでなく、岩石の変形や変成作用をもたらす熱の輸送に大きく関与していることが知られている。例えば温度上昇時の  $\text{H}_2\text{O}$  の存在は岩石の大規模な溶融をもたらし、温度下降時は加水反応の進行を加速させるであろう。しかしながら下部地殻中、特に高度変成作用に関与した流体に関する研究は未だ乏しいのが現状である。それどころか、下部地殻における流体の存在を疑問視している研究者もいる。申請者らは流体包有物の研究から、下部地殻に流体が存在していたことは間違いないと考えているが、「流体はもともと岩石中に存在したのか、外部から浸透してきたのか、それとも初生流体が二次的に改変されたのか？」という流体の起源と挙動に関する疑問に対して、我々は未だ明瞭な回答を得られないでいる。そこで本研究では下部地殻で形成された高度変成岩に着目し、変成作用の温度-圧力-流体史を明らかにし、流体の起源と役割を検討することを目的とする。

流体に関する研究の1つの手法として、上述の流体包有物の研究が古くからなされてきた。しかし、流体包有物から得られる情報には限界があり（例えば温度ピーク以降の流体がほとんどで、変成作用初期の情報を得ることは難しい）十分とは言えない。したがって様々な手法を適用し、下部地殻における流体の起源と挙動を総合的に解析する必要があるであろう。

## 2. 研究の目的

上記のような背景をもとに、下部地殻の高度変成作用における流体組成を解析するため、本研究では以下の5つのテーマに着目した研究を行った。

- (1) 変成流体相の時間変化解析方法の開発
- (2) ラマン分析による流体組成の定量分析および固相包有物の同定
- (3) 堇青石中に含まれる流体相の決定
- (4) 含水鉱物中のハロゲン元素の研究
- (5) 変成岩中の鉱物組み合わせを用いた流体組成の熱力学的解析

## 3. 研究の方法

上記の研究を実施するための方法は以下の

通りである。

### (1) 変成流体相の時間変化解析方法の開発

鉱物はその成長時に存在した流体を取り込む場合があり、これらが「流体包有物」として様々な鉱物、あるいは1つの鉱物の成長線に沿って残されていることがある。流体包有物は岩石形成時の流体の情報を直接保存しているため、その化学組成および密度の解析から、岩石形成時に存在した流体についての議論が進んでいる。しかしながら、この流体は岩石が形成された最高温度圧力条件のものであり、岩石形成に至るまで、あるいはその後の流体組成の時間変化に関する研究は乏しいのが現状である。そこで本研究では岩石中の様々な鉱物に含まれる流体包有物の観察と加熱冷却実験を行い、それらの組成同定を行った。また、記載岩石学的解析と造岩鉱物の化学組成分析から流体を包有するホスト成長の形成ステージを推定し、変成作用における流体組成の時間変化を追跡した。

### (2) ラマン分析による流体組成の定量分析および固相包有物の同定

この研究テーマでは、ラマン分光分析法を用いて、流体包有物に含まれる微量流体相の組成定量分析を行った。2009年3月と2010年3月にフランス・ナンシー大学のDubessy教授の研究室を訪問し、ヨーロッパ最高の分解能をもつ高精度ラマン分光分析装置を使用してインド産高度変成岩に含まれる流体の組成決定を行った。

### (3) 堇青石中に含まれる流体相の決定

変成作用時に岩石中に存在していた流体は、流体包有物としてだけでなく、別の形で鉱物中に保持されている場合がある。その例の一つとして、泥質変成岩に産出する堇青石がある。堇青石はそのチャンネル中に $\text{CO}_2$ と $\text{H}_2\text{O}$ を取り込むが、その割合は周囲の流体の組成に依存することがわかっている。そこで本研究では、このチャンネルに含まれる $\text{CO}_2$ の定量分析（実際には炭素の定量分析）を試みた。堇青石のチャンネル中の流体相については、今まで二次イオン質量分析法を用いた分析が実施されているのみである。今回は一般的に普及しているX線マイクロアナライザー（EPMA）を用い

た炭素分析法を独自に開発し、堇青石の分析を試みた。

#### (4) 含水鉱物中のハロゲン元素の研究

上記の堇青石以外にも、様々な鉱物に地殻深部流体の痕跡が残っている。その例として黒雲母と角閃石があり、これらは結晶構造中に OH をもつが、その OH を置換して F、Cl のようなハロゲン元素が入ることが知られている。申請者は過去の研究により、角閃石中の F、Cl を EPMA を用いて定量分析する方法を開発した。

#### (5) 変成岩中の鉱物組み合わせを用いた流体組成の熱力学的解析

岩石にみられる様々な鉱物組み合わせを支配している要因は、全岩化学組成、温度、圧力、そして流体組成である。これらの安定関係を熱力学的に決定するため、THERMOCALC と呼ばれる計算プログラムを用いて造岩鉱物および共存する流体の相平衡関係を解析した。現在は、NCKFMASHTO 系

( $\text{Na}_2\text{O}\cdot\text{CaO}\cdot\text{K}_2\text{O}\cdot\text{FeO}\cdot\text{MgO}\cdot\text{Al}_2\text{O}_3\cdot\text{SiO}_2\cdot\text{H}_2\text{O}\cdot\text{TiO}_2\cdot\text{Fe}_2\text{O}_3$ ) および Mn を含む MnNCKFMASHTO 系による相平衡解析を実施中である。

### 4. 研究成果

各研究テーマの成果は以下の通りである。

#### (1) 変成流体相の時間変化解析方法の開発

本研究では、インドおよびモンゴルの高度変成岩体にみられる流体包有物の解析を行った。その結果、一般的には岩石の埋没ステージでは脱水が進行し、地殻深部においては  $\text{CO}_2$  に富む流体が卓越し、上昇時には  $\text{H}_2\text{O}$  が浸透することを明らかにした。一方で上昇時に外部から  $\text{CO}_2$  が浸透する例もみられた。モンゴルの岩石においては、 $700^\circ\text{C}$  程度の中温の変成作用であるにもかかわらず、 $\text{CO}_2$  に富む流体が卓越することを初めて確認した。

#### (2) ラマン分析による流体組成の定量分析および固相包有物の同定

流体包有物のラマン分光分析を行った結果、 $\text{CO}_2$  包有物と混合している  $\text{N}_2$ 、 $\text{CH}_4$ 、 $\text{C}_2\text{H}_6$  などの検出が可能となり、流体の包有

時期や酸化還元状態、さらには流体の起源を議論することが可能となった。また、流体と共存する固相の同定を行い、炭酸塩鉱物と炭素（グラファイト）の検出に成功した。これは流体がマントルから炭酸塩マグマとともに上昇した可能性を指摘している。以上の手法により、流体包有物として取り込まれている物質を全て同定し、その起源を同定する手がかりを得ることに成功した。

#### (3) 堇青石中に含まれる流体相の決定

堇青石の EPMA 分析には  $\text{CO}_2$  を多く含む標準試料の入手が不可欠であり、本研究ではインド産のスカポライトを用いた分析をおこなった。しかし残念なことに、分析の結果このスカポライトが炭素に乏しいことがわかり、それ以外の標準試料の検討が必要となった。残念ながら現在にいたるまで、適当な標準試料を確認できていない。ただし、炭素を分析するための条件は決定しており、あとは適当な標準試料が発見できれば堇青石中の炭素の分析が可能となる。今後も引き続き研究を続ける予定である。

#### (4) 含水鉱物中のハロゲン元素の研究

今回開発した分析手法を、インドおよび南極の Gondwana 超大陸形成時の高度変成作用によって形成された変成岩中の黒雲母と角閃石に適用し、地殻深部での F、Cl の挙動を明らかにした。研究の結果、多くの黒雲母および角閃石に微量 F、Cl が含まれることを確認した。したがって、F、Cl を含む流体の浸透は普遍的なものであることを明らかにした。

#### (5) 変成岩中の鉱物組み合わせを用いた流体組成の熱力学的解析

この研究は現在も進行中であるが、いままでの大きな成果として、サフィリンを含む岩石への NCKFMASHTO 系の適用がある。一般的に変成岩中のサフィリンと石英の共生は、 $1000^\circ\text{C}$  を超える高温変成作用によって形成されたと考えられている。しかし、これは FMASH 系あるいは KFMASH 系による相平衡解析によるものであり、今回初めて複雑な系での解析をおこなった。その結果、還元的条件においてはサフィリンと石英の共生は  $1000^\circ\text{C}$  の高温条件が必要であるが、酸化的条件においては  $900^\circ\text{C}$  程度で形成されることが明らかになった。

つまり、酸化的な流体が卓越する地域においては、サフィリン+石英はより低温で確認されることを明らかにした。

さらに、この手法を南インドのチャノックカイト（斜方輝石を含む花崗岩質岩）に適用し、変成作用における流体組成を検討した。その結果、南インド Mavadi では、CO<sub>2</sub>に富む流体の浸透によってグラニュライトの形成が進んだことが分かったが（これは従来のモデルに一致）、Rajapalayam においては還元的な流体（例えば、CO<sub>2</sub>-CH<sub>4</sub>流体）の浸透が起こったことが分かった。このように、同じ変成岩体において異なるプロセスによって高度変成作用がもたらされた可能性を指摘した。

#### 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 39 件）

- (1) Endo, T., Tsunogae, T., Santosh, M., Shaji, E. (2012) Phase equilibrium modeling of incipient charnockite formation in NCKFMASHTO and MnNCKFMASHTO systems: A case study from Rajapalayam, Madurai Block, southern India. *Geoscience Frontiers*, 3(6), 801-811、査読有.
- (2) Tsunogae, T., Santosh, M. (2011) Fluids in high- to ultrahigh-temperature metamorphism along collisional sutures: Record from fluid inclusions. *Journal of Asian Earth Sciences*, 42, 330-340、査読有.
- (3) Tsunogae, T., Liu, S.J., Santosh, M., Shimizu, H., Li, J.H. (2011) Ultrahigh-temperature metamorphism in Daqingshan, Inner Mongolia Suture Zone, North China Craton. *Gondwana Research*, 20, 36-47、査読有.
- (4) Tsunogae, T. and van Reenen, D.D. (2011) High-pressure and ultrahigh-temperature granulite-facies metamorphism of Precambrian high-grade terranes: Case study of the Limpopo Complex. *Geological Society of America Memoir*, 207, 107-124、査読有.
- (5) Tsunogae, T. and Santosh, M. (2011) Sapphirine + quartz assemblage from the Southern Granulite Terrane, India: diagnostic evidence for ultrahigh-temperature metamorphism within the Gondwana collisional orogen. *Geological Journal*, 46, 183-197、査読有.

(6) Santosh, M., Tsunogae, T., Shimizu, H., Dubessy, J. (2010) Fluid characteristics of retrogressed eclogites and mafic granulites from the Cambrian Gondwana suture zone in southern India. *Contributions to Mineralogy and Petrology*, 159, 349-369、査読有.

(7) Tsunogae, T. and Santosh, M. (2010) Ultrahigh-temperature metamorphism and decompression history of sapphirine granulites from Rajapalayam, southern India: implications for the formation of hot orogens during Gondwana assembly. *Geological Magazine*, 147(1), 42-58、査読有.

(8) Tsunogae, T. and Dubessy, J. (2009) Ethane- and hydrogen-bearing carbonic fluid inclusions in a high-grade metamorphic rock. *Journal of Mineralogical and Petrological Sciences*, 104, 324-329、査読有.

(9) Nishimiya, Y., Tsunogae, T., Santosh, M. (2008) Petrology and fluid inclusions of garnet-clinopyroxene rocks from Paramati in the Palghat-Cauvery Shear Zone System, southern India. *Journal of Mineralogical and Petrological Sciences*, 103(5), 354-360、査読有.

(10) Ohyama, H., Tsunogae, T., Santosh, M. (2008) Carbonic fluid inclusions in ultrahigh-temperature granulite from Kumiloothu in the northern Madurai Block, southern India. *Journal of Mineralogical and Petrological Sciences*, 103(4), 273-278、査読有.

〔学会発表〕（計 68 件）

- (1) Tsunogae, T. (2012) Petrology and fluid inclusions of garnet-clinopyroxene rocks from the Gondwana suture zone in southern India: Implications for prograde high-pressure metamorphism. 欧州地球科学連合 2012 年大会（オーストリア・ウィーン）、平成 24 年 4 月 26 日.
- (2) 角替敏昭、Daniel J. Dunkley、宮本知治、加藤睦実 (2011) 東南極リュツォ・ホルム岩体最高温度部の温度圧力流体履歴の再検討. 日本地質学会第 118 年学術大会（茨城大学）、平成 23 年 9 月 21 日.
- (3) Tsunogae, T., Santosh, M., Chetty, T.R.K. (2011) Carbonic fluids ultrahigh-temperature metamorphism along the Gondwana collisional orogen in East Antarctica and Southern India. 第 8 回国際ゴンドワナ-アジアシンポジウム（イン

ド・ハイデラバード)、平成 23 年 8 月 27 日.

(4) Endo, T., Tsunogae, T., Santosh, M., Shaji, E. (2011) Incipient charnockite from Mavadi in the Southern Granulite Terrane, India: Geothermobarometry and mineral equilibrium modeling. 第 8 回国際ゴンドワナ-アジアシンポジウム (インド・ハイデラバード)、平成 23 年 8 月 27 日.

(5) Tsunogae, T., Shimizu, H., Kato, M., Miyamoto, T., Dunkley, D.J. (2011) Carbonic fluids associated with ultrahigh-temperature metamorphism of the Neoproterozoic Lutzow-Holm Complex, East Antarctica: evidence from fluid inclusions. 第 11 回国際南極地学シンポジウム (イギリス・エジンバラ)、平成 23 年 7 月 12 日.

(6) Tsunogae, T., Santosh, M. (2010) Fluids in high- to ultrahigh-temperature metamorphism along collisional sutures: evidence from fluid inclusions. 第 7 回国際ゴンドワナ-アジアシンポジウム (中国・青島)、平成 22 年 9 月 26 日.

(7) 角替敏昭, Santosh, M. (2009) 超高温変成岩に含まれる CO<sub>2</sub> および CO<sub>2</sub> + H<sub>2</sub>O 包有物の産状からみた流体の起源: 東南極ナピア岩体の例. 第 29 回極域地学シンポジウム (国立極地研究所、立川)、平成 21 年 10 月 9 日.

(8) 角替敏昭 (2009) 南インドグラニュライト地塊の超高温変成岩に含まれる CO<sub>2</sub> 流体の起源: 炭素同位体組成からみた証拠. 日本鉱物科学会 2009 年年会 (北海道大学)、平成 21 年 9 月 9 日.

(9) 角替敏昭 (2008) 超高温変成岩に含まれる流体包有物の炭素同位体分析 (予報). 第 28 回極域地学シンポジウム (国立極地研究所、立川)、平成 20 年 10 月 6 日.

(10) Tsunogae, T., Ohyama, H., Santosh, M. (2008) Carbonic fluids along the Gondwana suture in southern India. 第 33 回万国地質学会議 (ノルウェー・オスロ)、平成 20 年 8 月 12 日.

[その他]

ホームページ等

<http://www.geol.tsukuba.ac.jp/~gansekihp/index.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

角替 敏昭 (TSUNOGAE TOSHIAKI)

筑波大学・生命環境系・准教授

研究者番号: 50252888

(2) 研究分担者

M. SANTOSH (M. SANTOSH)

高知大学・理学部・教授

研究者番号: 20333453