

## 第222回地質調査所研究発表会講演要旨\*

### 特集 マグマ発散物と鉱床の生成

#### マグマ中の揮発性成分

斎藤元治

マグマ中の揮発性成分 ( $H_2O$ ,  $CO_2$ , S, Cl etc.) は、マグマの減圧やマグマの冷却に伴う固化 によってその濃度が飽和溶解度を越えた結果、マグマから熱水系に放出される。従って、マグマ中の揮発性成分の濃度と溶解度についての情報が得られれば、マグマから放出される揮発性成分の組成、量とそれらの時間変化を推定できる。

マグマ中の揮発性成分の濃度は、火山岩斑晶中のメルトインクルージョンの分析によって得られる。メルトインクルージョンの大きさは数百 $\mu m$  以下であるので、その分析には EPMA、顕微赤外分光光度法、SIMS といった微小領域分析法が用いられている。S や Cl については玄武岩質から流紋岩質までのマグマについてデータが蓄積されつつある。一方、 $H_2O$  や  $CO_2$  については分析値が少なく今後の課題である。マグマの揮発性成分の濃度は同一火山においてもマグマの化学組成や噴出時期によって変動がみられる。このようなマグマ中の揮発性成分の分化過程を知ることはマグマから放出される揮発性成分の組成、量および時間変化を推定するのに必要である。

マグマへの揮発性物質の溶解度はマグマの化学組成・温度・圧力・酸素フガシィに依存する。従って、溶解度の測定は温度・圧力・酸素フガシィがコントロールされた高温高压実験により求められている。即ち、出発物質を金および白金製のカプセルに封入し、高温高压装置により反応させ、その反応生成物を分析することで溶解を決定する。 $H_2O$ 、 $CO_2$  および Cl の溶解度 (分配係数) の組成・温度・圧力依存性についてはデータが蓄積されつつある。また、各成分のマグマ中の存在形態を調べることで溶解メカニズムについての考察も行われている。一方、気相存在下での S の溶解度は、火山ガス放出量の推定や硫化物鉱床の成因を考える上で重要であるにも関わらず、そのデータが未だ得られておらず、今後換

討すべきである。

(鉱物資源部)

Keywords: Melt inclusion, Magma, Volatile, Solubility, Degassing

#### マグマ発散物の化学組成を

#### コントロールする要因:

#### 1 塩化物の放出

篠原宏志

塩素化合物は熱水流体の主成分であり、また金属元素は主に塩化物として熱水流体に溶解することが知られている。そのため、マグマの金属元素供給能を議論するためには、まず主成分であり担体である塩化物濃度および主成分組成 ( $NaCl$ ,  $KCl$ ,  $HCl$  etc) を支配する要因について調べる必要がある。マグマ-熱水流体間の塩素化合物 ( $NaCl$ ,  $KCl$  等) の分配は濃度の比として分配係数  $D_{Cl}^{melt/aq}$  ( $D_{Cl}^{melt/aq} = C_{Cl}^{melt} / C_{Cl}^{aq}$ ) で記述される。塩素化合物の分配係数は大きな負の圧力依存性をもつことを実験により求めた。そのためにマグマから放出される熱水流体の組成は、マグマ中の水や塩化物濃度のみならず圧力にも強く依存することが推定される。

マグマの結晶化に伴う熱水流体の順次脱ガスのモデル計算によると、高压下 ( $> 1.5kb$ ) では初期に放出される熱水の塩素化合物濃度がより大きい、低圧下では ( $< 1.5kb$ ) 末期に放出される熱水に塩素化合物が濃縮される。それに対し、熱水流体は高温低圧下 (例えば  $800^\circ C$ ,  $1.4kb$  以下) では不混和 (気液分離) を生ずることが知られている。そのため、マグマから放出される熱水流体の組成もこの共存する気液相の組成に固定され、熱水流体の放出が始まると結晶化の初期から末期まで一定の組成の流体が放出されることが推定される。

熱水流体中の  $HCl$  濃度は熱水の酸性度を支配している要因であり、変質帯の分布などを理解するうえで重要である。マグマまたは岩石と共存する熱水流体中の  $HCl / NaCl$  比は圧力と負の相関をもつことを実験により求めた。また、実験結果の熱力学的解釈より、一般的に水

\* 平成5年3月10日本所において開催

一岩石相互作用の平衡定数の圧力依存性は低圧下ほど大きいという推論を行なった。これらの結果は圧力の差により熱水の組成に顕著な相違が生じえることを示唆する。  
(鉱物資源部)

Keywords: Magma, Hydrothermal solution, Chloride, Partition, Acidity

ことが判明した。  
(鉱物資源部)

Keywords: Magma, Hydrothermal solution, Metal, REE, Partition

### “マグマ水”の安定同位体組成の再検討

松久幸敬

#### マグマ発散物の化学組成を コントロールする要因：II 金属元素の放出

浦辺徹郎

花崗岩マグマと平衡にある水溶液の化学組成を知ることは、熱水性鉱床の成因を知るばかりでなく、珪長質マグマの分化作用を知る上でも重要である。しかしその化学組成は、温度、圧力、金属元素および陰イオンの水溶液/メルト間の分配係数、メルト中の水含有量、晶出する鉱物相など多くの要因により影響を受けるものと予想される。

中でも塩化物イオンの水溶液/メルト間の分配(篠原, 上記)が、金属元素の分配に最も重要な役割を果たしている。アルカリ金属などの1価の金属の水溶液/メルト間の分配は水溶液中の塩化物イオンの濃度と比例関係にある。鉛、亜鉛、アルカリ土類元素などの2価の金属の分配係数は水溶液中の塩化物イオンの濃度の2乗に比例する。これまでに知られているこの関係をもとに推定すると、希土類元素のような3価の金属ではその3乗に比例することが予想された。しかし実験の結果、ユーロピウムを除く希土類元素は全て2から2.5乗に比例することが分かった。ユーロピウムはそれの1.5乗に比例するが、これはユーロピウムが還元雰囲気中で2価になっていたからだと思われる。

次に圧力が重要なファクターである。圧力が低いほど金属は水溶液相により分配され、高いほどメルト中に留まる。圧力が実際の系でどのような影響を及ぼすかは、塩化物イオンの分配の圧力依存性も考慮に入れなければならない。シミュレーションが必要である。低圧の水溶液系で決定的に重要な温度は金属の分配に大きな影響を及ぼさない。

固結する花崗岩質マグマから発散される流体が、冷却、岩石との反応、混合などの過程を経て熱水性金属鉱床をもたらすという古典的な仮説は、これらの花崗岩・水・金属塩化物系の高圧高温実験の結果充分な妥当性を持つ

水素および酸素同位体比(海水の値に対する試料のD/H比,  $^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$ 比の千分率偏差値 $\delta D$ ,  $\delta^{18}\text{O}$ で表わす)は、熱水の起源を示すよい指標として従来から使われてきた。これらの同位体比は、熱水の3つの主要な起源と考えられるマグマ水、天水、海水によって著しく異なっている。これらの水が、混合、沸騰、岩石との反応によって2次的に変化する過程も、 $\delta D - \delta^{18}\text{O}$ ダイアグラムの上で識別することが出来る。熱水の3つの主要な起源のうち、天水と海水は直接手にして測定することが出来るが、マグマ水の組成については、他の2つにくらべてあいまいさがある。Taylor (1974) は、火成岩やその構成鉱物の同位体比にもとづいて、“初生マグマ水”(PMW)の水素および酸素同位体比を $\delta D = -40 \sim -80\%$ ,  $\delta^{18}\text{O} = +6 \sim +9\%$ と見積もり、これが長い間マグマ水の同位体組成として広く受け入れられてきた。しかしながら、太平洋地域のサブダクション帯の高温火山ガス中の水の同位体組成はこれとは異なっており、 $\delta D$ 値がPMWより20~40%高い。この差は、サブダクション帯のマグマ中に溶けている水の同位体組成がもともと異なっているためか、マグマ溜りでマグマから流体相が分離する際の同位体分別を反映していると考えられる。サブダクション帯のマグマが海嶺のマグマに比べてややDに富んでいることを示唆するデータがある。これは、サブダクション帯のマグマの起源物質に、海洋スラブからDに富む流体が供給されるためにも考えられる。しかしながら、海洋スラブを構成する岩石の $\delta D$ 値の幅は広く、さらに、火山ガスは、海洋スラブの脱水、マントル・ウェッジの水和、含水マグマの形成、マグマからの流体相の分離といった複雑な過程の最終生成物であり、それらの過程に伴う同位体分別を見積もることなしには、マグマの起源物質と火山ガスを直接結びつけることは出来ない。一方、最近の実験データ(Dobson他, 1989)によれば、珪長質の珪酸塩メルトと気相の水の間には20~40%の水素同位体分別がある。そこで、サブダクション帯の火山ガスの $\delta D$ 値が高いことは、マグマ溜りでの同位体分別の反映である可能性がある。マグマ溜りの周囲に

形成される熱水系の水素同位体組成を論ずる場合も、マグマの脱水過程での同位体分別を考慮に入れる必要がある。(地殻化学部)

Keywords : Magmatic water, Hydrogen isotopes, Oxygen isotopes

### マグマ発散物が金属鉱床を作る条件

Jeffrey W. HEDENQUIST

Magmas exsolve an aqueous fluid as they ascend, and this fluid may be involved in forming some hydrothermal ore deposits. This fluid is trapped as fluid inclusions associated with porphyry Cu deposits, commonly as immiscible phases in coexisting inclusions: one type of inclusion contains a dense brine (40-60 wt. % NaCl with up to 1000s of ppm Cu), and the other contains a low-density vapor that is gas-rich.

Volcanoes such as Satsuma Iwojima discharge high-temperature ( $\leq 900^\circ\text{C}$ ) vapors, which originate from shallow degassing magmas. We collected samples from Satsuma Iwojima fumaroles and acid ( $\text{pH} \geq 1.4$ ) hot springs and analyzed them for their chemical and isotopic composition.  $\text{SO}_2$  flux from the fumaroles was determined by correlation spectrometry to be  $\sim 470\text{ton/day}$ . The isotopic composition of the high temperature vapors are characteristic of island arc magmatic waters ( $\delta\text{D} = -25\text{permil}$ ,  $\delta^{18}\text{O} = +7-8\text{permil}$ ), while the acid springs are formed by condensation of the gas-rich magmatic vapor into local groundwater in the average proportion of about 1 : 6. The annual fluxes of water, S and Cl from the high-temperature vapor are about  $5 \times 10^6$  tons,  $9 \times 10^4$  tons and  $6 \times 10^4$  tons. Based on a previous estimate of  $20 \times 10^6$  tons / year flow for the springs (compared with the annual precipitation of  $25-40 \times 10^6$  tons), the annual hot spring flux of S and Cl is about  $5 \times 10^4$  tons and  $4 \times 10^4$  tons. Assuming most of this Cl and S comes from magmatic gases, about 1/3 of the total high-temperature vapor is absorbed by groundwater, consistent with the average magmatic water component to the springs. The annual flux of metals such as Pb, Zn and Mo from the fumaroles is about 1

-10 tons, Cu is  $< 1$  ton, and Au is  $< 1\text{kg}$ . Fluxes of Pb, Mo and Cu from the springs are similar, While Zn and Au fluxes are 10 X and 100 X greater in the springs, indicating most of the Zn and Au in the acid springs are leached from the host rocks. These fluxes indicate that neither the low-density magmatic vapors or leaching of wall rock transport a sufficient amount of metals to be potential ore forming fluids over geologically reasonable time periods. In contrast to these passively degassing fumaroles, the vapor associated with eruption at White Island, New Zealand, has an order of magnitude higher NaCl content, and 1-2 orders of magnitude higher metal flux, despite a similar flux of S compared with Satsuma Iwojima. The cause for this difference is most likely due to condensation of a metal-rich brine as the Satsuma Iwojima vapor depressurizes during ascent, whereas high-pressure vapor erupts at White Island.

The Nansatsu high sulfidation Au deposits are hosted by strongly leached volcanic rocks with haloes of minerals indicating an acid magmatic water was progressively neutralized outwards by wallrock reaction and dilution by meteoric water, i.e., similar to what is now occurring at Satsuma Iwojima. There is some evidence for a brine being present during part of the life of these hydrothermal system (e.g., at Nansatsu, Lepanto in the Philippines and Rodalquilar in Spain), similar to what is seen in the deeper porphyry Cu environment.

Based on our results at Satsuma Iwojima, the high-sulfidation style of alteration and leaching is related to the meteoric water absorption of low-pressure magmatic vapor; however, mineralization can not occur unless a higher salinity and metal-rich fluid also ascends. Therefore, the mineralizing fluid for high-sulfidation ore deposits may be related to a high-pressure vapor, or even to the associated immiscible brine.

The mixing of magmatic and meteoric waters is common, both at volcanoes with low temperature discharges (e.g., Kirishima, Esan, Kujyu) and in geothermal systems (OKuaizu), many with deep acid fluids (Kirishima, Sumikawa), indicating the importance of not only magmatic volatiles but also

potentially metals to these hydrothermal systems.

(Mineral Resources Department)

Keywords: Magma, Megal flux, Hydrothermal system, Immiscibility, Mineralization

### 奥会津地熱系における マグマ発散物の寄与と鉱化作用

関 陽児

奥会津地熱系は、急傾斜の断層破砕帯にともなう開放裂か群を貯留層とする熱水卓越型の地熱系であり、坑井内の実測最高温度は 340℃に達する。

計算により求められた原熱水中の全溶存成分濃度 (TDS) は約 2 wt %, CO<sub>2</sub>濃度は約 1 wt %, H<sub>2</sub>S 濃度は約 200mg/kg であり、国内の他の地熱系に比べ高塩濃度、高ガス濃度の特徴をもつ。溶存成分の主体は NaCl であるが、山間部に位置する当地熱系に現在の海水が関与する可能性はなく、また B/Cl 比および Br/Cl 比からも、海水の寄与は認められない。

一方、N<sub>2</sub>, Ar, He ガスの組成および地熱水の酸素同位体組成は、高温火山ガスの組成に近く、この地熱系に高温火山ガスで代表されるマグマ性流体が寄与していることを示唆している。

地熱系の地化学的特徴、地下の温度構造、地質セッティングなどを総合すると、奥会津地熱系は、深部に位置するマグマから熱のみならずマグマ性の塩水やガスなどの供給を受けている可能性が高い。

奥会津地熱系では、深部の貯留層裂かに沿って閃亜鉛鉱、方鉛鉱などを含む細脈があること、一部の坑井の内壁に閃亜鉛鉱、ウルツ鉱などの金属硫化物スケールが付着することが知られていた(今井ほか, 1988)。さらに、新田ほか (1991) は、坑井の地上設備の配管内部に四面銅鉱を主とし、閃亜鉛鉱と方鉛鉱を伴い、最高で 116 ppm の金および 3.4wt % の銀を含む金属硫化物スケールの沈澱を認め、奥会津地熱系がベースメタルのみならず、金銀の鉱化ポテンシャルをもっていることを示した。

マグマ発散物の寄与のこれらの金属鉱化作用との関連性の有無に、大いに興味もたれる。(鉱物資源部)

Keywords: Magma, H. drothermal fluid, Metal mineralization

### 火口湖は金鉱床の揺りかごになるか?

青木正博

火山の噴火口は、固結過程にある浅所マグマから発散される揮発性成分と大気圏との接点である。そして、火口湖はマグマ発散物—岩石—天水系の巨大な化学反応容器に例えられる。主活動期にある成層火山では、マグマから供給される SO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>S, HCl, CO<sub>2</sub>などの大量の酸性物質のために、山頂火口の湖水は全体として pH0-2の強酸性を呈することもまれでない(例えば草津白根山, ニュージラントルアペフ火山, カムチャッカ半島マリセミアチック火山の湯釜)。そのような環境では、大量の硫黄とpyrite, alunite, silica mineralが沈澱することがあるが、金や希少重金属硫化物の沈澱は期待できない。歴史的にも火口は硫黄鉱床の開発対象ではあったが、熱水性金鉱床の探査対象としては重要視されなかったことにも裏付けられるように、実際のところ陸上火山の火口が金鉱化作用の場になる確率はかならずしも高くないらしい。

火口湖の下部に連なる火口湖熱水系の化学組成は、マグマ揮発物の供給量と壁岩の化学的緩衝能力のバランスによって決まる。マグマ揮発物の組成や量はマグマの固結度と温度を反映して時間と共に変化する。また、壁岩の緩衝能力も変質鉱物の生成に伴って段階的にかつ不可逆的に変化する。このため熱水系は時間の経過につれて化学的に進化し、最終的には中性塩化物—還元硫黄種卓越型熱水の循環する場となる。pH がほぼ中性でかつ硫化水素濃度の高い熱水は金の運搬効率が非常に高いので、この成熟した熱水が硫化水素濃度を保ったまま、しかも天水による過度の希釈をうけることなく地表に達することが火口湖底に金鉱床が生成されるための必要条件であろう。

熱水の水平移動が顕著には起こらない地質構造の大局のなかで垂直方向の熱水流路が卓越する場所では、熱水の沸騰による気液の空間的分離は完璧には起こらず、CO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>S に富んだ蒸気相と共に深部起源の中性熱水が地表に達しうる。カルデラ湖内に生成した比高の小さい中央火口丘の火道はこの構造地質学的条件を満たす。化学的に進化した探部熱水系を従えたカルデラ内火口湖では、天水を溜めた火口湖の湖底から中性塩化物型熱水が供給される一方で、湖の表面では硫化水素が酸化して硫酸が生産される(例えば登別大湯沼, 恐山宇曾利湖)。湖水中ではこれが混合して連続的に酸—塩基, および酸化—還元滴定が起こり、熱水によって運ばれた重金属の

硫化物錯体の分解が進んで Au や As, Hg, Sb の硫化鉱物が生成されることがある。

火口湖底に生成した高品位金鉱の典型例は、恐山にすることができる。恐山では、カルテラ湖内にできた石英安山岩円錐火山の火口がその舞台となった。深部熱水の湖底への供給は、熱水爆裂に伴って間欠的におこり、爆裂口内を Au, As, Sb, Zn, Pb, Tl, Te, Se などに富む沈澱物が充填した（恐山型金鉱床）。沈澱物組成は高温火山発散物組成との類似性が高く、マグマ発散物の直接的影響が示唆される。

従来、火口湖で恐山型金鉱が発見された例は極めて少ない。それは、火口湖から成熟火口湖熱水系に進化する確率が小さいためだけでなく、火口湖底から比較的浅い深度に生成されるため短時間のあいだに侵食されやすいためであろう。

(鉱物資源部)

Keywords: Magma, Hydrothermal system, Crater lake, Gold, Mixing

## 熱水性鉱床生成におけるマグマの役割

森下祐一

熱水性鉱床生成におけるマグマの役割には、熱水系を駆動する熱源としての役割、発散性物質や金属元素を含んだ熱水を物質フラックスとして放出する役割等が考えられる。ここでは、3タイプの熱水性鉱床（深熱水性、スカルン型、浅熱水性）の生成におけるマグマの役割について考察する。従来の知見によると、深熱水性鉱床とスカルン型鉱床はマグマ水の卓越する熱水から高温で生成し、浅熱水性鉱床は天水起源の熱水から比較的低温で生成すると考えられている。

鹿児島県の串木野鉱床は、浅熱水性含金銀石英一方解石—アデュラリア脈である。鉱脈中の石英—一方解石平衡組合せに対する熱水の酸素同位体比（-7%）はこの地方の現在の地下水のそれと一致し、熱水の天水起源を示唆する。

岩手県の釜石鉱山は花崗岩類と密接な関係を持ったスカルン中に胚胎する銅・鉄鉱である。共存する磁鉄鉱、石英及び一方解石の酸素同位体比から計算した同位体平衡温度は460-480°Cで、熱水の酸素同位体比が9-10%と計算された。この値は磁鉄鉱系花崗岩類と平衡にあるマグマ水の値と一致し、熱水中にマグマ水が卓越していたと考えられる。

京都府の大谷鉱床は深熱水性含金タングステン石英脈鉱

床であり、ストック状に貫入した黒雲母花崗閃緑岩中に鉱脈が胚胎している。花崗閃緑岩の K-Ar 年代は93Ma、石英脈中の白雲母の年代は91MA であり、この花崗閃緑岩の貫入と鉱化作用は密接な関係にある。花崗閃緑岩の酸素同位体平衡温度は、石英—黒雲母を用いて600°Cと計算された。大谷鉱床における熱水の酸素同位体比は12% (530°C) から3% (190°C) まで広い範囲の値をとる。このうち、鉱化初期の熱水の酸素同位体比（12%）はイルメナイト系の大谷花崗閃緑岩（11.4%）と600°Cで平衡にあるマグマ水の値と一致しているが、母岩への熱伝導、裂力の発達により引き起こされた熱水の断熱膨張及び天水起源の地下水の流入により、熱水の温度と酸素同位体比が低下したと考えられる。

ポーフィリー・銅—鉄鉱床では、同一熱水系内でマグマ水の卓越する核の部分と天水の卓越する部分が囲っている。このように、マグマ水が直接関与する熱水系であっても、場所（ポーフィリー・銅—鉄鉱床）や鉱化ステージ（大谷鉱床）によっては天水起源の熱水が卓越するものと考えられる。串木野鉱床の熱水の酸素同位体比は天水起源を示すが、これは単にマグマ—熱水系の一部を見ているに過ぎない可能性がある。串木野鉱床の裂カ系がマグマの上昇により生じたとの仮説も検証されており、浅熱水性鉱床生成におけるマグマの役割も過小評価されるべきではないと考える。

(鉱物資源部)

Keywords: hypothermal deposit, skarn-type deposit, epithermal deposit, magma

## 浅熱水性金鉱脈からのマグマ発散物の検出

松久幸敬・青木正博

従来、浅熱水性金鉱脈は、天水起源の地下水がマグマによって熱せられて循環することによって形成されると考えられてきた。本研究では、菱刈金鉱床の含金石英脈を構成する細粒の石英と水長石の間の酸素同位体分別を測定し、脈の形成過程での熱水の同位体組成や温度の変化を追跡することによって、この問題を再検討した。その結果、酸素同位体平衡温度も熱水の  $\delta^{18}\text{O}$  値も、ともに脈の形成が進むにつれて低下していくことを見出された。金の鉱化作用の主要な時期に対応する初期の熱水は、温度250°C、 $\delta^{18}\text{O}$  値-0.1%であるのに対して、後期の熱水は175°C、-3.6%である。また、現在、脈の割れ目を満たしている熱水は、65°C、-6.8%である。

$^{18}\text{O}$  に富む初期の熱水は、地下水と混合したマグマ起

源の熱水であるか、あるいは、岩石との反応で $^{18}\text{O}$ -シフトを起こした地下水起源の水と考えられる。いずれにせよ、鉱化作用に関与した熱水が、従来考えられていたように単に地下水が燃せられたものではなく、 $^{18}\text{O}$ に富んだ深部起源の水であることが明かになった。熱水系に対する浅層地下水の寄与は、金、銀品位の著しく低下する

後期に向かって増大する。その結果、石英脈の大部分の沈澱や、母岩の変質に関与した熱水は天水起源の水に富んでいることになる。  
(地殻化学部)

Keywords: Epithermal gold mineralization, Ore fluid, Oxygen isotopes, Magmatic water, Meteoric water