

令和元年6月27日現在

機関番号：24402

研究種目：挑戦的研究(萌芽)

研究期間：2017～2018

課題番号：17K18810

研究課題名(和文) フィリピン海プレート収束域の水銀の循環過程とテクトニクスとの関係

研究課題名(英文) Relationship of tectonics to the mercury cycle in the convergent margin of Philippine Sea Plate

研究代表者

中屋 晴恵(益田晴恵)(Nakaya(Masuda), Harue)

大阪市立大学・大学院理学研究科・教授

研究者番号：70183944

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,900,000円

研究成果の概要(和文)：本研究はフィリピン海プレート収束域を対象として、有害元素である水銀の循環過程とプレートテクトニクスとの関連を明らかにすることを目的として行った。結果は以下の通りであった。

1) 水銀はマグマ性流体を含む深部流体を起源とする。火山のない地域では水銀は深部流体から気液分離した後、気体として上昇する。2) 地下水の水銀汚染はブルーム状に出現する。出現地点は大阪平野とその周辺部では複数の活断層が交差するか、密集する地点である。地殻を切る活断層はマントルから上昇する気体の経路となっている。3) 水銀は沈み込むスラブからの脱水に由来するかもしれないが、ウェッジマントルから流体に付加されている可能性は高い。

研究成果の学術的意義や社会的意義

水銀は毒性の高い元素であり、環境中の濃度が厳しく規制されている。水銀汚染の多くは人為起源であるが、我が国で天然由来の水銀汚染が10mよりも浅い地下水で時折報告されてきた。しかし、その根本的原因はわかっていなかった。水銀はプレートテクトニクスと関連してマグマ性流体に伴って地殻を通じて地表へ移動する。しかし、本研究は水銀がマグマ性流体と同じ起源を持ちながらも火成作用を伴わないマントルからのブルームに関連しても上昇することを指摘した初めての研究成果となった。水銀は活断層を上昇経路としており、水銀の分布や濃度との関係から、活断層の地下構造推定や活動度評価などへ発展できる可能性もある。

研究成果の概要(英文)：Mercury cycling in geosphere was studied in relation to plate tectonics based on the subduction of Philippine Sea Plate, and the followings were obtained as results.

1) Mercury was derived from deep fluids related to magmatic activity and/or mantle convection. The mercury appearing at non-volcanic area would be derived from volatile separated from the deep fluids. 2) Mercury contaminated shallow groundwaters would occur in association with hydrothermal plumes. In Osaka Plain and surrounding areas, such contaminated groundwaters appear at and surrounding the conjunctions and concentrated areas of active faults, which play upwelling paths of mantle-derived fluids. 3) The mercury would be derived from dehydrated slab fluids, although the wedge mantle also is a source of this element. Thus, dehydration inside the mantle, such as dehydration from serpentinized mantle must be considered to understand the mercury cycling.

研究分野：水圏環境地球化学

キーワード：水銀汚染地下水 プレートテクトニクス 活断層 水銀同位体比 ウェッジマントル 深部流体

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

水銀は常温・常圧で液体であり、自然界で気体としてもふるまう唯一の金属である。水銀はまた、固体地球内部では親鉄元素・親銅元素としてふるまうことから、地圏では火成作用とそれに伴う熱水活動に関連して移動する傾向が強い。その結果、水銀はプレートテクトニクスと強い関係を持って出現する。一方で、現在の西南日本において、火成作用が見られない地域でしばしば水銀を含む浅層地下水が報告されている。例えば、交野断層では断層に沿って高濃度の水銀ガスが検出された(大阪府, 2010a)。したがって、活断層を経路として水銀が気体として地下深部から上昇していると推定された。

以上のことから、水銀はプレート収束域において揮発性成分として振るまい、火成作用の有無によらず上昇することがあると示唆された。水銀は親鉄元素(金属として振るまう)ないしは親銅元素(イオウと調和的に振るまう)であり、固体地球では地殻よりもマントルに多い成分である。同時に、大気・水圏を含む地表付近では生物親和性が高いため、生物によって堆積物中に濃縮することも考えられる。さらに、水銀は地下深部では流体として振るまうことから、沈み込む海洋プレートからの脱水に伴って水銀がウェッジマントルを通じて地殻へと移動するかもしれない。水銀が沈み込む海洋プレートやウェッジマントルとどのような関係を持って地殻表層に到達するのかを明らかにしたいと考えた。これが研究を計画するに至った背景である。

### 2. 研究の目的

- 1) 上述した研究背景をもとに、プレート収束域での水銀の挙動に関して1) 水銀は地下深部の脱水現象に伴って放出されている、2) 活断層は脱水した流体の上昇経路となっているという2つの作業仮説を提案し、これを検証する。
- 2) 活断層や火成作用を通じて地表にもたらされる水銀の起源を明らかにする。水銀や脱水する水の起源がどこにあるのかを究明することは、プレート収束域における物質循環過程を明らかにする上で重要な課題である。
- 3) プレート収束域での水銀の循環過程モデルを提案する。

### 3. 研究の方法

#### 3-1 調査地域

本研究は野外で採取した試料の分析を主体として行うこととした。調査対象としたのは図1に示す4地域である。プレート収束域での水銀の動態を明らかにするために、次のような場所を研究対象とした。1) 沈み込むプレート(南海トラフ堆積物), 2) 活断層と関連する水銀汚染地下水(大阪府と沖縄県の地下水), 3) 火山地帯の熱水と噴気(鹿児島県と宮崎県の火山地帯)。

#### 3-2 分析

水試料中の水銀濃度分析は国立環境研究所に設置されたHPLC-ICP-MSを用いて行った。

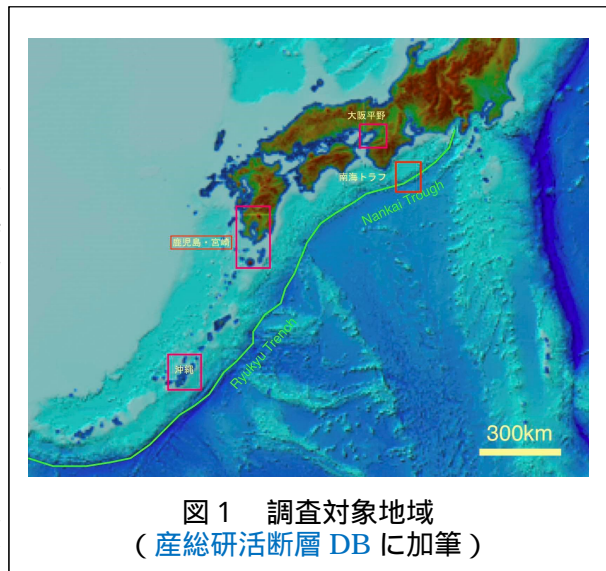
堆積物中の水銀濃度は大阪市立大学に設置された装置を用いて還元気化原子吸光光度法で定量した。凍結試料を分取し、秤量した後に反応容器に入れ、硝酸と硫酸を加えて加熱する。その後、還元気化装置に接続して、ホウ素酸ナトリウムを加えて水銀蒸気を発生させる。発生した蒸気を原子吸光光度計に導入して定量する。また、水銀同位体比分析のために、定量分析を行なったのちの水銀蒸気は10mL ガラスバイアルに入れた過マンガン酸カリウム溶液に捕集した。水試料についても還元帰化後に過マンガン酸カリウムに水銀を捕集した。捕集した水銀は国立環境研究所に設置されたICP-MS-MSを用いて同位体比分析を行った。

### 4. 研究成果

#### 4-1 地下水と水銀

大阪府の調査で水銀汚染井戸が報告されている地点と本研究で水銀汚染井戸を確認した地点を活断層の分布とともに示した(図2)。大阪府で行った水質汚濁防止法に基づく概況調査・周辺地区調査に加えて、災害時協力井戸に登録された1400を超える井戸の水質調査によって2010年までに27地点で水銀が検出されていた。

水銀の分布地点には際立った特徴がある。すなわち、断層が高密度に分布する地域である。北河内地区は生駒断層系の交野断層とその周辺に、泉南地区は上町断層帯と内畑断層帯の交差地域周辺に広く分布していた。これらの2地域の水銀汚染井戸は全て大阪層群堆積物中の掘抜き井戸である。京都府城陽市と奈良県生駒市でも水銀汚染地下水の出現が報告されていた。これらの出現地点も北河内地区に隣接する活断層近くにある。北河内地域・泉南地域で総水銀濃度は最大で600 ppt (0.0006 mg/L) を超えるものがあったが、多くは200 ppt 以下で、環境基準値を超え







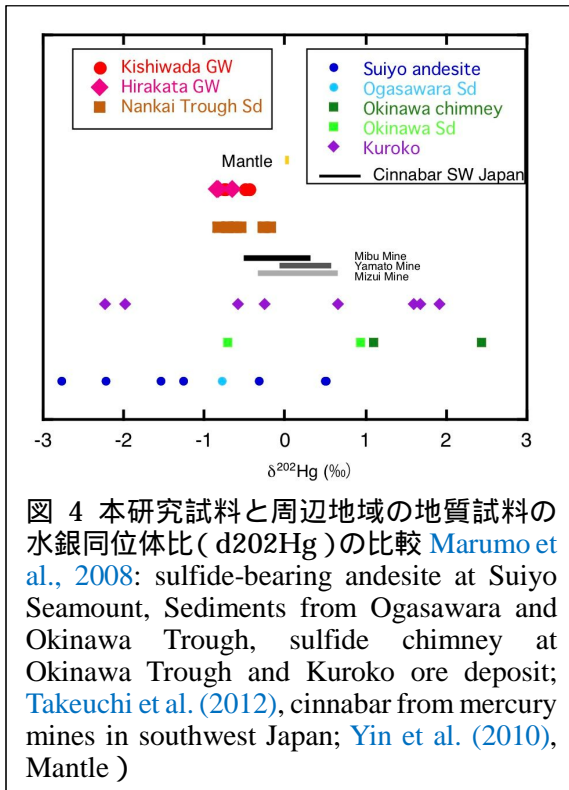


図 4 本研究試料と周辺地域の地質試料の水銀同位体比 ( $\delta^{202}\text{Hg}$ ) の比較 Marumo et al., 2008: sulfide-bearing andesite at Suiyo Seamount, Sediments from Ogasawara and Okinawa Trough, sulfide chimney at Okinawa Trough and Kuroko ore deposit; Takeuchi et al. (2012), cinnabar from mercury mines in southwest Japan; Yin et al. (2010), Mantle)

プレートの上面深度は 25~35km である。この帯状分布は紀伊水道近辺に欠落が見られる。また、中央構造線より内側では低周波イベントはあまり見られないが、大阪湾・大阪・京都・奈良盆地とそれらの周辺山地にスポット状に低周波イベントが発生する地点がある。これらは河内長野を除いて、上述した水銀検出地点と大きくは観測地点が重なっている(図 5-c)。これらの低周波イベントの発生深度は概ね 20~35 km 程度である。大阪湾を中心とする近畿地方中央部では、フィリピン海プレートが周囲よりも深く落ち込んでいることが知られている。大阪平野の直下では、フィリピン海プレートの上面は 50~60km の深度である。したがって、この地域で見られる低周波イベントは下部地殻の最下部付近で発生していると推定できる。有馬温泉と河内長野では 1970 年代から有馬型塩水と呼ばれるマンテル由来成分を含む高濃度塩水が出現することが知られている(例えば、Nagao et al., 1981 など)。したがって、河内長野市に出現する水銀はマンテルを通過してきた流体に由来するのかもしれない。

沖縄島南部を含む琉球海溝周辺部では低周波地震の震源が多発する地域がある。水銀検出点直近では深部低周波地震は起こっていない。しかし、琉球弧では地震観測点が少ないため、

震源域が十分に観測されていない可能性が高いため (Nakamura et al., 2017), 詳細な比較検討は行えない。また、沖縄島周辺の低周波地震の発生深度はスラブ上面と一致する 10~20km が多い。水銀検出地点直下のスラブ上面深度は 30km 程度である。琉球海溝の沈み込み帯ではスラブ上面の凹凸が大きいと言われているが、この深度はほぼ島弧地殻とスラブの境界にあたりと推定される。したがって、水銀が深部流体に由来するとすれば、スラブの脱水に伴って供給されているかもしれない。

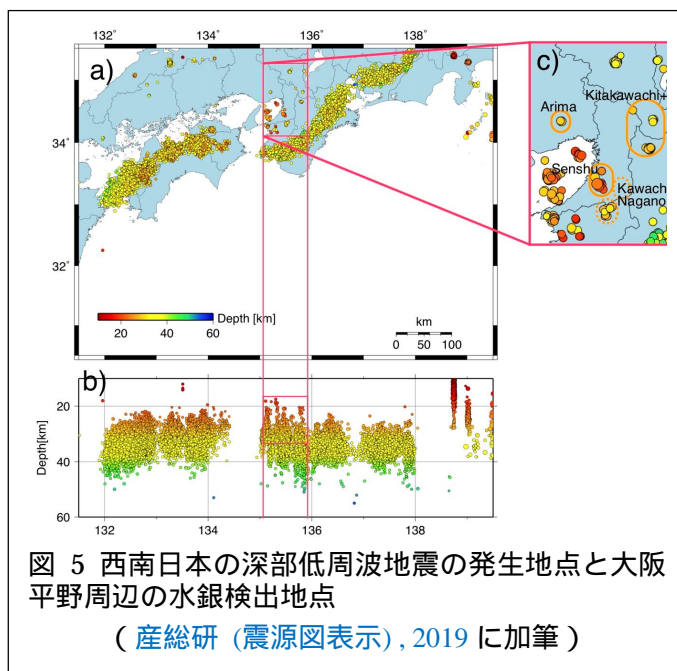


図 5 西南日本の深部低周波地震の発生地点と大阪平野周辺の水銀検出地点

(産総研 (震源図表示), 2019 に加筆)

#### 4-6 結論

活断層は明らかに深部流体を上昇させる経路となっている。大阪平野深部の基盤岩からも上町断層に沿って深部流体とみなせる塩水の上昇が観察されている (Shintani et al., 2019)。水銀上昇経路として活断層が使われていることと整合的である。また、大局的には、大阪平野では二つ以上の断層系が交差する場所に水銀検出井戸が集中することから、断層密度が高い地域の地下には水銀を含む熱水ブルームがあると考えている。蛇紋岩などのマンテル内部の脱水とマンテル由来の水銀の寄与はがあるかもしれない。沖縄島の水銀検出地点では、スラブ流体が水銀の供給源である可能性が高い。沈み込むプレートとウェッジマンテルでの水銀を含む流体の移動モデル作成にあたっては、起源をより厳密に推定する必要がある。

#### 引用文献:

海上保安庁海洋情報部(2015), 海洋汚染調査報告第 43 号, p.7/吉田直史ほか (2006)沖縄県衛生環境研究所報, 40, 56-63./産総研 (震源図表示) (2019) <https://gbank.gsj.jp/wellweb/cgi-bin/GSJ/earth/epicenter/res?0> (2019. 06. 01) (地震データは気象庁一元化震源データ (低周波イベント) による) /産総研活断層 DB <https://gbank.gsj.jp/activefault/search> (2019.06.01)/城陽市 (2007) 城陽市市制だより, V. 17. 9./生駒市 (2014)平成 26 年度版「生駒市の環境」(環境白書) /大阪府 (2010) 大阪府北河内地区における水銀に係る地下水共同調査報告書 / Marumo K., et al. (2008) Resource Geology, 58(3), 220 - 248. /Nagao, K., et al. (1981) Earth Planet. Sci. Lett., 53, 175-188./Nakamura M. (2017) Earth, Planets and Space, 69:49./Shintani T., et al. (2019) Geochemical Journal. (Accepted, 2019.04.25)/Takeuchi, A. et al. (2012) 2012 AGU Fall Meeting. B31C0430T/ /Yin R., et al. (2010) Applied Geochemistry, 25, 1467-1477.



## 主な発表論文等

### 〔雑誌論文〕(計3件)

- 1) Shintani T., Masuda H., Okazaki K., Even E., Ono M., Marui A. (2019) Characterization of groundwater based on  $\delta^2\text{H}$ ,  $\delta^{18}\text{O}$  and  $\text{Cl}^-$  concentration beneath the Osaka Plain, Southwest Japan. *Geochemical Journal*. (Accepted, 2019.04.25)
- 2) Masuda H., Yoshinishi H., Fuchida S., Toki T., Even E. (2019) Vertical profiles of arsenic and arsenic species transformations in deep-sea sediment, Nankai Trough, offshore Japan. *Progress in Earth and Planetary Science*, 6:28. <https://doi.org/10.1186/s40645-019-0269-y>.
- 3) Masuda H. (2018) Arsenic cycling in the Earth's crust and hydrosphere: interaction between naturally occurring arsenic and human activities. *Progress in Earth and Planetary Science*, 5:68. <https://doi.org/10.1186/s40645-018-0224-3>.

### 〔学会発表〕(計12件)

#### 国際会議講演

- 1) Masuda H. Geological cycles of arsenic and mercury – element behavior related to plate tectonics. Japan-China Forum at Meeting of Petrology, Mineralogy and Geochemistry, China, 2019, Hangzhou. 2019.04.22 (招待講演)
- 2) Masuda H., Goto A., Sakamoto Y., Takeuchi A. Mercury emission into shallow groundwater from subducting slab of Philippine Sea Plate. Goldschmidt Conference on 2018, Boston. (2018.08.12-16, 口頭発表)
- 3) Masuda H., Sakamoto Y., Takeuchi A. & Goto A. Mercury Cycle in the Convergent Margin at Kinki District, Southwest Japan. Goldschmidt Conference 2017, P2248, 05h, Paris. (2017.08.15, ポスター)
- 4) Masuda H. Studies on As contaminated groundwaters –an example of international scientific activity against environmental problem. 日本地球惑星科学連合大会, MIS03-10, 2017.0520 (国際セッション, 招待講演)

#### 国内会議

- 1) 羽瀧元哉・益田晴恵・新谷毅・古谷宗三・森啓悟・石橋純一郎・松島健・武内章記・大嶋将吾・井川怜欧 霧島連山と薩摩硫黄島における熱水活動に伴うヒ素と水銀の挙動. 2019年日本地球惑星科学連合大会, SVC39-05, 千葉 2019.05.27
- 2) 森啓悟・益田晴恵・新谷毅・羽瀧元哉・古谷宗三・石橋純一郎・松島健・大嶋将吾・井川怜欧 霧島火山群・硫黄山水蒸気噴火に関連した熱水循環プロセス. 2019年日本地球惑星科学連合大会, SVC39-P02, 千葉 2019.05.27
- 3) 新谷毅・杉本直人・谷水雅治・益田晴恵・石川剛志・永石一弥 大阪平野の堆積盆最深部における非火山性塩水の地球化学的特徴とその起源. 2018年度日本地球化学会年会, 2D02, 沖縄. (2018.09.12)
- 4) 益田晴恵・後藤葵・坂本裕介・武内章記 大阪平野の浅層地下水水銀汚染とプレート収束域での水銀循環. 2018年度日本地球化学会年会, 2D03, 沖縄. (2018.09.12)
- 5) 新谷毅・杉本直人・谷水雅治・益田晴恵・石川剛志・永石一弥 Contribution of deep-seated thermal water to groundwater in the lowermost part of Osaka Basin. 2018年日本地球惑星科学連合大会, AHW25-03, 千葉. (2018.05.23)
- 6) 益田晴恵 大阪平野の地質由来地下水水銀汚染とプレートテクトニクスとの関係. 日本地下水学会秋期講演会, 23, 弘前, 2017.10.13
- 7) 坂本裕介・益田晴恵・新谷毅・村崎友亮・後藤葵 大阪府南部の活断層近傍に出現する地下水中水銀の起源. 2017年度日本地球化学会年会, 3C08, 東京, 2017.09.15.
- 8) 後藤 葵・益田 晴恵 南海トラフの熊野灘海盆付加体堆積物中の水銀濃度. 2017年度日本地球化学会年会, 1C07, 東京, 2017.09.13.

## 6 研究組織

### (1)研究分担者

研究分担者氏名: 武内 章記

ローマ字氏名: Akinori Takeuchi

所属研究機関名: 国立研究開発法人国立環境研究所

部局名: 計測研究センター

職名: 主任研究員

研究者番号(8桁): 10469744

研究分担者氏名: 石橋 純一郎

ローマ字氏名: Junichiro Ishibashi

所属研究機関名: 九州大学

部局名: 理学研究院

職名: 准教授

研究者番号(8桁): 20212920