

2006年度柴田賞受賞記念論文

地球化学的手法によるテクトニクス場と地下深部の研究

杉崎 隆一*

(2007年3月12日受付, 2007年4月2日受理)

Tectonochemistry at depths

Ryuichi SUGISAKI*

* Emeritus Professor, Nagoya University,
2-204 Idakadai, Meito, Nagoya 465-0028, Japan

This is a review of the researches I have been conducting with my colleagues over the past 50 years. We examined geochemically behaviors of materials in several natural phenomena such as ① groundwater movement under alluvial plains, ② fault activities, ③ crustal movements including earthquakes, ④ geological development of the Japanese Islands relating to plate movement, ⑤ hydrocarbon distribution in the earth mantle, and ⑥ syntheses of organic materials by shock waves. For the phenomena ①, ②, ③, I have focused on the behavior of deep seated fluids such as He, Ar, H₂, CO₂, and CH₄. For ④, I paid attention to Ti, Mn, several heavy metals, and carbonates in particularly siliceous and argillaceous sediments, and REEs in pre-Cenozoic volcanics. I pointed out the tectonochemical significance of manganese carbonate bands, manganese micronodules, hydrothermal cherts. For ⑤ and ⑥, I emphasized that existence of mantle hydrocarbons and abiological syntheses of organics have strong implication to astrochemistry and origin of life.

Key words: groundwater flow rate, fault gases, earthquake prediction, siliceous and argillaceous sediments, development of the Japanese Islands, mantle hydrocarbons, shock synthesis of organics

はじめに

柴田賞の従来の受賞者の記念論文を拝見すると、受賞者の方々の研究期間の大半を通じてそのテーマは大きく変わってはおらず、ほぼ同じ研究対象を深く追求しておられるように見受けられる。私の場合、長い研究生活の中でそのように一貫して同じテーマを追求したものはなく、いろいろな対象をとり扱ってきた。また、私が行ってきた研究のスタイルは、柴田賞の従来の受賞者や、地球化学会の主流をなしている方々のそれとはかなり様相の異なるものである。それらの原因として、受けた教育のバックグラウンドの違いを強く感じている。

日本の地球化学の歴史をみると、この分野は主に、柴田雄次先生を中心とした無機化学の領域から生まれてきた事は良く知られている。名古屋大学に地球科学教室が昭和24年にでき、それは地質学を中心として地球物理学と地球化学を配したものであった。私は本邦で初めて創設されたこの種の教室の地球化学の講座で過ごしてきたが、受けた基礎教育は、専ら地質学（構造地質学、地史学、岩石学）で、化学の教育は化学分析とその実習ぐらいであった。そのようなバックグラウンドをもつ私は、研究のうで化学という立場からよりも自然そのものの実態に好奇心が向いてきた。従って、以下に紹介する私の研究は実際の自然現象への関与から始まったものという事ができる。という訳で、私が行ったいろいろな研究の私的レビューを以下に取りまとめた。尚、紙幅の関係上、引用文献は最小限にとどめた。

* 名古屋大学名誉教授
〒465-0028 名古屋市名東区猪高台2-204

1. 地下水の流動と溶存物質に関する研究

学生時代、水の都といわれた大垣市に行き、そこで各家庭に自噴井があり、きれいな冷たい水が滾々と湧き出ているのに感銘し、志願して地下水を卒業研究のテーマとしてもらった。当時の地球化学分野のテーマの多くは“気圏・水圏・岩圏における元素の分布”を調べる事を目的としていた感があったのに対して、自然現象そのもの（この場合は地下水）に関心をもった為である。

濃尾平野の西北端、大垣市の南の岐阜県養老郡をフィールドと定め、その地下水の行動を化学の面から追求しようと考えた。陸水の分析方法としては名古屋大学の菅原研究室でほぼ完成されていたので、それを教えて貰った。現在どこでも使われている直示天秤、比色計、炎光・原子吸光光度計、イオンクロマトグラフなどの機器は一切なかった時代、やっとキレート滴定が導入された頃だから、分析はすべて手作業であった。ポリ瓶もなく、重いビール瓶に水の試料を採取して持ち運んだ。地下水30試料について、各30成分ぐらいを分析した。対象とした地域は牧田川が濃尾平野に注ぐ場所で、地形や地下水の水位から見て、地下水は南東方向に流動している事が予想された。分析結果から各成分が推定される地下水の流動に伴い系統的に変化して行く事を見出し、地下における溶出、イオン交換、酸化一還元状態の変化などがそれらの行動を支配している事を実感した。このような地下水とそれを含む地層との化学的相互作用による変動は地下水の基本的な性格で、その後研究室全員によって調査された濃尾平野全域の地下水にもあてはまる普遍的なものであることがわかった。

とくに興味をもったのは地下水に溶けているガスの問題である(Sugisaki, 1961)。当時の技術の制約上、溶存ガスは追い出し法によるCO₂とO₂とそれ以外の残存ガス(主にN₂)だけが定量されていた。これらのガスは大気の成分でもあり、水との溶解平衡が成立していれば、各ガスの溶存量は水温に支配されている。従って、これらのガス量が地下で変動がなければ、水が地下に浸透した時の水温をその溶解量から見積もる事ができよう。ガスのうちO₂やCO₂などは化学的活性が強いから、地下で変化する。例えば、O₂は地下水の流動に従って系統的に減少してゆくことも確かめた。一方、N₂は比較的不活性であるし、また対象とした地域では浸透後間もないうえに、水質から

見て、有機物の影響も少なく、メタンもあまりないと判断されたので、残存ガスは近似的にN₂であると仮定した。そして残存ガス(≡N₂)は水の地下浸透時の水温に関連しているという前提に立ち、流動方向に4観測点を設け、ガス量の変動を月1回、13ヶ月に亘って連続観測した。河川水におけるこの量の季節変動は顕著であり、当然、夏期ではこの量は極小で、高温を示し、冬期には逆になる。地下に浸透後は、この変動は均等化されるが、その極大値(つまり冬期に浸透した水)は追跡可能である。そしてその極大値の時間的ずれと観測井間の距離から流動速度を見積もった。

上記の方法は残存ガスがN₂であり、その量は地下で変わらないと仮定しているが、N₂でなく不活性なアルゴンを用いれば、この方法の信頼性は増す。このような基本的な考えは菅原先生や小穴先生が指摘されていて、小穴先生は名古屋市内の観測井の溶存アルゴンを独自に開発した分析方法で連続観測されていた。しかし、その適用フィールドの制約から地下水の流速測定にむずびつける事はできなかった。当時はガスクロもなくアルゴンの分析は名人芸を必要としていたが、このころ、研究室に導入された質量分析計があり、鈴置哲朗さんの援助によりその分析が可能となったので、この結果を養老のフィールドに適用した。連続観測ではなく、多数の井戸の同時観測を行い、地下水の溶存アルゴン量の等値線を描き、流動方向における時間的ずれから、流速を見積もった。その結果は前の連続観測結果とほぼ一致し、この方法の有効性が増したと判断された(Fig. 1)。地球物理学の瀬野錦蔵先生は当時行われていた放射性物質などのトレーサーによる方法より遥かに有効であると誉められた事は忘れられない。この結果はいまでは、地下水学のテキストなどや、地下ガスの挙動に関する研究などにもよく引用されている。また後述の地震予知の研究にも繋がるものである。

当時、地下水の水質の研究は深度方向における変化の検討などに留まっていた。しかし、地下水の流動という点から考えれば、地下水の水質は帯水層としての地層と関係づけられるべきであり、そのためには濃尾平野の地下構造を知ることが必要だと考えた。もちろん地下のことで通常の地質調査は不可能であるので、柴田賢さんと共同で濃尾平野に鑿井された多数のボーリング資料を収集し、平野全域にわたる地下構造を推定した。その後も濃尾平野のより詳細な地下構造の研究が行われているが、その基本は変わっていない。こ

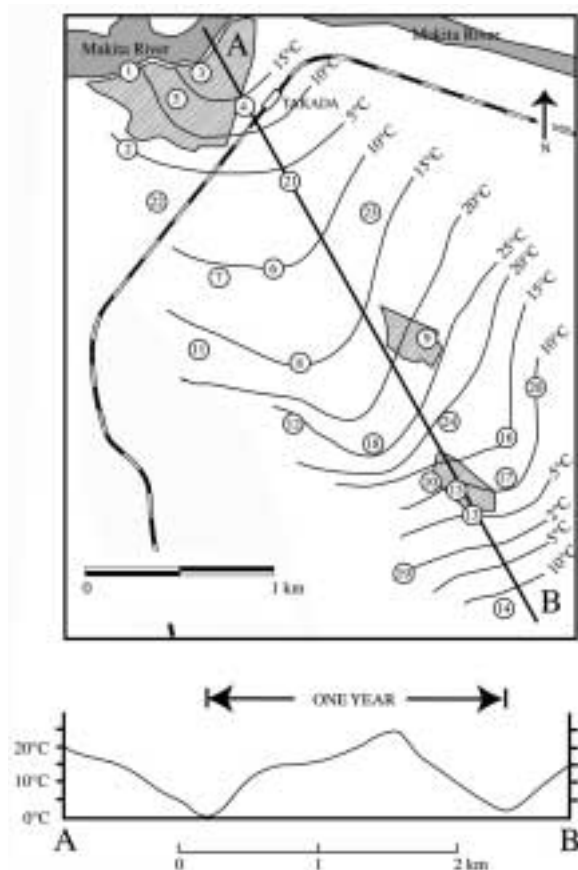


Fig. 1 (upper) Contour lines of "original" temperature of ground water at seepage; circled numbers are measurement sites. (lower) Variation of "original" temperature in section A-B in the upper figure.

の地下構造を地下水の水質変動と結び付け、上記の養老での結果に、より普遍性をもたせる事ができた。

ボーリング資料を整理しているうちに、濃尾平野の地下数十メートルに普遍的に軽石の層が分布している事に注目した。今ではこれは御岳火山の産物であると認定されているが、極めて特徴的な地層であるので鑿井業者の記録は信頼できる。これは地質学上、鍵層と呼ばれ、地層の対比に役立つ。上記の平野地下構造図の作製でも大いに利用したが、その分布を見るといくつかの垂直的なずれがある事が分かり、その上下の第四紀層も同様にずれている。そこで我々はこれを活断層であると考えた。当時、活断層は注目されていなかったが、最近地震活動との関連から、その調査が盛んになり、地震調査研究推進本部地震調査委員会は我々が推定した一宮から名古屋北部に至る断層（岐阜—一宮断層）を主に物理探査により再調査し、その存

在を否定した。我々はその結論に疑問を抱き、同委員会は我々の推定した断層位置の1.5 kmほど西側を調査していたので断層が見出せなかったのは当然であること、また物理探査などの欠陥を指摘した上で、より多くのデータを集め、この断層の存在を再確認した（杉崎・柴田，2003）。この研究は地球化学とは直接の関係はないが、地球を研究対象とする以上、それと関連する多くの分野の情報にも注意を払うべきであるという教訓を得た。

2. 本邦中・古生界の火山岩の性格とそのテクトニクス

岩石学は鉱物相を基準として、主に、光学的な研究手段によって発展してきた。従って、試料となる火山岩は新しく噴出した新鮮なもの程研究に適しており、主に第四紀のものが研究されてきた。しかし、火山は地球創成期から活動しており、古い火山岩も多く残されている。本邦の中・古生界にも従来、輝緑凝灰岩と呼ばれている火山岩が多く産出している。しかし、これらの初生の鉱物は変質していて、光学的なアプローチが難しく、層位学的な興味を除くと、岩石学者の研究対象とはならなかった。そこで化学的な面から緑色岩と通称されるこの種の岩石を検討する事を試みた。当時、岩石の分析は殆ど湿式法により、大きな労力と時間を必要とした。地下水研究の経験から、多数の岩石分析にあたって、石を溶かし溶液にすれば同時多数処理が可能であると考え、田中剛さんとその開発を試み、滴定法と比色法を大幅に取り入れ、多数の分析資料を得るシステムを作った。これを利用して本邦各地の中・古生代の地層から500個程の試料を採取、分析し、時間的、空間的な化学的特徴を検討した。

これらの試料の大半は玄武岩質のものであり、西南日本では、三波川帯と秩父帯の間に帯状に分布する御荷鉢帯の緑色岩はソレイイト質で、その両側の地層に胚胎されるものはアルカリ岩質のものである事、またデボン紀以来の層序が確立されている北上山地では第四紀に向かってソレイイト質に変化してゆく事を明らかにした（Sugisaki and Tanaka, 1971）。これらの結果は、当時岩石学者から強い批判を浴びた。このように古く、変質した試料の化学的データは信頼できないというのである。そこで、このような検討に耐えるデータとして増田彰正さんが開拓したばかりの希土類元素パターンを導入をはかり、以上の結果と矛盾しない事を確かめた（Fig. 2 A）（Tanaka *et al.*, 1971）。

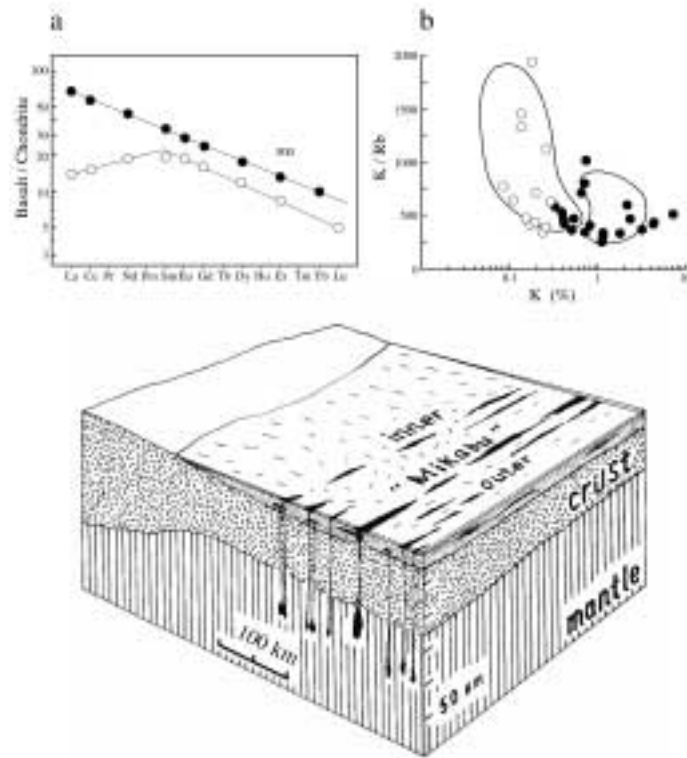


Fig. 2 (upper) Two distinct types of petrochemical characteristics for pre-Cenozoic tholeiite (open circles) in Mikabu zone and alkali basalt (closed circle) in flank zones. In K vs. Rb relation (B), the left and right encircled areas correspond to the divisions of abyssal tholeiite and oceanic alkali basalt, respectively, after by Gast (1968). (lower) Diagrammatic illustration of the Japanese Palaeozoic-Mesozoic era.

このパターンは岩系によって固有な特徴をもち、変質作用を受けても変化しないことに注目したのである。さらに、希土類元素のデータに基づいて、アルカリ系の玄武岩とソレイアイト系のものとの成因関係を検討した (Tanaka and Sugisaki, 1973)。

これらの岩石は海成の地層に挟まれていて、枕状溶岩となっているものが多い事からも海底噴火の産物であることは間違いない。その変質も主に、海水との反応によるものであろう。それではどのような噴出場が想定されるか。1960年代、まだプレートテクトニクスの創成期であり、海底で、深海性ソレイアイトが発見されたばかりで、そのデータも少なかったが、一つの特徴として、 K_2O が特に少なく、 K/Rb 比が極めて高い事が知られていた。本邦の緑色岩のソレイアイト系のもは同じような特徴をもつ事が蛍光X線分析器により服部仁さんが明らかにしてくれた (Fig.

2 B) (Sugisaki *et al.*, 1970)。希土類元素パターンでも同様である。上記のように深海性ソレイアイト系のもは御荷銓帯に産出し、それを挟んでアルカリ岩系の緑色岩が分布している。このような帯状分布は海嶺、紅海、アフリカ地溝帯などで報告されており、これらと比較して、本邦の緑色岩はリフト構造を作る伸張場の産物であったと推論した (Fig. 2 C) (Sugisaki *et al.*, 1971)。

その後これらの結論はあまり顧みられなかったが、最近 Iwamori (2000) は日本の変成作用を検討し白亜紀の海嶺の潜り込みモデルを提唱しており、我々が推論した結果はこれと関連づけ得るのではないかと私は考えている。また、上記のようなこの種の岩石への化学的なアプローチは、現在では世界でも常套手段となっている事も付記しておきたい。

以上のように、本邦の先新生代の火山岩は玄武岩が

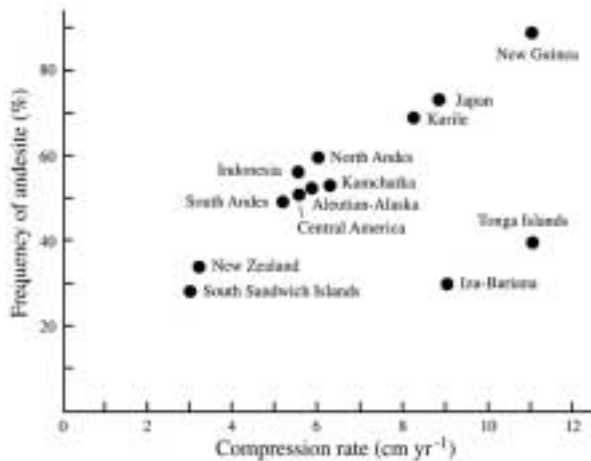


Fig. 3 Relation between proportion of andesite and compression rate in some regions. The differential rate of plate is averaged within each region. Volcanics with silica content of between 53% and 65% plotted in published petrochemical diagrams is assumed to be the andesite.

主流を占めているのに対して、新生代のものは安山岩、流紋岩といった中・酸性のものに代表されている。この違いは何によるのかと疑問をもち、当時のテキストを読んで、Marshallが安山岩の分布を総括して1912年に“安山岩線”を提唱していたことを知った。太平洋を囲むこの線の大陸側に安山岩の分布域があるという。発展中のプレートテクトニクスの諸論文を読んでいるうちに、この線はプレートの潜り込み位置に相当する事に気付いた。プレート説が始まる以前、久野久先生が日本列島下の和達—ベニオフ帯に沿うマグマ発生のモデルを提唱されていたので、安山岩の成因はプレート運動と関係するのではないかと考えた。そこで、各地の安山岩の産出頻度を調べ、そのプレートの運動速度との関係を検討したところ、沈み込みの速度に比例して、安山岩の産出頻度が増すことを見出した (Fig. 3) (Sugisaki, 1972)。自分で出した一次データによらない唯一の研究であったが、私としては達成感はあまり高いと言えず、やはり自然物を採取し、それを何らかの手段で検討する方が性にあっていと感じた。

3. 堆積岩と日本列島の生成史に関する研究

大学3年生の時、夏休みの一ヶ月以上、野外の地質図を作る調査実習が課せられた。私が与えられたフィールドは豊橋と浜名湖の間の広い地域で、その半

分程はいわゆる中・古生界のものであった。砂岩や頁岩は分かるが、その間にチャートと呼ばれる堅い地層があり、主にSiO₂から成ると教えられたが、その成因は当時よく解明されておらず、関心をもち続けていた。上記の火山岩の研究が一段落したころは、プレートテクトニクスの発展期で、古期火山岩の研究は世界でも盛んであったが、日本列島の生成発達のおかげで、太平洋に面している四万十層群という白亜紀の厚い堆積岩層が注目され、それは深海底で堆積され、プレートの運動で、日本列島に運び込まれたという考えが盛んであった。もしもそうならば、これを化学的に立証できないかと考えた。当時、海の火山岩の情報は広がる一方で、中・古生界の火山岩に関するデータではその生成場を一義的に決定する困難さを感じたので、堆積岩そのものを扱ってみる必要を感じた。

3.1 海洋堆積物と海底移動に関する研究

堆積岩の大半は海成であるから、その起源を探るには、それと比較すべき現海底の堆積物のデータを集める必要がある。当時、地質調査所の白嶺丸やDSDPのGlomar Challenger号が太平洋の海底の試料を集めていたが、堆積物はあまり化学者の興味を惹かなかったらしく、これらの試料は抵抗なく提供された。またこの頃、諸外国で岩石の膨大な化学的資料が次々と公表されていたことにショックを覚えた。田中さんと開発した迅速湿式法では太刀打ちできない。それは蛍光X線分析器が実用化され、この領域に導入されたからである。幸にして、昭和50年度の科学研究費でこれを購入する事ができ、メーカーの協力もあり、日本で最初の自動分析のシステムを作り上げ、微量成分も含めて、分析能力が飛躍的に向上した。そこで、太平洋を中心とした堆積物のデータの収集を試みた。我々の分析したもの約1,300個を中心に、他の機関の公表データ420個ほどを加え、太平洋の近海から深海に至る堆積物のデータベースを作り、堆積物の化学組成とその生成環境の基本的関係を確立する事をめざした。それは以下のように要約される (Sugisaki, 1984)。

(1)堆積物は、主に陸上の岩石の風化産物であるので、陸域を構成する岩石成分は溶解、沈澱などにより化学的に淘汰されて、変動する。この場合、通常海域環境では元素の性格から見て、主成分元素のうちチタンがもっとも変化され難く、アルミニウムもそれに次ぐ。従って堆積物のAl₂O₃/TiO₂比は風化、堆積の過程を通じて変動し難く、太平洋といった大きな海盆で

は堆積物が均質化され、この比は大陸を構成する代表的岩石である花崗岩と玄武岩の中間値22に近い値が保持されている。

(2)上記と関係して、主成分のうちチタンは最も変化し難いので、他の成分の変動を見るにはこれを基準とすることが合理的である。

(3)縁海や大陸棚など陸に近い所ほど陸起源の碎屑性堆積物の供給が大きいので、堆積速度は最大であるが、半遠洋性、遠洋性の海域になるにつれて減少する。一方、マンガンは酸化環境では4価として化学的に沈澱する。地下水などとは違って、海洋は大気に対して常にオープンであり、特殊な場合を除き、酸化的な条件が維持されているので、マンガンの沈澱速度は、海域に関わらずあまり変化しないと考えられる。上記のように TiO_2 は陸起源の碎屑物の基準と考えると、 MnO/TiO_2 比は陸起源物質に対する海域で沈澱した物質の量比であるとみなされる。従って、この比は陸から離れるに従って増大する (Fig. 4)。

以上が海域を構成する堆積物の一般的な傾向である。これと関連する事を付け加えると(1)(2)に関しては当時アルミニウムを不変なものとして基準値とする事が一般的な風潮であったが、それは強酸性や強アルカリ性下で溶解する。より安定な TiO_2 を基準とした方が実用的であると考えた。Young & Nesbitt (1998)

は最近、 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ 比を堆積物の源岩の推定に使う利点を総括している。たとえば、我々は玄武岩から成る Wake-Tahiti 海域の高まりの周辺域堆積物では $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ 比は上記22よりも低く12.4と玄武岩のそれに近いことを確認していた。(3)に関してはすべてのマンガンは海水から沈澱したかのように記述したが、堆積物の間隙水中でも同じように酸化還元条件に影響を受けて行動する。そこで、近海での海洋堆積物の表層付近で、そのような行動を検討する研究も多い。しかし、海域全体での MnO/TiO_2 比の分布の特徴は上記のように考えて差し支えない。また、マンガンと化学的性質が似ているコバルトやニッケルも同様である。

以上を更に深く検討するために、各試料の堆積速度と MnO/TiO_2 比との関係を求めた。堆積速度は古生物、火山灰、同位体比、残留磁気などにより決定されているものを選んだ。 MnO/TiO_2 比のみならず、 Ni/TiO_2 比や Co/TiO_2 比も明らかに堆積速度と逆相関を示し、(3)の傾向を裏付けた (Fig. 5)。

これらのことと関連して、DSDPで、日本海溝の東西の地域で得られたボーリング試料 (Legs 56と57) は後の研究の発展の上で大変役立った。三陸沖の大陸斜面のものは SiO_2 含有量が80%をこえるものも多い。それは他の研究者により指摘されている珪藻、海綿、放散虫などの珪質の微生物が多く含まれて

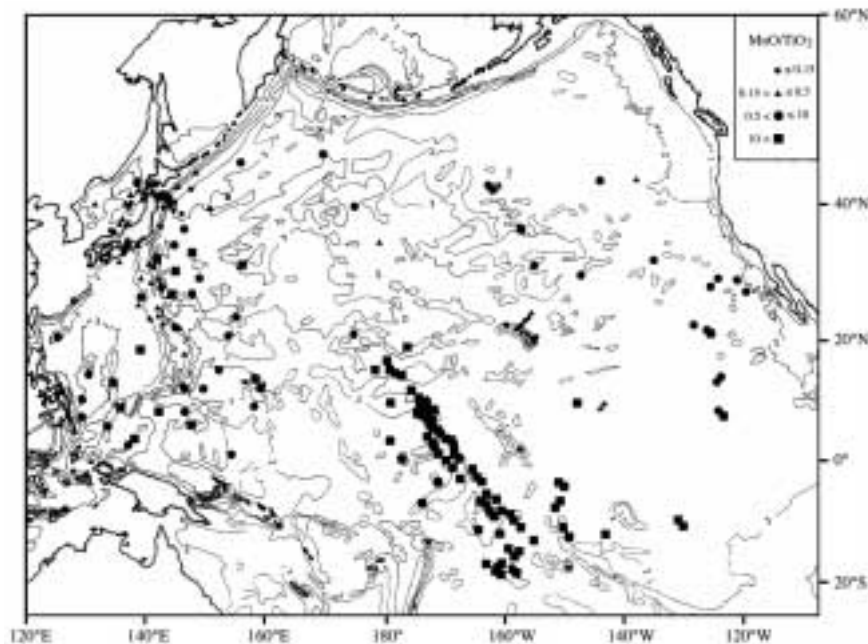


Fig. 4 Distribution of MnO/TiO_2 in surface sediment samples from the Pacific. Depth contours are in thousand of meters.

いることに起因する。SiO₂のTiO₂やAl₂O₃との相関係数はほとんど1となり、回帰直線上でTiO₂やAl₂O₃を0に近づけると、SiO₂は100%に収斂する。日本列島起源の碎屑物にシリカが加わった事を示していて、それを外挿すれば、まさにチャートと同類となり、上記(2)

の結果がこの種の岩石に適用できる事を知った (Fig. 6)。また、MnO/TiO₂比は日本列島に近いもの程小さい (Fig. 4)。これは(3)で述べた海域の特徴の違いを表す。

プレートテクトニクスは、海底の地磁気異常の縞模様の解釈が契機となって発展してきたものと言えよ

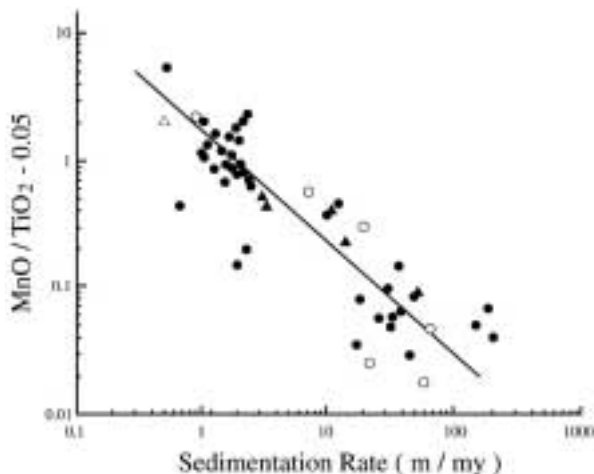


Fig. 5 Plots of MnO/TiO₂ ratios against the sedimentation rate of terrigenous materials. 0.05 is minimum ratio. Closed circles, open circles, open triangles, and closed triangles represent samples of Plio-Pleistocene, Miocene, Paleogene, and Cretaceous in age, respectively.

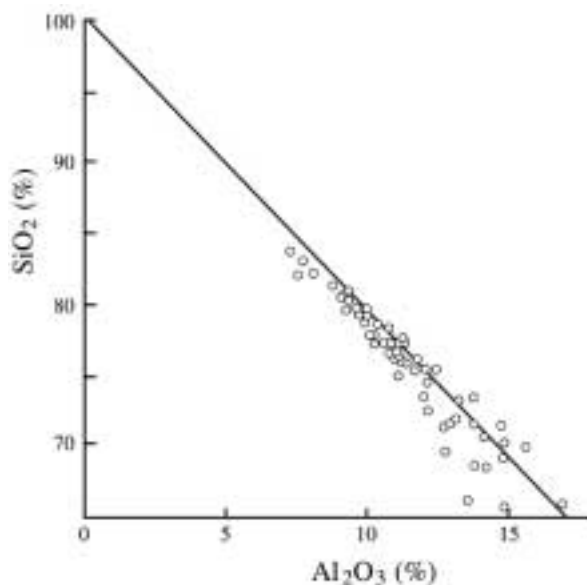


Fig. 6 SiO₂ vs. Al₂O₃ relation at site 438 sediments in DSDP Legs 56/57.

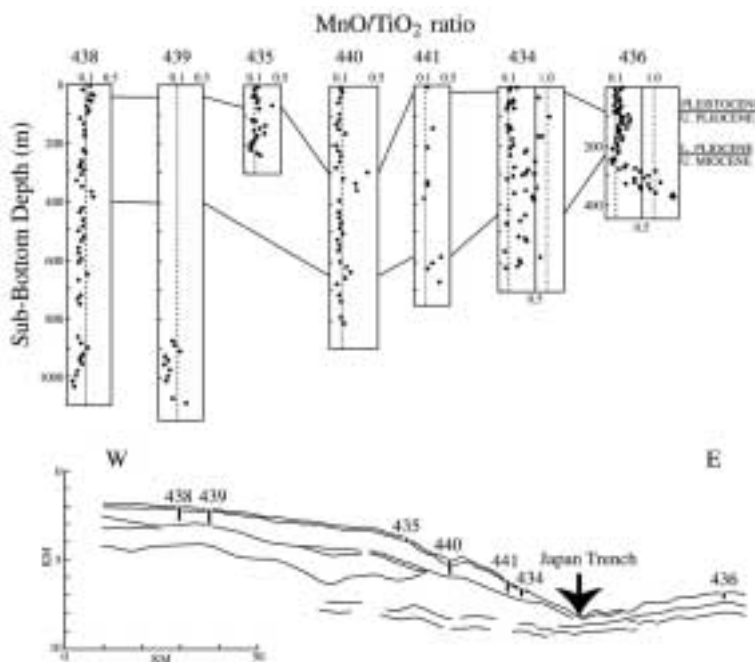


Fig. 7 Distribution of MnO/TiO₂ (%) in sediments along the Japan Trench Transect, DSDP Legs 56/57.

う。いわゆる大洋底拡大説である。太平洋プレートが、日本列島に接近し、日本海溝に潜り込んでゆくとすれば、太平洋プレートによって運ばれてくる堆積物は遠洋性から近海性の環境へと変わってゆき、その化学的性格も系統的に変化するのか？ また、その後、堆積物が海溝の西側にのし上がるのか、あるいはそのまま海溝に吸い込まれるのか？ という二つのことを検証するデータが堆積物を調べる事によって得られるのではないかと考えた。DSDP Leg 56と57で得られた泥質堆積物256個の分析結果 (Fig. 7) は(1)日本海溝西側のボーリング試料では日本列島に近くなる程 MnO/TiO_2 比は減少する。(2)海溝東側の Leg 436は深度400 mに近く、中新世上部までの堆積物を含んでいるが、その下部から上部に向かって MnO/TiO_2 比が系統的に減少している。これらはこの堆積物をのせた海洋プレートが遠海から近海に移動してきて、上部程、陸源性の堆積物が多く堆積した結果であることを示す。(3)海溝東側で見られた、遠海性の環境を示す堆積物は西側では見られない。これは東側のプレートが運んできた堆積物が、日本列島側の下に潜り込んでしまった事、つまり運ばれた遠海性の堆積物は海溝の西側にのし上がっていない。これらの結論はプレート運動と関係した日本列島の生成発達を考える上で重要なデータであると思う。

3.3 チャートの起源に関する研究

前に触れたように、チャートという堆積岩に永い間関心をもってきたが、堆積物の化学的な基本データとその意義についての考えがある程度固まった時点で、チャートの問題に取り組もうと考えた。深海底には放散虫軟泥という SiO_2 を主成分とする堆積物が産出する。チャートは大半が SiO_2 からなり、碎屑物(砂や粘土)を殆ど含まないので遠洋域の堆積物由来であり、それがプレート運動によって日本列島に運び込まれたというモデルは現在では高校の地学教科書にも載っている。このモデルの検証には、地球化学が鍵を握っていると思った。そして二つの面からのアプローチを試みた。日本列島の中・古生界には多くのチャート層が産出している。それを前の堆積物について得られた観点から検討する事、また DSDPなどで、チャートと記載された試料があるので、それらを検討比較してみようと考えた。

以上のアプローチのうち岐阜県の上麻生にある美濃帯の三疊系のチャート大露頭を先ず対象とした (Sugisaki *et al.*, 1982)。これは層状チャートとよば

れ、1ないし数 cmの厚さのチャート層とその間に1-数 mmの薄い頁岩層がサンドイッチのように重なり、全体の厚さは100 m以上に及ぶ。ここでチャート69個と頁岩37個を採取、分析した。その結果(1)頁岩とチャートの SiO_2 を除く成分は同じ化学的な性格をもつ。チャートは放散虫という SiO_2 の殻をもつプランクトンの集積物であるので、頁岩成分に大量の SiO_2 が混合したものがチャートである。チャートの Al_2O_3/TiO_2 比の平均値 22.08 ± 2.32 は頁岩部分のその 21.97 ± 1.07 と誤差の範囲内で一致している。この比は前に触れた一般堆積物の比(22)とも一致している。この事は日本海溝でのチタンやアルミニウムに対する SiO_2 の行動 (Fig. 6)と同じで、陸源性の堆積物に異常大規模発生した放散虫が加わって (Fig. 8)チャート層が生成した。(2)その生成海域について、前に述べた MnO/TiO_2 比で見ると、チャートで 0.254 ± 0.196 、頁岩で 0.168 ± 0.191 であって、太平洋の深海域におけるその比1~2より一桁ほど低く、日本近海の値に匹敵する。この事は、チャートが陸から遠く離れた深海でできたものではない事を示している (Fig. 9)。その後、清水洋さんらは主に九州の三疊系の三疊山帯のチャートについて Rb/Sr, Sm/Nd 同位体比や希土類元素などのデータを検討し、縁海が陸棚ないしは大陸斜面がそれらの生成環境であろうと述べている (Shimizu *et al.*, 2000)。

一方、現在の深海底に産するチャートはどうか？ DSDPで採取されたチャート試料はあまり多くな

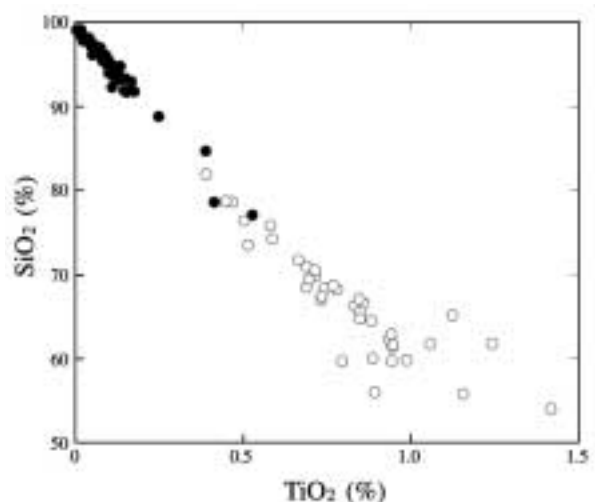


Fig. 8 SiO_2 vs. TiO_2 relation in Kamiaso Triassic bedded cherts (closed circles) and the shale partings (open circles).

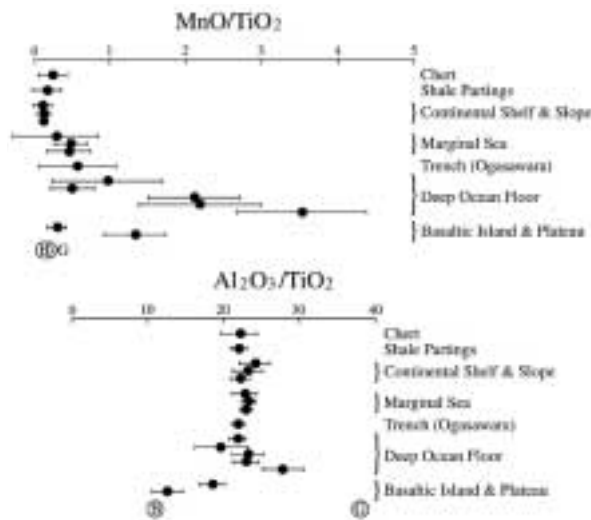


Fig. 9 Comparison of TiO_2 normalized values of marine argillaceous sediments in various environments and Triassic cherts and shale partings. The horizontal line indicates $\pm 1\sigma$. G and B represent the averaged values of granites and basalts respectively.

い。DSDP のレポートを調べ、比較的多数の試料セットが入手できそうなのは北太平洋の Leg 32, Site 303 と 304 で、その利用を申請し、42 個の試料を入手、検討した。このうちの 304 コアは深度 332 m で基盤の玄武岩層に達しており、その上で玄武岩と接しているチャートは鉄、マンガン、銅、ニッケル、モリブデン、鉛などの金属に富み、 $\text{Al}/(\text{Al} + \text{Fe} + \text{Mn})$ 比や $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ 比が低く、全 $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ 、 MnO/TiO_2 、 Mo/TiO_2 などの高い比から見て、これは基盤の玄武岩に関係した熱水から沈澱、生成したものと見なされる。それを我々は熱水性チャート (hydrothermal chert) と呼んだ (Adachi *et al.*, 1986)。その組成鉱物も細粒の赤鉄鉱を含み、主に大きな石英の結晶から成っていて、放射虫化石を含まない。またこのコアは上部になる程、放射虫が多くなり、岩石分類のうえで chert ではなく porcellanite というやや脆いものになってゆき、熱水の影響が弱くなっている。これらの点では明らかに日本の中・古生界の代表的なチャートである上記の上麻生のチャートとは成因が異なる。またこれらのチャートはノジュール状を呈し、明らかに陸上の厚い層状チャートとは異なる産状を呈する。これに関連して玄武岩の上であり、その熱水活動の影響で、できたと考えられる赤褐色の堆積物は umber と呼ばれ、キプロス島など各所で報告されている。日本でも

われわれは美濃帯、御荷鉾帯、四万十帯などの緑色岩の直上などに存在するこの種の岩石を検討したが、何れも小規模で上麻生のものとは異なる (Sugitani *et al.*, 1991)。

これらの熱水性のチャートと対比できるものとして北米カリフォルニア州の Franciscan 帯という厚い中生代の地層があり、その中にも基盤の玄武岩の上にチャート層がある。山本鋼志さんは足立守さんと現地へ赴き、それらの試料 150 個ほどを採取・分析して、DSDP のものと対比し、下部の玄武岩の熱水のチャート生成に対する役割を検討した (Yamamoto, 1987)。Murray *et al.* (1991) は希土類元素のデータから同様なアプローチを試みている。

また、 SiO_2 に富む堆積岩としては酸性凝灰岩があり、それが続成作用の結果、チャートに変わるという考えもあった。そこで、新井房夫先生が日本各地から収集された酸性火山灰を提供して頂き、検討し、その変質過程においても、珪素、アルミニウム、ガリウムなどのチタンに対する比は一定に保たれる事を確かめ、その結果を静岡県古第三系の瀬戸川層群からの酸性凝灰岩とそれに附随する泥質岩に適用して、化学的な手法がこの種の酸性堆積岩の起源を探るのに有効である事を立証した (Yamamoto *et al.*, 1986)。

3.3 マイクロマンガノジュールとマンガノジュールの研究

深海底の堆積物を象徴するものとして、19 世紀のチャレンジャー号の調査でマンガノジュールの存在が明らかにされ、その研究は膨大なものに達している。一方、海洋堆積物にはマンガノジュールという直径 1 mm 以下の二酸化マンガンの小粒がかなり含まれている (Fig. 10) が、微小なため、化学的検討が困難であった。堆積岩の研究を始めた頃、電子顕微鏡 (EPMA) による微小域の分析が可能になったので、マンガノジュールの研究を始めた。通常のマングノジュール (マクロノジュール) と比較しながら、その分布と成因を探り、それが堆積環境とどのように関連づけ得るかを検討する事を目指した。主に大橋優喜・杉谷健一郎両氏が鈴木和博さんの援助でこれにとりくんだ。試料としては、それ以前の研究で蒐集してきた堆積物を使用した (Sugisaki *et al.*, 1987)。

マクロノジュールが海底面上に限って産出するのに対し、マイクロノジュールは海底面下の深い層にもよく含まれているので、その情報量は大きい。その化学

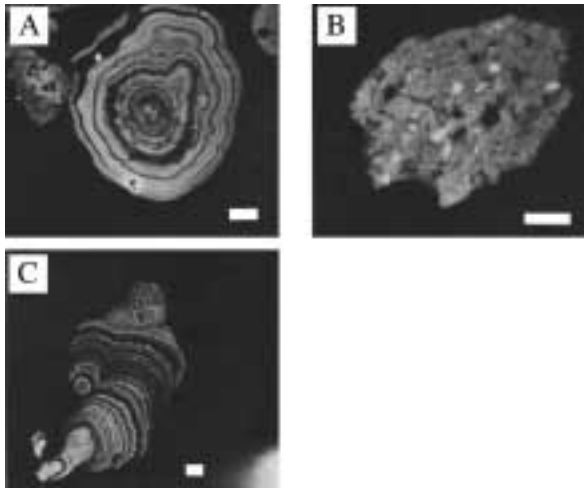


Fig. 10 Internal morphology of manganese miclonodules. Scale bar is 10 μm . A, B and C. were recovered from Central Pacific, Sea of Japan, and Cretaceous hydrothermal cherts of California, respectively.

的特徴は生成海域とよく対応し、①水からの沈澱 (hydrogenous precipitation)、②酸化的続成作用 (oxic diagenesis)、③準酸化的続成作用 (suboxic diagenesis) というマクロノジュールで認められているのと同様の生成過程をもち、中部太平洋のマクロノジュールでは①+②の成因、日本海の場合は③の成因、小笠原海溝付近海域のものも③による影響が強い、といった各海域の特徴が明らかとなった。またチャートの項で述べた DSDP Site 304 の基底玄武岩直上のマクロノジュールは熱水の影響が強く、Ba/Mn, Cu/Ni, Ba/Ni などの比が大きい。上位に行くほどその影響が弱まり、oxic diagenesis により形成されたものによってゆく事が示された。

陸上では、前項で述べた古期玄武岩層のすぐ上部にある鉄に富む堆積物の中からマクロノジュールを分離できた。四万十帯や嶺岡帯の *umber*、御荷鉾帯のチャート、丹波帯の赤白珪石などである。その特徴は太平洋深海域の熱水性のものと対比でき、地質時代を経た今もマクロノジュールが生成当時の化学組成を保持したまま、保存されている事が分かり、堆積環境の指標として有効である事が分かった。

日本の中・古生界の頁岩層にマンガンノジュールが含まれているという報告がある。前記のマクロスケールのものでなく、径数十 cm に及ぶものもあり、これが太平洋の深海底に産するものの同類で、プレートによって日本列島に組み込まれたという考えがあ

る。しかし、深海底のものが二酸化マンガン主成分であるのに対して、日本の陸上のは炭酸マンガンである事は以前から知られていた。そこで我々は現海域の堆積物中のマンガン化合物の化学的形態の分布を調べ、その深度方向の分布に2様式があることを見出した。一つは Fig. 11A に示すように水深6,025 m の太平洋中部で掘削されたコアで、マンガンはほぼ一様な濃度を示しているが、炭酸塩の量を表す CO_2 は殆ど検出されていない。今一つは日本海溝の西側斜面の DSDP Site 434 のコアである。そのマンガン含有量は中部太平洋のものより一桁近く少ないことは既述の通りであるが、垂直分布図上では所々にスパイク状に濃集している層がみられる。そして、その高マンガン含有量を示すところでは CO_2 の量も平行して増加している事が注目される (Fig. 11B)。この両者のピークが一致する層準では、マンガンが炭酸塩態で濃集していると考えられる。このような層をマンガンバンド (manganese carbonate band) と呼ぶこととした (Sugisaki *et al.*, 1991)。

このような特徴的なマンガンバンドの層は、中央日本の中・古生界のチャートや頁岩中によく見出される。Fig. 11C に、養老山脈西側の美濃帯の厚い頁岩層での例を、Fig. 11D に上麻生チャートにおける例を示すが、マンガンと CO_2 のスパイク状の分布状態は上記近海のそれと同じである。このマンガンバンドは、深海のコアと異なり、主に菱マンガン鉱やマンガン方解石から成り、それを胚胎する周りの岩石にくらべるとリン、バリウム、およびコバルト、ニッケル、銅、亜鉛などの金属に富み、Zn/Co 比が低い。これは近海の suboxic の環境下で生成した事を物語る。このような場所では堆積速度も高く、陸源性の有機物も多く供給され、それは酸化されて炭酸塩化合物を作るのに必要な CO_2 を供給するであろう。その炭素同位体比 $\delta^{13}\text{C}$ 値は -30パーミルと通常海成の炭酸塩のそれより、遥かに低い。この値は準酸化的な環境で有機物がメタンを中間生成物として、介在した事を物語っている。

マンガンバンドがある層準に集中していることは注目に値する。従来、美濃帯でマンガンノジュールとみなされたものの産状をフィールドで観察すると、特定の層準に母岩の層理面と平行に配列されていて、ノジュール状というよりはむしろレンズ状を呈する。その組成もマンガンの炭酸塩であって、酸化物ではない。これらの産状、化学組成からみると、美濃帯の所

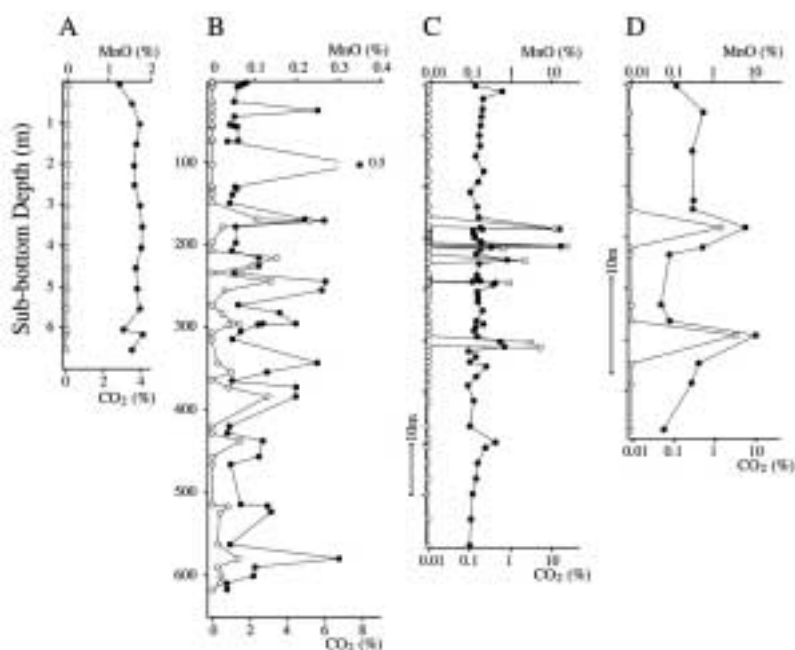


Fig. 11 Geochemical profiles of MnO (closed circles) and CO₂ (open squares) for marine cores and shales within the Mino terrane. A: Pistone core 195 recovered from central Pacific (water depth; 6,025 m) B; DSDP Site 434 core from west sloe of the Japan Trench (water depth; 5,986 m). C; shale outcrop at Yoro. D; chert outcrop at Kamiasso.

謂マンガノジュールはマンガバンドが局所的に肥大化したもので、深海底に産出する二酸化マンガノジュールとは本質的に異なっているのである。

3.4 堆積岩から見た日本列島形成史の評価

以上にのべた西南日本の中・古生界の堆積岩の性格から、それらの起源と日本列島の発達史との関係を考えてみたい。くり返すが、チャートで代表される遠洋性の堆積物がプレートに載って日本列島に運ばれてきて、次々に日本列島の太平洋側に付加していったという考えはアクリーションテクトニクスとよばれ、20世紀の終わり頃から流布し、定説化しているように見える。しかし、我々が検討した堆積岩のデータから見るとそれに対して強い疑義を感じざるを得ない。中・古生界の厚い層状チャートの化学組成や頁岩などに含まれるマンガバンドの存在などからこれらの物質は“遠洋性の大洋堆積物起源の付加体ではない”と判断される。また日本海溝を挟むDSDPのコアの分析から海溝東側の大洋堆積物は西側の陸棚のうえにのし上がっておらず、陸側の下に潜り込んでしまったという推論は既述した。

これに関して、木村敏雄先生は地層、岩石、化石な

どの膨大な地質学的な証拠を基に、“四万十層や三宝山層などの地層群は大洋堆積物の付加体ではない”という見解を従来から示しておられた(木村, 2002)。また Jenkyns and Winterer (1982) は陸上の造山帯に見られる厚い層状チャートに相当するものはDSDPの探査でも、大洋底では見つかっていないことに注目し、これらは全く成因を異にするものであるとのべている。Moore (1975) はプレート上の堆積物が他のプレートの下に潜り込んでゆく論を展開している。美濃帯のマンガノジュールは深海底のものと異なると述べたが、スコットランドのLoch Fyne地方の入り江に多くのマンガノジュールが産出することが、すでに19世紀末に報じられていて、それは炭酸塩であって深海底のものと違うという研究(Calvert and Price, 1970)や、東北日本沖の大陸斜面(Okada, 1980)や北米東岸の大陸斜面(von Rad and Botz, 1987)でもこの類いのものが認められており、何れもマンガバンドと性格が類似し、同じ環境で生成したものであろう。また、三波川変成帯には、Mnに富む紅れん石を多く含む片岩が産出していて、これはマンガバンドが変成を受けたものと考えられ

る。この種の岩石はニュージーランドで Coombs *et al.* (1985) によって報告され、その源岩は大陸に近い場所で生成したものであると述べられている。アクリーションの証拠として挙げられるものに古磁気データがある。これは日本列島の古い岩石は緩い伏角を示すので南方にあったことを示すというのである。しかし、それらは何れも同じような値を示し、いろいろな所から日本列島に集まってきたならばその値はもっとばらついているはずであり、このデータは単なる大陸移動で説明がつくものである。

以上は日本列島を対象とした場合の我々の主張であって、世界の陸上のすべてのマンガノジュールの起源は大洋性のものではないといっている訳ではない。例えば、チモール島に産するノジュールや泥岩は文献 (Audley-Charles, 1965) のデータを見る限り、二酸化マンガに富み、海洋底がのし上がったという主張は否定し難い。また我々が試料採取に赴いたニューファウンドランドやトルコなどのオフィオライトは日本の御荷銚帯などとは桁違いに大規模な超塩基性の岩体であり、海洋底がそのまま陸になったという考えは納得せざるを得ない。

この種の堆積岩の研究では足立守さんの協力を得て、杉谷健一郎さんが先カンブリア時代のものに拡張し (Sugitani *et al.*, 2003)、地球化学的な研究に古生物学的な面からの検討を加え、地球上における生物進化に踏み込んだ研究を展開している (Sugitani *et al.*, in press)。

4. 地殻変動と地下ガスの挙動

4.1 地震予知を目的とした研究

地震は地下に歪みが蓄積され、力学的バランスが失われて起こるものと考えられる。つまり物理現象なので、もっぱら物理学的な面から研究されることは当然である。しかし、歪みの進行や破壊に伴う非物理現象も数多く存在するはずである。1960年代に中国、ロシアで地下流体の監視による地震予知の可能性が論じられ、以前私が行った地下水の研究方法をここに適用しようと考えた。

地下流体で注目したのは“ガス成分”である。この分野では最初、ロシアで地下水中のラドンが地震前に増えたという報告が契機となり、世界に広まったものである。しかし、そのロシアの報告の20年以上前、初田甚一郎先生が1944年の東南海地震の時、ラドンの増加を観測、報告 (Hatuda, 1953) されているが、

国の内外で無視され続けてきたことは我々も反省すべきであろう。このような背景で地震に伴う地下ガスの挙動については専らラドンが検討されてきた。しかし、私はこのような単成分の監視に疑問をもった。地下の破壊の時、例えば CO₂ や CH₄ などのガスも放出されれば、単一の成分のものは希釈されてしまう。そこで、ラドンと同類の放射起源のヘリウムとアルゴンに注目した。各々の親であるウラン、トリウムに対するカリウムの岩石中の存在量比は変動が少なく、従って、それらから生成される He/Ar 比も岩石の種類や年代に関わらず、ほぼ一定の値、10前後となる。この値は空気中のそれ (5×10^{-4}) の2万倍に達する。もしも放射起源のこれらの希ガスが岩石の崩壊によって放出され、それが地上に上昇してくれば、容易に検出され得るであろうと考えた。この場合、単一成分の絶対濃度でなく、比を問題にしているから他のガス成分の消長に関係ない。

微量の希ガスの測定には、質量分析計を用いるのが当時の常識であり、事実、カリフォルニアで、これを使ってヘリウムを追跡した研究もあった。しかし、地震予知などという息の長い研究ではその取扱いが複雑すぎて、適用が難しい。そこでガスクロマトグラフという簡単な測定器を用いる事とした。この機器は主に有機化学の分野で広く使われていて、無機ガスの分析にはあまり用いられていなかった。しかし、分析操作は極めて簡単で、メーカーの協力もあり高感度の測定ができた。この測定法のもう一つの特長は、ガスの量比が質量分析計よりも遥かに高い精度で得られる事である。上記のようにガスの成分比の検討という研究目的には最適なものとした。

まず、予察的な研究として、名古屋大学犬山地震観測所構内の測定坑から湧出している地下水から分離するガスを志知龍一さんをお願いして、週3回ほどの頻度で採集してもらい、大学に持ち帰って分析をした。そして、ガスの挙動と近くで起きる地震との関係が明らかとなった (Sugisaki, 1978)。これに勇気を得て、ガスの自動連続観測を試みた。ガスクロマトグラフの簡単な機構がそれを可能とした。そして、最初一日4回の測定を行い、後には46回に増やした。また、測定データの大学への一般の電話回線による伝送も可能となった。この方法を適用するのに相応しい観測点として、岐阜県の白狐温泉、愛知県の湯谷温泉、静岡県の熱川温泉を選び、温泉水から分離するガスを長いものでは四半世紀に亘って連続測定した。その結果、白

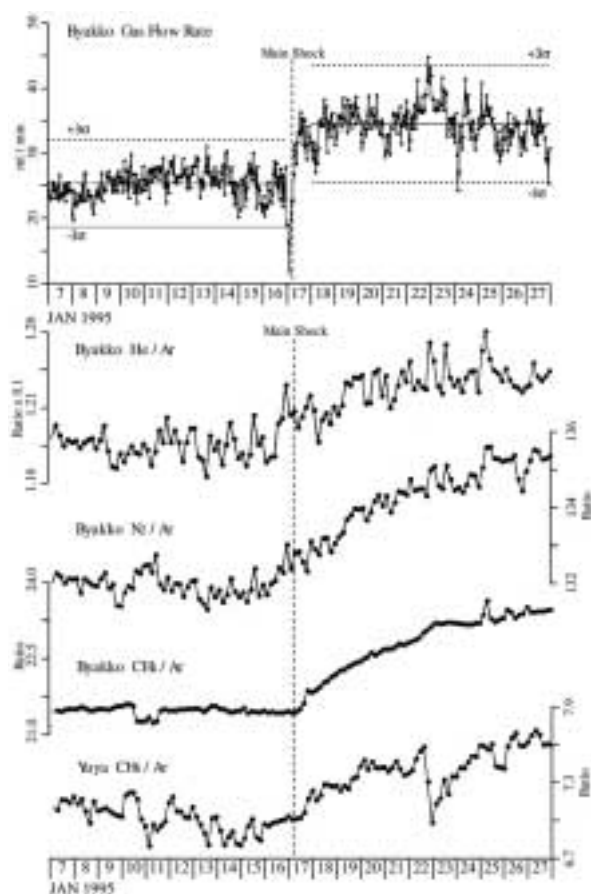


Fig. 12 (upper) Preseismic decrease and postseismic increase of gas charge rates. Hourly average rates for 10 measurements are plotted. (lower) Changes of gas concentration ratios at Byakko and Yuya monitoring sites for 1995 southern Hyogo earthquake.

狐では長野県西部地震（1984）と兵庫県南部地震（1995）の際、ガスの長期的な異常、短期的な水素の発生などが観測された。また後者の地震の頃には永峰康一郎・伊藤貴盛両氏の努力で、ガス分析の時間的密度が高くなっており、ガスの湧出量も6分間隔で測定している、地震発生と同時の (coseismic) ガス組成異常、ならびにその数時間前のガス湧出量異常低下現象などが観測された。かくて、震央距離220 kmにも拘らず、大きな地震 (M=7.2) の際の広域的な地下流体の変動を観察する事ができた (Fig. 12) (Sugisaki *et al.*, 1996)。これと対照的な事例として、杉浦孜さんは火山ガスの研究の為、年一度、御岳山の噴気を採取していたが、長野県西部地震の7日前に採集されたガスでは He/Ar 比の他、 H_2 , CH_4 , SO_2 などの濃度が3年ほど前の数十倍から数百倍に達していた。そして、その2月後にはその比は1年前の値にまで減少していた (Fig. 13)。震源距離9 km を考えれば、このように前兆的シグナルが強かったことは納得できよう (Sugisaki and Sugiura, 1985; 1986)。

4.2 活断層と地下深部ガス

上記の研究に適する観測点を選ぶために名古屋近辺の温泉、鉱泉を調べていた。例えば、白狐温泉は放射能泉でラドンも多いが、湧出ガス中の He 濃度は800 ppm と大気のそれの160倍に達し、明らかに深部起源のものと判定できよう。これに関連して、活断層と地震との関連も注目されていたので、このような深部ガスは断層面からも放出されているのではないかと考えた。そこで、中部地方で活断層と認定されているものを対象として、その断層面にパイプを打ち込み、そこからガスを採取して分析した (Sugisaki *et al.*, 1983)。その結果、高濃度の He などは認められな

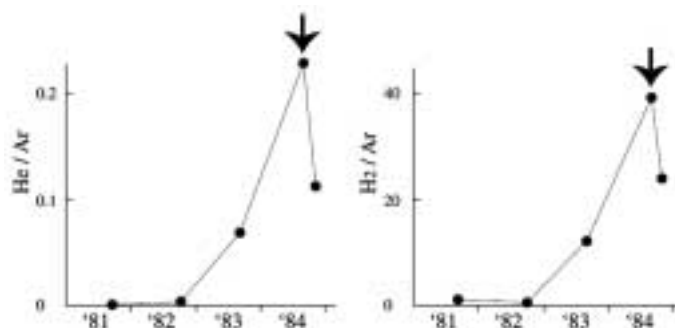


Fig. 13 Temporal variation of fumarole gas qualities of On-take volcano. Vertical arrows indicate the occurrence time of the 1984 earthquake.

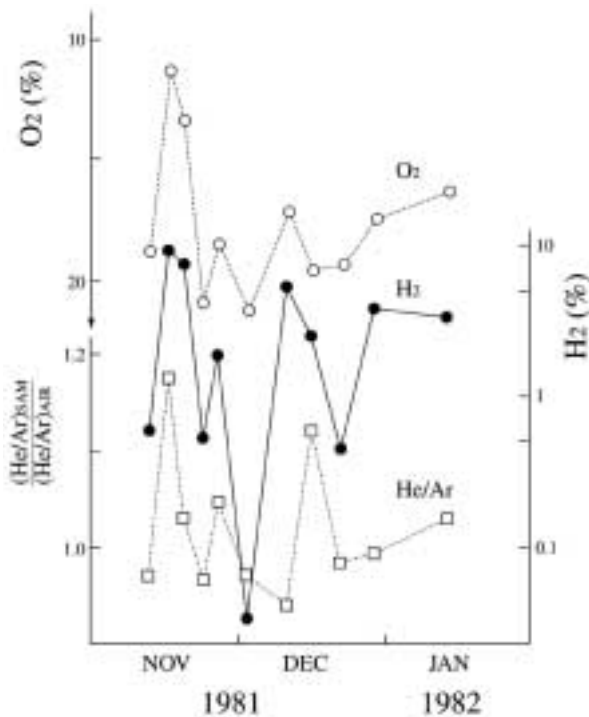


Fig. 14 Temporal variations of H_2 , O_2 and He/Ar ratio at a monitoring station along the Atera active fault. He/Ar ratio is normalized to that of atmospheric air.

かったが、 CO_2 と H_2 が活断層を特長づけるガスだという事が分かった。その起源を探るために、阿寺断層が未固結の堆積物とその下の基盤流紋岩を切っている岐阜県旧付知町の露頭で調べたところ、 CO_2 は上位の砂礫層中の破碎帯内に、 H_2 は下位の火成岩中のそれに濃縮している事が分かった。前者は炭素同位体比のデータなどから堆積物に含まれる有機物から生成されたものと結論された。断層活動によって破碎された部分では水やガスの流通が促進され、生物活動が活発化したものと判断される。水素については同じ岐阜県旧坂下町の阿寺断層破碎帯では10%に及ぶ高濃度のものが現れた。そしてその時間的変動を見ると He/Ar 比と同調しており、また O_2 の減少に同期している。この事は H_2 が地下深部ガスの放出を示していると解釈される (Fig. 14)。

H_2 の濃度は同一の断層内において大きなばらつきがある。Fig. 15は公表されたものを含め、各断層のすべてのデータをプロットしたものである。例えば阿寺断層では1 ppm から100,000 ppm まで変動している。そのサンプリングの状態から、空気の混入は避け難く、どこ迄が断層固有のものかは判定できないが、最高濃度が高い順に上から配列して気付く事は、上の阿寺から牛首断層迄は最高濃度が10,000 ppm に達しているのに、下の7断層は精々100 ppm に過ぎない。

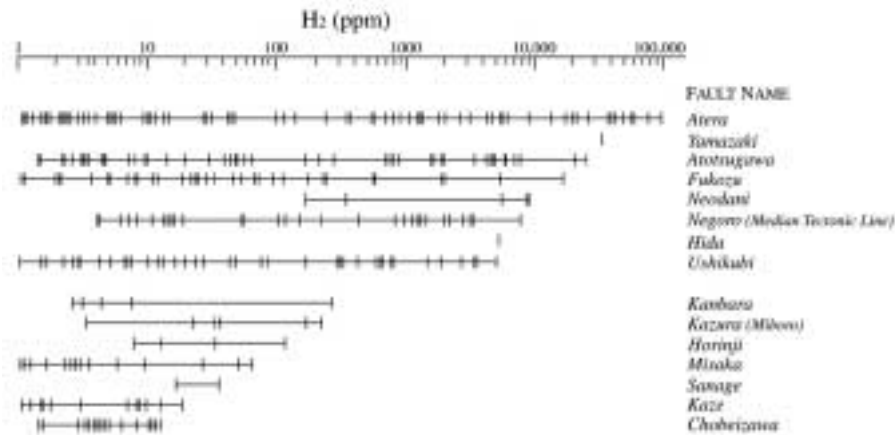


Fig. 15 H_2 concentrations issuing from active faults in central Japan. The upper eight faults are associated with historical earthquakes except for the Hida fault. Earthquakes associated with the lower seven faults are not known. Occurrence year and magnitude of earthquake (M) associated with the upper seven faults are as follows: Atera 762 ($M=7.4$), Yamazaki 1864 ($M=6.4$), Atotsugawa 1857 ($M=6.9$), Fukozu 1945 ($M=7.1$), Neodani 1891 ($M=8.0$), Negoro 1091 ($M=6.2$), Ushikubi microearthquakes.

活断層とは第四紀に活動したものと定義されているが、注目されるのはその活動時期である。上の各断層に関連する地震の発生時期を図の説明文に示してあるが、飛騨断層を除き何れも有史以来の地震と関連付け得る。これを歴史断層とよび、最近の活動記録がない下のグループを先歴史断層とよぶ。つまり断層から放出される H_2 は活動時期が新しい歴史断層で高い。あたかも、活火山と休火山の関係に比較される。という事は H_2 は断層活動によって放出されると考えても差し支えないと考えられる。既述の白狐観測点や、御岳山噴気の他にも地震時における H_2 の放出が報告されている (Satake *et al.*, 1985)。サンアンドレアス断層でも同様な観測があり、断層沿いの地下における蛇紋岩化作用に原因を求める考えもあるが、我々は地震による岩石破壊時における作用で H_2 が発生するモデルを考えた。岩石を粉末にして水を加えると、高濃度の H_2 が発生することを実験的に確かめた。粉末岩石300 g に水80 g を加えたものからは3%という歴史断層に匹敵する高濃度の H_2 の発生を認めた。また岩石種については黒雲母などを多く含むペグマタイトなどはとくに発生率が高い。つまり、岩石が破壊されると鉱物の新しい割れ目表面が露出し、それが化学的活性をもち、地下水と反応して H_2 を発生するというモデルである。このような事は脇田宏さんらも同様な結果を出しておられた (Wakita *et al.*, 1980)。歴史断層は新しい地震活動によって、破碎帯の高い活性が維持されているが、活動から長い時間が経過した先歴史断層ではそのような活性が失われつつあると考えられる。

日本の鉱泉・温泉は断層沿いに分布している事は早くから指摘されていた (小林, 1940)。我々はこのような地下水を伴う断層ガスを Type II と呼び、断層破碎帯から水を伴わずに放出されるものを Type I と命名した (Sugisaki *et al.*, 1980)。白狐温泉などではヘリウムに象徴される深部ガスが卓越しているが、水を伴わない断層ガスでは H_2 で代表されることについて以下のような仮説を提唱した (Sugisaki, 1987)。地震が起こり、断層付近が破壊されると、地下水やガスが破碎帯に沿って断層全面から放出される。 H_2 はこの新しい破壊に伴うガスで、この時期の破碎帯は通気性もよく、 H_2 や CO_2 などを除くと大気成分に富む。これが Type I のガスである。その後、時間の経過と共に、化学的・物理的な作用、例えばミロナイト化などにより、破碎帯は閉塞されるようになり、破碎帯全面からの地下流体の放出は弱まり、放出口は局所的に

まとめられる。地下深部を緩慢に循環する水が放射性ヘリウムなどのガスや種々のイオンを溶かし込み、この放出口から上昇してくる。ここには、新鮮で化学的活性をもつ岩石破断面は消費されてしまっている。ここで、 H_2 は放出され難い。これが温泉・鉱泉で、ガス組成から見ると Type II である。大気の混入は少ないので、深部起源のヘリウムや CH_4 などのガスや各種イオンなどが卓越してくる。中部地方で歴史断層に関連した大規模な温泉・鉱泉は殆ど存在せず、古い時代に活動した断層沿いに多くの温泉・鉱泉が集中していることは偶然とは思われない。これと関係して、最近 Kameda *et al.* (2003) は 岩石破碎と水との反応について、より詳細な室内実験を行い、温泉水の pH 値と H_2 発生との関係を論じていることは注目される。

5. マントル炭化水素とその成因についての実験的研究

5.1 マントル炭化水素の発見

地殻変動の研究を目的として、地下深部起源の流体を探究するために断層や温泉などを調査していたが、この際、明らかに花崗岩などの割れ目から湧出するガスに、しばしば CH_4 や C_2H_6 といった炭化水素類が含まれていることは極めて不思議に感じた。一般の花崗岩は火成岩とみなされ、また変成作用の結果生成するとしても、その生成過程では少なくとも数百度の温度を経験したと考えられる。このような環境で、有機物が生き延びられるのだろうかという素朴な疑問を抱いた。さらに、若干の深成岩は炭素数の少ない炭化水素を普遍的に含む事を確認し、それらは熱力学的に平衡関係にある事を確かめた (Sugisaki and Nagamine, 1995)。これらの結果から、マントルに由来し、生物活動と無縁の物質中の炭化水素の探究は、地球における非生物起源の有機物や、非生物圏の炭素循環に対する重要な情報となり得ると考えた。そこで、三村耕一さんと世界各地から生成環境の異なった50岩体から210個の試料を採取、半田暢彦さんの援助で有機溶媒で抽出できる有機物を分析した。ここにいう有機物とは C_{14} - C_{33} の脂肪族炭化水素 (高分子炭化水素) である。

その結果、①オフィオライト中の新鮮なテクトナイト、およびアルカリ玄武岩中のマントルゼノリスなど、マントルから直接地表にもたらされたと考えられる超塩基性岩には、かなり普遍的にこの種の有機物が含まれている (Fig. 16)。②テクトナイトであっても

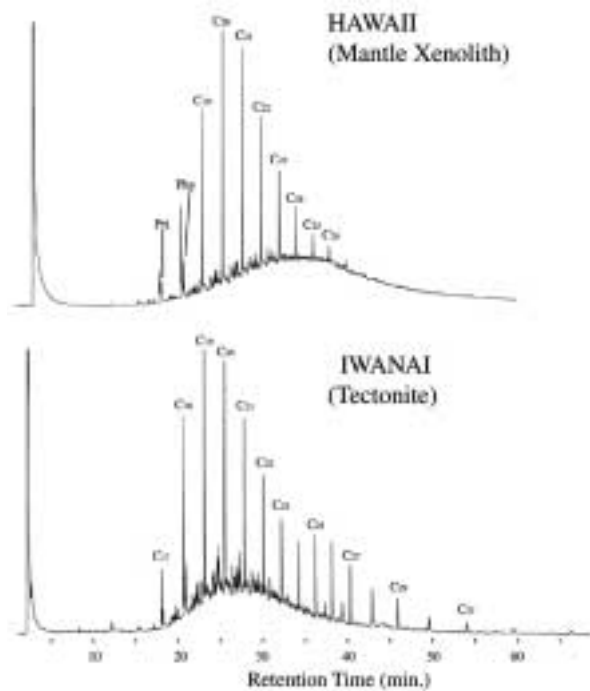


Fig. 16 Gaschromatograms of hexane fraction from mantle rocks. "Pri" and "Phy" represent pristane and phytane, respectively. Abscissa represents retention time (min).

蛇紋岩化されたものには含まれない。③新鮮な超塩基性岩であっても層状貫入岩体のカンラン岩質集積岩はそれを含まない。④地殻に貫入後、固化し、地表にもたらされたと考えられるカンラン岩、ハンレイ岩、花崗岩などには含まれない。⑤同一岩体中ではその含有量に大きな変動はない。とくにウラルの試料はその含有量が高い(全アルカンとして $1\sim 2\mu\text{g/g}$)。⑥抽出された高分子炭化水素のクロマトグラムは石油のそれと類似している。⑦抽出された炭化水素の炭素同位体比はウラルの一個を除いて、 $-26\sim -29$ パーミルとほぼ一定の値を示す。などという事が分かった(Sugisaki and Mimura, 1994)。

ここに検出された高分子炭化水素は地表からの混入によるものか否かを評価する事はこの研究の最重要課題であり、以下の事実からこの物質は岩石固有なものであると結論した。①もし高分子炭化水素が周辺からの混入であれば、その有無は岩石の成因とは無関係に、それらが地表に露出していた時間やその産出環境に支配されるであろう。また、花崗岩やハンレイ岩などマグマが堆積岩に貫入してきたものは、周りの生物起源の有機物を取り込む可能性がある。しかし、200

個以上の試料の内、高分子炭化水素が検出されたのは、テクトナイトとマントルゼノリスに限られる。この事はこれらの岩石の生成時から含まれていた事を示す。②テクトナイトとカンラン岩質集積岩とを比べると、組成鉱物の大きさや種類は殆ど同じで、外部からの有機物の浸透の可能性は同程度であろう。しかし、テクトナイトだけに高分子炭化水素が検出された。両者の違いはその成因のみである。③高分子炭化水素はマントルゼノリスに含まれているが、ゼノリスを包有するアルカリ玄武岩には含まれていない。外部から有機物が混入されたならその関係は逆にならねばならない。④もし、高分子炭化水素が地表からの混入なら新鮮で堅い岩石より、変質して脆くなったものの方が浸透しやすい。しかし、同一岩体で新鮮なテクトナイトとそれが蛇紋岩化したものを比べると、前者は有機物を含むが、後者は全く含まない。この事は本来含まれていた炭化水素が熱水を伴う蛇紋岩化作用によって分解消失したものと考えられる。⑤世界各地からの試料で、炭素同位体比はあまり変動していない。そして、その値はマントルゼノリスを段階加熱して放出された炭素物質の -25 パーミルに近く、その起源がカンラン石の新鮮な割れ目と火山ガスが反応してできたという推論(Tingle *et al.*, 1990)と対比できよう。

マントル炭化水素の起源については、いろいろな地球科学の問題と関連して、考慮すべき事であるが、当面は次の三つの可能性が考えられる。①19世紀にベルチェリウスによって隕石中に有機物の存在が確認されて以来、それは隕石固有なものか、あるいは地球上の汚染によるものかという論争が行われ、現在でも決着はついていないように見える。隕石の場合、フィタン、プリスタンが含まれているが、それらは現在の所、無機的には合成されず、バイオマーカーと見なされていることである。マントル炭化水素もこれを含む。しかし、マントル炭化水素は地表での汚染ではないという上記の推論は隕石の場合とは異なる。この場合、マントル内でフィタン、プリスタンも含めて、未知の化学反応の結果、炭化水素が非生物的に生成したという可能性があるかも知れない。②プレート運動はマントルと地殻の大規模な物質サイクルをもたらし、その結果地表の生物起源の有機物がマントル内に持ち込まれ、それが高圧下で保存されている。③地球を形成した隕石や彗星が含んでいた高分子炭化水素の一部が分解せず、マントル内に保存されてきた。

以上三つの可能性が考えられるが、現在の所、何れ

が正しいかは判断できない。しかし①に関連した炭化水素の無機合成がマントル内で合成され続けていたならば、それは地球の生命の発生過程や、地球上の有機物の生成に大きく関わったに違いない。②は高圧下における炭化水素の安定性の実験的、理論的研究もあり、否定できない可能性である。③については、マントル炭化水素はマントルに由来し、石油に類似する組成を示す。それと関連することとして、Gold (1979) が提唱した深部メタン起源の石油と何らかの関係があるかも知れない。このような物質がマントル内に残存していれば、それは始源的炭化水素と見なす事ができ、第一の可能性と同様に、地球の生命の発生過程において大きな役割を果たしたかも知れない。

5.2 有機物の無機合成に関する衝撃実験

生命の発生については、オパーリンやユーレイ・ミラーなどいろいろな説や実験があるが、アミノ酸などの有機物がなければ生物体はできない。それらは、地球を形成した彗星や隕石がもたらしたとか、雷放電や熱水環境で合成されたなどの説がある。隕石が有機物を含む事は古くから知られていたが、隕石が地球の大気や地表に激突する時に膨大な圧力がかかるので、その時に何らかの反応が起こって無機的に有機物が生成されるのではないかと考えた。早くから隕石孔の周りではコース石やステショブ石などの存在が確認されていて、それらは地表に普遍的に存在する石英の高圧相鉱物である事は実験的にも確かめられていた。炭素質コンドライトのような炭素や水を多く含むものに、このような高圧が瞬間的にでも働けば、有機反応が起こるであろうと期待した。そこで、加藤学さんが、月の隕石孔の形成を研究する目的で組み立てた衝撃実験装置を譲り受け、三村耕一さんが化学反応の実験に適するように改造、研究を行った。

秒速1 km ぐらいまでのアルミニウム製の弾を反応容器に当てると、簡単に有機反応が起こる事が分かった。H₂とCOの混合ガスから簡単にメタンやプロパンなどが合成できた (Sugisaki *et al.*, 1994)。また、最も簡単な芳香族炭化水素であるベンゼンに衝撃を与えると、多種類の多環式芳香族炭化水素が生成する事が明らかとなった。それらは隕石を初めとして、星間塵物質などに含まれており、宇宙化学的に重要な分子と見なされている。また、その反応機構についての量子有機化学的な解釈に関して大橋守君から重要な示唆を頂いた (Mimura *et al.*, 1995)。この研究は私の定年退官後は、もっぱら三村耕一さんの努力により大き

な発展を見ている。それは宇宙化学の分野に大きな貢献をもたらしたばかりでなく、新しい物質合成の技術として注目されている (Mimura *et al.*, 2003)。

前項で述べたマントル炭化水素の起源についての明確な結論は現在の所、導く事はできない。しかし、この物質は、地球上における生命の発生や地下の炭素の循環に大きな役割を果たしてきたであろう。衝撃による有機物質の合成実験は、その起源を探る一つの契機となり得るものと考えている。

おわりに

以上、私が迎ってきた研究の概略を記したが、各分野の入り口を眺め得た程度に過ぎず、将来、より深い研究によって改変されるべき点も多いと考えられる。また、これらを通じて研究を促進させる要素として以下のように考え、行動してきた。研究過程で必要な技術の発展は勿論であるが、よい試料を得る事がその成果を左右する大きな要因だと考えてきた。試料とは対象とする場所 (フィールド) も含めて、目標としている研究を成功させる為の良い材料であり得るか否かが鍵となるのではないかと。私の場合、その予想をたてるのに苦労し、失敗も多かった。しかし、幸いに私の所属した教室には、その為により利な条件があった。地質や物理などの違う分野の専門家がいる、いろいろな情報や援助を頂いた。そして、研究に用いた試料の大半は人に貰ったものでなく、現場に赴いて自分で採取したもので、深い愛着をもってそれらを取り扱う事ができたことは幸せであったと思っている。かくして、得た自己のデータを基にして議論を展開し、舶来のモデルと不整合な結果は率直に論文で述べた。

もう一つは研究に必要な道具立ては、なるべく簡素なものにしようと考えていた。あまり大きな装置を導入すると、それに引きずられて研究内容が制約される。日本海軍が超巨大戦艦、大和・武蔵を建造し、日本海海戦のような艦隊決戦を夢みしたが、戦争の実態は大変革を遂げ、両艦の出番はなく、悲惨な最後を遂げた事は我々の記憶に新しい。私がいろいろな事に手をつける事が出来たのは、予算的に貧乏な事もあり、簡単に廃棄できるもの以上に大掛かりな設備を導入できなかったためでもあると思う。

上記のように私の研究にあたっては、多くの協力者によって支えられてきた。この賞を頂くに当たり、このように地球科学の研究と教育に関して新しいシステムの教室を設立された柴田雄次先生の構想は大変優れ

たものであったと思わざるを得ない。そのためには人間関係が大切であると考えてきた。いちいち名を挙げないが、教室の他の研究室の方々は勿論、4年生、大学院の諸君は研究の意義をよく理解してくれて、研究の発展に貢献して頂いた。また、他の大学や研究機関の方々にも随分御援助、御協力を頂いた。とくに、小貫義男、鈴木堯士、勘米良亀齡、小松正幸、佐野弘好、鹿島愛彦、岩崎正夫、徳岡隆夫、磯見博、水野篤行、井上英二の諸先生方には現地の案内や、多くの情報や貴重な試料を頂いた。最後に菅原健、小穴進也の両先生には地球化学のあり方をいろいろ教えて頂いた。ここに深甚なる謝意を表するものである。

引用文献

- Adachi, M. Yamamoto, K. and Sugisaki, R. (1986) Hydrothermal chert and associated siliceous rocks from the northern Pacific: Their Geological significance as an indication of ocean ridge activity. *Sed. Geol.* **47**, 125-148.
- Audley-Charles, M. G. (1965) Some aspect of the chemistry of Cretaceous siliceous sedimentary rocks from eastern Timor. *Geochim. Cosmochim. Acta* **29**, 1175-1192.
- Calvert, S. E. and Price, N. B. (1970) Composition of manganese nodules and manganese carbonates from Loch Fyne, Scotland. *Contr. Mineral. Petrol.* **29**, 215-233.
- Coombs, D. S., Dowse, M., Grapes, R., Kawachi, Y. and Roser, B. (1985) Geochemistry and origin of piemontite-bearing and associated manganiferous schists from Arrow Junction, Western Otago, New Zealand. *Chem. Geol.* **48**, 57-78.
- Gast, P. W. (1968) Trace element fractionation and the origin of tholeiitic and alkaline magma types. *Geochim. Cosmochim. Acta* **32**, 1057-1086.
- Gold, T. (1979) Terrestrial sources of carbon and earthquake outgassing. *J. Petrol. Geol.* **1**, 3-19.
- Hatuda, Z. (1953) Radioactive method for geological explanation. *Mem. Coll. Sci. Univ. Kyoto* **Ser. B**, **21**, 221-271.
- Iwamori, H. (2000) Thermal effects of ridge subduction and its implications for the origin of granitic batholith and paired metamorphic belts. *Earth Planet. Sci. Lett.* **181**, 131-144.
- Jenkyns, H. C. and Winterer, W. L. (1982) Paleocceanography of Mesozoic ribbon radiolarites. *Earth Planet. Sci. Lett.* **60**, 351-375.
- Kameda, J., Saruwatari, K. and Tanaka, H. (2003) H₂ generation in wet grinding of granite and single-crystal powders and implications for H₂ concentration on active faults. *Geophys. Res. Lett.* **30**, 2063, doi:10.1029.
- 木村敏雄 (2002) 日本列島の地殻変動—新しい見方から。愛智出版, pp. 83-84.
- 小林儀一郎 (1940) 本邦温泉の地質学的分類並に温泉の湧出と地質構造線との関係に就いて. 地学雑誌, **52**, 430-438.
- Mimura, K., Ohashi, M. and Sugisaki, R. (1995) Hydrocarbon gases and aromatic hydrocarbons produced by impact shock from frozen benzene: Cosmochemical significance. *Earth Planet. Sci. Lett.* **133**, 265-269.
- Mimura, K., Arao, T., Sugiura, M. and Sugisaki, R. (2003) Shock-induced carbonization of phenanthrene at pressures of 7.9-32 GPa. *Carbon* **41**, 2547-2553.
- Moore, J. C. (1975) Selective subduction. *Geology* **3**, 530-532.
- Murray, R. W., Brink, M. R. B. T., Gerlach, D. C., Russ, III, G. P. and Jones, D. L. (1991) Rare earth, major, and trace elements in chert from the Franciscan Complex and Monterey Group, California: Assessing REE sources to fine-grained marine sediments. *Geochim. Cosmochim. Acta* **55**, 1875-1895.
- Okada, H. (1980) Pebbles and carbonate nodules from Deep Sea Drilling Project Leg. 56 cores, in Scientific Party. eds., *Initi. Rep. Deep Sea Drilling Project* **56/57, pt. 2**, 1089-1105.
- Satake, H., Ohashi, M. and Hayashi, Y. (1985) Discharge of H₂ from the Atotsugawa and Ushikubi faults, Japan, and its relation to earthquakes. *Pure Appl. Geophys.* **122**, 185-193.
- Shimizu, H., Kunimaru, T., Yoneda, S. and Adachi, M. (2000) Sources and depositional environments of some Permian and Triassic cherts: Significance of Rb-Sr and Sm-Nd isotopic and

- REE abundance data. *J. Geol.* **109**, 105–125.
- Sugisaki, R. (1961) Measurement of effective flow velocity of groundwater by means of dissolved gases. *Am. J. Sci.* **259**, 144–153.
- Sugisaki, R. (1972) Tectonic aspects of Andesite Line. *Nature Phys. Sci.* **240**, 109–111.
- Sugisaki, R. (1978) Changing He/Ar and N₂/Ar ratios of fault air may be earthquake precursors. *Nature* **275**, 209–211.
- Sugisaki, R. (1984) Relation between chemical composition and sedimentation rate of Pacific ocean-floor sediments deposited since the middle Cretaceous: Basic evidence for chemical constraints on depositional environments of ancient sediments. *J. Geol.* **92**, 235–259.
- Sugisaki, R. (1987) Behavior and origin of helium, argon, and nitrogen from active faults. *J. Geophys. Res.* **92**, 12523–12530.
- Sugisaki, R. and Tanaka, T. (1971) Magma types of volcanic rocks and crustal history in the Japanese pre-Cenozoic geosynclines. *Tectonophysics* **12**, 393–413.
- Sugisaki, R. and Sugiura, T. (1985) Geochemical indicator of tectonic stress resulting in an earthquake in Central Japan, 1984. *Science* **229**, 1261–1262.
- Sugisaki, R. and Sugiura, T. (1986) Gas anomalies at three mineral springs and a fumarole before an inland earthquake, Central Japan. *J. Geophys. Res.* **91**, 12296–12304.
- Sugisaki, R. and Mimura, K. (1994) Mantle hydrocarbons: Abiotic or biotic? *Geochim. Cosmochim. Acta* **58**, 2527–2542.
- Sugisaki, R. and Nagamine, K. (1995) Evolution of light hydrocarbon gases in subsurface processes: Constraints from chemical equilibrium. *Earth Planet. Sci. Lett.* **133**, 151–161.
- 杉崎隆一, 柴田賢 (2003) 岐阜—宮断層の再評価—平野部における断層の認定についての問題点—。地震, **56**, 281–296.
- Sugisaki, R., Tanaka, T. and Hattori, H. (1970) Rubidium and potassium contents of geosynclinal basalts in the Japanese Islands. *Nature* **227**, 1338–1339.
- Sugisaki, R., Mizutani, S., Adachi, M. Hattori, H. and Tanaka, T. (1971) Rifting in the Japanese late Palaeozoic geosyncline. *Nature Phys. Sci.* **233**, 30–31.
- Sugisaki, R., Anno, H., Adachi, M. and Ui, H. (1980) Geochemical features of gases and rocks along active faults. *Geochem. J.* **14**, 101–112.
- Sugisaki, R., Yamamoto, K. and Adachi, M. (1982) Triassic bedded cherts in central Japan are not pelagic. *Nature* **298**, 644–647.
- Sugisaki, R., Ido, M., Takeda, H., Isobe, Y., Hayashi, Y., Nakamura, N., Satake, H. and Mizutani, Y. (1983) Origin of hydrogen and carbon dioxide in fault gases and its relation to fault activity. *J. Geol.* **91**, 239–258.
- Sugisaki, R., Ohashi, M., Sugitani, K. and Suzuki, K. (1987) Compositional variation in manganese micronodules: A possible indicator of sedimentary environments. *J. Geol.* **95**, 433–454.
- Sugisaki, R., Sugitani, K. and Adachi, M. (1991) Manganese carbonate bands as an indicator of hemipelagic sedimentary environments. *J. Geol.* **99**, 23–40.
- Sugisaki, R., Mimura, K. and Kato, M. (1994) Shock synthesis of light hydrocarbon gases from H₂ and CO: Its role in astrophysical processes. *Geophys. Res. Lett.* **21**, 1031–1034.
- Sugisaki, R., Ito, T., Nagamine, K. and Kawabe, I. (1996) Gas-geochemical changes at mineral springs associated with the 1995 southern Hyogo earthquake (M=7.2), Japan. *Earth Planet. Sci. Lett.* **139**, 239–249.
- Sugitani, K., Sano, H., Adachi, M. and Sugisaki, R. (1991) Permian hydrothermal deposits in the Mino Terrane, central Japan: implication for hydrothermal plumes in an ancient ocean basin. *Sed. Geol.* **71**, 59–71.
- Sugitani, K., Mimura, K., Suzuki, K., Nagamine, K. and Sugisaki, R. (2003) Stratigraphy and sedimentary petrology of an Archean volcanic-sedimentary succession at Mt. Goldsworthy in the Pilbara Block, Western Australia: implications of evaporite (nahcolite) and barite deposition. *Precambrian Res.* **120**, 55–79.

- Sugitani, K., Grey, K., Allwood, A. C., Nagaoka, T., Mimura, K., Minami, M., Marshall, C. P., Van Kranendonk, M. J. and Malcolm, M. R. (in press) Diverse microstructures from Archaean chert from the Mount Goldsworthy-Mount Grant area, Pilbara Craton, Western Australia: microfossils, dubiofossils, or pseudofossils? *Pre-cambrian Res.*
- Tanaka, T., Masuda, A. and Sugisaki, R. (1971) Rare earths in Palaeozoic geosynclinal basalts in Japan. *Nature Phys. Sci.* **232**, 105-107.
- Tanaka, T. and Sugisaki, R. (1973) Successive eruption of alkaline and tholeiite magmas in a Japanese Palaeozoic geosynclinal basalt body with special reference to rare earth element features. *J. Petrol.* **14**, 489-507.
- Tingle, T. N., Hochella M. F., Becker, C. H. and Malhotra, R. (1990) Organic compounds on crack surfaces in olivine from San Carlos, Arizona, and Hualalai volcano, Hawaii. *Geochim. Cosmochim. Acta* **54**, 477-485.
- von Rad, U. and Botz, R. (1987) Authigenic Fe-Mn carbonates in Cretaceous and Tertiary sediments of the continental rise off eastern North America. Deep Sea Drilling Project Site 603, in van Hintem, J. E., Eise, S. W., Jr., *et al.*, eds., *Init. Rep. Deep Sea Drilling Project* **94**, pt. 2, 1061-1077.
- Wakita, H., Nakamura, Y., Kita, I., Fujii, N. and Notsu, K. (1980) Hydrogen release; New indicator of fault activity. *Science* **210**, 188-190.
- Yamamoto, K. (1987) Geochemical characteristic and depositional environments of chert and associated rocks in the Franciscan and Shimanto Terranes. *Sed. Geol.* **52**, 65-108.
- Yamamoto, K., Sugisaki, R. and Arai, F. (1986) Chemical aspects of alteration of acidic tuffs and their application to siliceous deposits. *Chem. Geol.* **55**, 61-76.
- Young, G. M. and Nesbitt, H. W. (1998) Processes controlling the distribution of Ti and Al in weathering profiles, siliciclastic sediments and sedimentary rocks. *J. Sed. Res.* **68**, 448-455.