

## 論文内容の要旨

論文題目 火山岩試料における Be 同位体比分析法の開発と地球化学的研究への応用:  
Be 同位体比を用いた伊豆島弧火山岩の U 系列放射非平衡の起源に関する研究

(Development of Be isotope analysis in volcanic rocks and its application to geochemical studies:  
Be isotopic constraints on the origin of U series disequilibria in the volcanic rocks from Izu arc)

氏名 後反克典

宇宙線生成核種である  $^{10}\text{Be}$  (半減期: 約 150 万年) は、地表では海洋堆積物等に微量 ( $10^8$ – $10^9$  atoms  $\text{g}^{-1}$  程度) に存在するが、地球内部のマントルでの濃度は非常に低いと考えられている。実際に中央海嶺玄武岩等の非島弧の火山では、低い  $^{10}\text{Be}$  濃度 ( $0$ – $0.05 \times 10^6$  atoms  $\text{g}^{-1}$ ) が報告されている。一方で、沈み込みに関係する島弧の火山岩では有意な量 ( $0.1$ – $27 \times 10^6$  atoms  $\text{g}^{-1}$ ) の  $^{10}\text{Be}$  が観察される。これは、海洋プレートとともに沈み込んだ堆積物由来の成分が島弧のマグマにリサイクルしたことの直接的な証拠である。以上の理由から、 $^{10}\text{Be}$  は沈み込み物質の移動を調べるためのよいトレーサーとなる。本研究では、Be 同位体比 ( $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ ) と、以下の U 系列の放射非平衡を用いた研究と組み合わせて、元素の移動プロセスや、物質循環のタイムスケールに制約をつける研究に応用した。

放射性核種である  $^{238}\text{U}$  (半減期 44.68 億年) は、 $^{230}\text{Th}$  (半減期 7.52 万年) や  $^{226}\text{Ra}$  (半減期 1600 年) 等を含む種々の放射性核種に次々に壊変して、最終的に安定核種の  $^{206}\text{Pb}$  になる。マントル内の一部分で閉鎖系が保たれている場合には、これらの親核種と娘核種は放射能が等しい「放射平衡」の状態にあると考えられている。一方で、島弧の火山岩では、 $^{238}\text{U}$ – $^{230}\text{Th}$  および  $^{226}\text{Ra}$ – $^{230}\text{Th}$  間の放射能比が 1 からずれる「放射非平衡」が時折観察される。これは、U と Th、および Ra と Th 間の化学的挙動の違いに基づく何らかの元素分別のイベントが生じたことを示唆する。Sigmarsson et al. (1990, 2002) では、南米チリ弧の火山岩において U 系列放射非平衡と沈み込み物質の寄与の指標で

ある Be 同位体比との間で正の相関が成り立つことを報告している。著者らは、これらの相関を均質なマントル成分と沈み込む海洋地殻や堆積物から放出される流体成分とのミキシングラインであると解釈しており、放射非平衡が深部の流体の付加によって生じたと結論づけている。

上記の原理を用いて、本研究では伊豆島弧火山における U 系列放射非平衡の起源を検証することを目的とした。そのための火山岩試料における Be 同位体比の分析手法の確立を行った。確立した方法を用いて、伊豆島弧における沈み込み深度の異なる火山岩の Be 同位体比を系統的に分析し、既存の U 系列放射非平衡のデータと組み合わせることによって、伊豆島弧の放射非平衡の起源や流体の関与、流体の Be 同位体組成に関して考察した。

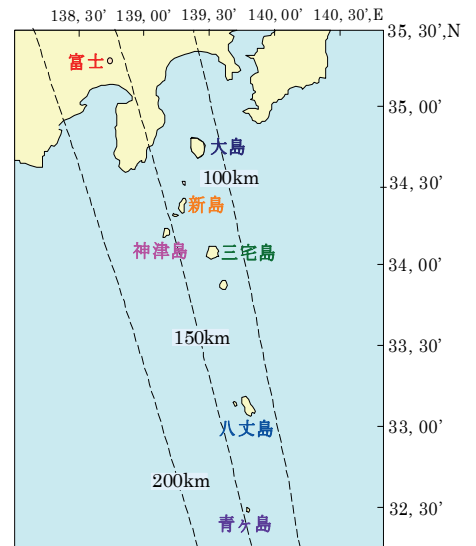


図1 伊豆島弧火山と沈み込み深度

### 【火山岩試料の Be 同位体比分析法の開発】

火山岩の Be 同位体比は、それぞれ  $^{10}\text{Be}$  および  $^9\text{Be}$  の定量を行って求める。 $^{10}\text{Be}$  濃度の分析に関して、試料は可能な限り変質の少ない試料を用いた。試料は、Shimaoka et al. (2004)で報告された洗浄法に基づき、50 メッシュ以下の岩石試料に対して 1 M HCl で 4 時間の超音波洗浄を行い雨水等の汚染成分を除去した。分析は、乾燥後の試料約 3–5 g を秤量し、約 150–200  $\mu\text{g}$  の Be 試薬をキャリアとして加えた。HF、 $\text{HNO}_3$ 、 $\text{HClO}_4$  による試料の酸分解を行い、乾固後 0.1 M HCl に溶解した。続いて、アンモニア水を加えて pH 8 以上で鉄共沈を行った後、NaOH を加えて pH 13 で水層に Al を溶出して沈澱分離で除去した。さらに沈澱を濃塩酸に溶解後、ジイソプロピルエーテルを用いて Fe の除去を行った。その後 EDTA 存在下、pH 6–6.8 の条件でアセチルアセトン錯体として Be を有機相に抽出した。有機層に 7 M  $\text{HNO}_3$  を加えて Be の逆抽出を行って乾固・再溶解した後に、陽イオン交換樹脂 (BIO-RAD 50W-X8) を用いて 1 M HCl で Be の精製を行った。精製した Be は、アンモニア水で水酸化物沈澱を生成し、超音波洗浄でホウ素の除去を行った。最後に石英バイアルに移して、電気炉で 900°C に加熱して BeO に焼結した。これを BeO+Nb の粉末の形で銅製のカソードに詰めた。測定は、東京大学工学系研究科のタンデム型加速器 (MALT) を用いて加速器質量分析 (AMS) を行った。

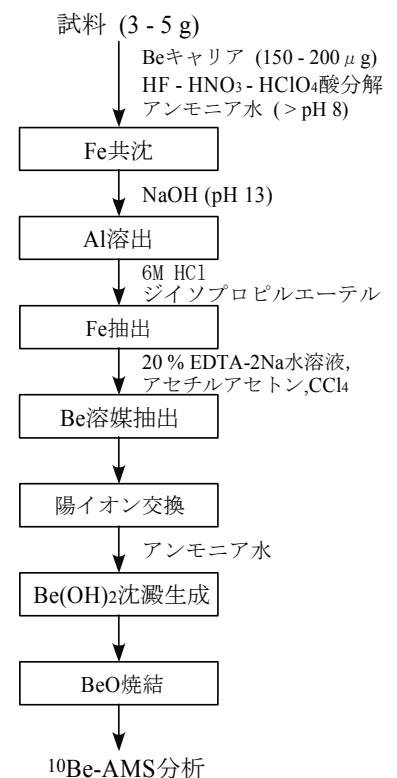


図2  $^{10}\text{Be}$ 分析の流れ

火山岩中の  $^9\text{Be}$  濃度の分析は、東大地震研の四重極 ICP-MS で測定を行った。分析の精度・確度を検証するため、HF、 $\text{HNO}_3$ 、 $\text{HClO}_4$  で酸分解した試料（既知量の Be を添加した人工岩石溶液および、産業技術総合研究所配布の標準岩石試料の JA-2、JB-2）に対し、以下の三つの方法、(1) 未分離の試料に対して、In 内標準元素を用いて補正を行う内標準法、(2) 陽イオン交換樹脂で Be を分離し、In 内標準で補正を行う化学分離法、(3) 未分離の試料に対して Be を添加し、検量線から外挿して求める標準添加法の間で定量値の比較を行った。

#### 【Be 同位体比分析の精度・確度および再現性】

$^{10}\text{Be}$  の定量に関して、新島玄武岩試料における約 10 ヶ月間の繰り返し再現性の結果は約 9% ( $1\sigma$ )であった（図 3）。これは個々の分析点における精度（3–5%,  $1\sigma$ ）より大きい。再現性の結果には、試料の  $^{10}\text{Be}$  の不均質や、Be の精製状態等の不確定の要素が含まれると考えられる。

$^9\text{Be}$  分析に関しては、人工岩石溶液において既知の Be 濃度に対する化学分離法と標準添加法の分析値が一致した（図 4）。また、標準岩石試料でも同様に化学分離法と標準添加法の分析値は調和的であった。一方で、未分離試料の In 内標準法の結果は、人工岩石試料および標準岩石試料のいずれの場合でも、他の二つの方法より 10%程度低い分析値を示した。従って、確度のよい分析には、化学分離法および標準添加法の使用が望ましいと考えられる。また、それぞれの分析の再現性は、内標準法が、4–6%、化学分離法が 2%、標準添加法が 2–4%であった。以上の  $^{10}\text{Be}$ 、 $^9\text{Be}$  の各々の結果から、本研究の Be 同位体比の誤差を約 10% ( $1\sigma$ )とした。以降の結果では一律にこの誤差を付与している。

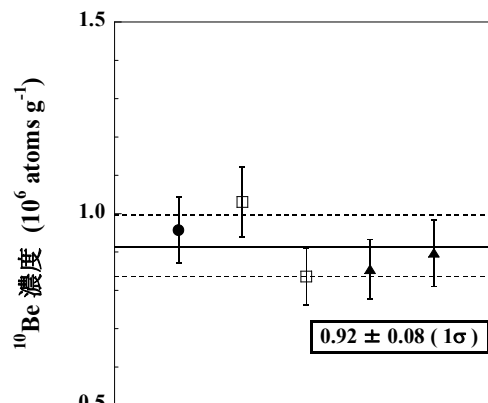


図3  $^{10}\text{Be}$ 濃度の再現性(新島若郷試料)

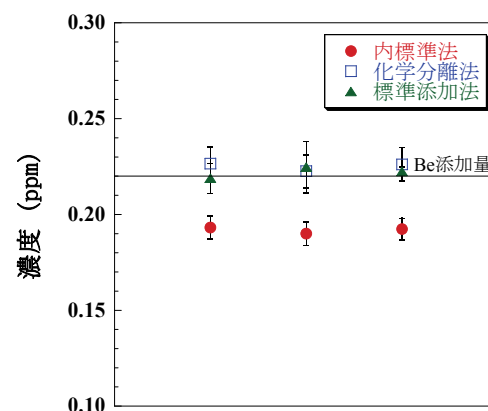


図4  $^9\text{Be}$ 定量法比較(人工岩石溶液)

#### 【伊豆島弧の Be 同位体比と U 系列放射非平衡】

確立した方法を伊豆島弧火山岩（大島、三宅島、新島、神津島、富士、八丈島、青ヶ島）に適用した。本研究における伊豆島弧火山岩 23 試料の  $^{10}\text{Be}$  濃度の範囲は、 $0.44\text{--}1.86 \times 10^6 \text{ atoms g}^{-1}$ であった。これは Morris et al. (2002)によって報告された濃度範囲（ $0.8\text{--}1.4 \times 10^6 \text{ atoms g}^{-1}$ ）に近く、他地域の島弧の中では比較的低い。また Be 同位体比に関しては、 $1.0\text{--}7.0 \times 10^{-11}$ であった。Be 同位体比は部分熔融度や結晶分化作用により変化しないため、以降では同位体比を用いた議論を行う。図 5 に Be 同位体比と Ba/Th 比との間の関係性を示す。Ba は流体とともに移動し易く、Th は移動し難

い性質をもつため、Ba/Th 比は流体関与の指標となる。結果は両者の間でよい相関が成り立ち、沈み込みの深度に伴う系統的な変化が観察された。これらの変化は、 $^{10}\text{Be}$  の壊変等の年代効果では説明できず流体の関与によって Be 同位体比が変化したことを示唆する。次に、流体に移動し難い元素である Nb を用いて  $^{10}\text{Be}/\text{Nb}$ - $^9\text{Be}/\text{Nb}$  プロットの傾きから流体の Be 同位体比組成の計算を行った。結果は、 $^{10}\text{Be}/^9\text{Be} = 9.5 \times 10^{-11}$  と火山フロントの岩石より 40–50%程高い結果を示した。このことから、島弧の Be が流体の Be 濃度に支配されている可能性が高い。

U 系列放射非平衡との関係に関して、 $^{238}\text{U}$ - $^{230}\text{Th}$  放射非平衡の結果 (Fukuda et al., in press) と Be 同位体比との間では相関性が観察され、深度に伴う系統的な変化が観察された (図 6)。以上から、 $^{238}\text{U}$ - $^{230}\text{Th}$  放射非平衡は、マントル深部での流体の関与による U-Th の分別で生じたことが明らかになった。

一方で、伊豆島弧の  $^{226}\text{Ra}$ - $^{230}\text{Th}$  放射非平衡と Be 同位体比では、両者の間で顕著な変化は観察されたが、正の相関性は示さなかった (図 7)。従って、伊豆島弧の  $^{226}\text{Ra}$ - $^{230}\text{Th}$  放射非平衡の成因に関しては、流体の関与のみでは説明できず、他のプロセスが関係している可能性が高い。 $^{226}\text{Ra}$ - $^{230}\text{Th}$  放射非平衡を引き起こす他の要因として、マグマの上昇過程における地殻下部での角閃石との反応 (Dufek and Cooper, 2005) や、沈み込む海洋地殻上の含水鉱物である金雲母および角閃石の融解 (Feineman and DePaolo, 2003) のモデルが報告されている。以上のモデルは、 $^{238}\text{U}$ - $^{230}\text{Th}$  系の放射非平衡に影響を与えずに  $^{226}\text{Ra}$ - $^{230}\text{Th}$  放射非平衡を変化させることが可能であり、観察事実をよく説明できる。従って  $^{226}\text{Ra}$ - $^{230}\text{Th}$  放射非平衡に関しては、以上に挙げたプロセスの影響を反映している可能性が高いと結論付けた。

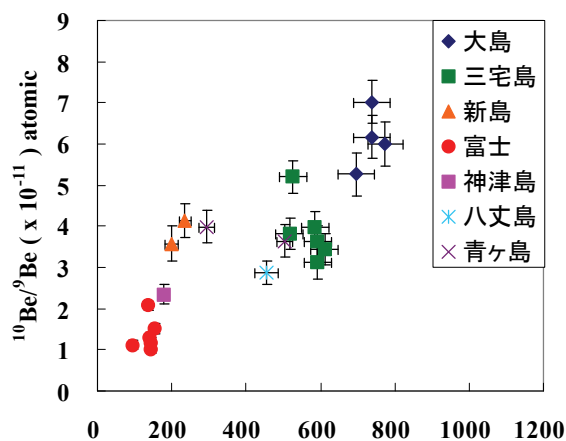


図5 Be同位体比とBa/Th比

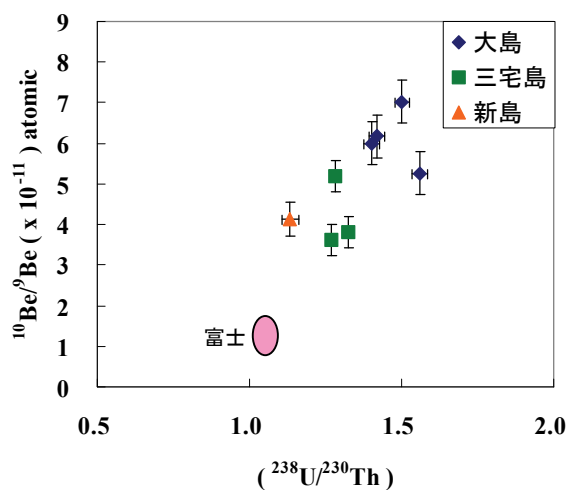


図6 Be同位体比と $^{238}\text{U}$ - $^{230}\text{Th}$ 放射非平衡

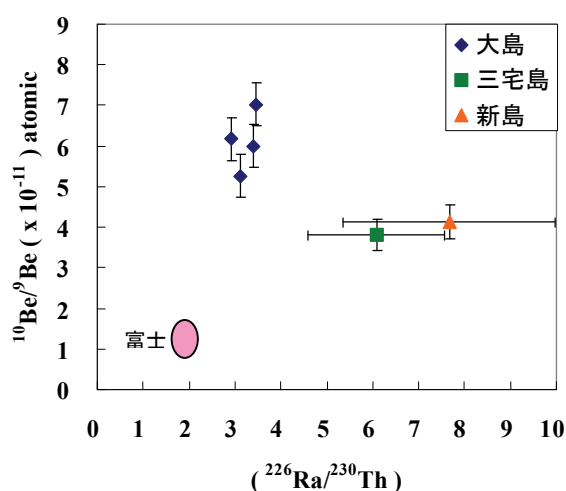


図7 Be同位体比と $^{226}\text{Ra}$ - $^{230}\text{Th}$ 放射非平衡