

## 4.2 マグマ起源成分および放射性塩素を用いたマグマの状態・種別判別法の妥当性、適用限界の検討

### 【実施内容】

阿蘇カルデラ火山深部に存在する流体がマグマであるか否か、マグマの種別、マグマ起源熱水の上昇過程を推定するために開発した放射性塩素同位体法および  $C/Cl$  比を用いたマグマの活動状態の推定手法の妥当性を検討するため、日本の他のカルデラ火山においても同手法を用いた地下のマグマの状態の推定が可能かどうかを試み、同手法の適用性を評価する。また、海底カルデラ火山における適用性の可否も検討し、問題点および課題を示す。今年度は、マグマ起源  $Cl$  濃度の解析方法を昨年度の  $Br-Cl$  を用いた手法から、 $Cl-Br-I$  を用いた手法に高度化した。また、地下水に含まれる端成分を昨年度の天水、海水、マグマ水の 3 成分とする方法から天水、海水、変質海水、マグマ水の 4 成分とする方法に変更し、マグマ起源  $Cl$  の割合を求めた。これにより地下水に含まれるマグマ起源成分の  $C/Cl$  比と  $Cl/H_2O$  比を再計算し、誤差もより正確に評価した。これらを海底カルデラである始良カルデラとカルデラ湖の十和田カルデラに適用し、マグマ溜まり進化モデルに基づき各マグマ溜まりの状態に対応して放出される熱水流体の  $C/Cl$  比と  $Cl/H_2O$  比から、地下のマグマ溜まりの状態を推定する  $C/Cl-Cl/H_2O$  法の有効性が確認された。さらに、 $^{36}Cl/Cl$  比を用いた手法の海底カルデラへの適用性検討では、始良カルデラ周辺の深層地下水の  $^{36}Cl/Cl$  比の特徴を把握した。 $^{36}Cl/Cl$  比、 $^3He/4He$  比、および溶存化学組成より、始良カルデラ周辺においては、地下水およびその溶存成分の滞留時間が地域によって異なることが明らかになった。

### 【調査・研究成果】

#### 4.2.1 $C/Cl-Cl/H_2O$ 法

本章では、産総研（2020）において提案した  $C/Cl$  法及び  $Cl/H_2O$  法の両方を用いた手法 ( $C/Cl-Cl/H_2O$  法) について示し、始良カルデラ、十和田カルデラにおいて  $C/Cl-Cl/H_2O$  法の適用し、地下水中に含まれるマグマ起源熱水の成分がマグマ生成・供給に関与するものか、あるいは、マグマ固化に関係するものであるかどうかの判別、さらにそのマグマが苦鉄質なのか珪長質なのかの判別を行う。また、 $C/Cl-Cl/H_2O$  法の適用上の問題及び適用に関する注意点をまとめる。なお、時期の異なる採水により各成分濃度・濃度比の変動を把握し、ハロゲン元素 ( $Cl$ ,  $Br$ ,  $I$ ) 等を用いたマグマ起源  $C/Cl$ 、 $Cl/H_2O$  比の補正法の精密化については、4.4 章で論じる。

昨年度は、地下水に含まれる  $Cl$  がどの割合でマグマ起源  $Cl$  を含んでいるのかを求めるときに、 $I$  のデータが不足していたため、 $Br$ ,  $Cl$  のデータのみ利用した。今回は、上記の 3 カルデラ地域について、 $Br-Cl-I$  のハロゲン 3 元素を用いてマグマ起源の  $Cl$  の割合を求め、昨年度に示した  $C/Cl-Cl/H_2O$  法による結果を修正した。鬼界カルデラにおいては、今回、新たに薩摩硫黄島周辺の海底湧水の採取法を検討し、実際にコア採取による間隙水抽出及び湧出点における連続採取法を用いて調査した。採取した海底湧水について、その素性及びマグマ起源成分について検討した結果を報告する。

## 1) マグマ溜まり進化モデル

マグマ溜まりの進化モデルは、2020年度に、より一般的なマグマ溜まりモデルとして2 kb以下(8 km以浅)のマグマ溜まりの状態変化を簡略化して取り扱った(図4.2.1-1)。今回も同様に図4.2.1-1に示した概念モデルを用いる。(I)最初期に苦鉄質マグマが地下2 kb(8 km)にマグマ溜まりを形成し、発泡・脱ガスする。その際放出される熱水流体をMD(Mafic degassing)流体とする。(IIa)苦鉄質マグマはその熱により上部の地殻を溶融、あるいは、結晶分化作用により、珪長質マグマ溜まりを形成する。この際、苦鉄質マグマが4に対し珪長質マグマは1生成するとしている(産総研, 2018)。珪長質マグマが発泡・脱ガスして放出した熱水流体をFD(Felsic degassing)流体とし、1-2 kbの圧力で放出されるものとする。また、(IIb)の苦鉄質マグマの固化に伴い放出された熱水流体をMS(Mafic solidification)流体とする。この(IIa)の珪長質マグマ溜まりは、(III)固化して花コウ岩を形成するか、あるいは、(IV)カルデラ噴火に移行する。この(III)期に放出される熱水流体をFS(Felsic solidification)流体とする。

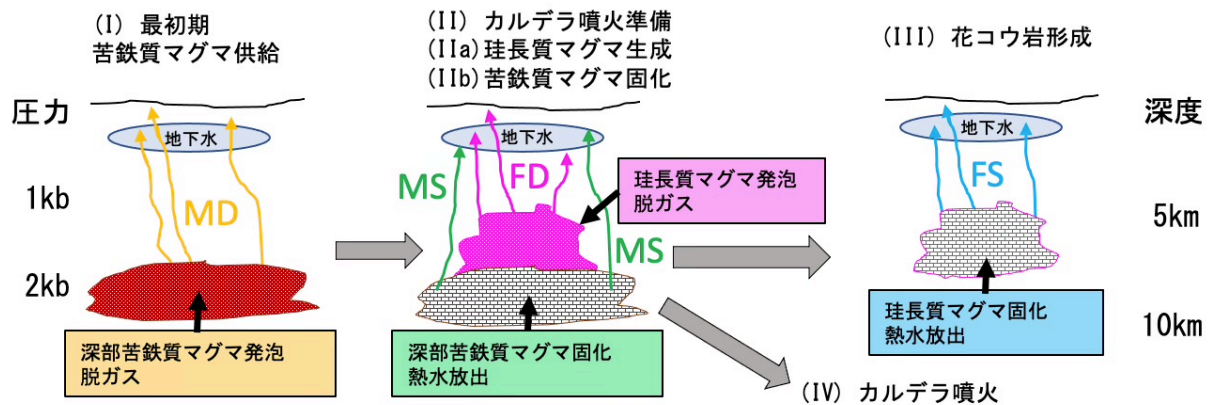


図 4.2.1-1 マグマ溜まりの進化モデル (産総研,2021)

産総研(2019)のモデルを元に2 kb(8 km)より浅いプロセスに簡略化した。(I)~(III)期に対応するMD, MS, FD, FSは各マグマプロセスによって放出される熱水流体を表す。

マグマ溜まりの進化モデル(図4.2.1-1)に沿って、マグマ溜まりの各状態において放出される熱水流体のC/Cl比とCl/H<sub>2</sub>O比の関係を計算した結果を図4.2.1-2に示す(産総研, 2021)。計算方法は、産総研(2019; 2020)を参照されたい。本図は、最初期の苦鉄質マグマの揮発性物質の濃度をそれぞれH<sub>2</sub>O=1.5, 2.0, 2.5 wt%, CO<sub>2</sub>=0.2 wt%, Cl=0.05, 0.10, 0.15 wt%として計算した結果を示した。MD, MSについては苦鉄質マグマ溜まりの深さを2 kb(8 km)として示し、FD, FSについては、珪長質マグマ溜まりの深さを1 kb, 1.5 kb, 2 kb(4-8 km)の範囲で計算した。図4.2.1-2の結果から、放出される熱水流体は以下に示す特徴があることがわかる。最初期の(I)で放出される熱水流体MDはCl/H<sub>2</sub>O比が低くC/Cl比が高い。(IIa)の珪長質マグマの発泡・脱ガスによる熱水流体FDは、珪長質マグマ溜まりの深さにより、Cl/H<sub>2</sub>O比が大きく変化する。(IIb)の苦鉄質マグマ固化に伴うMSはCl/H<sub>2</sub>O比が高い。(III)の花コウ岩形成期のFSはCl/H<sub>2</sub>Oが高く、C/Cl比が低い(産総研, 2021)。

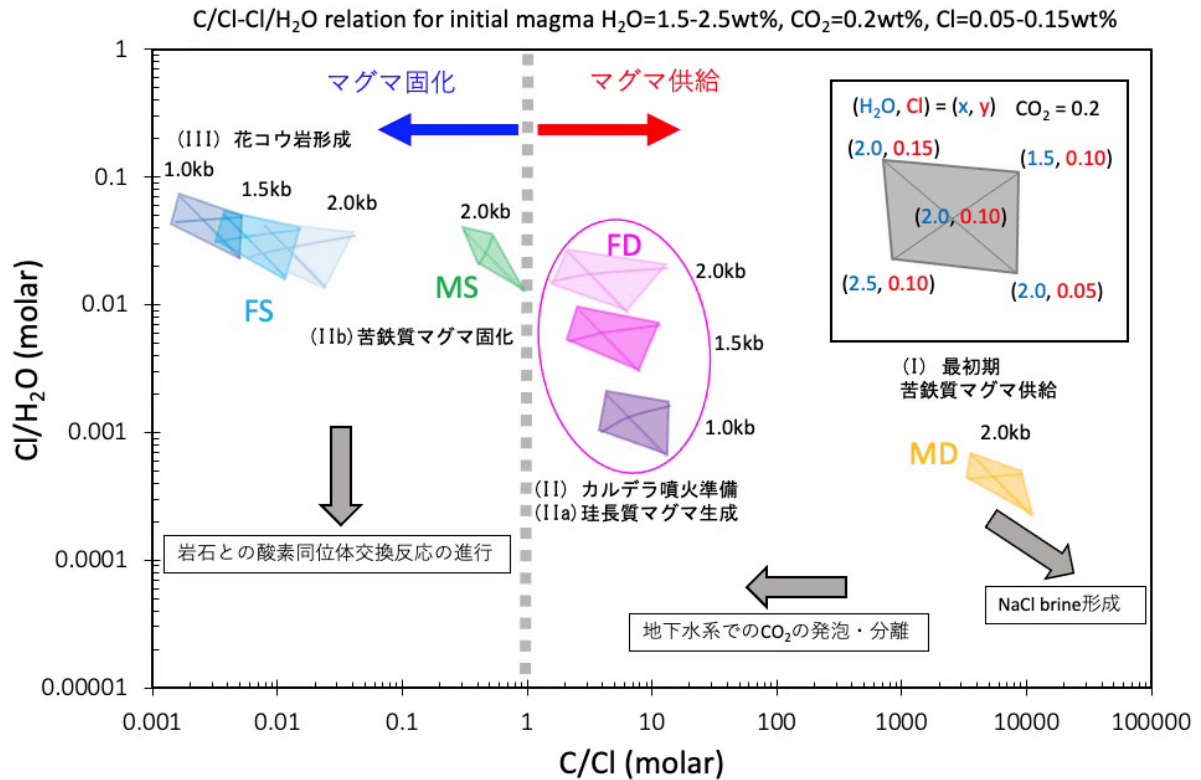


図 4.2.1-2 マグマ溜まりの進化に伴い放出される熱水流体の C/Cl 及び Cl/H<sub>2</sub>O の関係(産総研, 2021)

図 4.2.1-1 の進化モデル(I)~(III)に基づいて MD, MS, FD, FS の各熱水流体の C/Cl 及び Cl/H<sub>2</sub>O 比を産総研 (2019; 2020)に示した手法を用いて計算した。基準の苦鉄質供給マグマは、H<sub>2</sub>O = 1.5 - 2.5 wt%, CO<sub>2</sub> = 0.2 wt%, Cl = 0.05 - 0.15 wt%とした。マグマの H<sub>2</sub>O 及び Cl 含有量の変化に伴う範囲を図中に示した。また、計算した圧力も図に示している。熱水上昇のプロセスで C/Cl 及び Cl/H<sub>2</sub>O 比に与える影響を灰色の矢印で示している(詳しくは本文参照)。

## 2) C/Cl-Cl/H<sub>2</sub>O 法の適用上の注意

理論上の問題点として、MD 流体のように非常に CO<sub>2</sub> 濃度が高い熱水流体では正確な Cl の分配データがない。C/Cl 比が高い場合は、大きな不確実性を伴っていると考えられる。図 4.2.1-2 より、C/Cl 比が 1 より大きい場合は、マグマ生成あるいは供給時に発泡・脱ガスした熱水流体(MD, FD)である、また、C/Cl 比が 1 より小さい場合はマグマが固化する際に放出される熱水流体(MS, FS)である(図 4.2.1-2)。

図 4.2.1-2 の結果を実際の地下水に適用する際は、以下に示すポイントを考慮する必要がある。  
 1) マグマから放出される熱水流体は、放出時にマグマの酸素同位体比を反映するので、その熱水の δ<sup>18</sup>O 値は +6 ‰ 以上である。しかし、マグマ起源熱水流体が地下水と混合後に熱水溜まりなどを形成する場合は、マグマ起源熱水流体を混合した地下水が周囲の岩石と酸素同位体交換反応を起こすため、その δ<sup>18</sup>O 値は高い値に変化する(いわゆる酸素同位体シフト)。本 C/Cl-Cl/H<sub>2</sub>O 法では、後述するように、マグマ起源熱水流体の Cl/H<sub>2</sub>O を地下水の分析結果から求める際に地下水の同位体組成(δD, δ<sup>18</sup>O)を用いるので、地下水の δ<sup>18</sup>O が酸素同位体交換反応により高い値に

変化した場合はマグマ起源  $H_2O$  の割合を過大に見積もってしまう。そのため、このような反応があった場合は地下水に含まれるマグマ起源の  $Cl/H_2O$  は低い値に計算される (図 4.2.1-2) 。 2)珪長質マグマ生成時に発泡・脱ガスする熱水流体(FD)は、 $C/Cl$  比は  $2 < C/Cl < 20$  の範囲にある。苦鉄質マグマの発泡・脱ガスにより放出された熱水流体(MD)は  $C/Cl > 3000$  であるが、後述するように放出後上昇し地下水系に混入する際に  $CO_2$  が発泡・分離する可能性が高いため、 $C/Cl$  比が大きく低下すると考えられる(図 4.2.1-2)。したがって、FD 流体の範囲よりも  $C/Cl$  比が高い場合、具体的には  $C/Cl > 100$  の場合は、MD 流体が関与していると考えてよい。3)また、実際にはマグマ溜まりから放出された熱水は、その上昇過程の P-T 状態の変化 (特に高温低圧時) に応じて高濃度の NaCl brine と  $CO_2$  主体のガス相に分離する可能性がある。その可能性が高いのは  $CO_2$  濃度が最も高い MD 流体である。この場合、もともと高い  $C/Cl$  比を持つ熱水流体がさらに高い  $C/Cl$  比になり、 $Cl/H_2O$  比は逆に低下する。結論としては、前述と同様に  $C/Cl > 100$  の場合は、苦鉄質マグマの発泡によるものと考えてよいであろう。4)地下水に HCl を含む酸性熱水の混入がある場合は、マグマ溜まりではなく火道系から放出された火山ガスに関連する熱水流体が関与している可能性が高い。本  $C/Cl-Cl/H_2O$  法は、高压下のマグマ溜まりの状態を把握する目的で用いるため、低圧環境の脱ガスシステムに関係する強酸性熱水は適用してはならない。5)特に地下深部に存在する深層地下水は平均滞留時間が長いと考えられるため、その滞留時間の間に流入したマグマ起源成分の平均値として  $C/Cl$ 、 $Cl/H_2O$  比が求まる。 $C/Cl-Cl/H_2O$  法によるマグマ溜まりの状態推定結果は調査対象とする地下水の平均滞留時間に対応した結果であることに留意しておく必要がある。最後に、6)実際の地下水を用いて検討する場合は、地下水の分析からマグマ起源熱水の組成を推定する際に含まれる誤差や仮定の不確実性の問題がある。この問題点については、実際に地下水を適用する際に述べる。

### 3) 地下水に含まれるマグマ起源の $C/Cl$ 比と $Cl/H_2O$ 比

$C/Cl-Cl/H_2O$  法を実際に適用するには、地下水の分析値からマグマ起源成分の Cl, C および  $H_2O$  の寄与を求めなければならない。本節ではその手法をまとめる。

Cl の起源分離は Cl-Br-I のハロゲン元素を用いればマグマ起源 Cl の割合を求めることができる (産総研, 2018; 2019; 2020) 。 3-1)節では、産総研(2019; 2020)に示したマグマ起源 Cl の解析手法を整理・再検討し、始良カルデラ及び十和田カルデラ周辺の地下水に適用した結果を示す。また、マグマ起源の  $C/Cl$  比を求めるためには、地下水の無機炭素濃度のマグマ起源炭素の寄与を求める必要があり、3-2)節にまとめる。マグマ起源の  $Cl/H_2O$  比を求めるには、さらに  $H_2O$  の起源分離が必要になる。地下水の水素・酸素同位体比( $\delta D$ ,  $\delta^{18}O$ )とそれに含まれる海水起源、変質海水等の組成を用いて、マグマ起源  $H_2O$  の割合を求める手法と結果について 3-3)節に示す。

#### 3-1)マグマ起源 Cl の検討

昨年度までの研究で、ハロゲン元素比 (Br/Cl 比および I/Cl 比) やハロゲン元素濃度 (Cl, Br, I 濃度) を用いて、水試料中に含まれる Cl の起源解析を行ってきた (以下、Cl-Br-I 法と呼ぶ) (産総研, 2018; 2019; 2020) 。水試料中に含まれるハロゲンの起源としては主に「マグマ水」「海水」「変質海水 (油田, ガス田附随水, 続成流体なども含む) 」「天水」の 4 成分が考えられる。

ここで、天水はハロゲン濃度が非常に低いため、Cl 濃度が比較的高い試料においては無視できる。本年度は、始良カルデラ周辺では Cl 濃度が 50 mg/L 以上の試料（215 試料，繰り返し観測については例外的に Cl 50 mg/L 以下を含む）を，十和田カルデラ周辺では Cl 濃度が 100 mg/L 以上の試料（52 試料）を対象とし，以下の 3 式を用いた三成分混合解析により各成分に由来する Cl 濃度を求めた。添え字の m はマグマ水，sw は海水，a は変質海水を意味する。

$$Cl_m + Cl_{sw} + Cl_a = Cl_{sample} \quad (1)$$

$$Cl_m (Br/Cl)_m + Cl_{sw} (Br/Cl)_{sw} + Cl_a (Br/Cl)_a = Br_{sample} \quad (2)$$

$$Cl_m (I/Cl)_m + Cl_{sw} (I/Cl)_{sw} + Cl_a (I/Cl)_a = I_{sample} \quad (3)$$

各端成分の Br/Cl 比および I/Cl 比は表 4.2.1-1 に記載した値を仮定した。火山ガスやスラブ起源流体は海水と比較して低い Br/Cl 比および高い I/Cl 比を持つことが分かっている (Böhlke and Irwin, 1992; 東郷ほか, 2020)。今回，東北全域および九州全域で Cl, Br, I 濃度のデータが存在する試料（東北 510 試料，九州 449 試料）を用いて，多くのデータが混合曲線の範囲内におさまるようにマグマ水の Br/Cl 比および I/Cl 比を設定した (高橋ほか, 2018; 産総研, 未公表データ)

(図 4.2.1-3)。油田・ガス田付随水は Br/Cl および I/Cl 比が高い特徴を持つ (例えば Muramatsu et al., 2001; 2007; Tomaru et al., 2007; 2009)。本研究では，Br/Cl 比および I/Cl 比が高い試料のうち，酸素・水素同位体比や Cl 濃度から天水の混入ができるだけ少ない試料を変質海水の端成分として選定し，始良カルデラ周辺の解析には宮崎の試料を，十和田カルデラ周辺の解析には秋田の試料を使用した (高橋ほか, 2018)。海水の端成分は，始良カルデラ周辺の解析では錦江湾内で採取された海水のデータ，十和田カルデラ周辺の解析では野崎 (1997) の報告値を用いた。マグマ水の端成分は I/Cl 比が異なる 2 パターンの解析を行い，両方とも解が求まった場合は平均値を求めた。

表 4.2.1-1 三成分混合解析で仮定した端成分の I/Cl および Br/Cl 比

適用地域	端成分	I/Cl molar ratio ( $\times 10^{-6}$ )	Br/Cl molar ratio ( $\times 10^{-3}$ )
始良カルデラ周辺	マグマ水 (m)	10 or 130	0.30
	海水 (sw)	0.72	1.64
	変質海水 (a)	1773	3.54
十和田カルデラ周辺	マグマ水 (m)	10 or 130	0.30
	海水 (sw)	0.84	1.54
	変質海水 (a)	1075	3.14

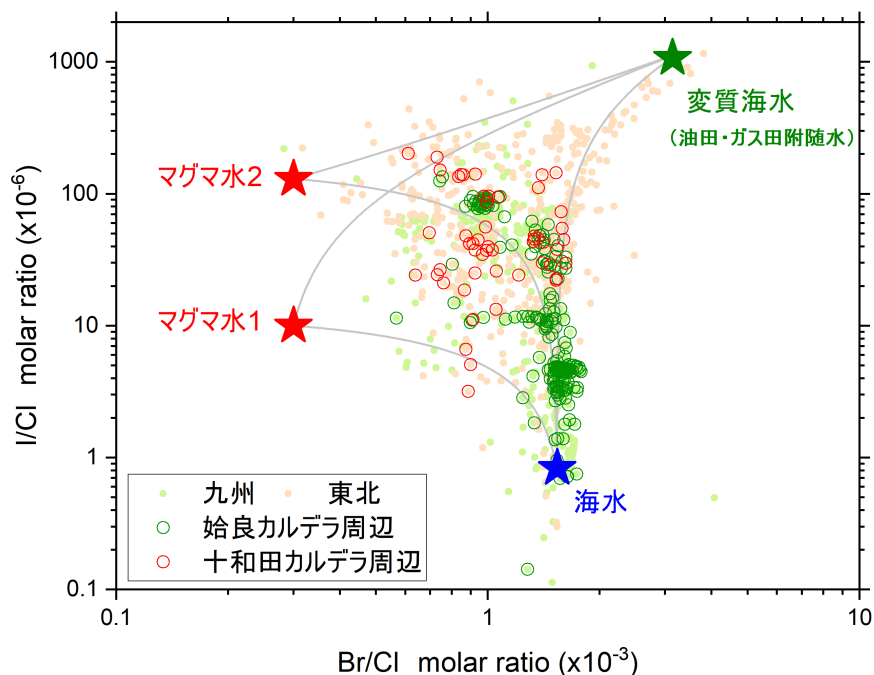


図 4.2.1-3 始良カルデラ，十和田カルデラ周辺で採取した試料の Br/Cl 比および I/Cl 比の関係。マグマ水の端成分決定のために参考にした九州および東北全域のデータを合わせて示した。また，始良カルデラ周辺の場合の各端成分の混合曲線を灰色の線で示した。

### 3-2) マグマ起源炭素の検討

マグマの C/Cl 比を求めるためには，水試料中に含まれるマグマ起源炭素の濃度を調べる必要があるが，実際の水試料中にはマグマ起源炭素以外に土壌などにおける生物起源炭素も含まれるため (Yamada et al., 2011)，塩素と同様に炭素も起源分離が必要である。産総研 (2018; 2019) では， $\delta^{13}\text{C}$  を指標として，水試料中に含まれる溶存無機炭素 (DIC) のうち，地表付近の生物活動に起因する炭素成分を取り除いて計算している。しかし，始良カルデラ地域のように，海水の混入が考えられる試料では，その影響を排除しなければならない。これは，海水の DIC の  $\delta^{13}\text{C}$  が高いために，わずかな混入であっても水試料の  $\delta^{13}\text{C}$  を大きく変化させる可能性があるためである。そこで，ハロゲン元素を用いて求めた海水起源 Cl 濃度から試料中に混入する海水の割合を求め，海水由来の DIC (海水の DIC 濃度を 24 mg/L， $\delta^{13}\text{C}$  を 0 ‰と仮定) を差し引いてからマグマ起源炭素濃度を計算した。十和田カルデラは海岸から離れているため，生物起源とマグマ起源の 2 成分のみを考慮した計算を行った。計算において，マグマ起源炭素の  $\delta^{13}\text{C}$  は -4‰，生物起源炭素は -20 ‰と仮定した。ただし，始良カルデラにおいては，ガスでの供給が考えられるため， $\text{CO}_2$  ガスと DIC との同位体分別を考慮した値を用いている。

また，遊離ガスを伴う試料の場合，遊離ガス中に含まれる  $\text{CO}_2$  を考慮する必要がある (産総研，2019)。水と遊離ガスの湧出量の観測データがある試料については，遊離ガスに含まれる  $\text{CO}_2$  が水中に全量溶解した場合の濃度を求めた (遊離ガスに含まれる  $\text{CO}_2$  はすべてマグマ起源，ガスの温度は水の温度と同一と仮定)。今年度は十和田カルデラ周辺の 3 試料について，遊離ガスを考慮した計算を行った。

### 3-3) マグマ起源 H<sub>2</sub>O の検討

マグマの Cl/H<sub>2</sub>O 比を求めるには、H<sub>2</sub>O の起源分離が必要になる。地下水の水素・酸素同位体比( $\delta D$ ,  $\delta^{18}O$ )とそれに含まれる海水起源、変質海水等の同位体組成を仮定し、マグマ起源 H<sub>2</sub>O の割合を求める手法と始良カルデラ及び十和田カルデラに適用した結果を示す。

#### 3-3-1) 始良カルデラの地下水への適用

まず、始良カルデラ周辺の地下水を用いた場合について本手法の例を示す。3-1)節において、地下水をそれぞれ天水、海水、変質海水、マグマ起源水の混合と仮定し、これらの端成分に含まれる Cl について、それぞれ天水、海水、変質海水、マグマ起源の Cl の割合をハロゲン 3 元素により求めた。同様に地下水の水も天水、海水、変質海水、マグマ水の混合である。したがって、天水、海水、変質海水の端成分の同位体比( $\delta D$ ,  $\delta^{18}O$ )と Cl 濃度がわかれば、マグマ起源の水の割合と Cl 濃度(マグマ起源水の Cl/H<sub>2</sub>O 比)をそれぞれ求めることができる。

各端成分の同位体比、Cl 濃度は以下のようにして決定した。始良カルデラ地域は内海であり、錦江湾の海水は太平洋の海水に比べて Cl 濃度が少し低い。今回は錦江湾の海水の Cl 濃度、 $\delta D$ 、 $\delta^{18}O$  値 (Cl 濃度 = 17,600 mg/L,  $\delta D = -4.7$  ‰,  $\delta^{18}O = -0.7$  ‰) がわかっているため、海水の端成分とした。また、変質海水は Cl-Br-I 法で選定した試料の値を用いて、Cl 濃度 = 19,200 mg/L,  $\delta D = -2.9$  ‰,  $\delta^{18}O = -1.1$  ‰に設定した。産総研(2020)によれば、始良カルデラ周辺では、変質海水起源の Cl の割合が非常に少ないことがわかっているため、変質海水の設定値の違いにより、以下に示すマグマ水の割合の結果に与える影響は非常に小さいと考えられる。調査した地下水の Cl 濃度は 10 mg/L 以下のほぼ天水そのものの水から 10,000 mg/L 以上の海水が多く混合した地下水まで幅広い値をもつ。図 4.2.1-4 に始良カルデラ周辺の地下水の  $\delta D$ ,  $\delta^{18}O$  を示す。図 4.2.1-4 の 2 本の天水線は、その範囲内に Cl 濃度 < 20 mg/L の天水起源の地下水が収まるように決定した。天水の端成分の同位体比は場所によって異なると考えられるため、この 2 本の天水線の内側で規定する。また、マグマ水の同位体比は、 $\delta D = -20$  ‰,  $\delta^{18}O = +10$  ‰ (安山岩マグマを想定) と仮定した。

それぞれの地下水に混入する海水起源及び変質海水起源の Cl の割合と濃度を用いて、混合している水(海水+変質海水)と Cl(海水+変質海水)を差し引いた修正値 (Cl 濃度,  $\delta D$ ,  $\delta^{18}O$ ) を求めることができる。この修正値は残りの天水起源の地下水とマグマ水の混合した水である。修正後の同位体比を図 4.2.1-5 に示す。地下水が天水、海水、マグマ水の混合であるならば、この海水・変質海水成分を除去した補正値を示した図は、単純な天水-マグマ水の混合になるはずである。数個のデータが天水線から離れたところにプロットされるが、これらの点は最初から天水-海水の混合線からずれていたもので、おそらく同位体的に変質した非常に古い海水が関与したものである。変質の程度を解明することは不可能なので、これらのデータは今回用いない。

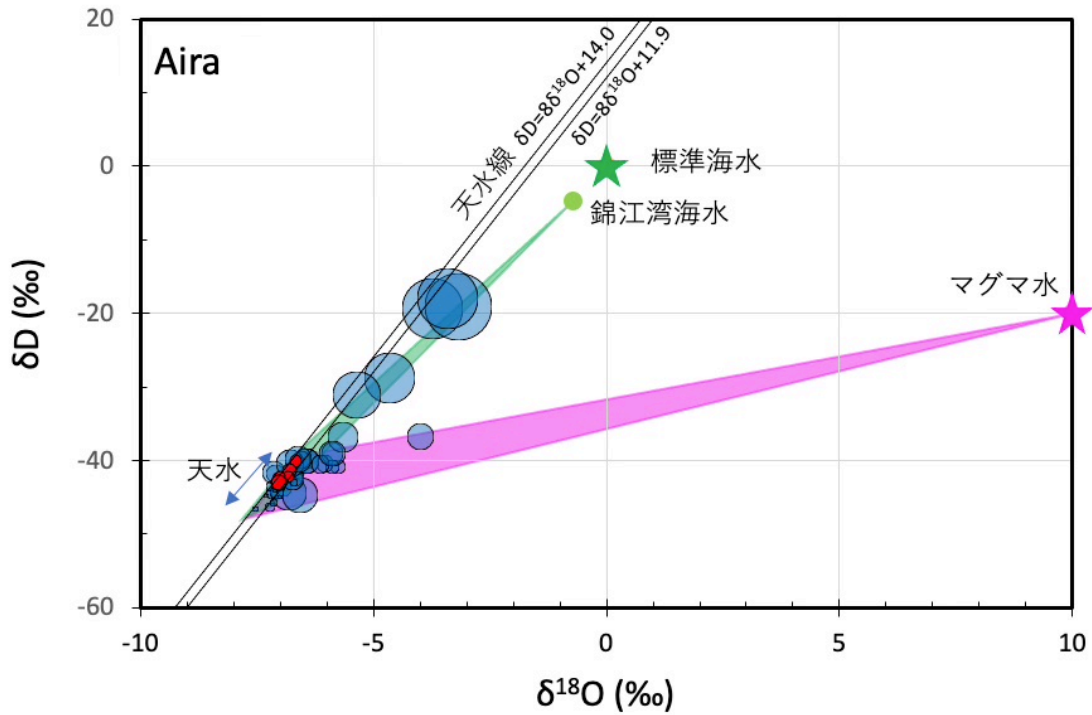


図 4.2.1-4 始良カルデラ周辺の地下水の  $\delta D$  及び  $\delta^{18}O$  の関係

錦江湾の海水、マグマ水（推定値）と天水起源の地下水が包含される 2 本の天水線、さらに各混合線についても示す。円の大きさは Cl 濃度の大小を表している。

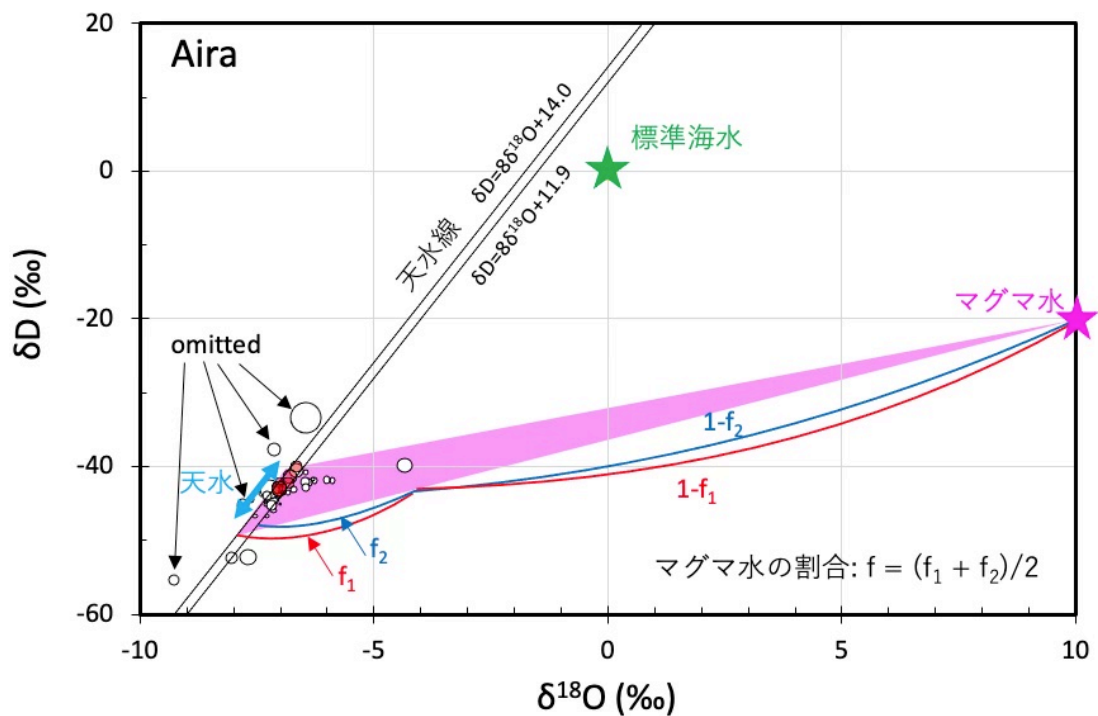


図 4.2.1-5 始良カルデラ周辺の地下水について混合する海水・変質海水の補正後の  $\delta D$  及び  $\delta^{18}O$  の関係

マグマ水（推定値）と天水起源の地下水が包含される 2 本の天水線、さらに各混合線についても示す。円の大きさは Cl 濃度の大小を表している。マグマ水の割合の計算方法を示した（詳しくは本文参照）。



図 4.2.1-5 より、海水及び変質海水の寄与を補正した地下水の同位体比は、マグマ水-天水の混合関係にある。この関係から、地下水に含まれるマグマ水の割合を求めることができる。具体的には、天水には範囲があるため、2本の天水線それぞれとマグマ水の関係からマグマ水の割合を計算し、その平均値からマグマ水の割合（幅から誤差を算出）を求めた。本手法では、地下水は岩石との同位体交換反応により酸素同位体シフトをしていないと仮定している。産総研(2020, 2021)では、九重火山において、地熱による地下水循環システムができている地域では、地下水が高温で岩石と酸素同位体交換反応を起こし、水の  $\delta^{18}\text{O}$  値が高くなり、結果的にマグマ水の割合を過大評価してしまう事例がある。この場合、本手法によって得られる  $\text{Cl}/\text{H}_2\text{O}$  比は過小評価になる点は注意すべき点である。

### 3-3-2)十和田カルデラの地下水への適用

十和田カルデラの地下水についても、始良カルデラの場合と同様に評価できる。十和田の解析では海水の端成分は  $\text{Cl}$  濃度 = 19,400 mg/L (野崎, 1997),  $\delta\text{D} = 0.0 \text{ ‰}$ ,  $\delta^{18}\text{O} = 0.0 \text{ ‰}$ , 変質海水は  $\text{Cl}$  濃度 = 12,000 mg/L,  $\delta\text{D} = -10.4 \text{ ‰}$ ,  $\delta^{18}\text{O} = -1.1 \text{ ‰}$  (高橋ほか, 2018) とした。まず、十和田カルデラ周辺の地下水の同位体組成( $\delta\text{D}$ ,  $\delta^{18}\text{O}$ )を図 4.2.1-6 に示す。図 4.2.1-6 の2本の天水線は、その範囲内に  $\text{Cl} < 10 \text{ mg/L}$  の天水起源の地下水が収まるように決定した。十和田カルデラの地下水の同位体比(図 4.2.1-6)は、マグマ水-天水の混合で説明できない地下水(塩水)が存在することを示している。また、前節で示した始良カルデラに適用した手法、すなわち、海水・変質海水の寄与を差し引いた結果を図 4.2.1-7 に示す。本図から明らかのように海水成分の除去の補正を行なった後では、マグマ水-天水の混合線内にほとんどの地下水が収まる。一部、天水線領域からはずれる点は対象から除き、それぞれの地下水に混合するマグマ起源の水の割合を求めた。さらに、3-1)節に示したマグマ起源  $\text{Cl}$  の割合の結果を用いてマグマから放出された熱水の  $\text{Cl}/\text{H}_2\text{O}$  を求めることができる。

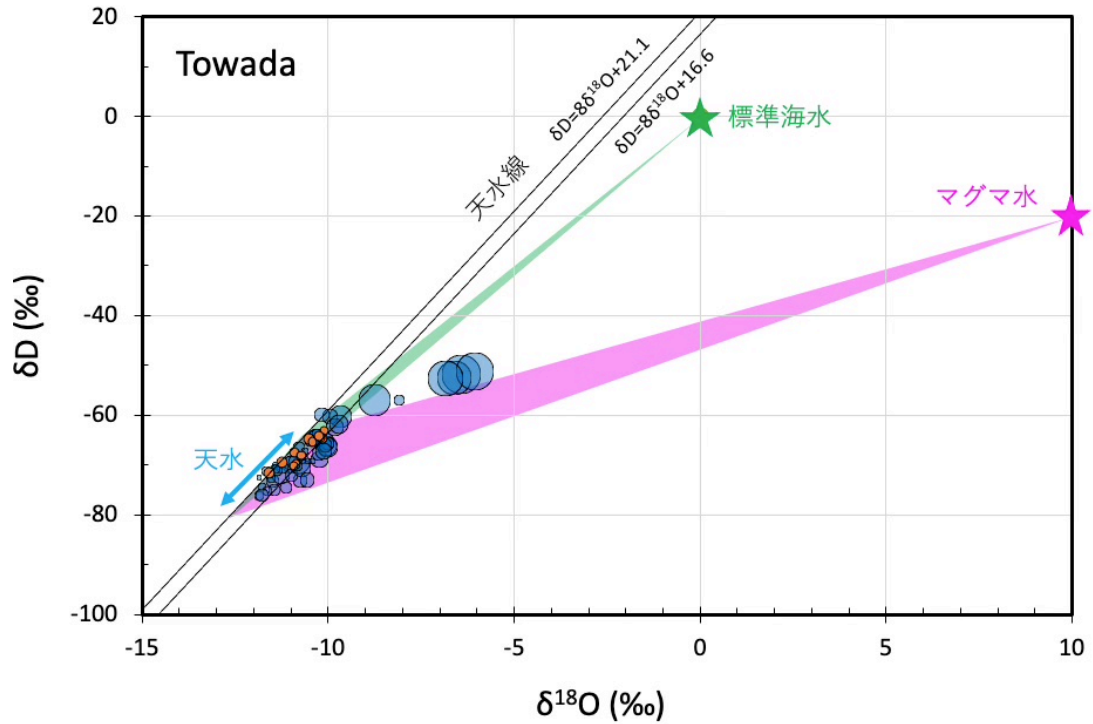


図 4.2.1-6 十和田カルデラ周辺の地下水の  $\delta D$  及び  $\delta^{18}O$  の関係

海水、マグマ水（推定値）と天水起源の地下水（赤い小さな点）が包含される 2 本の天水線、さらに各混合線に  
 ついても示す。地下水の○の大きさは Cl 濃度の大小を示す。

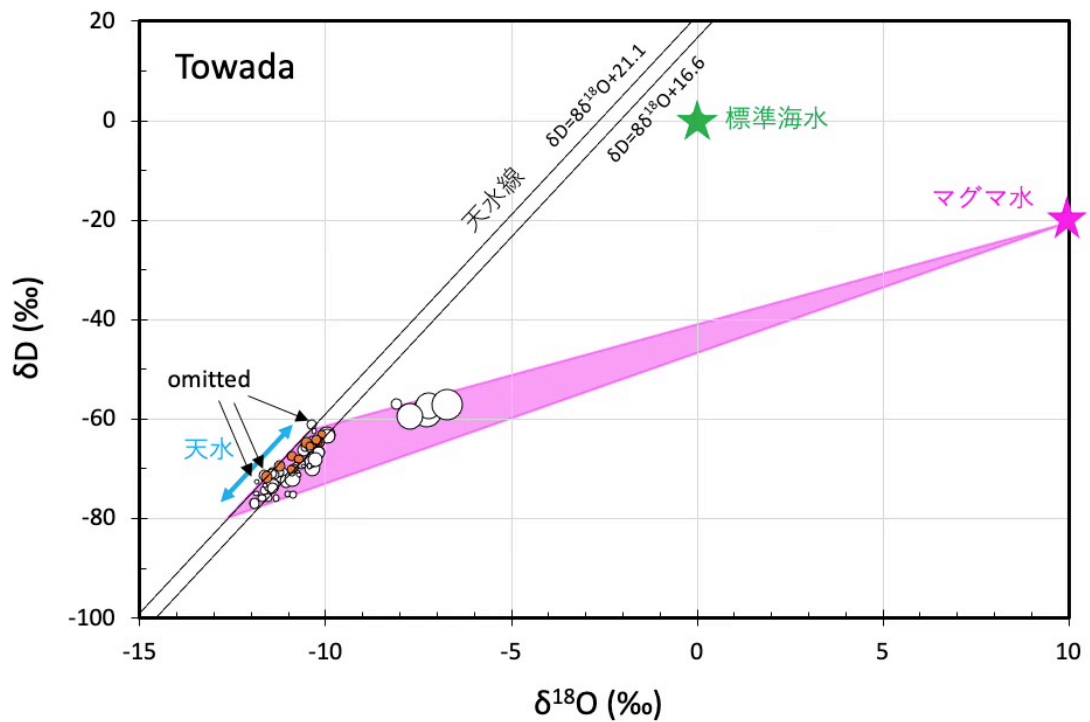


図 4.2.1-7 十和田カルデラ周辺の地下水について混合している海水・変質海水の補正後の  $\delta D$   
 及び  $\delta^{18}O$  の関係

マグマ水（推定値）と天水起源の地下水が包含される 2 本の天水線、さらに各混合線についても示す。地下水の  
 ○の大きさは Cl 濃度の大小を示す。

#### 4) C/Cl-Cl/H<sub>2</sub>O 法の適用

3-1)から3-3)節において示したマグマ起源の Cl, C, H<sub>2</sub>O の解析手法を適用することにより、地下水に含まれるマグマ起源熱水の C/Cl 比及び Cl/H<sub>2</sub>O 比が求められる。以下、始良カルデラ及び十和田カルデラに適用した結果を示す。この2箇所のカルデラは産総研(2021)においても取り扱っているが、マグマ起源 Cl は Br, Cl を用い、地下水の混合成分を天水、マグマ水、海水を仮定していた。今回は、マグマ起源 Cl の割合を求める際に、ハロゲン3元素(Cl, Br, I)を利用するとともに地下水の混合端成分を天水、マグマ水、海水、変質海水の4成分とした点が異なる。

##### 4-1) 始良カルデラ

図 4.2.1-8 に始良カルデラ周辺の地下水に含まれるマグマ起源の C/Cl 比と Cl/H<sub>2</sub>O 比の関係を示した。3-1)節において、マグマ起源 Cl の寄与が求められた地下水は35地点であったが、C/Cl 比, Cl/H<sub>2</sub>O 比の両方とも決定できた29地点について図 4.2.1-8 に示している。本図には値が決定できても誤差が非常に大きい地点も示している。これらの誤差の大きな地点は、C/Cl 比で3地点、Cl/H<sub>2</sub>O 比で13地点である(図 4.2.1-8)。酸素同位体交換反応の影響がない場合には、Cl/H<sub>2</sub>O 比からマグマ溜まりの深度に関する情報が得られると期待されていた。しかし、Cl/H<sub>2</sub>O 比は地下水が高温で岩石と酸素同位体交換反応を起こした場合、マグマ起源水の割合を過大評価、すなわち Cl/H<sub>2</sub>O 比を過小評価する欠点がある。Cl/H<sub>2</sub>O 比が精度よく求められている地点においても、その値は1)節のモデルから推定される値よりも低い値であり、酸素同位体交換反応の影響が疑われる。一方で、Cl/H<sub>2</sub>O 比の誤差が大きい地点が多いのは、マグマ水の混入率が低い地点であると考えられる。以下、2)節に記述した適用上の注意点に留意した上で C/Cl 比を用いてマグマ溜まりの状況について考察を進める。

図 4.2.1-9 に始良カルデラ周辺の C/Cl 比の空間分布を示した。図 4.2.1-9 中の色は図 4.2.1-8 のカラーバーに対応しており、マグマ溜まりの状態がわかるようにしている。本図は、図 4.2.1-8 で C/Cl 比の誤差が非常に大きい3地点は本図には示していない。図 4.2.1-8 より、カラーに相当するマグマプロセスを図 4.2.1-9 に記入し、おおまかにエリアを点線で囲って示した。

始良カルデラでは、苦鉄質マグマの供給があると推定される地域がカルデラ縁の東部及び南部にある。また、マグマ固化に関係すると考えられる地域は、カルデラ縁の北部、南西部に主に見られる。珪長質マグマの生成に関連すると考えられる地域は、カルデラ縁の南部とカルデラ外にあたる北部地域に見られる。ただし、カルデラの南西部(鹿児島市街)の珪長質マグマ生成及び苦鉄質マグマの供給等の地域(図 4.2.1-9)は、地下水の平均滞留時間が非常に長いと考えられる(4.2.2章参照)ため、現在の状況を反映していないことに留意する必要がある。カルデラ北西部、北部にある珪長質マグマ生成状態と考えられる地域は4.2.2章で<sup>3</sup>He/<sup>4</sup>He比がかなり高い地域であることと調和的である。最後に、図 4.2.1-9 で明らかかなように、既存井を用いた陸上の地下水調査のみでは、海没している始良カルデラ下のマグマ溜まりの状態を正確に推定することは難しい。本来、海没したカルデラ内の地下水データが重要であるので、今後に向けた課題としたい。

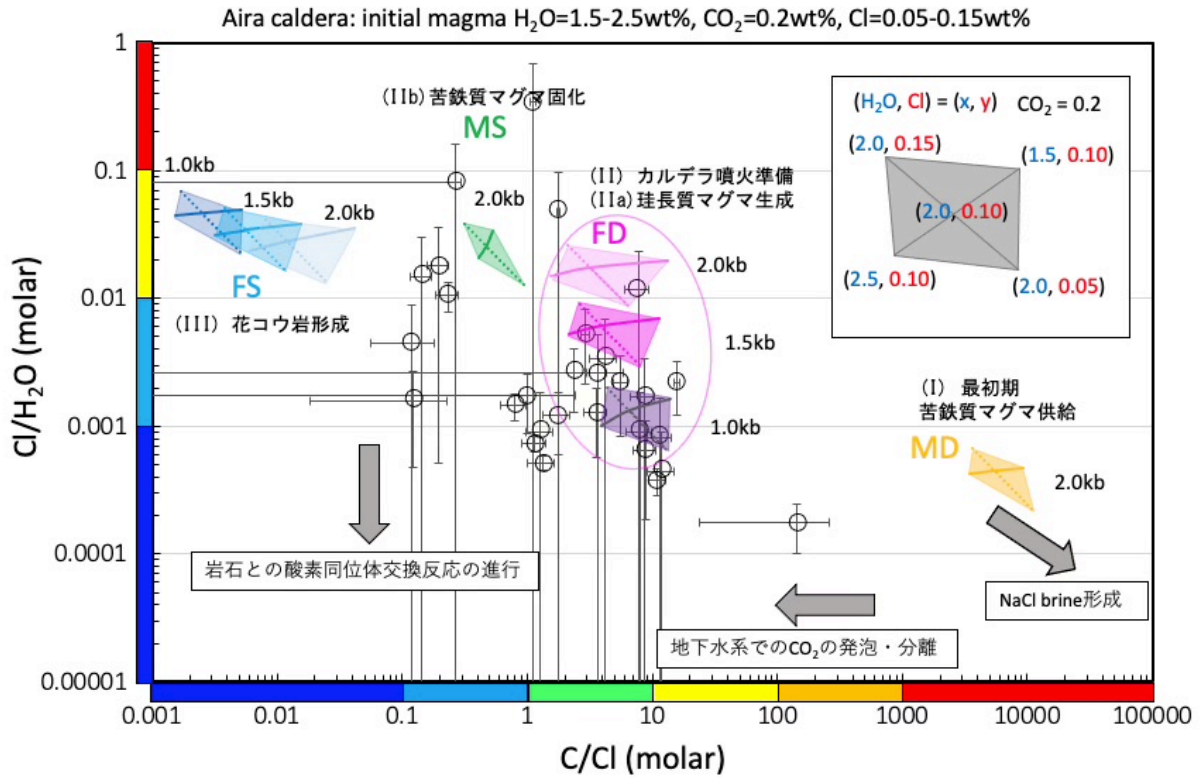


図 4.2.1-8 始良カルデラ周辺の地下水に含まれるマグマ起源の  $C/Cl$  及び  $Cl/H_2O$  比  
 図中に含まれる各種情報は、図 4.2.1-2 に示したものと同一。

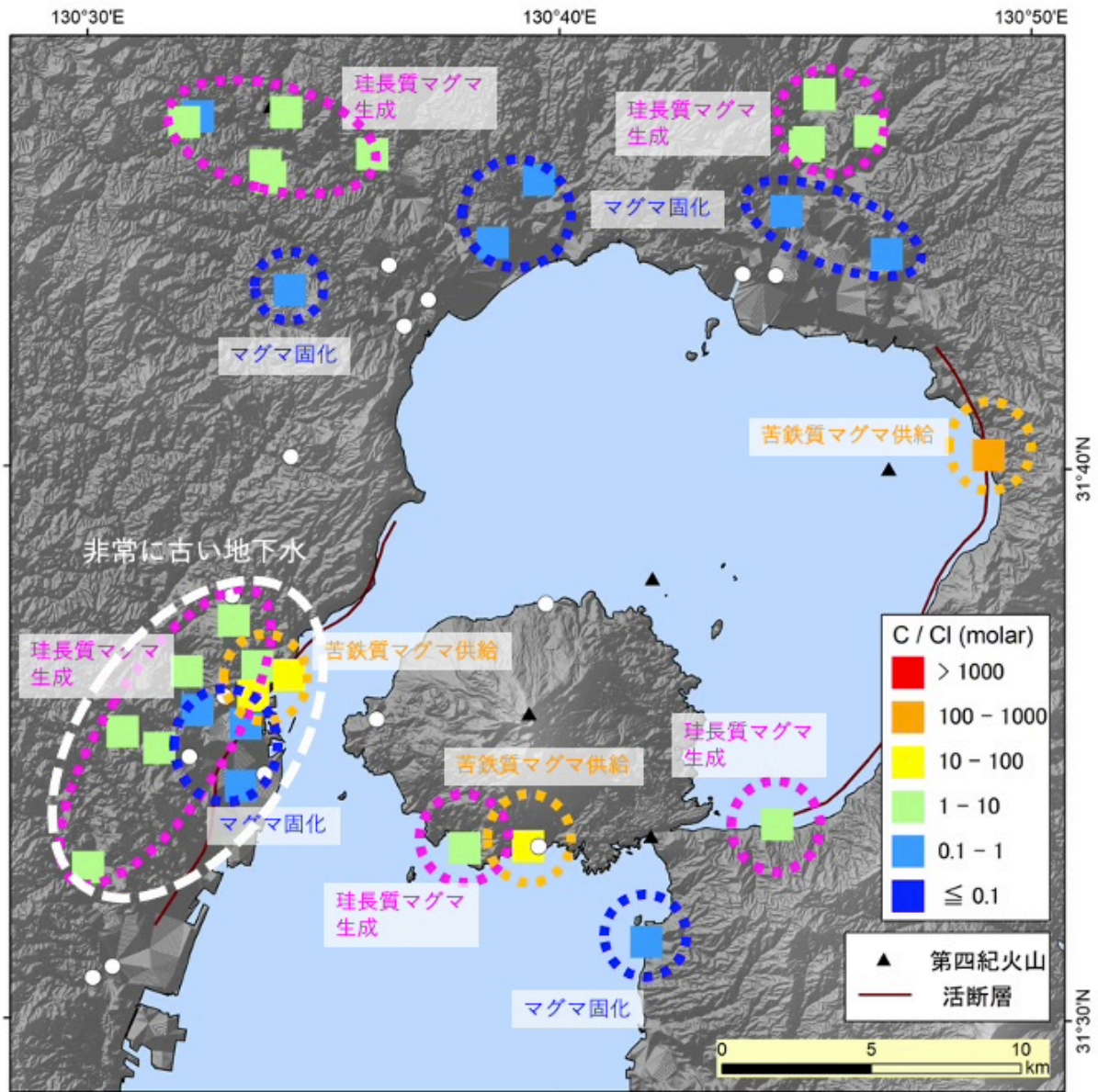


図 4.2.1-9 始良カルデラ周辺の地下水のマグマ起源 C/Cl 比の分布

色分けは、図 4.2.1-8 の横軸及び縦軸のカラーバーに対応する。想定されるマグマ溜まりの状態をマグマの状態を示す色の破線円で示した。白丸は精度が悪いため値を決定できなかった地点。白い波線円は 4.2.2 章で非常に古い地下水とされた地域を表す。断層の情報は産総研地質調査総合センター(2015)、第四紀火山は西来ほか(2012)、地形データは基盤地図情報(国土地理院)による。

#### 4-2) 十和田カルデラ

図 4.2.1-10 に始良カルデラ周辺の地下水に含まれるマグマ起源の C/Cl 比と Cl/H<sub>2</sub>O 比の関係を示した。3-1)節において、マグマ起源の Cl の寄与がわかった地下水地点数は 43 地点であったが、C/Cl 比が決定できた地点は 41 地点、Cl/H<sub>2</sub>O 比が決定できた地点は 35 地点で、C/Cl 比及び Cl/H<sub>2</sub>O 比の両方が決定できた 33 地点について図 4.2.1-10 に示している。本図には値が決定できても誤差が非常に大きい地点も示している。これらの誤差の大きな地点は、C/Cl で 2 地点、Cl/H<sub>2</sub>O で 8 地点である(図 4.2.1-10)。Cl/H<sub>2</sub>O 比の誤差は、主に、3-3-2)節で求めたマグマ

起源  $\text{H}_2\text{O}$  の割合を求める際の問題である。図中に表示されていないが、 $\text{C}/\text{Cl}$  比のみ決定できた地下水が 6 地点あり、 $\text{C}/\text{Cl} > 1$  の地下水が 3 地点（うち 1 地点は  $\text{C}/\text{Cl} > 100$ ）あった。1)節の図 4.2.1-2 に示したように、 $\text{C}/\text{Cl}$  値は 1 を境にしてマグマ供給・生成とマグマ固化を分ける特徴がある。図 4.2.1-10 では大部分の地点が  $\text{C}/\text{Cl} < 1$  であり、十和田カルデラ周辺では、マグマ固化に伴う熱水供給が多くあることがわかる。一方で、 $\text{Cl}/\text{H}_2\text{O}$  比の誤差が精度よく決められた地点において熱水が上昇する際に岩石と酸素同位体交換反応を起こしたと疑われる地点がほとんどである。以下、2)節に記述した適用上の注意点に留意した上で  $\text{C}/\text{Cl}$  比の地域分布を用いてマグマ溜まりの状況について考察を進める。

図 4.2.1-11 に十和田カルデラ周辺の  $\text{C}/\text{Cl}$  比の空間分布を示した。図 4.2.1-11 中の色は、図 4.2.1-10 のカラーバーに対応しており、マグマ溜まりの状態がわかるようにしている。本図は、図 4.2.1-10 で  $\text{C}/\text{Cl}$  比の誤差が非常に大きい 3 地点は本図には示していない。図 4.2.1-10 より、カラーに相当するマグマプロセスを図 4.2.1-11 に記入しおおまかにエリアを点線で囲って示した。

図 4.2.1-11 より、十和田カルデラ西部にデータが集中していることがわかる。既存の民間の温泉井戸等を調査しているため開発場所に偏りがある点は地下水データを利用する手法の欠点である。本図中の北部には八甲田火山が存在し、その周辺では珪長質マグマの生成、苦鉄質マグマの供給に対応する地域があることがわかる。十和田カルデラの周辺では、カルデラの西側に苦鉄質マグマの供給と珪長質マグマの生成を示す地域が存在する。この地域以外はすべて  $\text{C}/\text{Cl} < 1$  のマグマ固化に対応する。十和田カルデラ内は 1 地点のみのデータでマグマ固化を示しているが、湖底に温泉活動があることがわかっており、そのデータは含まれていない。カルデラ内の地域については、今後十和田湖水の調査を行い、評価すべきである。

データの不足しているカルデラ東部について考察するため、図 4.2.1-12 に河川水や  $\text{Cl}$  濃度の低い地下水も含めて、マグマ起源の  $\text{Cl}$  の混入指標になる  $\text{Br}/\text{Cl}$  比の空間分布を示す。海水の  $\text{Br}/\text{Cl}$  比は  $1.5 \times 10^{-3}$  であり、その値より小さい値を持つ水（図中の暖色系の地点）はマグマ起源の  $\text{Cl}$  を含んでいると考えられる。温泉水（大きな○）は、堆積岩の厚い北西部で  $\text{Br}/\text{Cl}$  比は高い値を示すが概ね低い  $\text{Br}/\text{Cl}$  比を示している。河川水などの  $\text{Cl}$  濃度が  $10 \text{ mg/L}$  以下のものを小さな○で示している。これらの非常に低い  $\text{Cl}$  濃度の地点もカルデラの全周にわたりほとんどが暖色系であり、マグマ起源の  $\text{Cl}$  を含んでいることがわかる。この原因として、十和田カルデラは陸上のカルデラ湖を形成しているため、湖水が漏水し地下水系を通過して外輪山の外側斜面で湧出していることを示していると考えられる。したがって、より詳細にマグマ溜まりの状態について空間的特徴を把握するためには、調査対象の地下水がどのように流動し、その場所に来たのかについて合わせて検討すべきであることを示している。

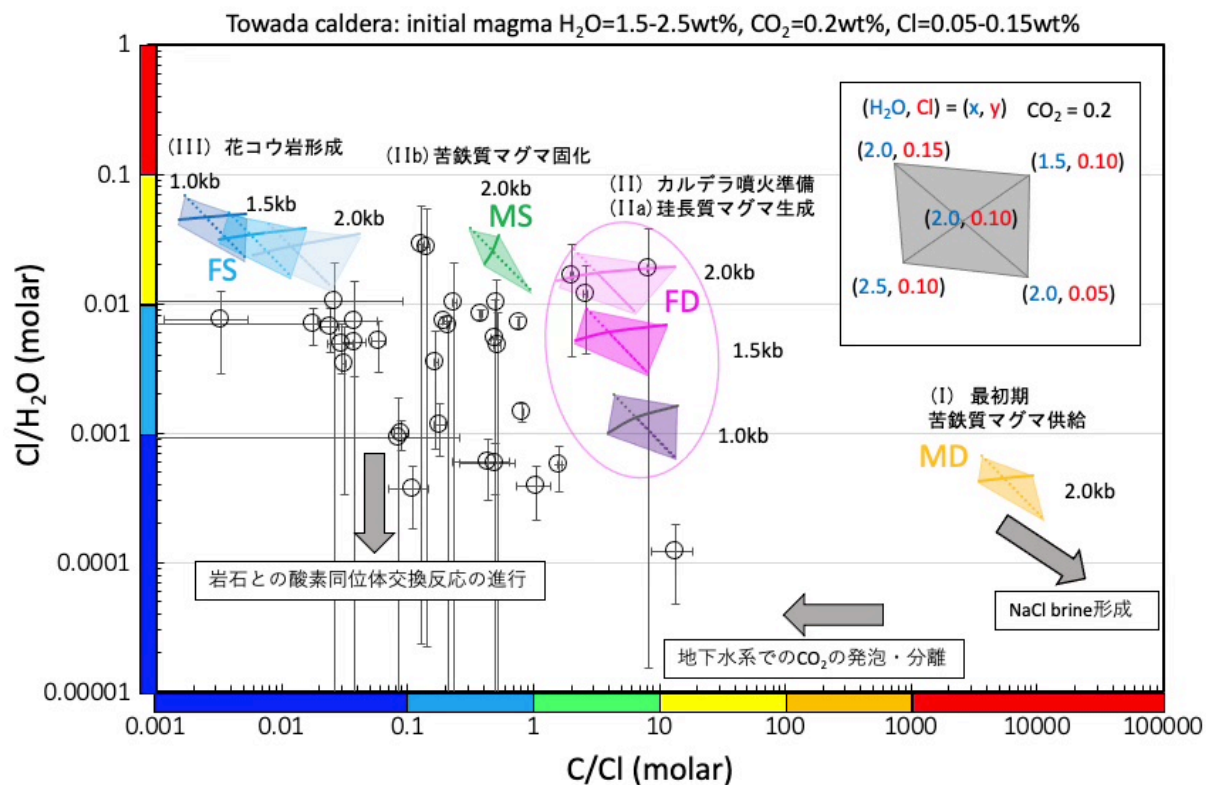


図 4.2.1-10 十和田カルデラ周辺の地下水に含まれるマグマ起源の  $C/Cl$  及び  $Cl/H_2O$  比  
 図中に含まれる各種情報は、図 4.2.1-2 に示したものと同一。

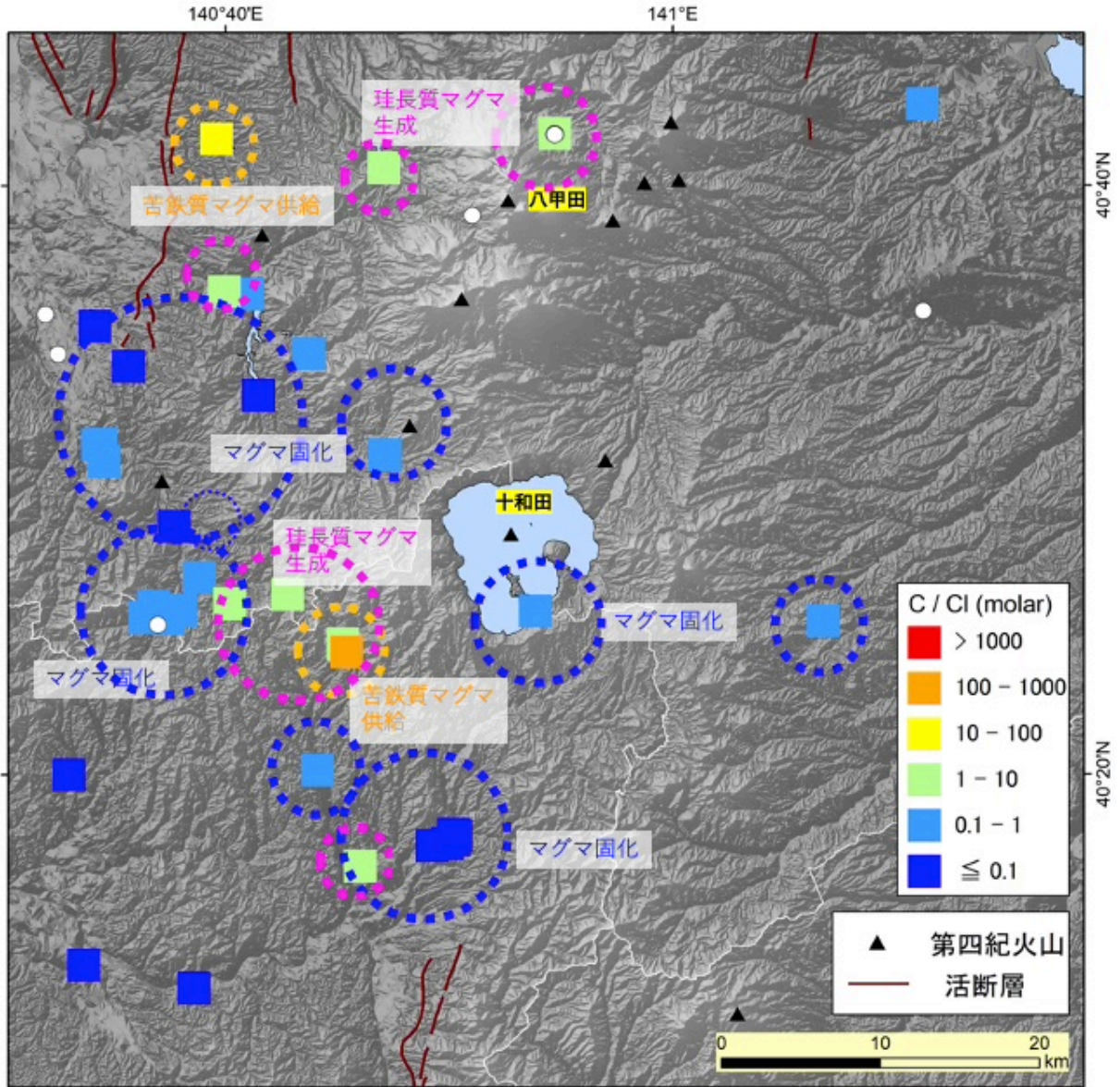


図 4.2.1-11 十和田カルデラ周辺の地下水のマグマ起源 C/Cl 比の分布

色分けは、図 4.2.1-10 の横軸及び縦軸のカラーバーに対応する。想定されるマグマ溜まりの状態を破線円で示した。白丸は精度が悪いため値を決定できなかった地点。断層の情報は産総研地質調査総合センター(2015)、第四紀火山は西来ほか(2012)、地形データは基盤地図情報(国土地理院)による。



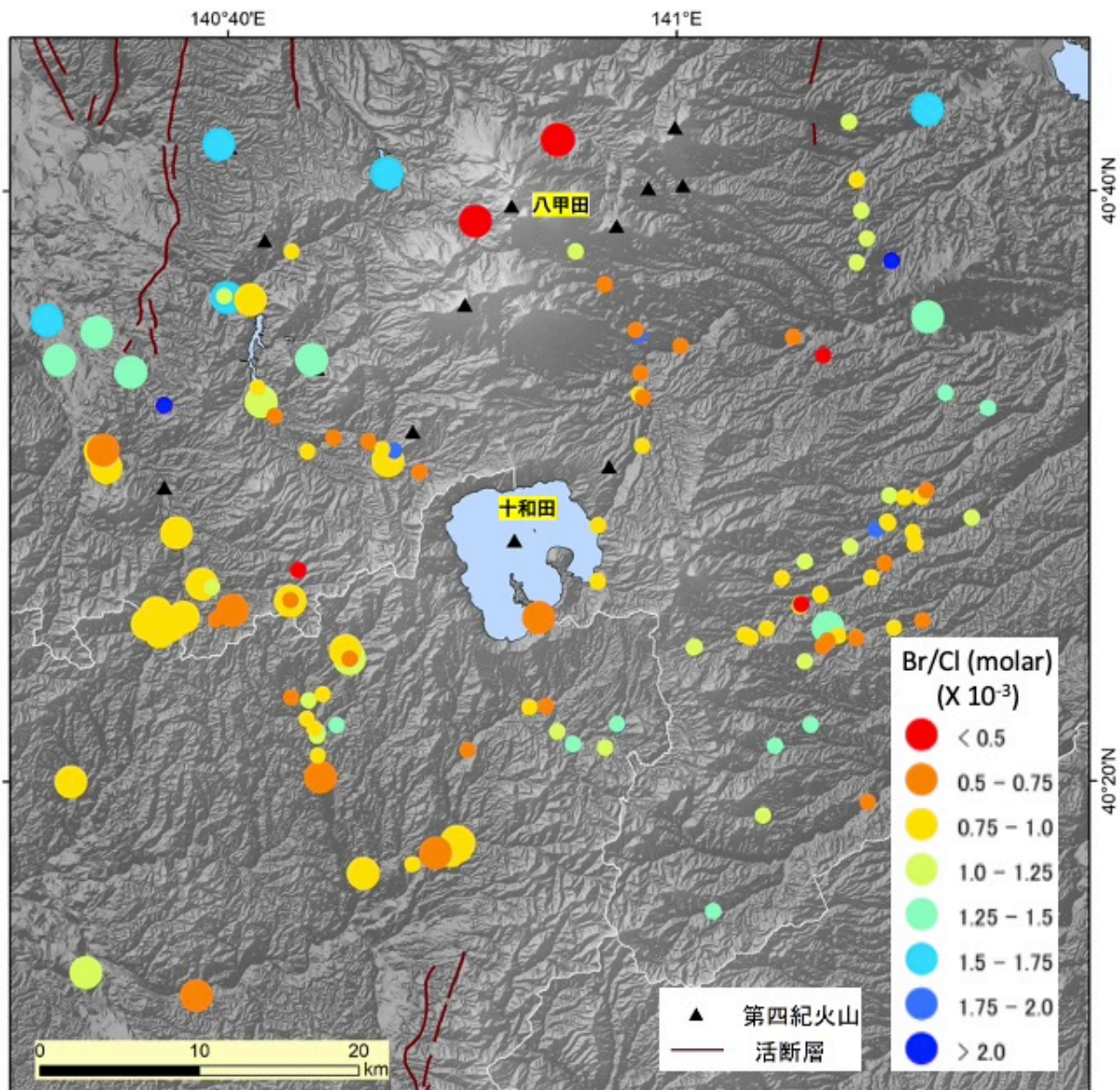


図 4.2.1-12 十和田カルデラ周辺の地下水、河川水等の Br/Cl 比の分布

Cl 濃度が 10 mg/L 以下の主に天水起源と考えられる地下水、湧水、河川水は小さい○で示し、C/Cl-Cl/H<sub>2</sub>O 法で用いた温泉水を大きな○で示した。通常の山岳地域の河川水は海塩の影響で海水の Br/Cl 比( $1.5 \times 10^{-3}$ )に近い値を示すが、十和田カルデラ周辺では非常に低い値である。断層の情報は産総研地質調査総合センター(2015)、第四紀火山は西来ほか(2012)、地形データは基盤地図情報(国土地理院)による。

##### 5) 鬼界カルデラのマグマ熱水システムの検討：海底湧水の調査・解析手法

鬼界カルデラは海没カルデラであり、北縁に薩摩硫黄島と竹島、そして 1934 年に海底噴火により誕生した昭和硫黄島がある。薩摩硫黄島の硫黄岳からマグマ起源ガスを活発に放出している(Shinohara et al., 1993)。薩摩硫黄島には、淡水レンズから採取する飲用の浅井戸と自然湧出の温泉がある。昨年度までは既存の地下水データを用いて C/Cl 法等の適用を試み、島内の地下水・温泉水においてマグマ起源成分を検出することができていたが、そのマグマ起源成分が、マグマ溜まりから直接もたらされているものか、火山ガス成分が地下水に作用したものかについて

検討を行なっていなかった。1)章で最初に述べたように、C/Cl法あるいはC/Cl-Cl/H<sub>2</sub>O法により、マグマ溜まりの状態を把握するには、深部のマグマ溜まりから放出された熱水が関与する地下水を用いなければならない。また、海没カルデラであるため、地下水の採取は島内に限られることになり、マグマ溜まりの状態を把握するにはデータが少ないことが問題であった。このような海没カルデラ火山において、地下水を用いたC/Cl法等の手法の適用性を評価するため、今年度は薩摩硫黄島、昭和硫黄島の海底において湧出する温泉水・ガスに調査範囲を広げ調査を行った。海底湧出地下水からマグマ起源成分の検討を行うためには、採取・解析手法をまず構築する必要があった。本節では、海底の地下水及びガスの湧出状況に応じて構築した海底地下水の採取法を示し、採取した地下水に含まれるマグマ起源成分の検討を行う。

### 5-1) 海底湧出水の採取・分析法

本年度の調査において、①長浜湾における海底コアの採取、および②東温泉沖・昭和硫黄島沖における海底湧出ガスおよび水の採取を行った。それぞれサンプリング位置を図4.2.1-13に示す。

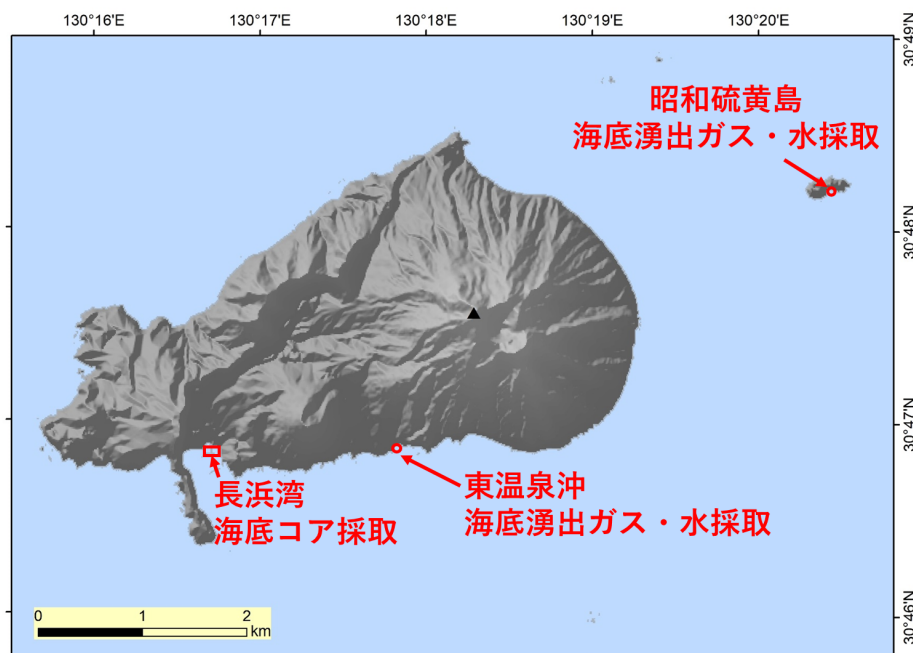


図 4.2.1-13 海底コアおよび海底湧出ガス・水の試料採取位置

第四紀火山は西来ほか(2012), 地形データは基盤地図情報(国土地理院)による。

#### ① 長浜湾海底コア間隙水の採取方法

長浜湾では、海底から温泉水が湧出していることが知られている(Kiyokawa et al., 2021)。長浜湾においては、海水が温泉の成分により茶褐色となっており、海底付近での視界が非常に悪いため、温泉水の湧出場所は潜水時に手探りで温度の高い場所を探した。18地点(2021年7月に3ヶ所, 11月に15ヶ所)で透明な塩化ビニル製のパイプ(長さ1m, 内径3~4cm)をハンマーで海底堆積物中に打ち込み、堆積物コア試料を採取した。長浜湾内ではガス(気泡)は見つからなかった。水深は1.5~3m程度であった。コア採取位置および海底面の温度を図4.2.1-14に

示す。堆積物コア試料は、実験室にて下部から 10 cm または 20 cm おきに切り分け、ピストン式の圧縮容器に封入した。圧縮容器は、油圧ポンプ (SMP-3012SK, 理研精機株式会社) および油圧シリンダ (MS1-150, 理研精機株式会社) を用いて段階的に加圧し (抽出圧力 2.5~15 MPa) , 抽出した水を全量回収して 1 試料とした。



図 4.2.1-14 長浜湾における海底コア採取位置および海底面の温度

青点：7月採取位置，赤点：11月採取位置．海底面の温度は11月調査のみで計測し，図中に示した．

航空写真は Google Earth Pro を利用して取得した．

## ② 東温泉沖・昭和硫黄島沖における海底湧出ガスおよび水の採取方法

東温泉沖 (1カ所) , 昭和硫黄島 (2カ所, Site 1 および Site 2) において, 海底湧出ガスおよび水の試料を採取した。水深は, 東温泉沖で約 3 m, 昭和硫黄島沖 Site 1 で約 4 m, Site 2 で約 5 m であった。試料採取位置を図 4.2.1-15 に示す。東温泉沖も昭和硫黄島沖も海底は溶岩塊が多く, 長浜湾のように 1 m のパイプによるコア採取は不可能であった。どちらも CO<sub>2</sub> ガスが気泡となって温泉水とともに湧出していた。湧出成分の C/Cl 比を求めるためには温泉水と同時に湧出するガスも採取する必要がある。今回は湧出するガスと水について, その組成とフラックスをそれぞれ調べることにより, 湧出成分の解析を行った。本調査では, 大小 2 種類のロートを海底面に設置し (図 4.2.1-16 a, b) , 一定時間ごとにロート内の水を 50 ml ずつ採取した (以下, 連続採水試料と呼ぶ)。湧出水とロート内の海水が適切に置き換わるよう, 採水時以外はロート上部のバルブは開放した状態にした。湧出するガスの量が少ない東温泉では小ロートを用い, ガス量が多い昭和硫黄島沖では大小二つのロートを用いた。小ロートを用いた場合は湧出ガスをロート内に溜め, 最後の水試料の採取直後にロート内のガスをシリンジで採取した。大ロートを用いた場合は湧出ガスをロート上面からチューブを用いてポリタンクに導入し, 一定時間に溜まったガス量を記録した。昭和硫黄島沖ではガス量が多かったため, 海底から湧き出した直後

のガスを直接ボトルに封入してガス組成分析用の試料とした。また、海底湧出水の組成を調べるため、ロート脇の海底面にシリンダーを突き刺し、シリンダー上部を開放した状態で一定時間放置した後に、シリンジを用いてシリンダー内の水を採取した（以下、海底直接サンプルと呼ぶ）（図 4.2.1-16 c）。

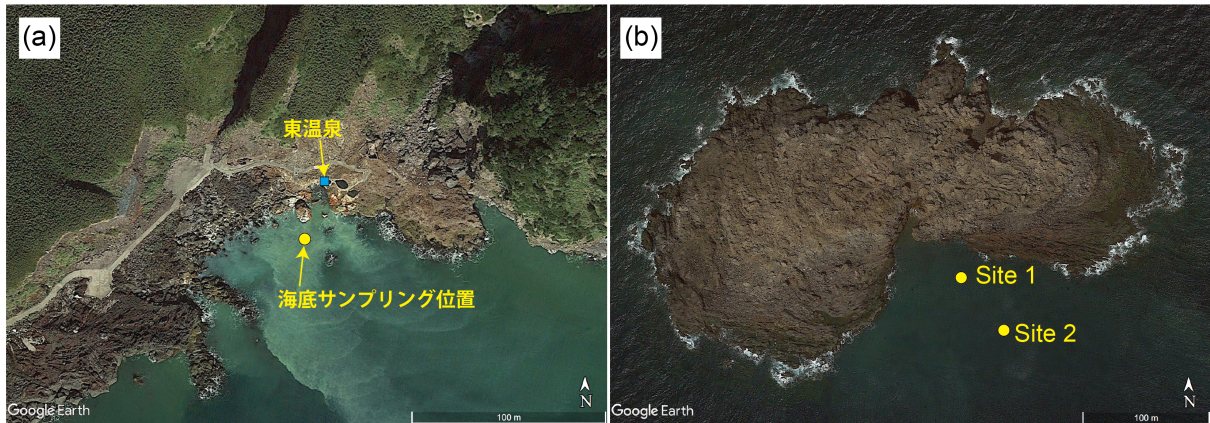


図 4.2.1-15 東温泉沖(a)および昭和硫黄島沖(b)における海底湧出ガス・水採取位置  
 図中に東温泉の湧水採水位置も示した(a)。航空写真は Google Earth Pro を利用して取得した。

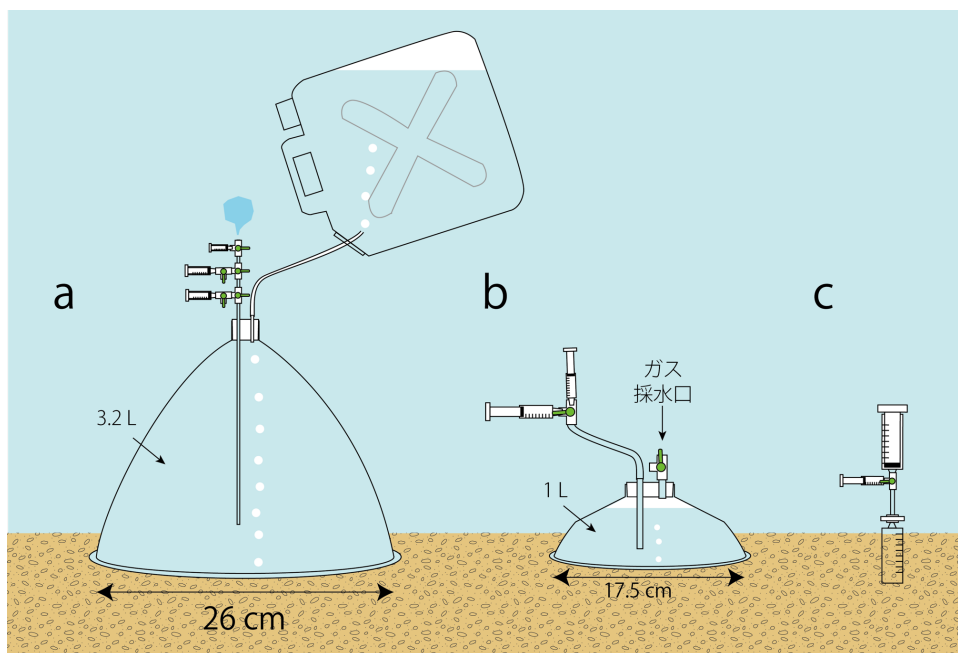


図 4.2.1-16 海底湧出ガス・水の試料採取方法模式図。(a) 大ロートを用いた場合、(b) 小ロートを用いた場合、(c) 海底に直接シリンダーを設置した場合

各方法で得られた水試料は、それぞれ主要成分をイオンクロマトグラフィー法、ヨウ素濃度を誘導結合プラズマ質量分析計により分析した。酸素同位体比は、安定同位体比質量分析計（Delta V Advantage, Delta Plus, サーモフィッシャーサイエンティフィック株式会社）で分析を行なった。水素・酸素同位体比は波長スキャンキャビティリングダウン分光法（L2120-i,

Picarro 社) で測定したが、2021 年 11 月の試料については装置故障のため分析できなかった。ガス試料はガスクロマトグラフィー法を用いてガス組成分析を行った。

## 5-2) 海底湧出水のマグマ起源成分

### ① 長浜湾における海底湧出水

長浜湾にて 2021 年 11 月に採取した 15 地点のコアについては、分析装置に問題を生じたため水の水素同位体比( $\delta D$ )が測定できていない。 $\delta D$  は非常に重要なデータであるが、今回は暫定的に、 $\delta D$  を用いる解析は 2021 年 7 月の採取コアデータのみを用いて行う。

長浜湾の海底コア試料および長浜湾の海底湧水（以下、長浜湧水）の Br 濃度と Cl 濃度の関係を図 4.2.1-17 に示す。硫黄島近海の海水と硫黄島の天水起源の地下水との間に海底コア試料のデータが並び非常にきれいな関係があるようにみえる。より詳細にみると Cl 濃度の低濃度側と高濃度側では、相関の傾きが少し異なっていることがわかる。図 4.2.1-17 に Cl 濃度 < 6,000 mg/L 及び Cl 濃度 > 12,000 mg/L のデータを用い、それぞれの線形近似一次式を求めた。相関係数が非常によいことがわかる。この 2 直線の交点を求めて端成分 X とした。端成分 X は Cl 濃度が 9,700 mg/L、Br 濃度が 33 mg/L と求められる。図 4.2.1-17 の関係から、Cl 濃度 > 9,700 mg/L のコア間隙水は、海水と端成分 X の混合、また、Cl 濃度 < 9,700 mg/L のコア間隙水は、地下水(淡水)と端成分 X の混合と仮定することができる。

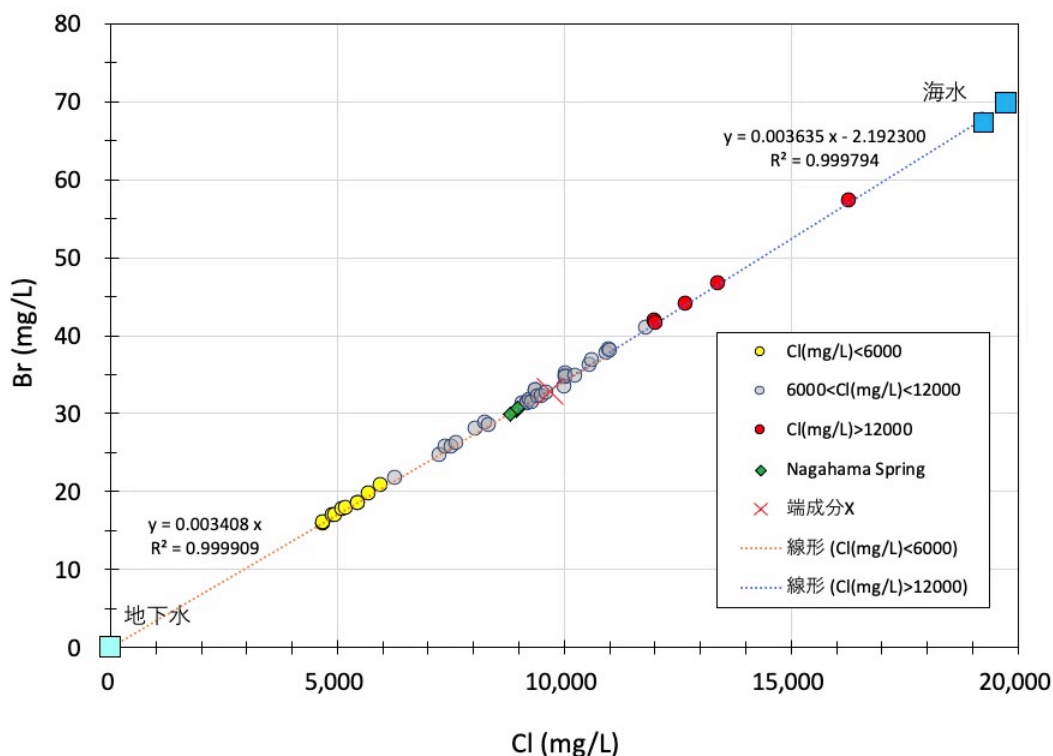


図 4.2.1-17 薩摩硫黄島における長浜湾コア試料，長浜湧水，海水，地下水の Br 濃度と Cl 濃度の関係

Cl 濃度が 6,000 mg/L 及び 12,000 mg/L を境に色分けしている。Cl 濃度 < 6,000 mg/L 及び Cl 濃度 > 12,000 mg/L のデータでそれぞれ相関（一次式近似）を示し、交点を端成分 X とした。

次に、長浜湾の海底コア試料および長浜湧水の  $\delta D$  と  $\delta^{18}O$  の関係を図 4.2.1-18 に示す。長浜湾コア試料のうち 2021 年 11 月に採取した試料は  $\delta D$  データが得られていないので、2021 年 7 月に採取した試料のデータのみ用いて解析を進める。図 4.2.1-17 の場合と同様に、本図においても  $\delta^{18}O$  値が  $-2$  ‰ を境にして端成分 X と海水あるいは地下水と混合関係がある。2 つの近似直線の相関係数は、Br-Cl の関係よりも小さくなっている。この 2 直線の交点を求めて端成分 X とした。端成分 X は  $\delta D$  値が  $-15$  ‰、 $\delta^{18}O$  値が  $-2.1$  ‰ と求められる。図 4.2.1-18 の関係から、 $\delta^{18}O > -2$  ‰ のコア間隙水は、海水と端成分 X の混合、また、 $\delta^{18}O < -2$  ‰ のコア間隙水は、地下水(淡水)と端成分 X の混合と仮定することができる。

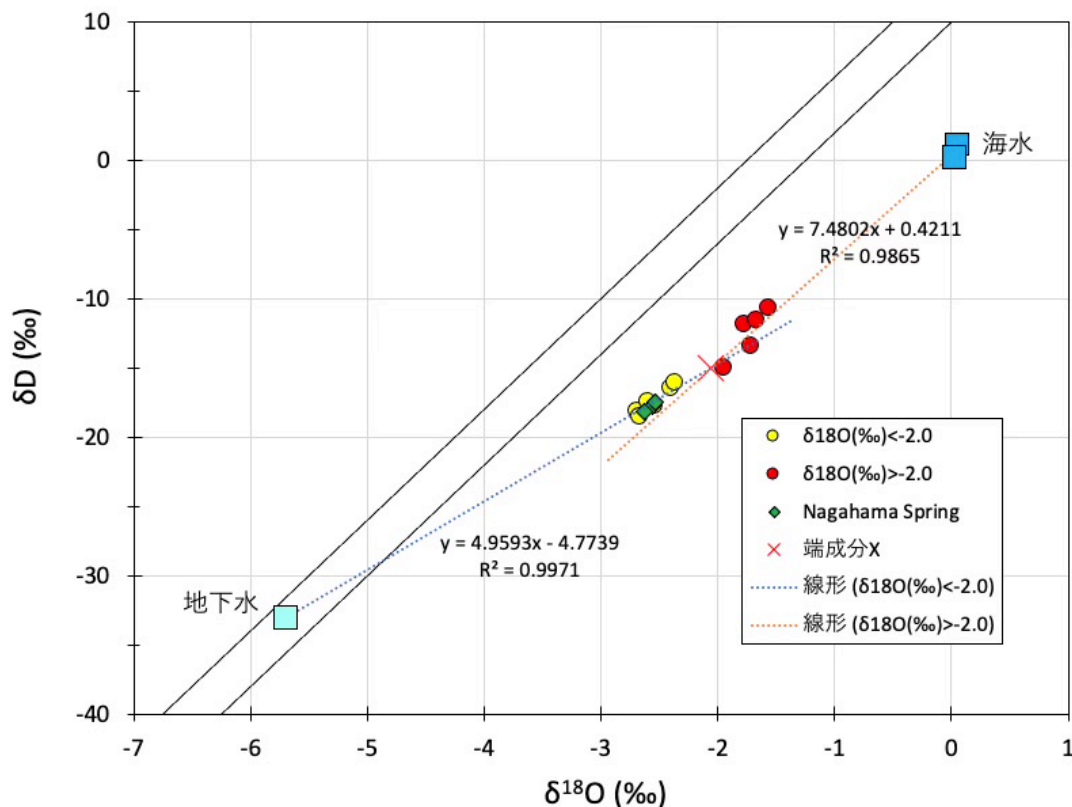


図 4.2.1-18 薩摩硫黄島における長浜湾コア試料（2021 年 7 月採取のみ），長浜湧水，海水，地下水の  $\delta D$  と  $\delta^{18}O$  の関係

$\delta^{18}O$  値が  $-2$  ‰ を境に色分けしている。 $\delta^{18}O < -2$  ‰ 及び  $\delta^{18}O > -2$  ‰ のデータでそれぞれの相関（一次式近似）を示し、交点を端成分 X とした。2 本の直線は、天水線の最大と最小を示す。

さらに、図 4.2.1-18 の範囲を広げ、マグマ水の端成分を示したのが図 4.2.1-19 である。本図より、端成分 X はマグマ水、海水、地下水の 3 つの水の混合であると考えられる。マグマ水の値は、Shinohara et al. (1993) による硫黄岳山頂の  $877^{\circ}C$  の高温火山ガス(Parental gas)の同位体比を用いた。3 つの混合端成分の  $\delta D$ 、 $\delta^{18}O$  値がわかっているので、端成分 X の  $\delta D$ 、 $\delta^{18}O$  値から端成分 X の 3 成分混合比率を求めることができ、マグマ水 = 4 %、海水 = 54 %、地下水 = 42 % となった。ここで海水、端成分 X および地下水の Cl 濃度がわかっているので、端成分 X の混合比率とこれらの Cl 濃度を用いて、マグマ水の Cl 濃度を  $8,000$  mg/L と決定した。

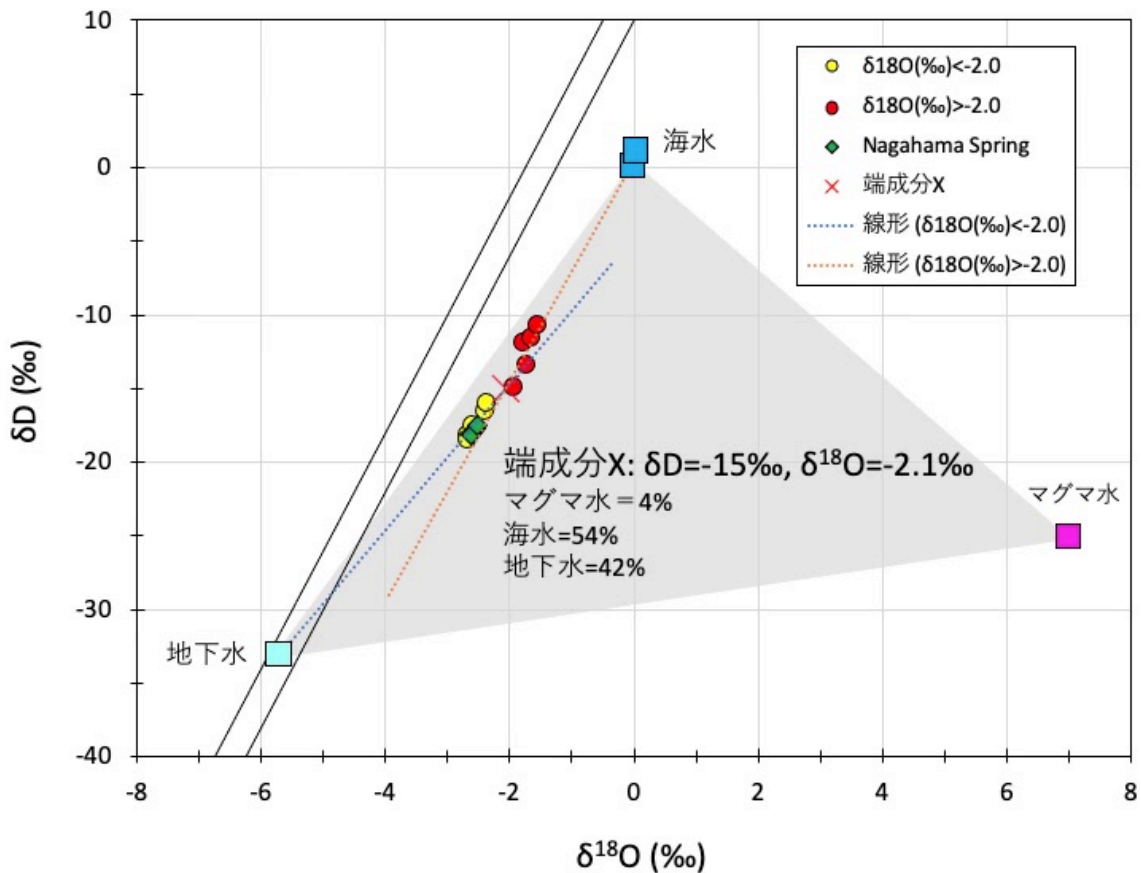


図 4.2.1-19 薩摩硫黄島における海水、地下水とマグマ水の  $\delta D$  と  $\delta^{18}O$  の関係

図 4.2.1-18 にマグマ水の同位体組成(Shinohara et al., 1993)を加え、端成分 X の同位体組成( $\delta D = -15 \text{ ‰}$ ,  $\delta^{18}O = -2 \text{ ‰}$ )を用いて混合比率を求めた (本文参照) . 灰色の領域は、3 成分の混合範囲を示す. 2 本の直線は、天水線の最大と最小を示す.

次に、長浜湾の海底コア試料および長浜湧水の  $\delta^{18}O$  と Cl 濃度の関係を図 4.2.1-20 に示す. 図 4.2.1-17 の場合と同様に 2 つの近似直線を求めた. 本図においては Cl 濃度が 10,600 mg/L を境にして端成分 X と海水あるいは地下水と混合関係がある. この 2 直線の交点を求めて端成分 X とし、その Cl 濃度が 10,600 mg/L,  $\delta^{18}O$  値が -1.9 ‰ と求められる. この値は、Br と Cl 濃度の関係から独立に求められた端成分 X の Cl 濃度 = 9,700 mg/L, および  $\delta D$  と  $\delta^{18}O$  の関係から求められた端成分 X の  $\delta^{18}O = -2.1 \text{ ‰}$  とよく一致している.

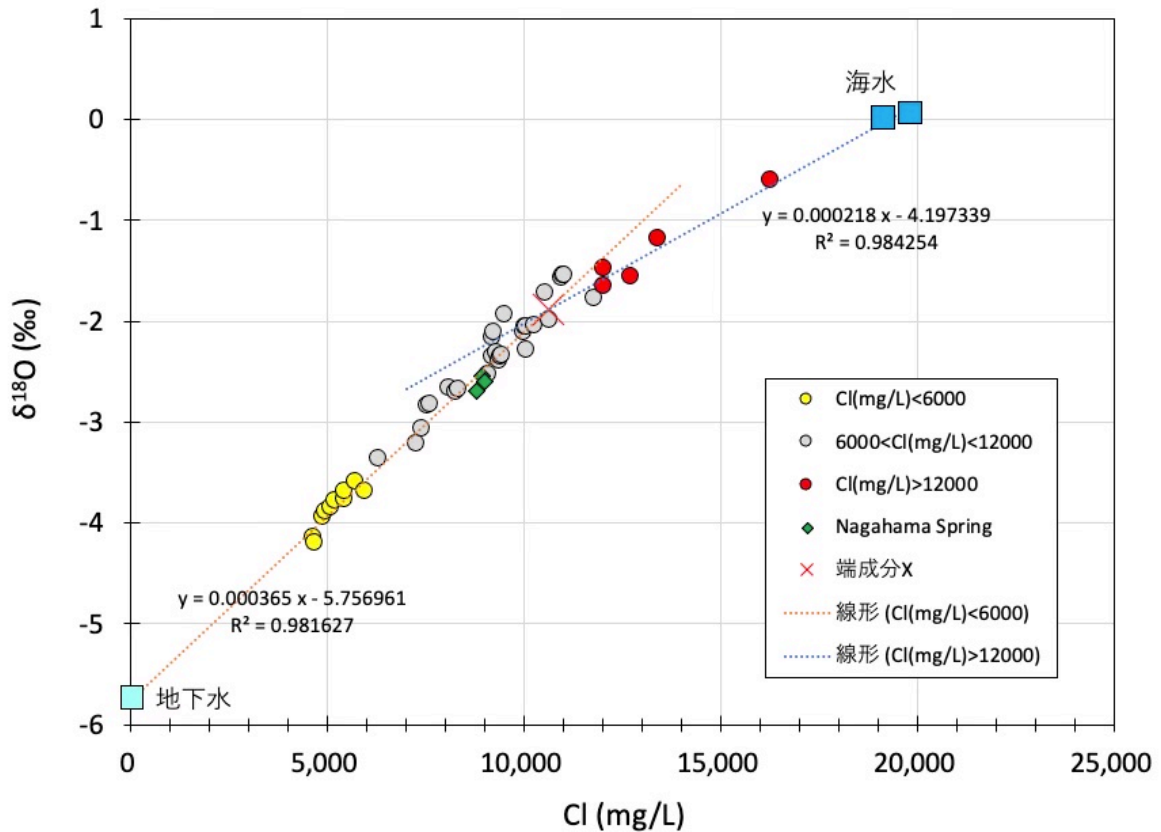


図 4.2.1-20 薩摩硫黄島における長浜湾コア試料，長浜湧水，海水，地下水の Cl 濃度と  $\delta^{18}\text{O}$  の関係

Cl 濃度が 6,000 mg/L 及び 12,000 mg/L を境に色分けしている． Cl 濃度 < 6,000 mg/L 及び Cl 濃度 > 12,000 mg/L のデータでそれぞれ相関（一次式近似）を示し，交点を端成分 X とした．

さらに，図 4.2.1-20 の範囲を広げ，マグマ水の端成分を示したのが図 4.2.1-21 である．マグマ水の Cl 濃度は，前述したように 8000 mg/L とした．本図より，端成分 X はマグマ水，海水，地下水の 3 つの水の混合であると考えられ，3 つの混合端成分の Cl 濃度， $\delta^{18}\text{O}$  値がわかっているため，端成分 X の Cl 濃度， $\delta^{18}\text{O}$  値から端成分 X の 3 成分混合比率を求めることができ，マグマ水 = 6 %，海水 = 53 %，地下水 = 41 % となった．この混合比率は，図 4.2.1-19 で  $\delta\text{D}$  及び  $\delta^{18}\text{O}$  を用いて求めた比率（マグマ水 = 4 %，海水 = 54 %，地下水 = 42 %）とよく一致している．以上から，端成分 X は，これらの平均値としてマグマ水 = 5 %，海水 = 54 %，地下水 = 43 % とする．



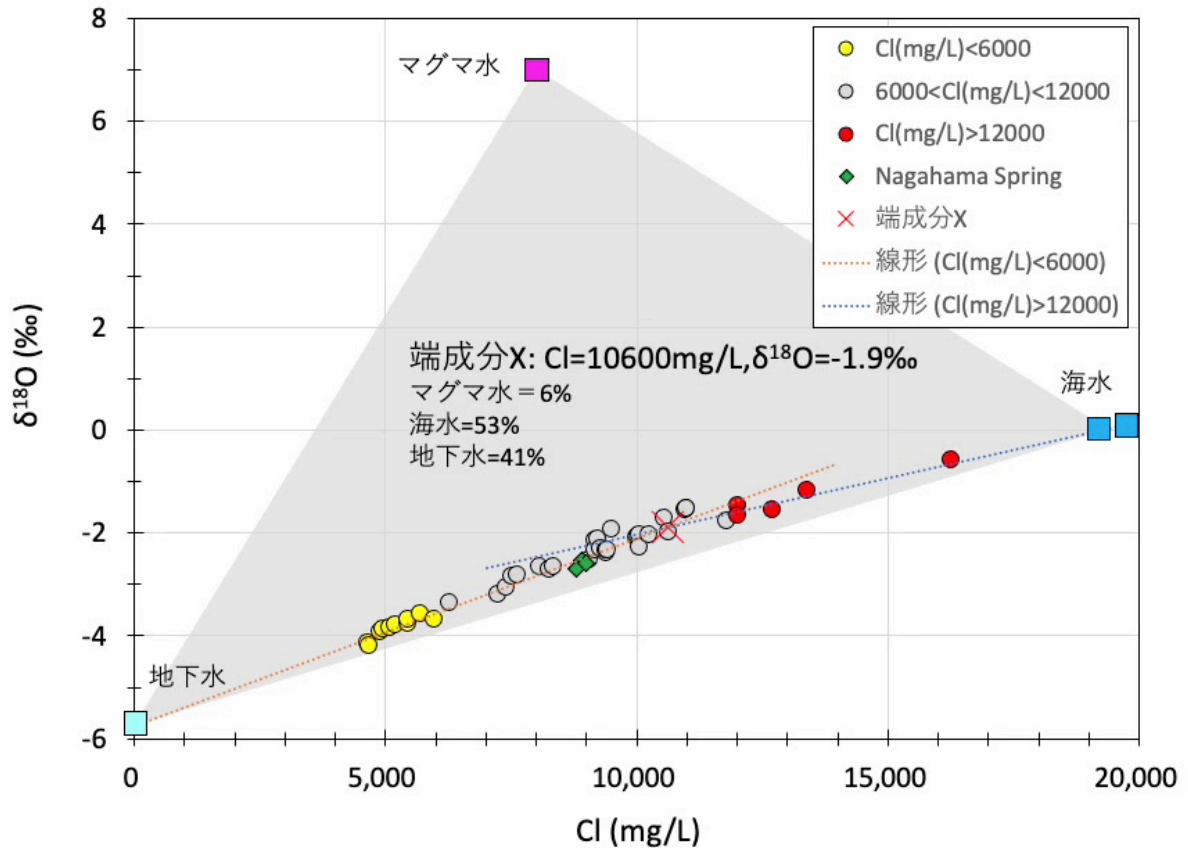


図 4.2.1-21 薩摩硫黄島における海水，地下水とマグマ水の  $\delta D$  と  $\delta^{18}O$  の関係

図 4.2.1-20 にマグマ水の端成分 ( $Cl$  濃度 = 8,000 mg/L,  $\delta^{18}O = +7 \text{ ‰}$ ; 本文参照) を加え，端成分 X の  $Cl$  濃度， $\delta^{18}O$  値を用いて 3 成分の混合比率を求めた (本文参照)．灰色の領域は，3 成分の混合範囲を示す．

これまでコア間隙水について検討してきた結果をまとめると，長浜湾に湧出する端成分 X と名付けた温泉水は，マグマ水(5%)，海水(53%)，地下水(42%)が混合してできたもので， $Cl$  濃度 < 10,000 mg/L のコア間隙水では，地下水と端成分 X の混合， $Cl$  濃度 > 10,000 mg/L のコア間隙水では，海水と端成分 X の混合したものと仮定することができる．図 4.2.1-22 に長浜湾のコア採取場所に合わせて，コア間隙水が  $Cl$  濃度 > 10,000 mg/L の場合と  $Cl$  濃度 < 10,000 mg/L の場合について色分けして空間分布を示した．長浜湾は本図の南側に海があり北側～東側より地下水が流入している場所である．コア間隙水の  $Cl$  濃度が低い場所は，岸に近い陸側で地下水の流入の受けやすい場所にあるように見える．逆に海側 (南側) は  $Cl$  濃度が高い．以上から，端成分 X の温泉水は，長浜湾全域で湧出しているが，陸側で淡水と混合し，海側では海水と混合していると解釈できる．

以上の結果を，図 4.2.1-23 に模式的にまとめる．海洋島である薩摩硫黄島は島内に降った天水により涵養される地下水層が淡水レンズとして存在し，その下位には海水が侵入していると考えられる．稲村岳の地下から上昇したマグマ起源熱水は淡水レンズと海水の境界で水平流動し長浜湾に湧出すると想定している．マグマ起源熱水は，海水と地下水により希釈され端成分 X の組成となり流動し，長浜湾において海底から湧出するが，陸側の海底ではさらに地下水に希釈され，海側の海底では，さらに海水を混合する．

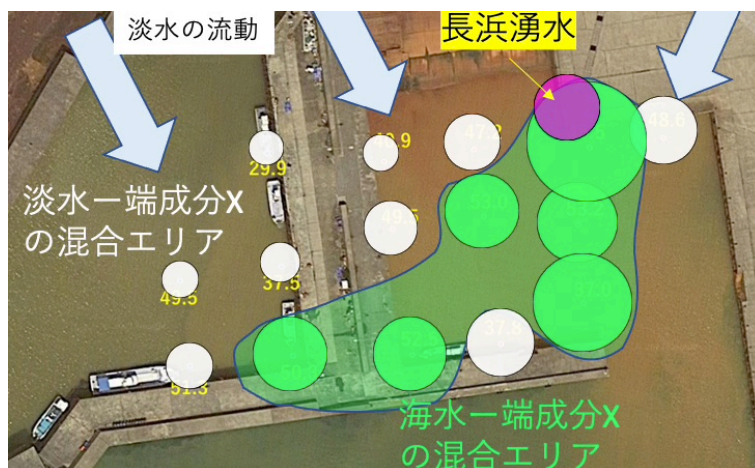


図 4.2.1-22 長浜湾におけるコア間隙水の Cl 濃度分布

○の大きさはその直径で Cl 濃度を表し, Cl 濃度 > 10,000 mg/L を緑色, Cl 濃度 < 10,000 mg/L を白色で示した. また, 長浜湧水は紫色で示している. 地下水(淡水)は北～東方面から流入する. 南側は海である.

図 4.2.1-14 を改変しデータを載せた.

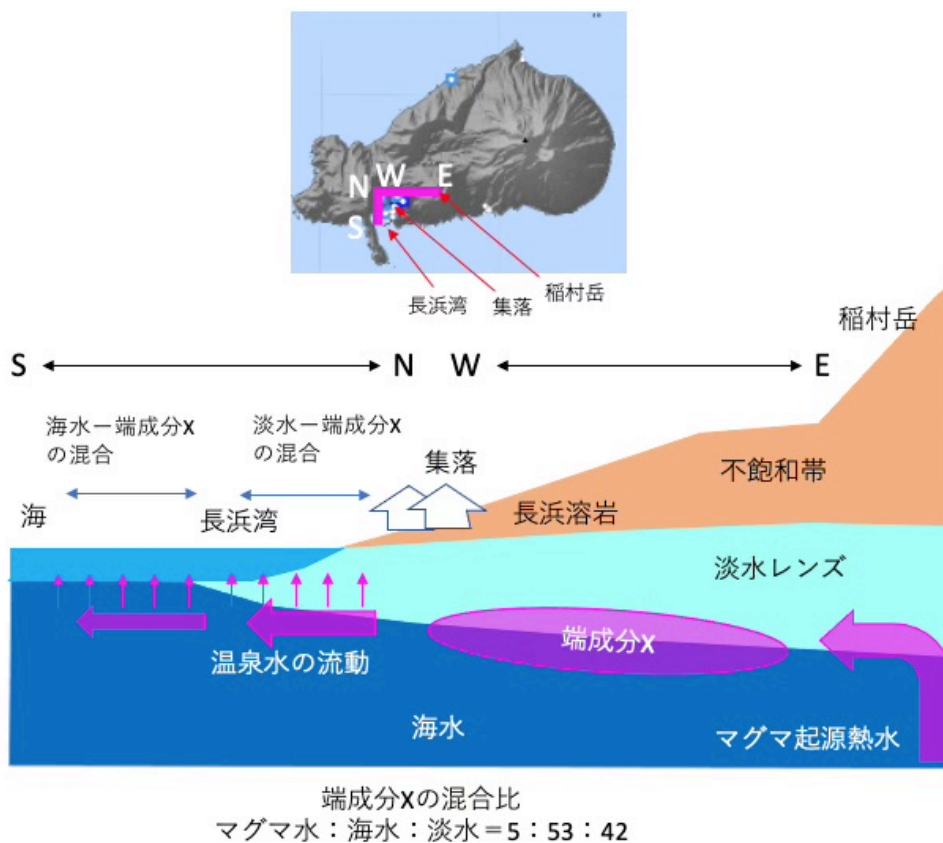


図 4.2.1-23 長浜湾に湧出する温泉水の模式図

断面は地下水流動を考慮し, 上図の E-W と N-S に沿ったものとして概念的に示した. 地形データは基盤地図情報 (国土地理院) による.

## ② 東温泉沖海底湧出水・ガス

東温泉沖の海底湧出水及びガスは、小ロートを用いて 65 分間の連続採水を行った。海底直接サンプルはロート脇 1 カ所で採取した。採取した連続採水試料および海底直接サンプルの pH, Cl, Br, I 濃度を図 4.2.1-24 に示す。設置時、ロート内は海水で満たされている状況である。時間と共に pH は低下、Cl 濃度、Br 濃度は減少、I 濃度は増加しており、海底から湧出する熱水は海水と比較して低い pH、Cl 濃度、Br 濃度および高い I 濃度を持つことが分かった。連続試料の採取位置から北側約 30 m の位置（陸域）に東温泉が湧出している。東温泉は pH 2 程度の強酸性を示し、水質の形成に火山ガスが関与している可能性が高い。また、温泉水の湧出口では遊離ガスが認められない。酸素水素同位体比（図 4.2.1-25）からは東温泉がマグマ水と天水起源の地下水の混合でできた水で、天水成分を多く含んでいることが分かる。東温泉と海底湧出水の連続採取試料の Br 濃度と Cl 濃度は直線関係にあり、海底湧出水は東温泉と海水が混合した水であると考えられるため(図 4.2.1-26 a)、海底湧出水は火山ガスが関与したマグマ起源成分を含んでいると考えられ、マグマ溜まりの情報を得るには不適當であることがわかった。

なお、東温泉と連続試料の I 濃度と Cl 濃度の関係では直線関係はない。この原因は以下のような理由が考えられる。ヨウ素や臭素は火山ガス中で HI や HBr として存在する（例えば Aiuppa et al., 2005; Bureau et al., 2016）。また、酸性の酸化的環境では、ヨウ素は揮発性の高い化学形態 I<sub>2</sub> になりやすい（Fuge and Johnson, 2015）。地下では、天水・海水・マグマ水の混合や、これらの水とガスが関与する反応が起きていると考えられ、各プロセスでのハロゲンの分配を明らかにするのは容易ではないが、低 pH の東温泉でヨウ素が揮発して欠乏している可能性や、ロート内でガス中のヨウ素が水中へ溶解している可能性が考えられる。

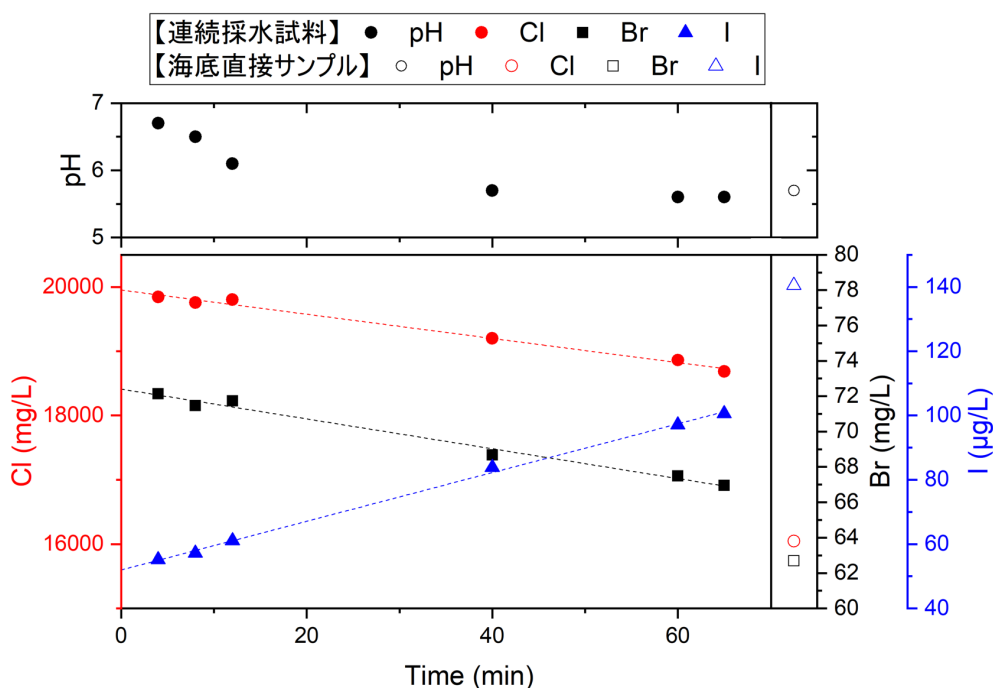


図 4.2.1-24 東温泉沖：連続採水試料および海底直接サンプルの pH およびハロゲン濃度経時変化

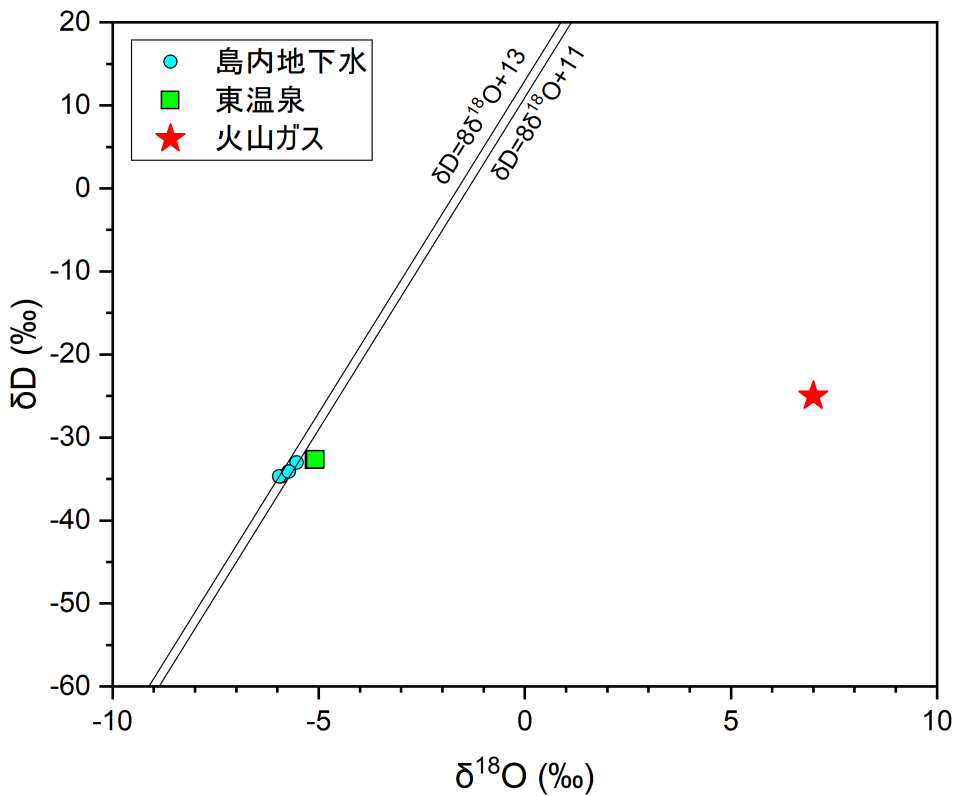


図 4.2.1-25 東温泉，島内地下水，火山ガスの酸素水素同位体比  
火山ガスは Shinohara et al. (1993)による．図中に天水線を示した．

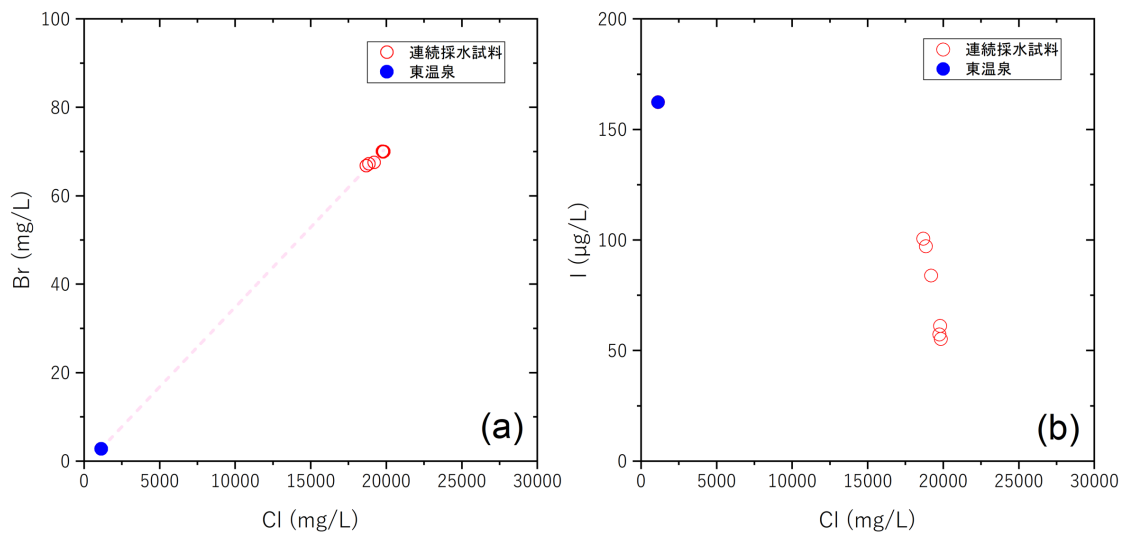


図 4.2.1-26 東温泉沖：連続採水試料と東温泉の(a) Br 濃度と Cl 濃度の関係，  
(b) I 濃度と Cl 濃度の関係

次に、完全混合タンクモデル（図 4.2.1-27）を仮定して、連続採水試料の Cl 濃度経時変化を用いて、以下の 2 式より、海底湧出水の流量を求めた。

$$1 - (C(t) - C_i) / (C_m - C_i) = \exp(-t/t_{1/2}) \quad (1)$$

$$t_{1/2} = V/v \quad (2)$$

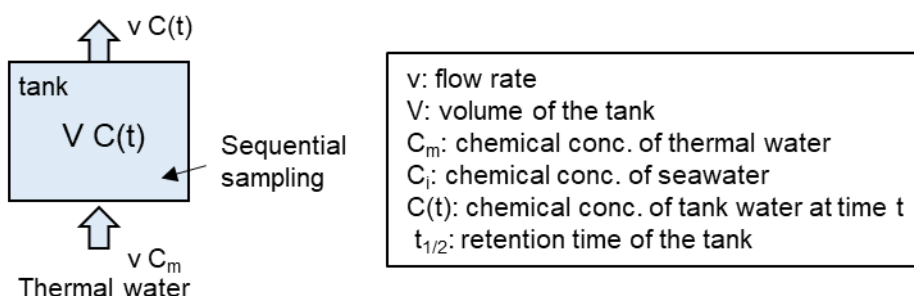


図 4.2.1-27 完全混合タンクモデルの概念図

海底湧出水に含まれるマグマ起源成分は東温泉と同じと考えられるので、 $C_m$ として東温泉の塩素濃度を仮定して解析したところ、最小二乗法を用いて算出した海底湧出水の流量  $v$  は 1 ml/min であった（図 4.2.1-28）。また、連続試料採取時に計測したガスの流量は 3.1 ml/min、回収したガス試料の主要成分は  $\text{CO}_2$  72.7%、 $\text{N}_2$  26.3%、 $\text{O}_2$  0.7% であった。

本来は海底湧出水の同位体組成を用いて、マグマ起源水の割合を検討すべきところであるが、 $\delta D$  値が決定できていないので、今回は海底湧出水に含まれるマグマ起源水が東温泉のものと同じと仮定してもとめる。東温泉のマグマ水の割合は、図 4.2.1-25 から  $4 \pm 1\%$  で、東温泉の Cl が全てマグマ起源と仮定すると、Cl/ $\text{H}_2\text{O}$  比は  $0.013 \pm 0.003$  となる。また、マグマ起源 Cl の流量は 1.1 mg/min、 $\text{CO}_2$  の流量は 2.2 ml/min であるので、水中に溶存した炭素量を無視すると、 $C/\text{Cl}=2.7$  と求めることができる。今回調査対象とした東温泉沖の海底湧出水に含まれるマグマ起源成分は、前述したように火山ガスが関与したマグマ起源成分であり、 $C/\text{Cl}-\text{Cl}/\text{H}_2\text{O}$  法を適用できないが、本節で示した採取・解析法は、海底湧出水のマグマ起源成分の組成を求めることができるため、海没あるいは海底カルデラの調査に有効であると考えられる。

以上より、東温泉沖の海底湧水は、東温泉の温泉水と同じ起源を持つと考えられる。東温泉は強酸性であり、山体内に侵入した火山ガス成分が凝縮して生成、あるいは、山体の天水起源の宙水（地下水）に火山ガスが吹き込んで生成した火山性熱水が山体内を流下し海岸で湧出していると考えられる。東温泉沖の海底湧水は山体内を流下した同じ火山性熱水が海底に湧出したものであろう。東温泉との違いとしては、海底湧水が  $\text{CO}_2$  主体の気泡を含むことである。陸上に湧出する東温泉水は、強酸性で海面より 3 m ほど上に湧出しているが、湧出前に  $\text{CO}_2$  は脱ガスしてしまっている可能性が考えられる。この場合は、 $C/\text{Cl}$  比などを扱う場合は、海底湧水の方がより適切であることを示している。以上の結果を図 4.2.1-29 に模式図として示す。

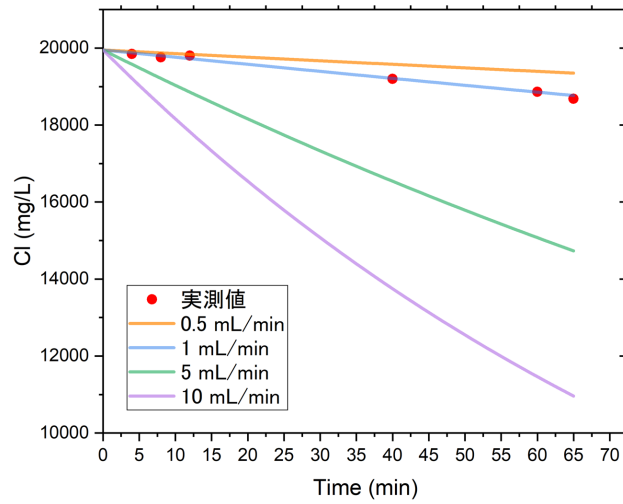


図 4.2.1-28 完全混合タンクモデルを用いた場合の Cl 濃度経時変化理論曲線と実測値の関係  
 流量  $v$  が 0.5, 1, 5, 10 mL/min の場合の理論曲線を示した。

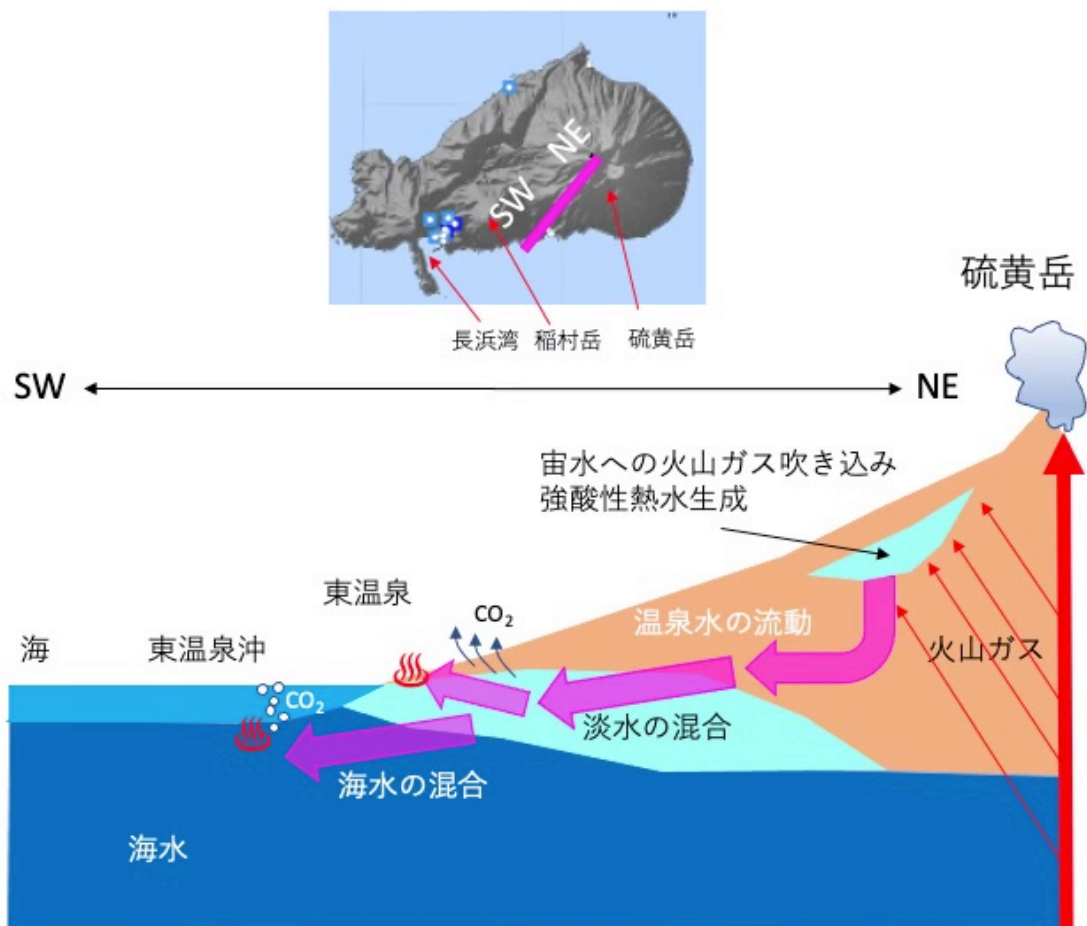


図 4.2.1-29 東温泉沖の海底湧水の模式図

断面は地下水流動を考慮し、上図の SW-NE に沿った断面を概念的に示した。地形データは基盤地図情報（国土地理院）による。

### ③ 昭和硫黄島沖海底湧出水・ガス

昭和硫黄島沖では、Site 1 および Site 2 において中ロートと小ロートを用いた計 4 回の連続採水を行った。Site 1 と Site 2 は 50 m 程度離れている。昭和硫黄島沖にはガスが豊富に湧出しており、ガスが溜まる速度が速かったため、連続採水時間は 15~25 分間とした。また、海底直接サンプルは、各 Site でロート脇の二カ所に設置した。連続採水試料および海底直接サンプルの Cl, Br, I 濃度を図 4.2.1-30 に示した。海底直接サンプルは二つの試料で濃度にバラつきがあり、湧出水の水みちあるいは流量が不均一であると考えられる。昭和硫黄島においては、海底直接サンプルの Cl 濃度の低い方を湧出水の  $C_m$  として完全混合タンクモデルによる湧出水の流量を推定した（図 4.2.1-31）。Site 1 の二回の連続採水から求めた湧出水の平均流量  $v$  は 0.18 L/min, 連続試料採取時に計測したガスの平均流量は 0.06 L/min であった。同様に、Site 2 では湧出水の平均流量  $v$  は 0.13 L/min, ガスの平均流量は 0.02 L/min であった。ガス成分分析用の試料は、昭和硫黄島沖で 1 試料のみを採取しており、主要成分は CO<sub>2</sub> 95.9%, N<sub>2</sub> 2.9%, O<sub>2</sub> 0.9% であった。今回、採取水の  $\delta D$  値を用いることができず、湧出水に含まれるマグマ起源水の組成について検討ができていない。しかしながら、海底直接サンプルの Cl 濃度は海水よりも明らかに低い値を示しており、混合しているマグマ起源成分の Cl 濃度は海水よりも低いことが推定される。原理的には、 $\delta D$ ,  $\delta^{18}O$  値と Cl やその他の濃度変化から、マグマ起源水の端成分が決定できる。

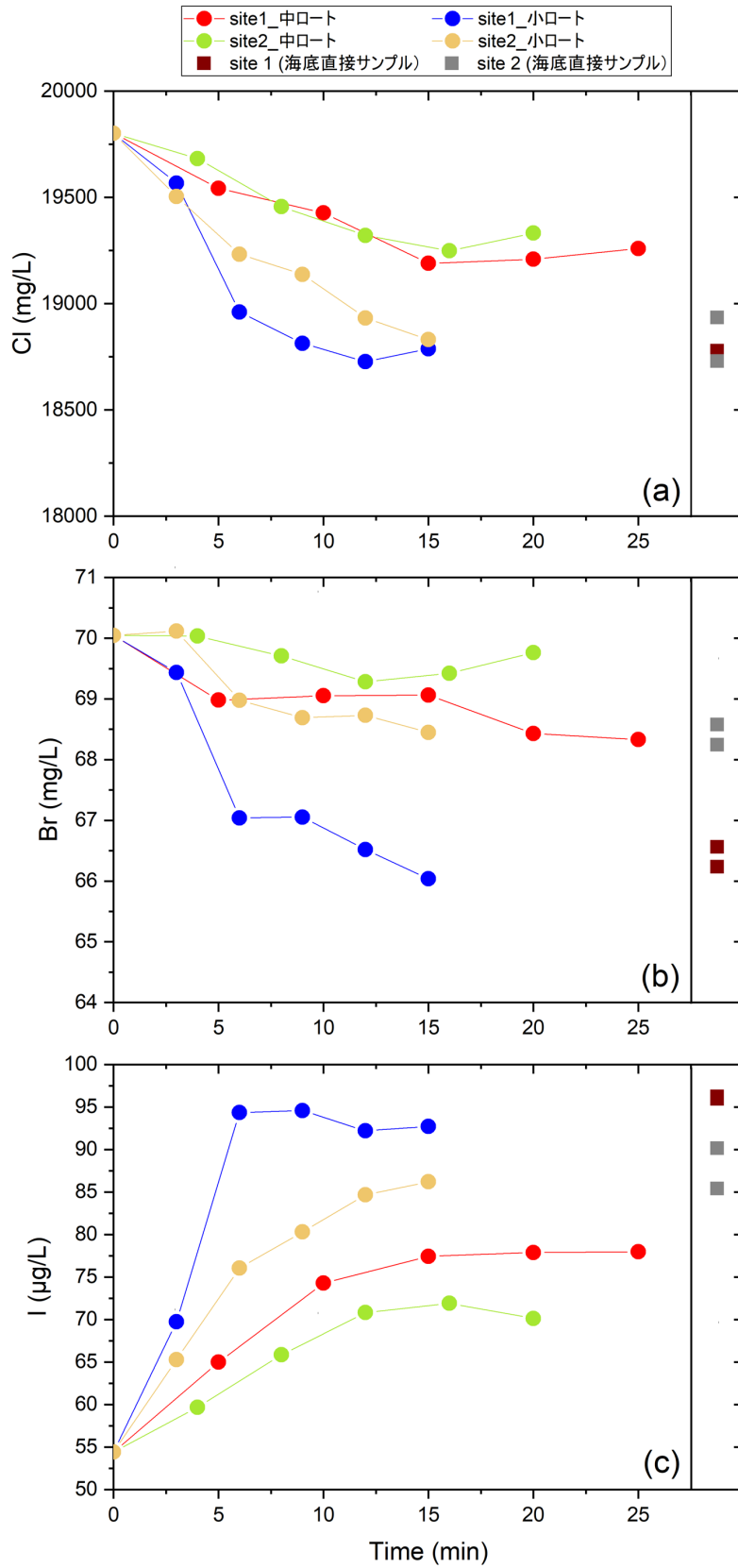


図 4.2.1-30 昭和硫黄島沖：連続採水試料および海底直接サンプルのハロゲン濃度経時変化  
(a) 塩素濃度, (b) 臭素濃度, (c) ヨウ素濃度



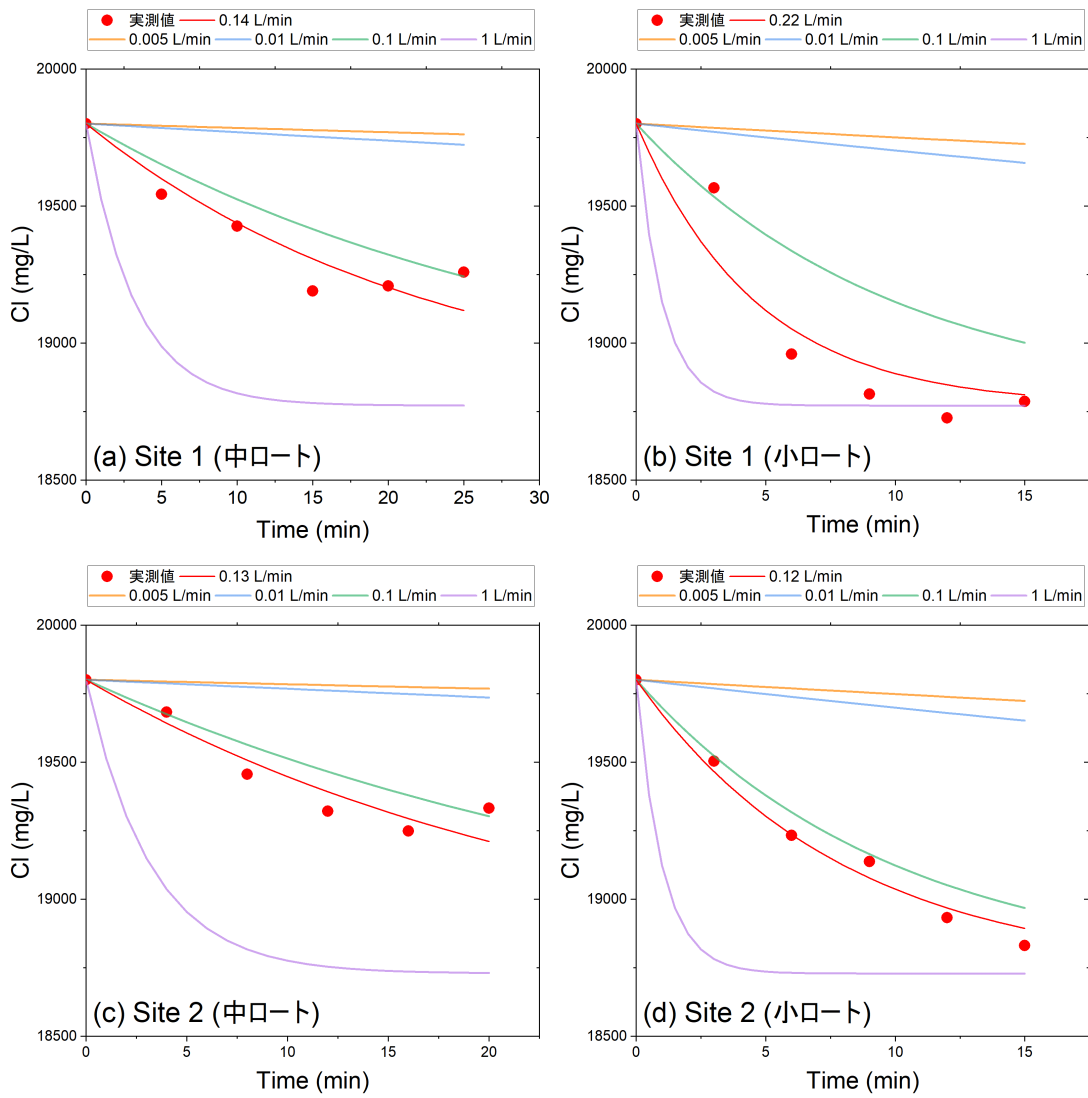


図 4.2.1-31 完全混合タンクモデルを用いた場合の Cl 濃度経時変化理論曲線と実測値の関係  
 昭和硫黄島沖 Site 1 の(a)中ロート, (b)小ロート, Site 2 の(c)中ロート, (d)小ロートの場合.  
 流量  $v$  が 0.005, 0.01, 0.1, 1 L/min の場合および最小二乗法で算出した流量  $v$  の場合 (赤線) の理論曲線を  
 示した.

### 5-3) C/Cl 及び Cl/H<sub>2</sub>O 比に関する考察

前節において、東温泉沖の海底湧水は、硫黄岳山頂から放出される火山ガスが関与したものと考えられるため、マグマ溜まりの情報は持っていないとしている。ただし、求められた C/Cl 比 (= 2.7) と Cl/H<sub>2</sub>O 比 (= 0.014) は、火山ガスが関与した場合の値の例として有益な情報といえる。Shinohara et al. (1993) による硫黄岳火口の 877°C の火山ガスは、C/Cl = 0.5~2.9 及び Cl/H<sub>2</sub>O = 0.002~0.007 である。海底湧水から推定した結果と整合的であり、図 4.2.1-29 の模式図を支持する。

長浜湾においては、マグマ水の端成分の Cl 濃度が、長浜湾の海底コアを用いた解析により 8,000 mg/L と求められているので、Cl/H<sub>2</sub>O 比 (mol 比) は 0.004 となる。

C/Cl 比はマグマ水端成分の Cds 濃度がわかれば求められる。図 4.2.1-32 に海底コア間隙水及び長浜湧水に含まれる Cds 濃度 (マグマ起源炭素濃度) と Cl 濃度の関係を示した。コア間隙水の Cds 濃度は Cl 濃度と無関係にばらついている。この原因は、抽出した間隙水の pH が 3.5-5.3 であり、マグマ起源の炭素種は主に CO<sub>2</sub> として存在しているため、コア運搬中~抽出までの間に脱ガスした可能性が高いと考えられる。一方で、海中の岸壁の隙間から 52°C で湧出する長浜湧水は水試料として直接採取したもので、pH = 5.5 で Cds 濃度 (70 mg/L) が最も高く、3 試料とも同様の安定した値を示した。以下に、長浜湧水を用いて C/Cl 比を求める。長浜湧水は、図 4.2.1-19 の  $\delta D$ ,  $\delta^{18}O$  の関係を用いて端成分 X の混合比率を求めたのと同様の手法でマグマ水、海水、地下水の混合割合を求めることができる。結果は、マグマ水 = 4.4 %、海水 = 44 %、地下水 = 51 % であった。Cds が全てマグマ水からくるものとする、マグマ水の Cds/H<sub>2</sub>O 比は 0.0024 となり、マグマ水の Cl 濃度が 8,000 mg/L であるから C/Cl 比は 0.56 と求められる。長浜湾に湧出するマグマ起源成分がマグマ溜まりから上昇してきた熱水に由来する場合は、この C/Cl 比と Cl/H<sub>2</sub>O 比はマグマ溜まりの状況を反映する。その場合は C/Cl < 1 であることから、苦鉄質マグマの固化に関与する熱水であることになる。しかし、pH が最も高かった長浜湧水も pH 5.5 の弱酸性であり、炭素種は CO<sub>2</sub> が卓越する。湧出する前に CO<sub>2</sub> が脱ガスする可能性を否定できない。長浜湾の温泉水の C/Cl 比 (= 0.56) と Cl/H<sub>2</sub>O 比 (= 0.004) は、前節で求めた東温泉沖の C/Cl 比 (= 2.7) と Cl/H<sub>2</sub>O 比 (= 0.014) とはかなり異なるが、もし、長浜湾の湧出水が流動中に CO<sub>2</sub> 脱ガスして C/Cl 比が下がっているのであれば、C/Cl 比がさらに高い可能性がある。

今回は一部データがそろっていないため、昭和硫黄島に関して考察することができなかった。また、東温泉沖の海底湧水は、火山ガスに関係している可能性が高いこと、長浜湾の海底湧水は苦鉄質マグマの固化に関係する可能性があるが断定できないことがわかった。今回の調査結果は、海没カルデラにおいても、海底湧水を採取・分析することにより、海水の影響を排除し、マグマ起源成分の C/Cl 比、Cl/H<sub>2</sub>O 比を決定できることを示した点で意義あるものと考えられる。鬼界カルデラの外輪山 (矢筈岳) の外側にも海底湧水が存在し、これまでに調査されたことがない。火山ガスの影響を受けていない可能性があり、今後の調査候補として適切である。

最後に、Kazahaya et al. (2002) によれば、火山ガスと火山岩のメルトインクルージョンの研究により、鬼界カルデラのマグマ溜まりは下位に玄武岩質マグマが供給され、上位にある高温の流紋岩質マグマにガス成分を供給している。そのガス成分は硫黄岳から大量放出されている。その

結果マグマ溜まりでは大量の玄武岩マグマが脱ガスし、分化及び固化していると考えられている。鬼界カルデラにおいては、図 4.2.1-1 及び図 4.2.1-2 に示したモデルとそれに基づく C/Cl, Cl/H<sub>2</sub>O 比の理論的結果をマグマ溜まりの脱ガス作用も含めたモデルに修正した上で議論すべきであり、今後の課題としたい。

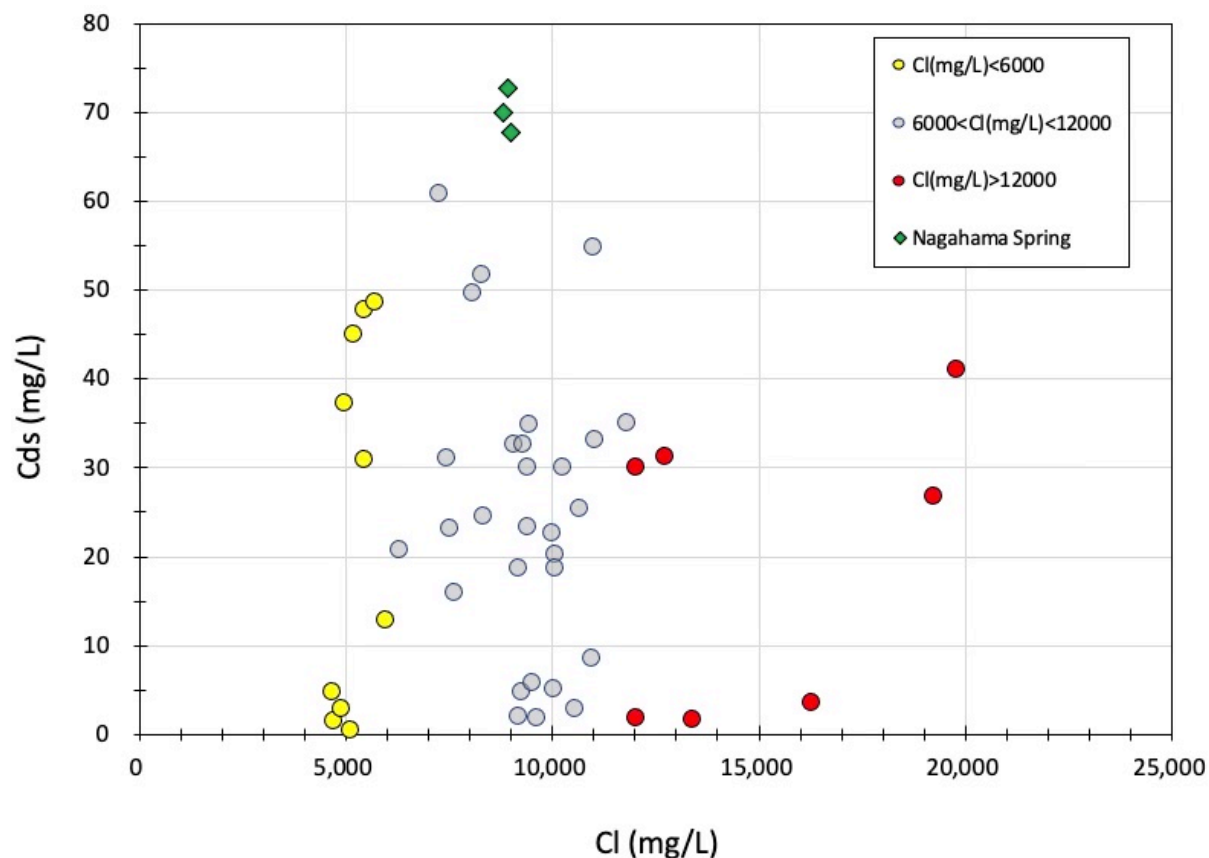


図 4.2.1-32 薩摩硫黄島における長浜湾コア試料，長浜湧水の Cl 濃度と Cds（マグマ起源炭素）濃度の関係

Cl 濃度が 6,000 mg/L 及び 12,000 mg/L を境に色分けしている。

#### 4.2.2 放射性塩素同位体比 ( $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比)・ $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比を用いた手法の検討

##### 始良カルデラへの適用性について

阿蘇カルデラなど陸上カルデラにおいてカルデラ火山深部にあるマグマの種別判定法として放射性塩素同位体比 ( $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比) を用いた手法を提案してきた (産総研, 2018; 2019)。産総研 (2020; 2021) では、この手法の海底カルデラへの適用性の検討を行うために、始良カルデラ周辺の深層地下水の  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比の特徴の把握を開始した。沿岸部の深層地下水について  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比を用いた解析を行う場合、C/Cl 比を用いた手法同様に海水起源の Cl の影響を評価する必要がある。 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比を用いた手法の海底カルデラへの適用性検討のため、始良カルデラ周辺の深層地下水の  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比の特徴を把握した。 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比、 $^3\text{He}/^4\text{He}$  比、 $\delta\text{D}$ 、 $\delta^{18}\text{O}$ 、および溶存化学組成より、始良カルデラ周辺においては、地下水およびその溶存成分の滞留時間が地域によって異なることが

明らかになりつつある。ここでは、引き続き深層地下水の水質・各種同位体の結果とあわせて Cl の起源を明らかにした上で、 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比の値が示す意味について考察し、カルデラ火山深部にあるマグマの種別判定にどのように貢献できるかについて考察する。

表 4.2.2-1 に始良カルデラ周辺の深層地下水中の  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比およびトリチウム、 $^3\text{He}/^4\text{He}$  比、その他の化学組成の結果を示す。 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比は検出限界以下 $\sim 9.6 \times 10^{-15}$  と阿蘇カルデラや九重火山と比べて大きな変動幅を示した。 $\text{Li}/\text{Cl}$  比が  $3.2 \times 10^{-5} \sim 1.9 \times 10^{-2}$  (重量比)、 $\text{Br}/\text{Cl}$  比も  $0.74 \times 10^{-3} \sim 1.7 \times 10^{-3}$  (mol 比) と大きな変動幅を示している。また、 $^3\text{He}/^4\text{He}$  比も  $0.06 \sim 7.7 \text{ Ra}$  (大気補正後の corrected 値) と地殻起源ヘリウムが主成分である試料から上部マントル値に近い値を示す試料まで非常に大きな変動を示している。これらの値は、本年度調査を拡大したことにより、産総研(2021)に示した結果よりもさらに広い変動幅を示しており、始良カルデラ周辺においては様々な起源をもつ深層地下水が賦存していると思われる。

桜島内、鹿児島市街地とも水素-酸素同位体比 (図 4.2.2-1)  $\text{Br}/\text{Cl}$  比などから Cl の起源は海水が主体である地点が多いが、 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比の地域分布 (図 4.2.2-2) を見ると、桜島内の深層地下水はいずれも低い値を示す一方で、鹿児島市街地では海岸沿いの 2 地点を除く 6 地点は比較的高い値を示している。また、 $^3\text{He}/^4\text{He}$  比の地域分布も桜島と鹿児島市街地では全く異なっている (図 4.2.2-3)。桜島内では  $> 7 \text{ Ra}$  を示す地点が 3 地点見られる。上部マントルの  $^3\text{H}/^4\text{He}$  が  $8 \pm 1 \text{ Ra}$  (Graham, 2002) であることを考えると約 90% の He がマントル (つまりマグマ) 由来となっている。一方、鹿児島市街地ではいずれも  $< 2 \text{ Ra}$  以下、さらに  $1 \text{ Ra}$  以下の地点が大部分であることから、マグマ起源 He は 10% 程度で地殻起源 He が卓越している。この原因として、帯水層において温泉水が滞留している期間が非常に長く、滞留期間中に  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比の低い地殻起源 He ( $< 0.1 \text{ Ra}$ ) を大量に溶解しているものと思われる (例えば、Morikawa et al., 2005)。この考えは鹿児島市街地の高い  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比とも整合的である。 $^{36}\text{Cl}$  は地下において  $^{35}\text{Cl}$  と熱中性子との反応によって生成され、その生成量は、 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  として表す場合、以下の時間の関数として表され、約 150 万年程度で放射平衡に達し一定の値になる：

$$t = - \frac{1}{\lambda} \ln \frac{R_e - R_{\text{sample}}}{R_e - R_i}$$

ここで、 $\lambda$  は  $^{36}\text{Cl}$  の壊変定数 ( $2.30 \times 10^{-6} \text{ yr}^{-1}$ )、 $R_e$ 、 $R_{\text{sample}}$ 、 $R_i$  はそれぞれ  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  放射平衡値、試料中の  $^{36}\text{Cl}$ 、海水起源 Cl の  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比の初期値を示す。海水の  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比は  $0.71 \pm 0.08 \times 10^{-15}$  であり、玄武岩 ( $3.4 \pm 3.0 \times 10^{-15}$ ) と流紋岩 ( $2.2 \pm 0.8 \times 10^{-14}$ ) の放射平衡値 (産総研, 2018) は大きく違うものの、海水よりも高い値となっている。この場合、海水起源の地下水が地下に滞留すると滞留時間が長くなるとともに  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  は高くなり、最終的には放射平衡値に近づく (例えば、馬原ほか, 2006)。鹿児島市街地の高  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比も海水起源地下水の滞留時間の長いことを示している。従って、このような地域で C/Cl 比などを適用しようとする場合には滞留期間内に加わった成分は平均値となることに注意する必要がある。4.4 章で検討しているような定期観測による化学成分の微小な変動により現在供給されている化学成分の特徴を把握し、変動の原因がマグマ成分の混入量の変化によるものかどうか、さらには混入している場合にはどのようなマグマかを解析する必要がある。

錦江湾北西部ではヘリウム同位体比が桜島内と同程度に高い地点が北西—南東方向に並んでいる。 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比は多くが $1.2\sim 2.7 \times 10^{-15}$ と低い値を示す一方で、3地点では $4\sim 10 \times 10^{-15}$ と高い値を示している。詳しく見ると、試料 No.4, 5, 27 は  $\text{Br}/\text{Cl}$  比が  $0.8\sim 1.0 \times 10^{-3}$  と低く、明らかにマグマ起源の  $\text{Cl}$  が多く含まれると思われる。これらの  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比は  $1.2\sim 2.7 \times 10^{-15}$  と低い部類に入り、 $^3\text{He}/^4\text{He}$  比は  $6.9\sim 7.7 \text{ Ra}$  と錦江湾北西部の中でも最も高い部類に入っている。試料 No.16, 17, 24 は  $\text{Br}/\text{Cl}$  比が  $1.4\sim 1.6 \times 10^{-3}$  と高く海水を主とすると思われる。 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比は  $4\sim 10 \times 10^{-15}$  と高い。高い  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比は鹿児島市街地でも見られたが、 $^3\text{He}/^4\text{He}$  比は  $6.2\sim 7.1 \text{ Ra}$  と高い値を示している。 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比が高くなる原因として、滞留時間の長さ、天水起源  $\text{Cl}$  の混入が考えられる。図 4.2.2-4 では天水起源  $\text{Cl}$  の混入の影響を見るために  $\text{Cl}$  濃度と  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比の関係を見た。この 3 地点はいずれも鹿児島市街地と同様に海水と天水の混合領域よりも  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  が高い範囲にプロットされ、古い海水を起源とすることがわかる。ただし、 $^3\text{He}/^4\text{He}$  比は高いことからマグマ起源のガス・流体の上昇も顕著であるといえよう。錦江湾北西部の残りの 3 地点 (No. 6, 7, 9) は比較的沿岸に近い場所に位置する。 $\text{Br}/\text{Cl}$  比は  $1.5\sim 1.6 \times 10^{-3}$  と海水に近く  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比は  $1.2\sim 1.3 \times 10^{-15}$  と低い。比較的若い海水といえる。錦江湾北西部で最もマグマ起源  $\text{Cl}$  の寄与が高く  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比も高く、 $^3\text{He}/^4\text{He}$  比も高い試料 No.4, 5, 27 は錦江湾北部の中でも内陸にあり  $\text{C}/\text{Cl}$  法からは珪長質マグマの生成に分類されている (図 4.2.1-9) 。マグマの固化ではなくマグマの生成段階にあることは高い  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比と矛盾するものではない。

錦江湾北部の 5 試料 (No. 3, 15, 23, 25, 28) は、 $\text{Br}/\text{Cl}$  比は  $1.3\sim 1.7 \times 10^{-3}$  と海水に近く、 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  は検出限界以下  $\sim 2.0 \times 10^{-15}$  と低い。 $^3\text{He}/^4\text{He}$  比は、1 地点を除き  $0.2\sim 2.7 \text{ Ra}$  とやや低い値となっている。 $\text{Cl}$  の起源は現在の海水が主であると思われる。ここも、錦江湾北西部と同様に、 $^3\text{He}/^4\text{He}$  の低い沿岸部は  $\text{C}/\text{Cl}$  法からはマグマ固化の範囲に入り、1 地点のみ高い  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比を示す No. 23 は珪長質マグマの生成の範囲内に入っている。

以上のように、始良カルデラ周辺の深層地下水の  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比、 $^3\text{He}/^4\text{He}$  比、水素 - 酸素同位体比、および  $\text{Br}/\text{Cl}$  比の地域分布より  $\text{Cl}$  の起源及び深層地下水の滞留時間と、マグマ起源ガス上昇の分布域を明らかにした。また、 $\text{C}/\text{Cl}$  比によるマグマの状態解析と比較し、 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比・ $^3\text{He}/^4\text{He}$  比との関連性について検討した。始良カルデラ周辺では地域ごとにこれらの同位体比元素比の特徴が異なるが、錦江湾北部や北西部などで  $\text{C}/\text{Cl}$  比より推定されたマグマの生成段階にある地点では低  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比、高  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比を示すなどの関連性が見られた。

表 4.2.2-1 始良カルデラ周辺における深層地下水の  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比, トリチウム濃度,  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比およびその他の化学組成 (産総研(2020, 2021)のデータを含む)

No.	Sample ID	地域	水温 (°C)	pH	Li (mg/L)	Cl (mg/L)	Br (mg/L)	Li/Cl (重量比)	Br/Cl (mol比)	$^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$	$^3\text{H}$ (TU)	$^3\text{He}/^4\text{He}$ (cor Ra) <sup>5</sup>
1	KYU_13_A001	その他	50.6	7.0	0.64	219	0.44	2.90E-03	8.99E-04	7.17E-15 ± 8.42E-16	<0.03	3.78
2	KYU_13_A013	桜島	48.0	6.5	0.90	1415	4.08	6.38E-04	1.28E-03	1.26E-15 ± 6.91E-16	1.81 ± 0.04	6.04*
3	KYU_14_A003	錦江湾北部	51.7	6.9	0.42	13178	39.60	3.22E-05	1.33E-03	-1.34E-16 ± 3.55E-16	<0.04	2.66
4	KYU_14_A005	錦江湾北西部	28.2	5.9	1.83	830	1.52	2.20E-03	8.10E-04	1.29E-15 ± 6.75E-16	0.49 ± 0.02	6.94
5	KYU_14_A006	錦江湾北西部	43.0	7.3	0.41	921	1.67	4.45E-04	8.02E-04	2.71E-15 ± 8.85E-16	<0.04	7.19
6	KYU_18_C001	錦江湾北西部	67.4	6.8	0.47	1916	6.51	2.43E-04	1.51E-03	1.26E-15 ± 5.84E-16	<0.03	---
7	KYU_18_C003	錦江湾北西部	45.4	6.8	1.89	7352	25.52	2.57E-04	1.54E-03	1.27E-15 ± 8.65E-16	<0.03	5.80
8	KYU_18_C004	鹿児島市街	43.0	8.2	0.46	501	1.73	9.23E-04	1.53E-03	9.53E-15 ± 1.55E-15	0.04 ± 0.01	0.07
9	KYU_18_C008	錦江湾北西部	54.6	7.4	1.82	6395	22.37	2.85E-04	1.55E-03	1.19E-15 ± 7.31E-16	<0.03	5.24
10	KYU_18_C010	その他	40.8	6.7	2.26	117	0.20	1.92E-02	7.43E-04	9.62E-15 ± 1.46E-15	<0.03	2.02
11	KGS_19_A001	桜島	54.2	6.7	2.78	10315	36.29	2.69E-04	1.56E-03	4.47E-16 ± 5.59E-16	0.05 ± 0.02	7.15
12	KGS_19_A003	鹿児島市街	48.8	7.7	1.97	1982	6.21	9.92E-04	1.39E-03	6.53E-15 ± 1.29E-15	<0.03	1.00*
13	KGS_19_A005	桜島	38.7	5.9	0.88	3055	10.61	2.88E-04	1.54E-03	8.30E-16 ± 6.22E-16	1.07 ± 0.03	6.98
14	KGS_19_A007	鹿児島市街	48.9	7.5	1.14	1810	6.25	6.32E-04	1.53E-03	4.51E-15 ± 1.08E-15	0.05 ± 0.04	0.67*
15	KYU_20_A001	錦江湾北部	44.2	6.9	0.78	3289	11.15	2.37E-04	1.50E-03	4.93E-16 ± 5.66E-16	0.03 ± 0.01	0.19
16	KYU_20_A002	錦江湾北西部	51.3	7.5	0.56	1418	4.62	3.97E-04	1.45E-03	3.98E-15 ± 1.12E-15	0.14 ± 0.01	6.15
17	KYU_20_A006	錦江湾北西部	56.8	7.8	0.14	239	0.78	5.67E-04	1.45E-03	1.02E-14 ± 1.87E-15	0.39 ± 0.02	6.52
18	KYU_20_A007	鹿児島市街	41.0	8.6	0.06	168	0.52	3.79E-04	1.38E-03	7.31E-15 ± 1.10E-15	<0.03	1.18
19	KYU_20_A008	鹿児島市街	46.0	8.0	0.52	503	1.66	1.04E-03	1.47E-03	8.76E-15 ± 1.50E-15	<0.03	1.02
20	KYU_20_A010	鹿児島市街	57.8	8.1	0.45	444	1.61	1.02E-03	1.61E-03	7.84E-15 ± 1.42E-15	<0.03	0.06
21	KYU_20_A013	鹿児島市街	49.8	7.7	1.28	2002	7.46	6.42E-04	1.65E-03	2.40E-15 ± 9.84E-16	<0.03	0.68
22	KYU_20_A015	桜島	58.2	6.5	2.84	11057	42.69	2.57E-04	1.71E-03	-4.05E-18 ± 4.96E-16	<0.03	3.97
23	KYU_20_A020	錦江湾北部	46.7	7.9	0.11	320	1.15	3.56E-04	1.59E-03	2.04E-15 ± 6.66E-16	0.35 ± 0.02	5.58
24	KYU_20_A022	錦江湾北西部	50.5	7.7	0.34	876	3.13	3.91E-04	1.59E-03	5.35E-15 ± 9.71E-16	<0.03	7.08
25	KYU_20_A024	錦江湾北部	52.7	6.9	0.82	12462	46.60	6.62E-05	1.66E-03	1.38E-16 ± 4.03E-16	<0.03	2.47
26	KYU_20_A033	鹿児島市街	49.7	8.0	0.62	604	2.21	1.03E-03	1.62E-03	6.01E-15 ± 9.49E-16	<0.03	0.61
27	KYU_21_B003	錦江湾北西部	37.8	7.4	0.32	387	0.94	8.38E-04	1.08E-03	1.18E-15 ± 5.16E-16	<0.03	7.65
28	KYU_21_B004	錦江湾北部	46.7	7.2	0.84	3481	10.80	2.42E-04	1.38E-03	7.52E-16 ± 4.56E-16	<0.03	2.50
KYU_20_A018 (海水)			32.0	6.2	0.06	11937	46.69	5.20E-06	1.74E-03	1.16E-16 ± 3.96E-16	0.86 ± 0.03	n. a.

<sup>5</sup>  $^3\text{He}/^4\text{He}$  (cor Ra)は大気の影響を差し引いた値 (corrected値) を記している。1Ra =  $1.4 \times 10^{-6}$ 。なお、 $^4\text{He}/^{20}\text{Ne} < 0.5$  の試料に対しては数値は記載していない。

\* He同位体比データは他の分析値とは異なる時期に採取した試料の分析値

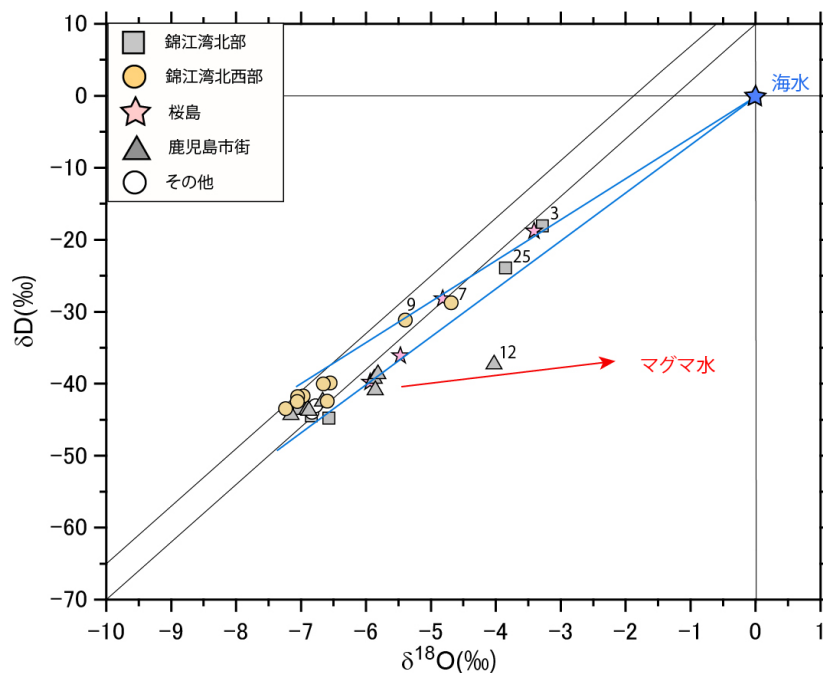


図 4.2.2-1 始良カルデラ周辺の深層地下水のうち  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比分析を行った試料の  $\delta\text{D}-\delta^{18}\text{O}$  の特徴

産総研 (2020, 2021) のデータを含む。図中の番号は表 4.2.2-1 の試料 No. に相当する。

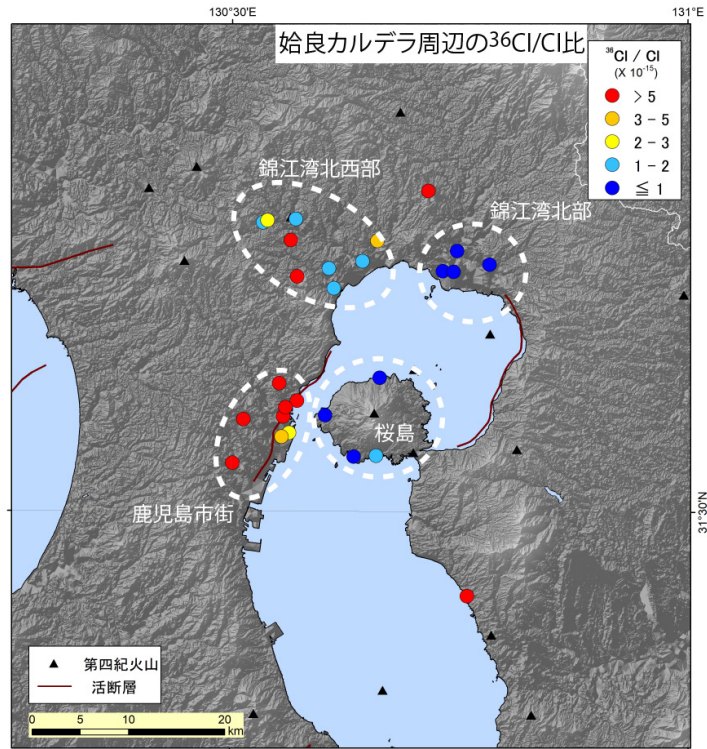


図 4.2.2-2 始良カルデラ周辺における湧水・深層地下水の  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比

産総研 (2020, 2021) のデータを含む。断層の情報は産総研地質調査総合センター(2015), 第四紀火山は西来ほか(2012), 地形データは基盤地図情報 (国土地理院) による。

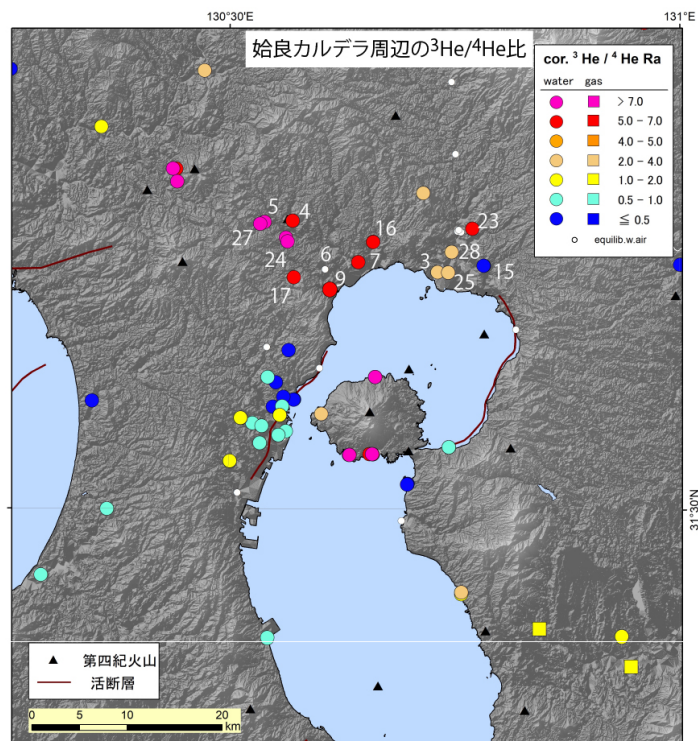


図 4.2.2-3 始良カルデラ周辺における湧水・深層地下水の  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比

産総研 (2020, 2021) のデータを含む。図中の番号は表 4.2.2-1 の資料 No. に相当する。断層の情報は産総研地質調査総合センター(2015), 第四紀火山は西来ほか(2012), 地形データは基盤地図情報 (国土地理院) による。

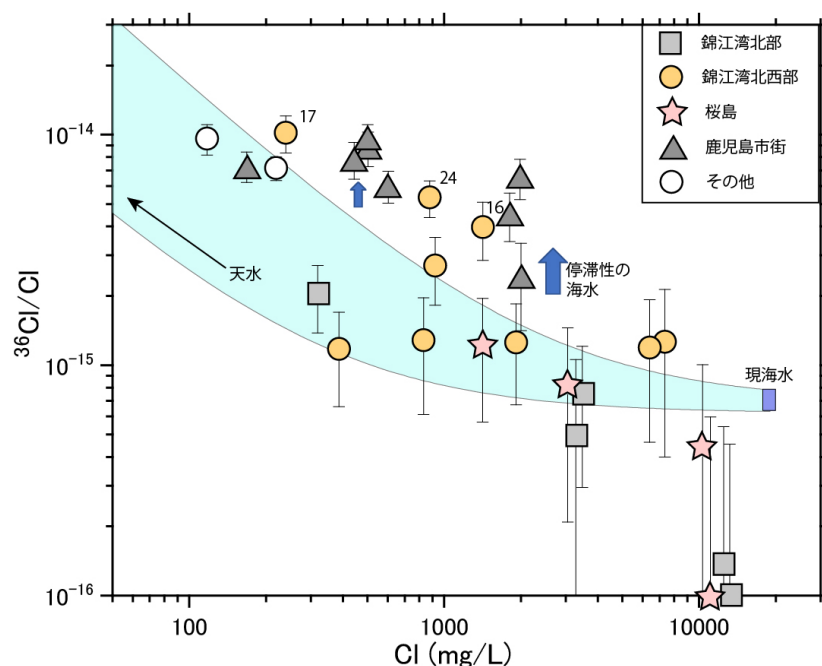


図 4.2.2-4 始良カルデラ周辺における深層地下水の  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  と  $\text{Cl}$  濃度の関係

■は錦江湾北部，●は錦江湾北西部，★は桜島内，▲な鹿児島市街地の地点を意味する．図中の番号は表 4.2.2-1 の試料 No. に相当する．図中の薄い水色の枠は，現海水と天水の混合の範囲を示す．端成分として現海水の  $\text{Cl}$  濃度を  $19,000 \text{ mg/L}$ ， $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  を  $7.1 \pm 0.8 \times 10^{-16}$  (Fifield et al., 2013)，天水の  $\text{Cl}$  濃度を  $5 \text{ mg/L}$ ， $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  を  $100 \pm 60 \times 10^{-15}$  として計算した．産総研 (2020, 2021) のデータを含む．

#### 4.2.3 まとめと課題

##### 1) $\text{C}/\text{Cl}-\text{C}/\text{H}_2\text{O}$ 法

マグマ起源  $\text{Cl}$  濃度の解析方法を昨年度の  $\text{Br}-\text{Cl}$  を用いた手法から， $\text{Cl}-\text{Br}-\text{I}$  を用いた手法に高度化した．また，地下水に含まれる端成分を昨年度の天水，海水，マグマ水の 3 成分とする方法から天水，海水，変質海水，マグマ水の 4 成分とする方法に変更し，マグマ起源  $\text{Cl}$  の割合を求めた．これにより地下水に含まれるマグマ起源成分の  $\text{C}/\text{Cl}$  比と  $\text{Cl}/\text{H}_2\text{O}$  比を再計算し，誤差もより正確に評価した．これらを海底カルデラである始良カルデラとカルデラ湖の十和田カルデラに適用し，マグマ溜まり進化モデルに基づき各マグマ溜まりの状態に対応して放出される熱水流体の  $\text{C}/\text{Cl}$  比と  $\text{Cl}/\text{H}_2\text{O}$  比から，地下のマグマ溜まりの状態を推定する  $\text{C}/\text{Cl}-\text{Cl}/\text{H}_2\text{O}$  法の有効性が確認された． $\text{C}/\text{Cl}-\text{Cl}/\text{H}_2\text{O}$  法を適用する際は，以下に示す適用上の注意が必要である．1) 対象の地下水が高温で岩石と酸素同位体交換反応を起こしている場合は，地下水に含まれるマグマ起源水の割合を過剰評価し，結果として低い  $\text{Cl}/\text{H}_2\text{O}$  比が見積もられる．2) 苦鉄質マグマが供給されたときに，発泡により脱ガスする成分は  $\text{CO}_2$  が非常に多い．この熱水が地下水に混入したときに  $\text{CO}_2$  が過飽和となり地下で脱ガスする可能性がある．この場合は， $\text{C}/\text{Cl}$  比が低く見積もられ過小評価となる．3)  $\text{CO}_2$  が非常に多い熱水流体は高温・低圧環境で二相分離し， $\text{NaCl}$  brine を地下に残して  $\text{CO}_2$  に富む流体が上昇する．この場合は， $\text{C}/\text{Cl}$  を上昇させ， $\text{Cl}/\text{H}_2\text{O}$  比を下げる．また，火山ガスを混入した強酸性の地下水に含まれるマグマ起源成分は低圧環境で放出され，マグマ溜ま



りから直接もたらされた熱水流体ではない。そのため、今回の進化モデルでは取り扱うことができない。

実際に、本手法を始良カルデラ及び十和田カルデラの周辺地下水に適用した結果、いくつかの留意すべき点が明らかになった。マグマ起源水の割合を決定する際に地下水の  $\delta D$ ,  $\delta^{18}O$  を用いる事になるが、地下水に含まれる海水成分の除去において、混合する海水が同位体も変質した海水の場合うまくいかないことがある。さらに、地下水の  $\delta^{18}O$  が地下で高温の岩体等と酸素同位体交換反応を起こしたと考えられる地下水は、 $Cl/H_2O$  比を過小評価する。そのため、カルデラのマグマ溜まりの活動評価は、 $C/Cl$  法により議論した。これらの事例研究は、 $Cl/H_2O$  法の問題も明らかにしたが、マグマ溜まりの状態把握を目的にした  $C/Cl-Cl/H_2O$  法の妥当性を裏付ける結果も多く得られたと結論できる。十和田カルデラにおいては、全周にわたり外輪山山麓を湧水源とする河川水にマグマ起源の  $Cl$  が含まれることがわかった。これはマグマ起源成分を含む湖水の漏水の一部が外輪山の湧水となり、河川を形成している可能性を示す。まだ行われていない十和田湖の湖底に湧出する温泉水の評価を行うことが十和田カルデラの評価に関する課題として挙げられる。始良カルデラについては、水没したカルデラ内の湧出水の調査ができていないが、カルデラのマグマ溜まりの状態評価には海底湧水のデータが不可欠になると考えられる。

鬼界カルデラ（薩摩硫黄島）では、海没カルデラの評価手法を構築するため、海底湧水の調査を3地点で行った。海底に砂泥堆積物がある場合（長浜湾の事例）は、コア採取法を用いることができ、海底から温泉水と気泡の両方が湧出している場合は、ロートを用いた連続採水法が有効であることがわかった。湧水、ガスから得られたデータを適切に解析することにより、 $C/Cl$  及び  $Cl/H_2O$  比を海水の影響を排除して求めることができることを示した。薩摩硫黄島では硫黄岳から活発に火山ガスを放出しているため、東温泉沖の湧水は  $C/Cl$  及び  $Cl/H_2O$  比を推定できたものの火山ガスの影響をうけていることがわかった。長浜湾の海底湧水についても、 $C/Cl$  及び  $Cl/H_2O$  比を推定することができ、その結果、苦鉄質マグマの影響を受けている可能性がある。昭和硫黄島の海底湧水はデータが不足しており、今回は評価できなかった。海底から湧出する温泉水は、今回の調査地点以外にも存在しており、特に外輪山の外側の火山ガス成分を含んでいないと考えられる場所のデータ取得を行うことにより、鬼界カルデラの状態評価を行える可能性がある。鬼界カルデラは、薩摩硫黄島の硫黄岳山頂から火山ガスが大量に放出されておりマグマ溜まりのマグマが脱ガスしている。したがって、今後の課題としてマグマ溜まりの進化モデルも脱ガスを含めたモデルを検討し、採用すべきである。

一般的な問題点として、事例研究では多くの地下水データが湧水や既存の利用中の坑井であり、その利用目的も深度もまちまちである。そのため、火山によっては  $C/Cl-Cl/H_2O$  法の利用にあたり精度面で大きな問題を生じ、特に始良カルデラ、十和田カルデラでは多くの地点で  $C/Cl$  比あるいは  $Cl/H_2O$  比を決定できない、あるいは非常に大きな誤差を伴った。しかし、これらは  $C/Cl-Cl/H_2O$  法の妥当性を否定するものではなく、観測用の井戸の掘削等により良好な地下水試料が採取されれば、より正確なマグマ溜まりの情報を得ることができるものと考えられる。

## 2) 放射性塩素同位体比 ( $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比) および $^3\text{He}/^4\text{He}$ 法 : 始良カルデラへの適用例

昨年度に引き続き、 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比を用いた手法の海底カルデラへの適用性検討のため、始良カルデラ周辺の深層地下水の  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比の特徴を把握した。 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比、 $^3\text{He}/^4\text{He}$  比、および溶存化学組成より、始良カルデラ周辺においては、地下水およびその溶存成分の滞留時間が地域によって異なることが明らかになった。

桜島内、鹿児島市街地とも水素-酸素同位体比 (図 4.2.2-1)  $\text{Br}/\text{Cl}$  比などから  $\text{Cl}$  の起源は海水が主体である地点が多いが、桜島内の深層地下水は  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比が高くマグマ起源ガスの供給が多い。これに対し、鹿児島市街地では高  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比、 $^3\text{He}/^4\text{He}$  比を示し、海水起源地下水の滞留時間の長いことを示している。従って、このような地域で  $\text{C}/\text{Cl}$  比などを適用しようとする場合には滞留期間内に加わった成分は平均値となることに注意する必要がある。

錦江湾北西部ではヘリウム同位体比が桜島内と同程度に高い地点が北西-南東方向に並んでいる。 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比も高く、 $^3\text{He}/^4\text{He}$  比も高い地点は錦江湾北部の中でも内陸にあり  $\text{C}/\text{Cl}$  法からは珪長質マグマの生成に分類されている。マグマの固化ではなくマグマの生成段階にあることは高い  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比と矛盾するものではない。

錦江湾北部地域は、錦江湾北西部と同様に、 $^3\text{He}/^4\text{He}$  の低い沿岸部は  $\text{C}/\text{Cl}$  法からはマグマ固化の範囲に入り、1 地点のみ高い  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比を示す No. 23 は珪長質マグマの生成の範囲内に入っている。

滞留時間の長い地下水については必ずしも現在加わっているマグマ起源流体の特徴を反映していないことになる。今後、 $\text{C}/\text{Cl}$  比、 $\text{C}/\text{Cl}-\text{Cl}/\text{H}_2\text{O}$  法など他の手法によりマグマの種別・状態などが得られた地点についてこの滞留時間も考慮した現在の状態を評価するための解析を検討する必要がある。

### 【引用文献】

- Aiuppa, A., Federico, C., Franco, A., Giudice, G., Gurrieri, S., Inguaggiato, S., Liuzzo, M., McGonigle, A.J.S., Valenza, M. (2005) Emission of bromine and iodine from Mount Etna volcano. *Geochem. Geophys. Geosyst.* 6, Q08008. doi:10.1029/2005GC000965.
- Böhlke, J. K. and Irwin, J. J. (1992) Laser microprobe analyses of Cl, Br, I, and K in fluid inclusions: Implications for sources of salinity in some ancient hydrothermal fluids. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 56, 203-225.
- Bureau, H., Auzende, A.-L., Marocchi, M., Raepsaet, C., Munsch, P., Testemale, D., Mézouar, M., Kubsky, S., Carrière, M., Ricolleau A. (2016) Modern and past volcanic degassing of iodine. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 173, 114-125.
- Fifield, L. K., Tims, S. G., Stone, J. O., Argento, D. C. and De Cesare, M. (2013) Ultra sensitive measurements of  $^{36}\text{Cl}$  and  $^{235}\text{U}$  at the Australian National University. *Nucl. Instr. and Meth. B*. doi: <http://dx.dpi.org/10.1016/j.nimb.2012.04.028>
- Fuge, R., Johnson, C. C. (2015) Iodine and human health, the role of environmental geochemistry and diet, a review. *Appl. Geochem.* 63, 282-302.

- Graham D. W. (2002) Noble gas isotope geochemistry of mid-ocean ridge and ocean island basalts: characterization of mantle source reservoirs. *Rev. Mineral. Geochem.* 47, 247–318.
- Kazahaya, K., Shinohara, H. and Saito, G. (2002) Degassing process of Satsuma-Iwojima volcano, Japan: Supply of volatile components from a deep magma chamber. *Earth Planets Space*, 54, 327-335.
- Kiyokawa, S., Kuratomi, T., Hoshino, T., Goto, S., Ikehara, M. (2021) Hydrothermal formation of iron-oxyhydroxide chimney mounds in a shallow semi-enclosed bay at Satsuma Iwo-Jima Island, Kagoshima, Japan. *GSA Bulletin*, 133, 1890-1908.
- 馬原保典, 中田英二, 大山隆弘, 宮川公雄, 五十嵐敏文, 市原義久, 松本裕之 (2006) 化石海水の同定法の提案 —太平洋炭鉱における地下水水質・同位体分布と地下水年代評価—, *地下水学会誌*, 48, 17-33.
- Morikawa, N., Kazahaya, K., Yasuhara, M., Inamura, A., Nagao, K., Sumino, H. and Ohwada, M. (2005) Estimation of groundwater residence time in a geologically active region, by coupling  $^4\text{He}$  concentration with helium isotopic ratios. *Geophys. Res. Lett.*, 32, L02406, doi:10.1029/2004GL021501.
- Muramatsu, Y., Fehn, U., Yoshida, S. (2001) Recycling of iodine in fore-arc areas: evidence from the iodine brines in Chiba, Japan. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 192, 583-593.
- Muramatsu Y., Doi T., Tomaru H., Fehn U., Takeuchi R., Matsumoto R. (2007) Halogen concentrations in pore waters and sediments of the Nankai Trough, Japan: Implications for the origin of gas hydrates. *Appl. Geochem.* 22, 534-556.
- 西来邦章・伊藤順一・上野龍之 (2012) 第四紀火山岩体・貫入岩体データベース. 地質調査総合センター速報, 60, 産業技術総合研究所地質調査総合センター.
- 野崎義行(1997)5. 最新の海水の元素組成表(1995年版)とその解説. *日本海水学会誌*, 51, 302-308.
- 産業技術総合研究所 (2018) 平成 29 年度原子力施設等防災対策等委託費 (火山影響評価に係る技術的知見の整備) 事業 平成 29 年度事業報告書.
- 産業技術総合研究所 (2019) 平成 30 年度原子力施設等防災対策等委託費 (火山影響評価に係る技術的知見の整備) 事業 平成 30 年度事業報告書.
- 産業技術総合研究所 (2020) 平成 31 年度原子力施設等防災対策等委託費 (火山影響評価に係る技術的知見の整備) 事業 平成 31 年度事業報告書.
- 産業技術総合研究所 (2021) 令和 2 年度原子力施設等防災対策等委託費 (火山影響評価に係る技術的知見の整備) 事業 令和 2 年度事業報告書.
- 産業技術総合研究所地質調査総合センター (2015) 20 万分の 1 日本シームレス地質図データベース 2015 年 5 月 29 日版. 産業技術総合研究所研究情報公開データベース.
- 高橋正明・風早康平・安原正也・塚本 齊・佐藤 努・高橋 浩・森川徳敏・清水 徹・宮越昭暢・戸崎裕貴・東郷洋子・稲村明彦・半田宙子・仲間純子・中村有理・竹内久子・大丸 純・清水日奈子・尾山洋一・大和田道子・切田 司 (2018) 深層地下水データベース(第 2 版), 地質調査総合センター研究資料集, no.653.

- 東郷洋子・風早康平・戸崎裕貴・高橋正明・森川徳敏・高橋 浩・中村有理・稲村明彦・清水日奈子・松崎浩之 (2020) ヨウ素同位体比とハロゲン元素比を用いた瀬戸内海沿岸域におけるスラブ起源流体の検出 地球化学, 54, 189-200.
- Tomaru H., Ohsawa S., Amita K., Lu Z. and Fehn U. (2007) Influence of subduction zone settings on the origin of forearc fluids: Halogen concentrations and  $^{129}\text{I}/\text{I}$  ratios in waters from Kyushu, Japan. Applied Geochemistry, 22, 676-691.
- Tomaru H., Lu Z., Fehn U. and Muramatsu Y. (2009) Origin of hydrocarbons in the Green Tuff region of Japan:  $^{129}\text{I}$  results from oil field brines and hot springs in the Akita and Niigata Basins. Chemical Geology, 264, 221-231.
- Shinohara, H., Giggenbach, W. F., Kazahaya, K., Hedenquist J. W.(1993) Geochemistry of volcanic gases and hot springs of Satsuma-Iwojima, Japan: Following Matsuo, Geochem. J., 27, 271-285.
- Yamada, M., Ohsawa, S., Kazahaya, K., Yasuhara, M., Takahashi, H., Amita, K., Mawatari, H., Yoshikawa, S. (2011) Mixing of magmatic  $\text{CO}_2$  into volcano groundwater flow at Aso volcano assessed combining carbon and water stable isotopes. J. Geochemical Exploration, 108, 81-87.



### 4.3 海底カルデラ火山におけるマグマ起源流体湧出の地球化学的観測

#### 【実施内容】

これまでの2年間での研究によって、気液平衡装置を用いた溶存 CO<sub>2</sub>-ラドン(Rn)濃度測定ユニットとフローセル方式による酸化還元電位(ORP)-pH-溶存水素濃度測定ユニットで構成される「地球化学曳航観測システム」を開発した。この曳航観測システムが海底カルデラ火山におけるマグマ起源流体湧出の地球化学的観測に実戦配備されるには、海底火山沿岸海域における調査において安定して動作し続けること、また、実際に海底から火山性のガスが流出している沿岸域で有意なシグナルを捉えるに十分な性能をもつことを示さなければならない。そこで本年度は、火山性 CO<sub>2</sub> ガスの海底湧出が確認されている大分県の古い火山島「姫島」の沿岸海域(大沢・三島, 2017)において、開発した地球化学曳航観測システムを運用し、測定項目に有意なシグナルが現れるかどうかを実検するとともに、その曳航観測で強いシグナルが現れると予想される溶存 CO<sub>2</sub> (DIC)ならびに海底流出ガスに関する炭素同位体地球化学調査をあわせて実施した。その結果、ガス湧昇域を曳航している際に、一般的な外洋海水の DIC 濃度(2mM/L 程度)を上回る DIC 濃度(最高で 2.5 倍ほどの濃度)を頻繁に捉えることに成功した。曳航観測にからめて行った同位体調査のデータ解析の結果、この高い濃度の DIC は海底流出 CO<sub>2</sub> ガスによるものであることが分かった。

#### 【調査・研究成果】

##### 4.3.1 はじめに

カルデラ火山からのマグマ起源流体の放出について、土壌からの二酸化炭素(CO<sub>2</sub>)の放出を測定するような対象に直接対面する手法は、海底や湖底からの放出を観測するために用いることができない。そこで、海水や湖水があってもマグマ性のガス成分を検出できる手法が求められる。平成 31 年度(令和元年度)には、気液平衡装置を用いた CO<sub>2</sub>-ラドン(<sup>222</sup>Rn)濃度観測ユニットとフローセル式水質測定ユニットを組み合わせた曳航観測システムを構築し、令和2年度は、<sup>222</sup>Rn 曳航観測により海底地下水や海底温泉の湧出が示唆されている別府湾(岸田, 2019; 大沢ほか, 投稿中)において、フローセル式水質測定ユニット部の pH や酸化還元電位(ORP: Oxidation-Reduction Potential)を指標とした新しい観測手法の導入に関する研究を実施して、ORP の検知感度の高さを立証した。ORP 指標は <sup>222</sup>Rn 曳航観測装置と同様に海底温泉等の探査に有効であるだけでなく、曳航観測装置としてはフローセル式水質測定ユニット部の方が、気液分離装置を必要とする CO<sub>2</sub>-<sup>222</sup>Rn 濃度観測ユニット部よりもシンプルな構成でマシン・トラブルに陥りにくく、実用性が高いことが期待されることから、令和2年度には、CO<sub>2</sub> 濃度計と同様に火山ガスの海底流出の検出に有効であって、軽量かつコンパクトで現地調査での利用が適していると考えられる溶存水素濃度計を曳航観測システムに組み込んだ。

本年度(最終年度)はこれらを合体させた「地球化学曳航観測システム」を、火山性 CO<sub>2</sub> ガスの海底湧出が確認されている大分県の火山島「姫島」の沿岸海域(大沢・三島, 2017)において、観測システムの安定動作と火山性ガス流出につながるシグナル検出の実検を目的として曳航観測を実施した。また、曳航観測で強いシグナルが現れると予想された溶存 CO<sub>2</sub> (DIC)ならびに海底流出ガスの炭素同位体地球化学調査をあわせて実施し、実検結果に対して意味づけを行った。

## 4.3.2 地球化学曳航観測システム

### 4.3.2.1 気液平衡 CO<sub>2</sub>-Rn 観測ユニット

<sup>222</sup>Rn 濃度を測定するための装置としては、内部にシリコン半導体検出器を有する静電捕集型のラドン濃度測定器である RAD7 (DurrIDGE 社) を使用した。この装置の測定原理は、<sup>222</sup>Rn が α 壊変して生成される <sup>218</sup>Po が正に帯電していることを利用し、<sup>218</sup>Po を静電場で検出器の表面に集め、α 壊変する際に放出するエネルギー (6.00 MeV) を検出する。一方、CO<sub>2</sub> の測定装置として、Vaisala 社の高精度 CO<sub>2</sub> 測定プローブ GMP343 を使用した。この装置では、測定対象のガスで満たされたチャンバー内において、小型フィラメントより発信させたパルス光をミラーにあてて反射させ、シリコンベースのファブリーパーロー干涉計 (FPI) を通過させた後に赤外線検出器 (IR) において光の減衰を検知するものである。小型 FPI を電氣的に調整し測定波長を CO<sub>2</sub> ガスの吸収帯と基準帯 (光の減衰のない波長領域) の間で変更させて測定を行い、2 つの信号の比より求められる CO<sub>2</sub> ガスの光吸収度の違いから濃度を算出している。以上のラドン濃度測定器と CO<sub>2</sub> 測定プローブを用いて海水中の <sup>222</sup>Rn 濃度を連続的に測定するために、気液平衡装置である RAD AQUA を使用した。シャワー状にして気液平衡装置内へ導入された海水中の Rn は気相へ追い出され (図 4.3-1)、後述のように、その気相部分を検出器にポンプで送り込んで <sup>222</sup>Rn 濃度を測定する。データの空間解像度は、船の移動速度と測定装置のデータ取得間隔によって決定されるが、データ取得間隔が短いと半導体検出器で捉える <sup>218</sup>Po のカウント数が減るため測定精度の低下につながる。この問題への対策として、2 台の外部ポンプで気液平衡装置から RAD7 までの試料導入部分を高効率化するデュアルループ法が提案されている (例えば、杉本ほか, 2017)。本観測ユニットでは、このデュアルループ法の測定ラインの中に CO<sub>2</sub> 測定プローブを組みこむことで、同一の測定ラインを通過するガスに含まれる CO<sub>2</sub> 濃度および <sup>222</sup>Rn 濃度を測定できるようにした (図 4.3-1, 写真 4.3-1)。2 台の外部ポンプにはダイアフラム式の真空ポンプを使用し、電源として小型バイク用のバッテリーを用いた (写真 4.3-2)。1 次ポンプにおいて 6 L/min, 2 次ポンプで 3 L/min の流量が確保されるようフローメータで調節している。また、バッテリー電圧の低下など、何らかの要因でポンプ流量のバランスが崩れた際にラインの中に海水が引き込まれてしまう危険を避ける目的で、パイプ取り付け式液面検出センサーをチューブに取り付け、観測ユニット内のラインに液体が侵入した場合にはポンプが緊急停止するよう工作している (写真 4.3-3)。

## ポンプユニット

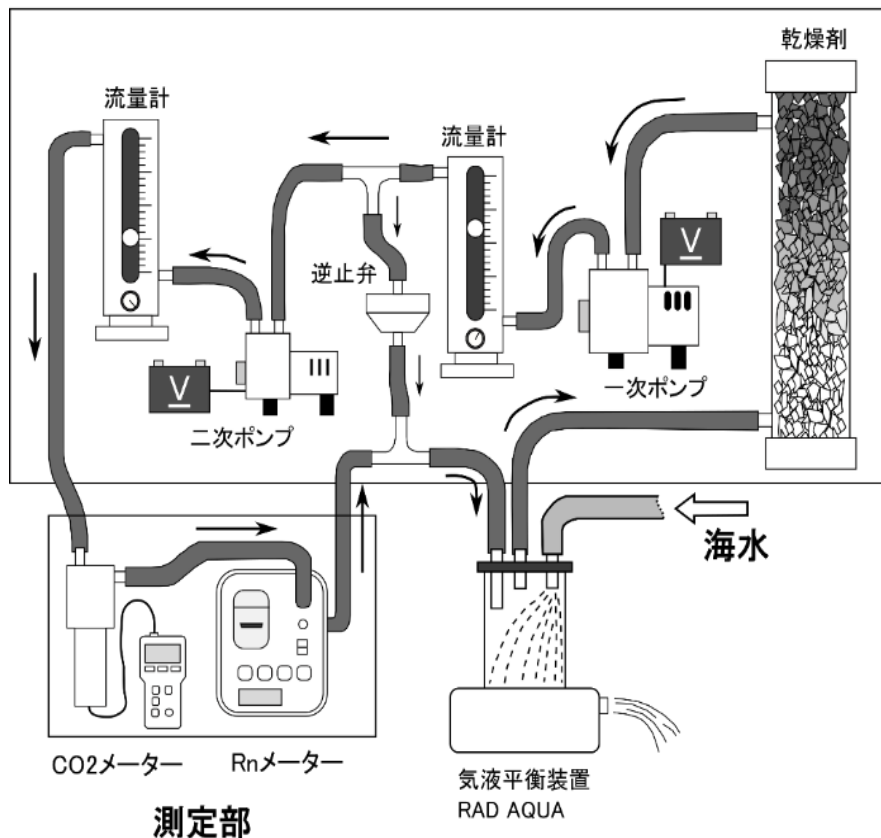


図 4.3-1 CO<sub>2</sub>-Rn 観測ユニットの概念図

デュアルループ法による測定ラインに高精度 CO<sub>2</sub> 測定プローブ GMP343 を直列の関係になるように組み込んだ。

### 4.3.2.2 フローセル式水質測定ユニット

フローセルとは、フローインジェクション分析 (FIA) のように、ポンプから送られてくる液体試料を連続で分析するための測定容器で、入口と出口を持ち、その中心部が測定成分を検知しやすい構造になっている。本研究で用いたフローセルは、Sheffield 大学と Waterra 社が現場水質測定用に共同で開発した「フロースルーセル (輸入代理店: テクノインターナショナル社), <http://www.technointer.com/GroundwaterEquipments/equipments/ProductsDetail/Observation/SheffieldFlowCell/SheffieldFlowCell.html>」で、セルひとつの容積は 40 mL, 利用可能な電極径は 3 mm~19.5 mm (付属の軟質樹脂キャップで調整), 6 つまでセルを直列に連結することができ (写真 4.3-4 を参照; この場合は 5 つ連結), 連結使用時の大きさは 110×120×400 mm とコンパクトである。本研究では、複合電極型の電気伝導度 (EC) 電極, pH 電極, 酸化還元 (ORP) 電極および温度計を 4 つ連結したフローセルのそれぞれにセットした (図 4.3-2)。





写真 4.3-1 CO<sub>2</sub>-Rn 測定部



写真 4.3-2 ポンプユニット

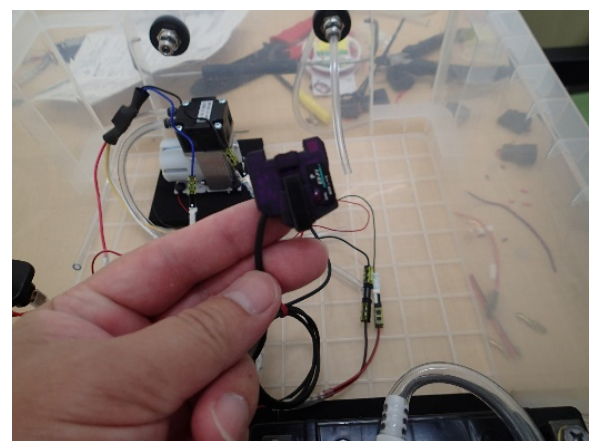


写真 4.3-3 液面検出センサー

ORP の計測は、TOA-DKK 社製の ORP 複合電極 PST-2739C を同社の RM30P に接続して行った。複合電極中の比較電極は銀-塩化銀電極で、測定精度は $\pm 2$  mV である。電極の内部溶液の温度が同時に計測され、その繰返し精度は $\pm 0.2^{\circ}\text{C}$  である。測定時の温度を用いて、測定に用いた比較電極と標準水素電極の電位差を補正して、ORP 計の測定値から Eh 値を算出した。pH と電気伝導度 (EC) の計測は、TOA-DKK 社製の EC/pH 計 WM-32EP に pH 複合電極 GST-2729C と EC 電極 CT-57101B を接続して行った。測定精度は、pH が $\pm 0.02$  pH, E.C. が $\pm 0.5\%$  FS である。

これらの測定データは、測定器本体にリアルタイムで出力表示されるので観測や装置動作の状況確認に利用し、データロギング機能を利用して本体内に記録し、観測終了後に PC にデジタルデータとして取り出した。また、後の解析に用いる水温の測定値には EC 電極に内蔵されている温度計の指示値を用いたが、参照と補正のために ebro 社製デジタル温度計 TFX410 でも測定した。

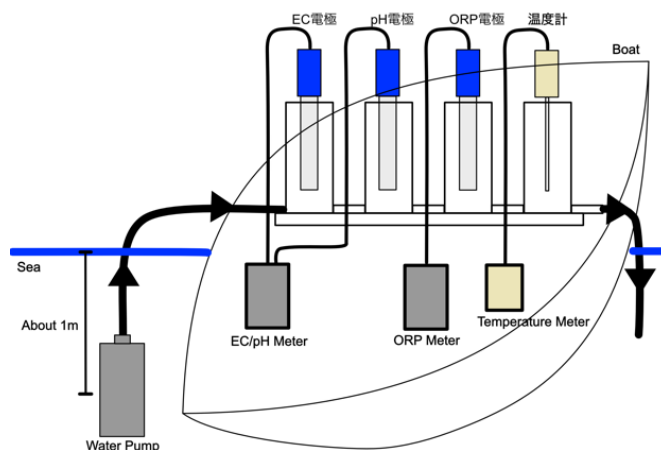


図 4.3-2 曳航観測フローセル方式水質計測 ユニットの概念図

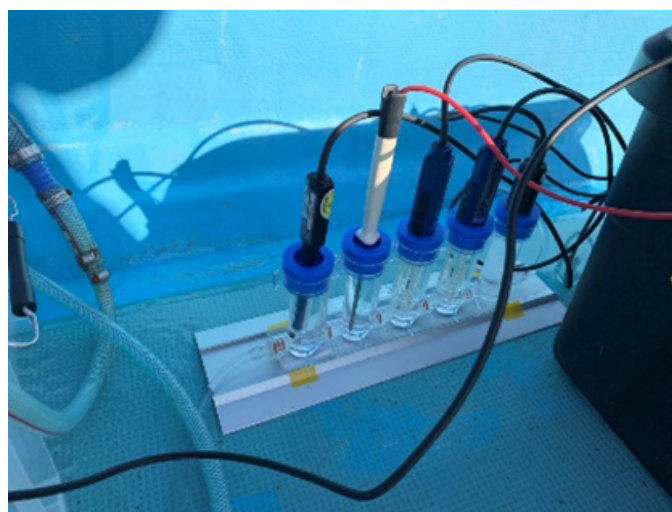


写真 4.3-4 各種水質センサーを取り付けたフローセル

元からフローセル方式計測器として市販されている TOA-DKK 社製ポータブル溶存水素計 DH-35A (写真 4.3-5) をフローセル式水質測定ユニットの測定ラインに組み込んだ。この測定器は AC 電源のほか電池動作も可能で、本体が防滴構造となっているため、曳航観測に向いている。隔膜型ポーラログラフ電極方式で、 $\mu\text{g/L}$ (ppb) オーダでの高感度測定が可能であり、 $\text{H}_2$  ガス濃度 100% から 0% に低下させたときの応答性能は 90% 応答で 30 秒以下である。別府の噴気地における予備試験で、5 ppb の溶存  $\text{H}_2$  でも精度良く検知できること(平均値 = 5.3 ppb, C.V.% = 2.6)を確認している。この測定器の測定値の読み取りは直読方式であるが、アナログ出力(0~1V)機能があるので、出力電圧にあったデータロガー(日機装サーモ製高精度 8CH データロガー N543RV)を接続して連続測定に対応できるようにした(写真 4.3-5)。

R 2 年度に導入した  
フローセル方式  
溶存H<sub>2</sub>濃度計



電極内蔵のフローセル



写真 4.3-5 計測値ロギング用のデータロガーを追加した溶存水素計

曳航観測に際して、海水を組み上げる水中ポンプには小型のビルジポンプを使用する。ポンプは 2 台用意し、1 台を CO<sub>2</sub>-Rn 濃度観測ユニット用、1 台をフローセル式水質測定ユニット用とした。全長約 5 m 程度の小型船舶（プレジャーボートや漁船）の前方から深さ 1 m 程に取り付けた水中ポンプによって汲み上げた海水をホースで船上の気液分離装置およびフローセルそれぞれへ送り、<sup>222</sup>Rn は 2 分間隔、CO<sub>2</sub> と ORP, pH, EC, 溶存水素および水温は 1 分間隔で計測し、データをロギングした（写真 4.3-6, 4.3-7）。なお、フローセルを通過した後の海水はドレイン・チューブを通して排出される構造になっているため、センサー類の測定値を確認しながら任意のタイミングでこのチューブ出口から採水を行うことが可能である。

船舶を 5 km/h 程度の低速でゆっくりと走航させながら（写真 4.3-8）、観測点の位置情報（緯度経度）を GARMIN 社製の GPSmap 62SCJ により順次取得した。また、これら曳航観測に関わる測定装置類とは別に、取り外し可能なポータブルな GPS ソナー（HONDEX 製ポータブル GPS 内蔵プロッター魚探）も用意し、航行中の緯度・経度および水深についても随時測定を行った。



写真 4.3-6 観測システムの積込状況

3~4 人乗りの船であれば曳航システムの積載は可能である。

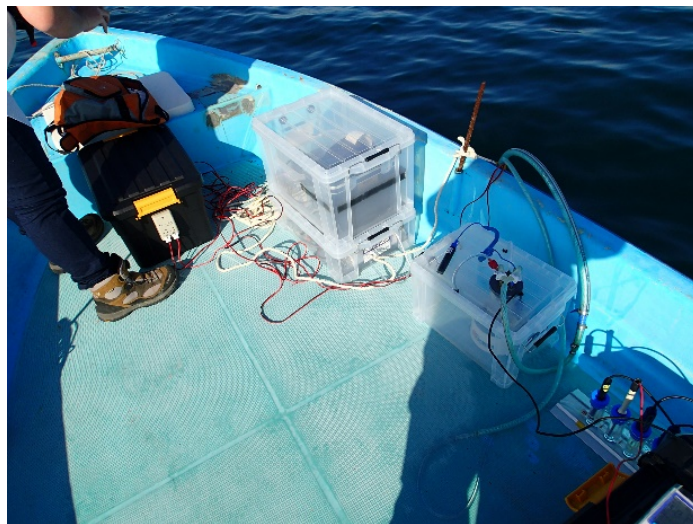


写真 4.3-7 ポンプ稼働時の状況

舳先から CO<sub>2</sub>-Rn 測定ユニット，気液平衡装置，フローセルと並ぶ。



写真 4.3-8 曳航調査の遠景

曳航船の中央やや前よりのホースを通じて海水が汲み上げられる。

#### 4.3.3 海底からの火山性 CO<sub>2</sub> の湧昇が見られる姫島沿岸における曳航観測システムの実地検証

本研究で構築した地球化学曳航観測システムを用い、海底からの CO<sub>2</sub> ガス流出が認められる大分県姫島の西浦沖沿岸海域において(写真 4.3-9), 火山性流体海底流出にともなう観測システムの異常値検出能力に関する実検を 2021 年 10 月 30 日~10 月 31 日に行った. 併せて, 濃度変化が特に予想される海水溶存 CO<sub>2</sub>(DIC)ならびに海底流出ガスに関する炭素同位体地球化学調査も合わせて実施し, この実検に対して意味づけを行った.

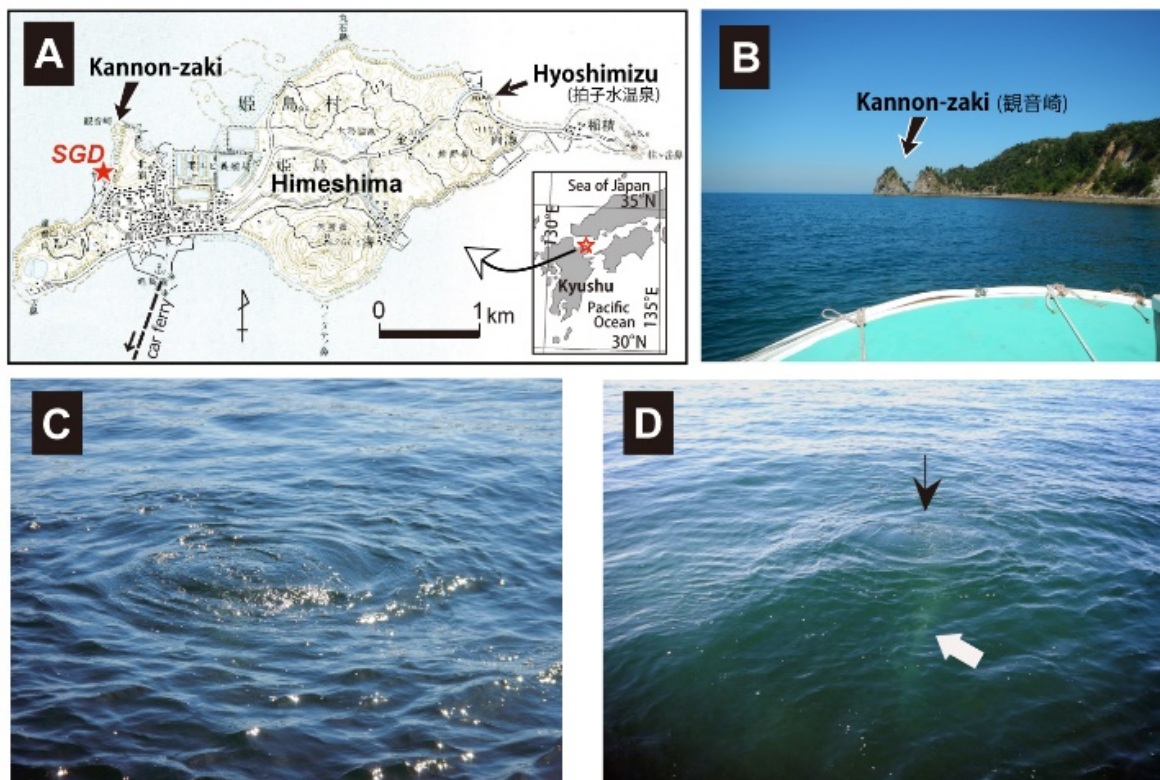


写真 4.3-9 大分県姫島, 西浦沿岸沖における火山性 CO<sub>2</sub> ガスの湧昇 (大沢・三島, 2017)

##### 4.3.3.1 曳航観測と同位体地球化学調査の方法

曳航観測は, 4.3.2 に示した地球化学曳航観測システムを備船した小型船舶にフル装備して, 10 月 30 日に実施した. 前日の 10 月 29 日には, ガス湧昇の様子の確認と湧昇域に浮標を設置するために出船した. 曳航ルートは, 写真 4.3-10 左の衛星写真(元写真は Google Earth より転載して使用)上に赤いドットで示したように, ガス湧昇域(ピンクの円の範囲)を通過するように設定した. この日は長潮で, 観測時間帯前後の干潮時刻は 9:45, 満潮は 13:57 と予想されていた. 観測装置のアイドリングを 10:29 から始め, 沖合を 10:51 に出発してガス湧昇域に向かい, 湧昇地点(この際は主要な湧昇を 3 か所目視で確認)とその周辺を数回にわたって行き来した後, 13:15 に西浦港に到着した. この間の 2 時間半ほど, 曳航観測システムは安定して動作することを確認した. 測定タイミングは, 装置のレスポンスの関係で <sup>222</sup>Rn が 2 分間隔であることを除き, どの観測項目も 1 分間隔とした. 今回の曳航でもポータブル魚探を小型船舶に取り付けて水深や海底地形の確認を行ったところ(ガス湧昇域の実際的水深は約 4 m であった), ガス湧昇域では気泡によると考えられるエコーを幾度も視認できた(写真 4.3-10 にその一例を示す).



写真 4.3-10 西浦沿岸沖における曳航観測ルート (左), ガス湧昇域の様子 (右上), 潜水士による海底に流出するガスの直接採取の作業の様子 (右下)



写真 4.3-11 (左) 曳航観測システムのフローセルからオーバーフローする海水の採取の様子, (下) 船上で採水した海水試料の分析前処理の様子

4.3.2.2 で述べた様に、フローセル式水質測定ユニットのフローセルの出口から実験室内分析用に海水を採取できるので、溶存全炭酸(Dissolved Inorganic Carbon: DIC)の濃度と炭素安定同位体( $\delta^{13}\text{C}$ )測定用の海水試料を2分間に1回の頻度で採水した(写真 4.3-11)。フローセルからオーバーフローしてくる海水を1 Lのポリビーカーに受け(およそ2分で満杯になった)、船上でポリ瓶に仮保存した。観測終了後、採取した海水には、試料輸送・保管時の生物活動の影響を抑えるためにできるだけ速やかに塩化ベンザルコニウムを加え(Takahashi et al., 2019)、産総研へ送付し、化学・同位体分析に供した。湧昇してくる $\text{CO}_2$ ガスは逐次海水に吸収されていると予想しているが、ガス湧昇域付近で海水汲み上げ用のポンプを上下させてみたところ、海面付近で $\text{CO}_2$ の吸収が強く生じているように思えたので、臨時にガス湧昇が気泡として目視できる海面の数か所で海水をひしゃくで採水して、それらも同様の化学・同位体分析に供した。

大沢・三島(2017)は、今回と同じ沿岸域のガス湧昇域の海面で気泡を採取し、ガス組成やヘリウムなどの不溶性ガスの同位体分析を行っているが、海面に至る前の海底から流出した直後のガス組成や同位体組成のデータを取得するために、地元の漁師・潜水士の協力のもとに曳航観測の翌日の10月31日に海底付近で気泡の採取を行った(写真 4.3-10)。潜水士は大型サイズのポリ袋を手を持って海底付近までもぐり、ポリ袋の口を噴出口付近に当てて気泡を採取したが、想像していた以上に海底ガス流出の勢いが強くて気泡のみの採取は難しく、付近の海水と一緒に採取されてきた。試料採取は3度試みたが、どれも結果は同じで、ガス-水比(体積比)は目分量で1:4程度であった。その際、共存海水の量が無視できないと考え、海底流出直後のガスを入手するという目的を改め、観測終了後の2時間ほど、海底噴出ガスと海水をそのままポリ袋の中に放置して $\text{CO}_2$ ガスが海水に溶けるだけ溶け込ませるという“実験”を行った(実験終了後にポリ袋から取り出した海水のpHは5.09と $\text{CO}_2$ がかなり溶け込んだことを示した)。この海水試料も前述のDICの濃度と炭素安定同位体( $\delta^{13}\text{C}$ )測定に供した。また、この実験で海水と共存させた海底噴出ガスは、ガス組成分析(京都大学地球熱学研究施設)とヘリウム同位体組成ならびに $\delta^{13}\text{C}$ 測定(産総研・活断層・火山研究部門 深部流体研究グループ)に供した。なお、試料ガスとしてガス採取容器に取り分ける際に、 $\text{H}_2\text{S}$ (硫化水素)臭が感じられた。

#### 4.3.3.2 曳航観測の結果

姫島西浦沖沿岸海域での約2時間半にわたる連続曳航観測の結果を図 4.3-3 に示す。図左側半分がフローセル式水質測定ユニットによる測定の時系列データで、右半分の上3つが気液平衡 $\text{CO}_2$ -ラドン(Rn)観測ユニットによる測定の時系列データである。 $\text{CO}_2$ の生データは気液平衡装置内の気相部分に追い出された $\text{CO}_2$ の濃度であるが、ここに表した値は測定水温におけるヘンリー定数を用いて気相中に追い出される前の海水中の全炭酸濃度、すなわちDIC濃度に換算した値である。一般的な外洋海水のDIC濃度は2 mmol/L程度と言われているが、黄色いハッチを付したDIC濃度が大きく変化した時間帯を除き、DIC濃度はだいたい2000  $\mu\text{mol/L}$ (2 mmol/L)になっており、気液平衡装置内において平衡状態で $\text{CO}_2$ 計測が行われていたことを示している。このようにして連続計測されたDIC濃度は最高時には一般的な海水DICの2.5倍ほどの濃度を示しており、海底噴出ガス( $\text{CO}_2$ )を海面付近で捉えたと考えられる。

他方、ラドン( $^{222}\text{Rn}$ )にはそれと同調する変化は見られなかった。同様なことは溶存水素( $\text{H}_2$ )、pH、EC および水温にも言えるが、酸化還元電位(Eh:ORP 測定値を電気化学で基準とされる標準水素電

極での値に換算した値)には、DIC 濃度の変化と完全には一致しないが、曳航観測の間、減少した後に増加するというブロードな濃度変化が記録されている中で、黄色いハッチのかかった DIC 濃度増大の時間帯に最も低い値になっており、DIC 濃度の変化に対応しているように見える。前に述べたように、海底付近で採取したガス試料からは  $H_2S$  臭を感じたが、水に溶けた  $H_2S$  が Eh を下げる原因になっていると考えることは妥当であろう。予備調査時にこの沿岸水域に Eh が相対的に低いエリアが存在することを認識していたにもかかわらず解釈できていなかったが、今回の観測・調査で理由付けができた。この解釈が正しければ、ORP 値 (Eh) は  $H_2S$  濃度の代替指標であると言えよう。また、pH が小刻みに細かく変動する時間帯は(同様な見方をすると Eh も小刻みに小さく変動しているように見える)、曳航船は写真 4.3-10 の左中に表したガス湧昇域辺りを航行しており、海水の pH(と Eh)も湧昇ガスの影響を受けていると思われる。

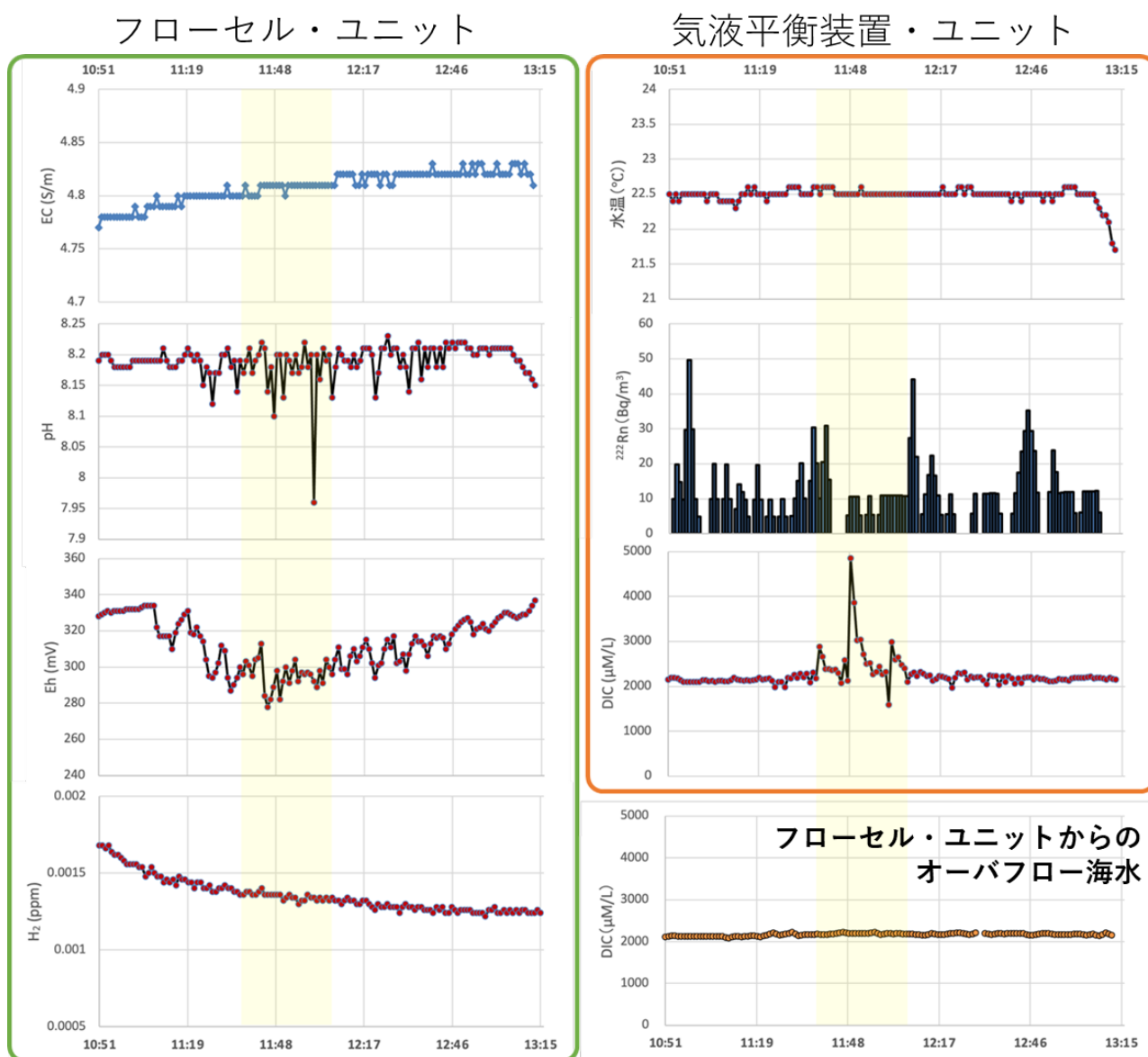


図 4.3-3 2021 年 10 月 30 日、姫島西浦沖沿岸曳航観測によって得られたデータの時系列変化



#### 4.3.3.3 同位体調査の結果

海底から放出されている CO<sub>2</sub> ガスの起源を推定するために、採取したガス試料(実際は、先述のように、海底付近の海水と約2時間サンプルポリ袋の中で共存させたもの)の化学・同位体分析データを用い、Sano and Marty (1995)の方法で解析を行った。図 4.3-4 はその図的解析結果で、マントル CO<sub>2</sub>、海成炭酸塩、堆積性有機物の3つの起源炭素が混合した CO<sub>2</sub> であることが示されており、島弧火山ガスの特徴を有している。同位体に関する保存を前提にした混合計算の結果、マントル CO<sub>2</sub>、海成炭酸塩、堆積性有機物それぞれの混合率は、それぞれ 62%、28%、10%と算出され、CO<sub>2</sub> が海水に溶解除去されて C(CO<sub>2</sub>)/<sup>3</sup>He 比が元の値より低くなっている分だけマントル成分の割合がいくぶん高めに算出されていると思われるが、姫島の東側沿岸の陸側に湧出する拍子水温泉(姫島鉱泉)の遊離 CO<sub>2</sub> に関して同様の方法で計算された結果(マントル CO<sub>2</sub>:海成炭酸塩:堆積性有機物=4%、65%、32%;大沢ほか, 2015)に比べて、マントル成分に富み、また、拍子水 CO<sub>2</sub> の δ<sup>13</sup>C=-9.1‰は、西浦のその-5.7‰より低く、西浦の海底ガスには地球深部に由来する可能性のある CH<sub>4</sub> が含まれる(大沢・三島, 2017)ことからしても CO<sub>2</sub> のソースが異なる可能性もあるが、いずれにしても火山性の CO<sub>2</sub> と言ってよいであろう。

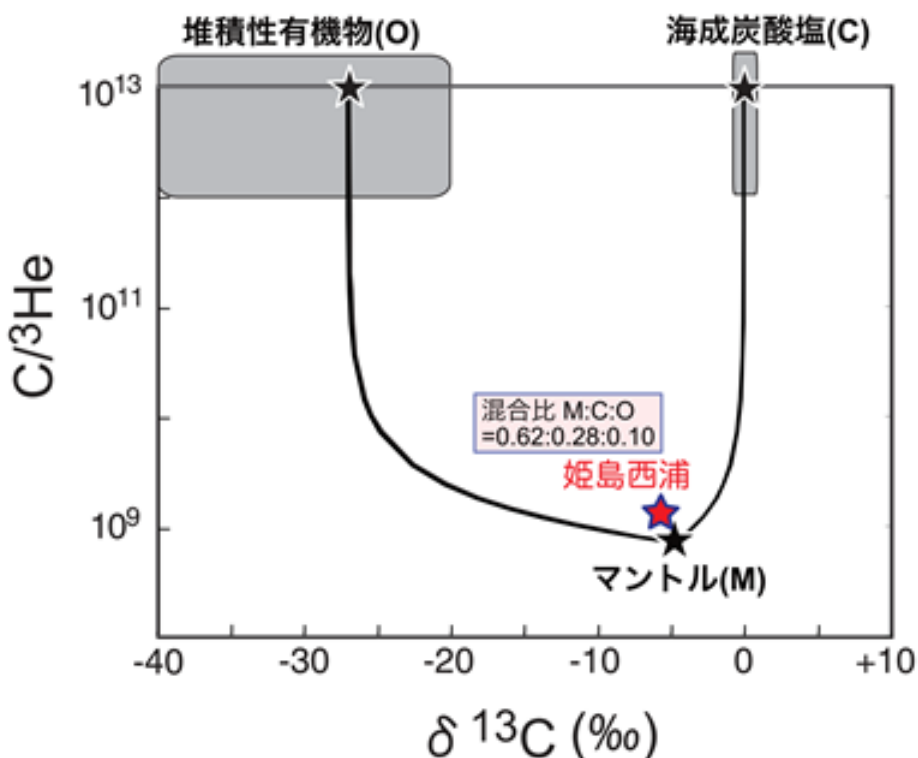


図 4.3-4 西浦沿岸沖の海底に流出する CO<sub>2</sub> ガスの起源に関する地球化学解析結果

図 4.3-5 は、西浦の海底に流出している CO<sub>2</sub> ガスが、DIC 濃度= 25 mgC/L・δ<sup>13</sup>C= -0.12‰の海水に混合溶解して生じるとして算出した混合線(「海水と噴出ガスの混合線」と記した破線)を示した図である。4.3.3.1 に記載した、海底ガスと共存させた海水やガス湧昇付近で採取した表面海水のみならず曳航観測の際にフローセルの出口から採取した海水もこの混合線上に乗っており、いずれも海水に海底から湧昇してくる火山性の CO<sub>2</sub> ガスが混合したとして説明できる。このことは、海面下に活動中の火山が潜む海域でその影響を受けて DIC 濃度が周辺域のそれよりも高い海水が

分布していれば、それを本研究で開発した曳航観測システムによって十分検知できることが期待できることを示していると言え、本研究は目的を果たしたものと考えられる。なお、図 4.3-3 の右側最下段に示したフローセルからオーバーフローする海水の DIC 分析濃度に、気液平衡装置 CO<sub>2</sub> 観測で捉えたような有意な変化が現れなかったのは、濃度変化が生じている海水が順次汲み上げられてきているにもかかわらずピーカーにまとめて採取したために、変化が平滑化されてしまったことが原因ではないかと考えられる。

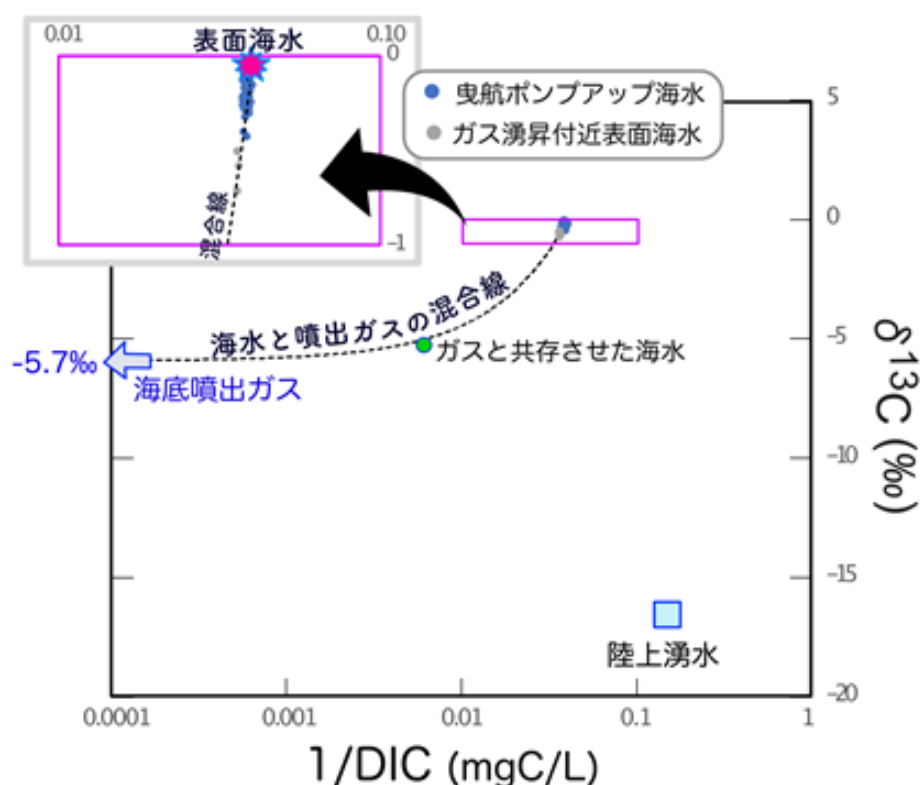


図 4.3-5 西浦沿岸沖ガス湧昇域海水の溶存全炭酸(DIC)の由来成分の混合関係

#### 4.3.4 まとめと課題

これまでの2年間で開発した、気液平衡装置を用いた溶存 CO<sub>2</sub>-Rn 濃度測定ユニットとフローセル方式による ORP-pH-溶存水素濃度測定ユニットで構成される多項目地球化学曳航観測システムを、海底カルデラ火山におけるマグマ起源流体湧出の検出に実戦配備できるようにするために、火山性 CO<sub>2</sub>ガスの海底湧出が確認されている大分県の火山島「姫島」の沿岸海域において、観測システムの安定動作と火山性ガス流出につながるシグナル検出の実験を目的として2時間半ほどの連続の曳航観測を実施した。また、曳航観測で強いシグナルが現れると予想された溶存 CO<sub>2</sub>(DIC)ならびに海底流出ガスの炭素同位体地球化学調査をあわせて実施し、実験結果に対して意味づけを行った。

ガス湧昇域を曳航している際に、一般的な外洋海水の DIC 濃度 (2 mmol/L 程度) を上回る DIC 濃度 (最高で 2.5 倍ほどの濃度) を頻繁に捉えることに成功した。曳航観測にからめて行った同位体調査のデータ解析の結果、この高い濃度の DIC は海底流出 CO<sub>2</sub> ガスによるものであることが分かった。また、この高濃度 DIC を捉えている際に酸化還元電位 (Eh) が同調するように最低レベルを示したことも特筆され、

海底付近で採取したガス試料から  $\text{H}_2\text{S}$  臭がしたことから、Eh を下げているのは水に溶けた  $\text{H}_2\text{S}$  である可能性が高く、Eh(ORP)値は  $\text{H}_2\text{S}$  濃度の代替指標として使えそうであることが示された。その一方で、ラドン( $^{222}\text{Rn}$ )、溶存水素( $\text{H}_2$ )、EC および水温には有意な変化は現れなかった。

本研究で構築した「地球化学曳航観測システム」によって、海底に流出する火山性流体(火山ガスや温泉水)の“信号”を海面で捉えることができるようになったと考えるが、海底カルデラや海底火山の存在海域での今後の運用を念頭に、課題やコメントを以下に書き記しておく。

- ・古い火山島である姫島における実検で有意なシグナルが現れなかった観測項目のうちの溶存水素濃度は、海底付近で採取した海底流出ガス中に水素( $\text{H}_2$ )が検出されていないことから、納得がいく。高温の火山ガスの海底放出があれば、相応の高濃度  $\text{H}_2$  ガスも一緒に噴出しているはずなので、そのような海域での曳航観測では溶存  $\text{CO}_2$  (DIC) や ORP ( $\text{H}_2\text{S}$  濃度の代替指標)と同様な有意な変化(溶存水素濃度の増加)を捉えられると期待できる。

- ・本研究では、沿岸海域での海底地下水湧出(Submarine Groundwater Discharges:SGD)に多用されているラドン曳航観測で用いられている気液平衡装置(Durridge 社の RAD AQUA)を流用したために、溶存  $\text{CO}_2$  観測部が煩雑になり、さらに計測値から観測データを得るには計算を行わなければならない。知りたい地球化学的情報をその場で得ることができない。そこで、マシン・トラブルの心配を軽減させるためにも、溶存状態で(DIC として)直接計測するのが望ましい。高価であるがそのようなセンサーや測定装置が市販されており、予算が許せば、その導入を検討するのがよいと考える。 $\text{H}_2\text{S}$  濃度の代替指標になる可能性がある指摘した ORP(酸化還元電位)は、計測器そのものはいたってシンプルで安定しているため、溶存  $\text{CO}_2$  観測部のような問題は抱えていないが、溶存  $\text{H}_2\text{S}$  濃度を直接測ることができる市販品が入手可能であるので(ただし、対応メーカーは世界でまだ1社のみでしかも高価である)、これも予算が許せば導入を検討してみるとよいであろう。

- ・海底から流出する火山性の  $\text{CO}_2$  を地球化学的に検出するという目的で炭素の安定同位体に着目することは、極めて妥当かつ有意義であることを本研究は支持する。例えば、同位体比赤外分光(IRIS)装置の導入が頭に浮かぶが、この方法がガス状態での測定を前提にしていることから“気液平衡装置導入問題”を抱えることになり、電源も相応のサイズと重量になると想像される。それらの解決を行う研究を行うことも無意味ではないと思うが、本研究の中で実作業として行った方法であるが、抜き取り検査的に海水をすくい取り(どのタイミングで採水するかは、例えば、ORP 測定値を船上で見ながら判断)、実験室を持ち帰って  $\delta^{13}\text{C}$  測定を行って火山性であるか否かの検証に用いるというのが現実的なやり方であろう。

#### 【引用文献】

岸田立(2019)ラドン曳航調査による別府湾沿岸における海底温泉湧出の検出。京都大学院理学研究科修士論文, 40p.

大沢信二, 三島壮智, 酒井拓哉, 長尾敬介(2015)姫島火山に湧出する鉱泉「拍子水温泉」の地球化学的研究。温泉科学, **64**, 354-368.

大沢信二・三島壮智(2017)姫島火山の沿岸海底から放出されている遊離ガスの化学・同位体組成。火山学会誌, **62**(1), 31-36.

大沢信二・岸田立・本田尚美・三島壮智・杉本亮・谷口真人(2022)ラドン曳航調査でみた別府湾沿岸の海底温泉湧出. 陸水物理学会誌, 投稿中.

Sano, Y. and Marty, B. (1995) Origin of carbon in fumarolic gas from island arcs. *Chemical Geology*, **119**, 265–274.

杉本亮・大河内允基・山崎大(2017)沿岸海域に湧き出す地下水を可視化する方法. 「日本水産学会監修 小路淳・杉本亮・富永修 編 水産学シリーズ185 地下水・湧水を介した陸—海のつながりと人間社会 3章」, 38-53, 恒星社厚生閣, 東京.

Takahashi, H. A., Honda, H., Sugiyama, A., Matsushima, M., Kondo, M., Kimura, H., Tsujimura, M. (2019) Filtration and exposure to benzalkonium chloride or sodium chloride to preserve water samples for dissolved inorganic carbon analysis. *Geochemical J.*, **53**, 305–318.



#### 4.4 地下水による火山活動推移観測項目の検討

##### 【実施内容】

カルデラ火山の火山活動の変化を捉えるモニタリング手法としての地下水観測項目について検討するため、始良カルデラで地下水調査を行い、水質・同位体組成を把握し、調査地点を設定する。調査地点においては年数回程度の定期試料採取・分析を行い、各成分の変動を考慮に入れ、火山活動の変化を捉える観測項目としての適応性を検討する。今年度も、これまでに選定・追加した観測地点の地下水試料の繰り返し調査をひきつづき行った。観測地点においては1~2か月ごとの定期試料採取・分析を行い、マグマに関する成分の微小な変動トレンドを用いたマグマ活動に関する変動かどうかの判定、さらには、変動のベクトルを用いてマグマ活動の状態を推定するための手法を検討した。本手法は、海水が多く含まれる地下水でも、微小な変動を捉えることができれば、マグマ活動の状態評価が可能であると考えられる。今回検討した観測地点では、約3年間のデータ集積により1)変動の少ない安定した系、2)海水の混合やマグマ水の混合率の変化する系の存在が明らかになった。

##### 【調査・研究成果】

##### 4.4.1 定期観測地点と水質特徴

地下水による始良カルデラの火山活動モニタリングのための観測項目検討のため、カルデラ周辺部の採水可能な民間の温泉用井戸5箇所(A-1からA-5)を選定し、月一回の定期観測を2019年8月から開始した(産総研, 2020)。昨年度からA-6地点の湧水を新たに設定し、2020年4月から定期観測を開始した。A1-A5の5地点で2019年8月から2021年12月までの30回の観測結果が得られ、A6地点で2020年4月から2021年12月まで21回の観測結果が得られている。定期観測を続けることにより、火山活動に関連する水質要素の変化を検出することが期待され、その変化からマグマの種別、活動に関する情報や意義を検討することができると思われる。

定期観測地点を図4.4.1-1に示す。各観測地点では、採水を行うとともに、水温、導電率、pHを現地で測定し(産総研, 2021)、実験室で水質組成、水の水素・酸素同位体比( $\delta D$ ,  $\delta^{18}O$ )、溶存無機炭素同位体比( $\delta^{13}C_{DIC}$ )を分析した。選定した地点の特徴を示すため、水試料の $\delta D$ ,  $\delta^{18}O$ 及びCl濃度の関係を図4.4.1-2及び図4.4.1-3に示す。

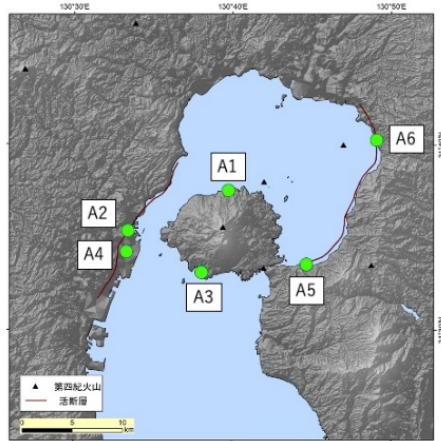


図 4.4.1-1 始良カルデラの火山活動モニタリング項目の検討のための定期観測井(A1～A6)(産総研,2021)

断層の情報は産総研地質調査総合センター(2015), 第四紀火山は西来ほか(2012), 地形データは基盤地図情報(国土地理院)による。

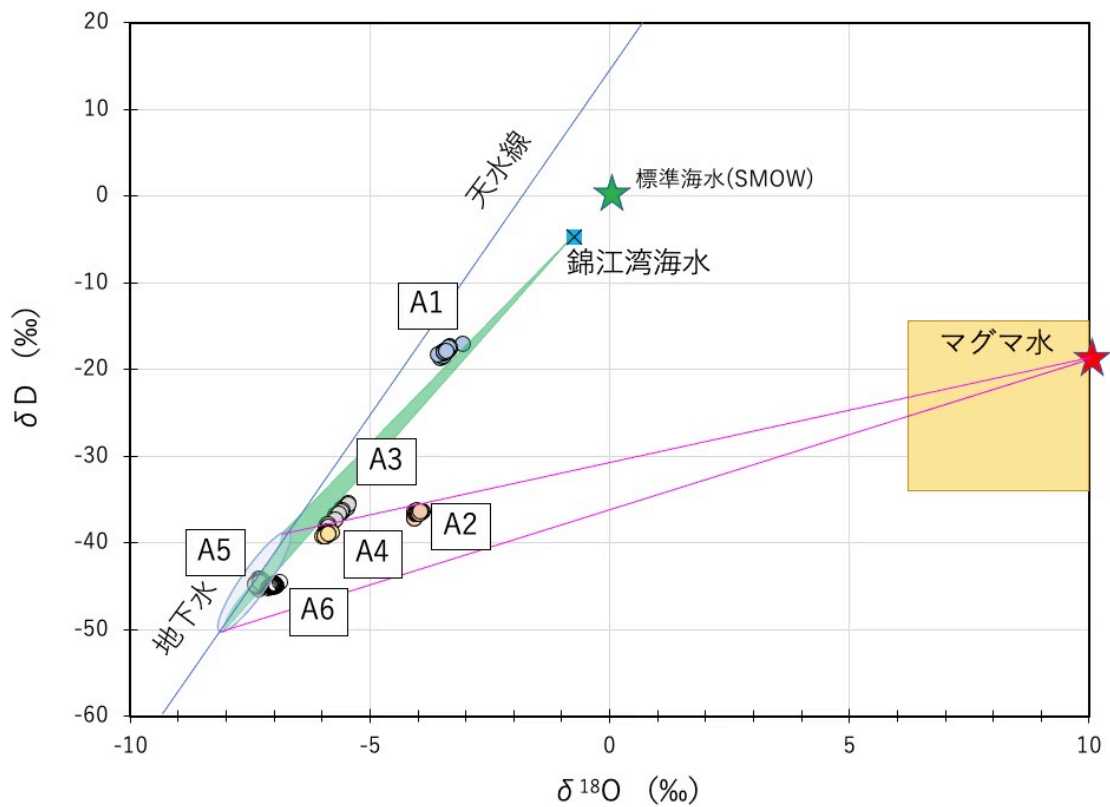


図 4.4.1-2 定期観測井における地下水の同位体組成 ( $\delta D$ - $\delta^{18}O$ )

マグマ水の同位体組成の範囲は Giggensbach (1992) による。天水と海水との混合領域及びマグマ水の範囲を合わせて示した。

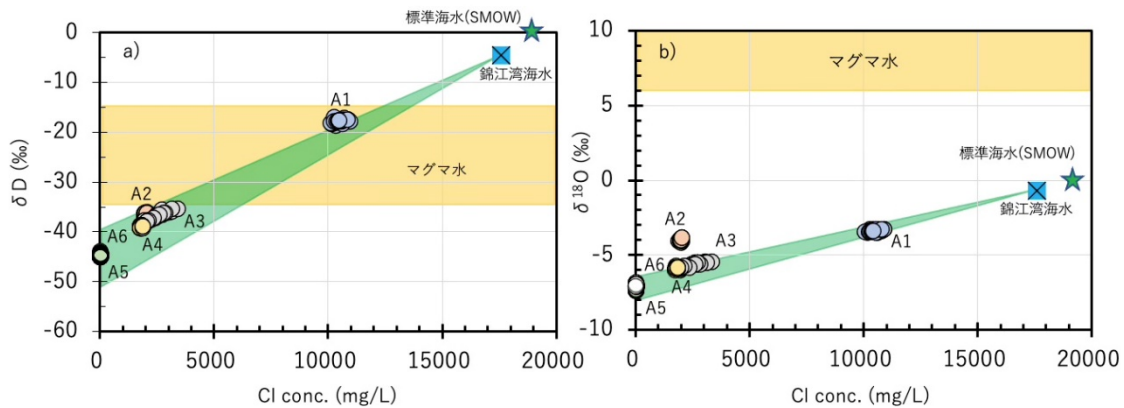


図 4.4.1-3 定期観測井における地下水の a)  $\delta D$ -Cl 濃度と b)  $\delta^{18}O$ -Cl 濃度の関係  
 天水と海水との混合領域及びマグマ水の範囲を合わせて示した。

図 4.4.1-2, 図 4.4.1-3 において錦江湾の海水は内海であるため、天水による希釈があり、標準海水よりも Cl 濃度が低く、同位体組成は天水にシフトした値を持つ。図 4.4.1-2 に示したように、マグマ水の同位体組成の範囲は Giggensbach (1992) の範囲にあると考えられる。ここでは、4.2.1 章で用いた値をマグマ水の値とした。マグマ水の範囲は、図 4.4.1-3 に示した Cl 濃度との関連図になると大きな幅を持つ。これは 4.2.1 章で示したように、各マグマプロセスにより放出される  $Cl/H_2O$  比が大きく変化するためである。各観測点の同位体組成及び Cl 濃度の特徴について以下に示す。A1 は Cl 濃度が最も高く (10000 mg/L 以上；図 4.4.1-3)、同位体的には、天水と海水の混合系 (図 4.4.1-2) と考えられる。しかしながら、図 4.4.1-2 及び図 4.4.1-3a に見られるように、A1 は海水と天水の混合線から微妙に外れている。これは 4.2.1 章で議論したように、海水の端成分が錦江湾の海水ではなく、地層中で変質した海水であることによるものと考えられる。A2, A3 及び A4 は、Cl 濃度は 2000-3000 mg/L であり、基本的には、天水-マグマ水混合系 (図 4.4.1-2) であると考えられるが、特に A3 では顕著な海水の寄与がある (図 4.4.1-3)。また、A5 及び A6 は Cl 濃度がそれぞれ約 20 mg/L 及び約 50 mg/L 程度であり、水の同位体組成も天水に近い (産総研, 2021)。

次に、図 4.4.1-4 に  $\delta D, \delta^{18}O$  と Br 濃度の関係を示す。図 4.4.1-4 から繰り返し観測地点の A1, A2, A4 の 3 地点では、水の同位体比がほぼ一定にも関わらず、Br 濃度が変動していることがわかる。A3 においても Br 濃度が変化しているが、変化は海水との混合線上にあり、A3 は海水成分の割合の変動で説明できる。しかしながら、A1, A2, A4 は海水の混合割合の変化では説明できない。次に図 4.4.1-5 に  $\delta^{18}O$  と I 濃度の関係を示す。この図から A1, A2 において水の同位体比が一定であるにも関わらず I 濃度が変動していることがわかる。A3 は、現在の海水との混合線上にはなく、地層中で変質した海水との混合関係があるようである。以上から、繰り返し観測地点の A1, A2, A4 では、何らかの原因で Br と I 濃度が増加している。水の同位体比が一定であることから、未知の端成分の存在は考えにくく、



井戸の揚湯管あるいは貯留タンクなどで Br, I などを吸着するような反応が生じている可能性があるが、原因の解明には至っていない。

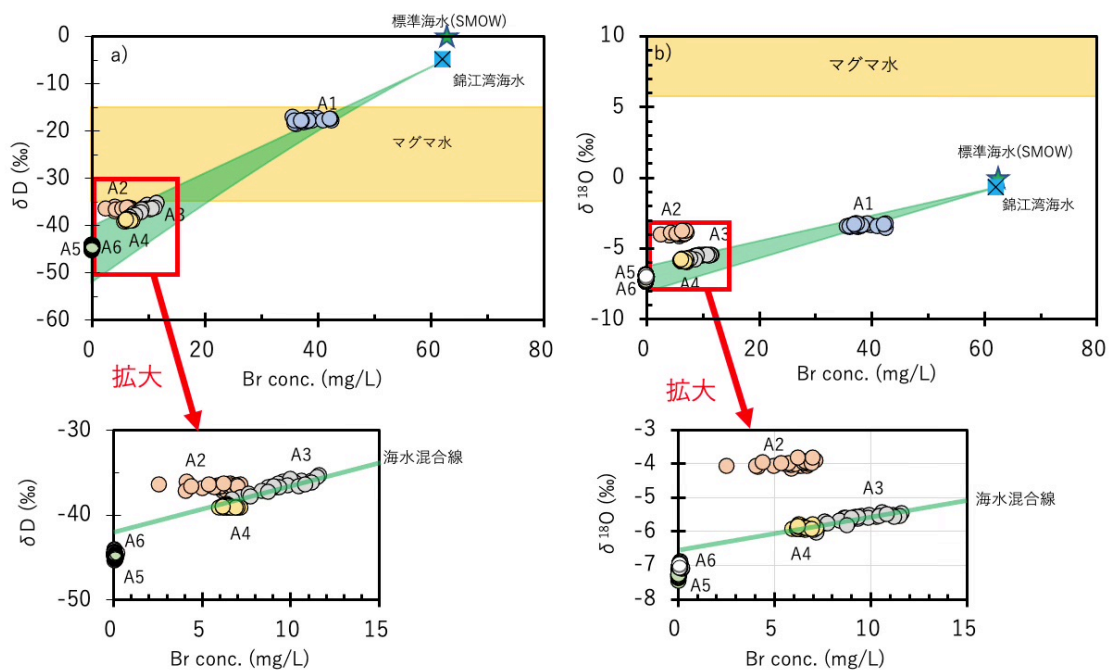


図 4.4.1-4 定期観測井における地下水の a)  $\delta D$ -Br 濃度と b)  $\delta^{18}O$ -Br 濃度の関係  
 天水と海水との混合領域及びマグマ水の範囲を合わせて示した。

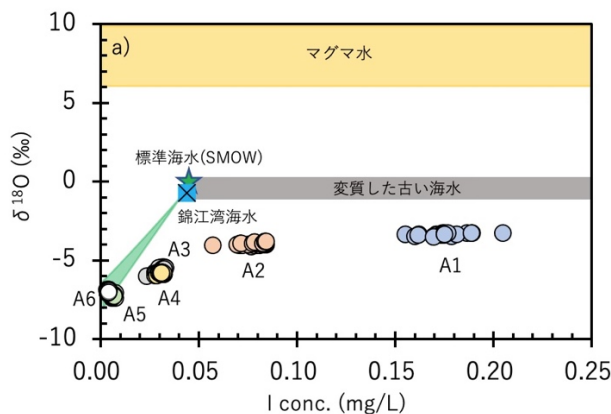


図 4.4.1-5 定期観測井における地下水の  $\delta^{18}O$ -I 濃度の関係  
 天水と海水との混合領域及びマグマ水の範囲を合わせて示した。

次に、図 4.4.1-6a)に Cl 濃度とマグマ起源炭素(Cds)濃度の関係を、図 4.4.1-6b)にマグマ起源炭素 (Cds) 濃度と水の酸素同位体比( $\delta^{18}O$ )の関係を示す。Cds は 4.2 章において、炭素同位体比を用いて求めたマグマ起源炭素濃度である。この図から Cds 濃度は、A1 を除き錦江湾の海水や標準海水とは無関係であることがわかる。また、A1, A3, A6 は Cds が変動し

ていることもわかる。図 4.4.1-6a)と b)から A1 は錦江湾海水と雨水起源の地下水との混合線上にあるが、Cds の変化トレンドは海水とは無関係である。以上から、A1, A3, A6 は、Cds 濃度を上昇させるマグマ起源のガス成分が混入し、その量の変動している可能性が考えられる。

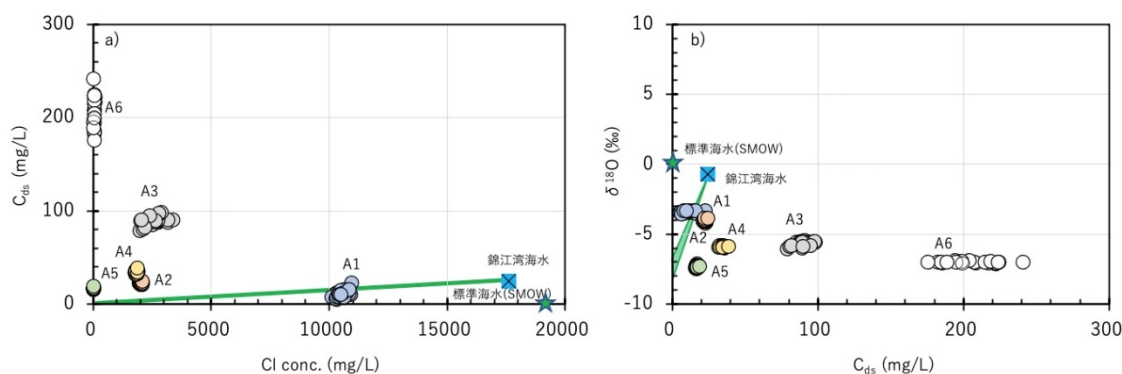


図 4.4.1-6 定期観測井における地下水の a) Cds 濃度-Cl 濃度と b)  $\delta^{18}\text{O}$ -Cds 濃度の関係  
天水と海水との混合領域を合わせて示した。

#### 4.4.2 定期観測地点の水質変動

4.2.1 章で示した C/Cl-Cl/H<sub>2</sub>O 法は、地下水に長期間にわたり付加されたマグマ起源成分の特徴から、地下水の滞留時間に相当する期間における平均的なマグマ溜まりの状態を推定する手法である。各観測地点における C/Cl-Cl/H<sub>2</sub>O 法による結果を図 4.4.2-1 に示す。A1 は海水起源の Cl が非常に多く、マグマ起源の Cl 濃度を決定することができなかったため、本図には示されていない。A2 は苦鉄質マグマの固化(MS)に伴う熱水成分が含まれていること、A5 は珪長質マグマ生成(FD)に伴う脱ガス成分を含むことがわかる。また、A6 は pH が 4.8-5.5 であり遊離 CO<sub>2</sub> ガスを含んでいることから、C/Cl 比は過小評価していると考えられるが、それでも C/Cl 比は約 100 であり、苦鉄質マグマ供給(MD)による発泡に伴う脱ガス成分を含んでいると考えられる。A3 及び A4 は C/Cl 比の誤差が非常に大きい(図 4.4.2-1)、A4 はマグマ固化(FS, MS)に伴う熱水が関与し、A3 は珪長質マグマ生成(FD)に伴う脱ガス成分を含むか、あるいはマグマ固化(FS, MS)に伴う熱水が関与している可能性がある。

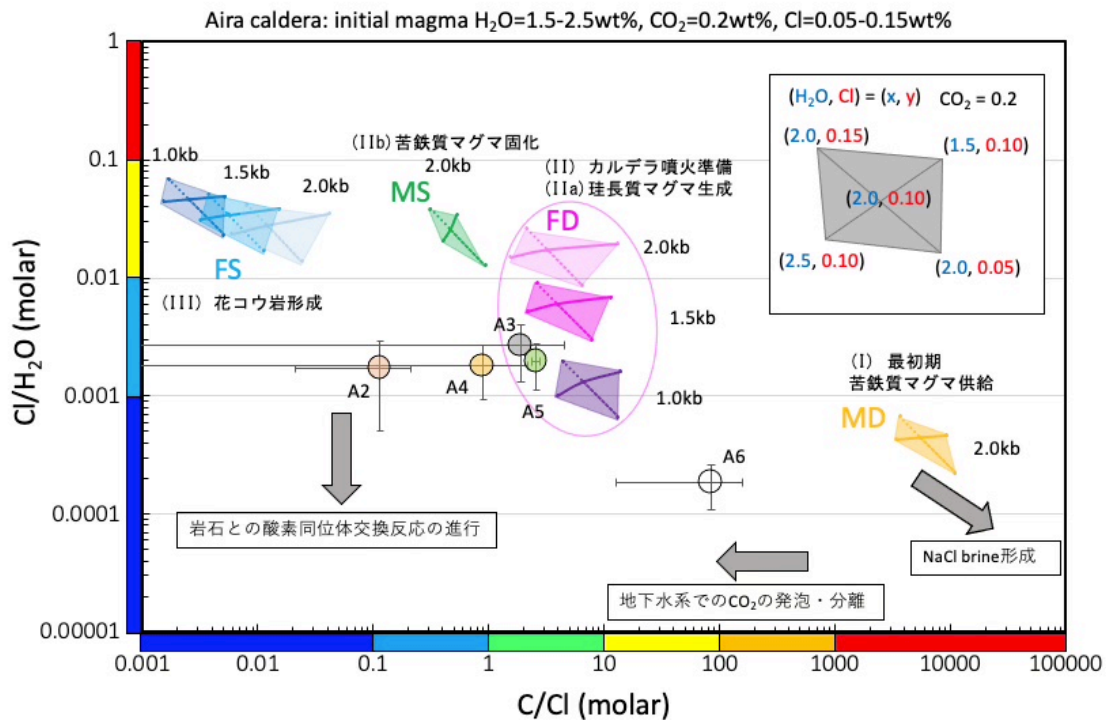


図 4.4.2-1 始良カルデラ周辺の繰り返し観測地下水(A2-A6)の C/Cl 比と Cl/H<sub>2</sub>O の関係

繰り返し定期的に行う観測は、各成分の微小な変動から変動にかかわる端成分の原因について明らかにし、地下のマグマ溜まり活動の種別の推定に用いることができる可能性がある(産総研, 2020; 2021)。繰り返し観測により現在の地下水系の組成を変動させる成分が抽出できるので、その変動ベクトルから変化の原因について解析することにより、現在進行形の火山活動とその原因を明らかにすることが期待される。今回検討した変動成分は、地下水の  $\delta D$ ,  $\delta^{18}O$ , Cl 濃度, Li 濃度, Cds(マグマ起源炭素)濃度である。昨年度までの検討においては、Br, I も変動解析に用いていたが、前節で述べたように地下水そのものによらない原因不明の変動が見られることがわかったため、今回は用いない。したがって、産総研(2020; 2021)において Br, I の変動を用いたマグマプロセスの解釈には根本的に問題があるため、改めて以下に A1~A6 の各観測地点における変動成分の特徴と変動に関与するマグマプロセスについて解釈した結果をまとめる。

#### 1) A1

A1 地点の地下水は海水成分が 50%以上と多く含まれるため、マグマ起源 Cl が判別できず、C/Cl-Cl/H<sub>2</sub>O 法で C/Cl 比, Cl/H<sub>2</sub>O 比のどちらも決定できなかった地点である。前節で述べたように、天水と変質海水が単純混合していると考えられる地点である。図 4.4.2-2a) は、地下水試料の  $\delta D$  と  $\delta^{18}O$  の変化を、30 回の観測値の平均値を 0 とし、その偏差(平均値からの差)により示している。図 4.4.2-2 a)では、海水の混合を示すベクトル上にデータ

があることがわかる。同図 b)では、 $\delta D$  と Cl 濃度についての同様の関係を示したものである。マグマ溜まりの各プロセス(MD, MS, FD, FS)により放出される熱水の Cl 濃度や炭素濃度が大きく変化するため、マグマ水の混合ベクトルもプロセス毎に大きく異なる。そのため、図 4.4.2-1 に示した各プロセスの C/Cl 比及び Cl/H<sub>2</sub>O 比の範囲に対応するマグマ起源 Cl 濃度の最大及び最小値を求め、各プロセスに対応する混合ベクトルの最大値、最小値の範囲を領域で示し色分けしている。同図 b)でも図 a)と同様に海水との混合関係がみえる。同図 c)は Li 濃度と Cl 濃度の関係を示している。マグマ起源の Li 濃度は Li/Cl (重量比) = 0.001 (風早ほか, 2014) に固定した。また、本図では変質海水のベクトルを新たに示している。風早ほか(2014)は、油田灌水のような続成作用を受け高温化し変質した海水の Li 濃度が上昇していることを示している。Li 濃度は、地下水の温度上昇とともに増加すると考えられるため (You et al., 1996), 変質海水の Li/Cl 比を 0.0005 と仮定し混合トレンドを示した。本図 c)では、変動の傾向から A1 の地下水が MS, FS のマグマ固化に伴い放出される熱水あるいは Li 濃度が上昇した変質海水の混入があることを示している。前節で述べたように、A1 は水の同位体比から変質した海水の混合が推定されており、C/Cl-Cl/H<sub>2</sub>O 法によってもマグマ起源の Cl の混入が認められなかった地点であるので、本図 c)のトレンドは変質海水混入によるとみるのが妥当であろう。次に、本図 d)はマグマ起源炭素 (Cds) 濃度と Cl 濃度の変動傾向を示している。右上がりの傾向がみえるため、変質海水の端成分に Cds が混入している可能性が考えられる。以上より、A1 地点の地下水は、天水起源の地下水と変質海水の混合で形成され、その混合比が変化することにより水質変動を起こしていると考えられ、現在のマグマ活動を反映する変化を検出することが難しい地点であると考えられる。

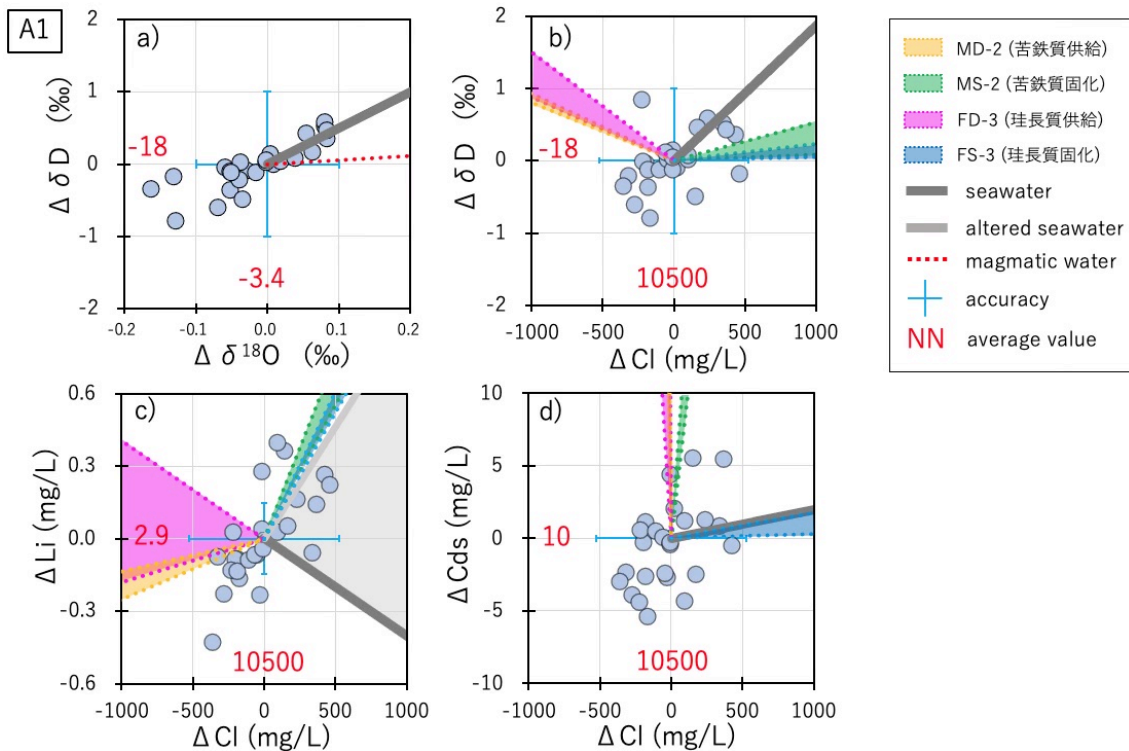


図 4.4.2-2 定期観測井 A1 における地下水の各種化学・同位体組成の変化

各図 a)-d) はそれぞれのデータの平均値からの偏差を表している。平均値はそれぞれの軸に沿って赤の数字で示した。各図には、海水 (c については変質海水も領域で図示) の混合ベクトル及び図 4.4.2-1 に示した各マグマ溜まりプロセスに伴うマグマ水の混合ベクトルを示す。混合ベクトルに範囲は、マグマに含まれる揮発物質濃度の違いや各プロセスを生じる圧力の違いにより放出される熱水組成の変化の幅に対応する。

## 2) A2

本地点は C/Cl-Cl/H<sub>2</sub>O 法で C/Cl 比及び Cl/H<sub>2</sub>O 比が求められている(図 4.4.2-1)。図 4.4.2-1 によれば、C/Cl 比がもっとも低く、マグマの固化に関連する熱水流体(MS, FS)の混入が考えられる。また、Cl/H<sub>2</sub>O 比が低いので A2 の地下水は岩石との酸素同位体交換反応が生じていると疑われる。本地点は図 4.4.1-2 の水の同位体組成において、明瞭に天水がマグマ水と混合していると考えられる地点である。図 4.4.2-3 a) に示した δD と δ<sup>18</sup>O の関係では、変動幅が小さいがマグマ水との混合を示すベクトルと一致するように見える。同図 b) の δD と Cl 濃度との関係では、変動幅が小さいため、変動による混合関係が不明瞭である。同図 c) の Li 濃度と Cl 濃度との関係では、マグマ水と海水の両方のベクトルと一致するが、どちらもベクトルが同じ方向であるためこの図のみでは判別ができない。図 a) の結果であるマグマ起源水との混合とは矛盾しない。同図 d) の Cds 濃度と Cl 濃度との関係では、変動幅が小さいため不明瞭であるが、マグマの供給(MD, FD)もしくは苦鉄質マグマの固化(MS)に関連する変動の可能性がある。A2 地点の地下水組成そのものは長期間の平均として苦鉄質マグマの固化に伴う熱水の混入が推定されている。現在起きている水質変動からマグマ水の混入

率の変動が考えられるが、その変動幅は非常に小さく、大部分は誤差範囲内にふくまれる。以上より、A2 地点は地下水の滞留時間内に苦鉄質マグマの固化(MS)に関係したマグマ起源水の混入が認められるが、新たなマグマの生成や供給を示めず積極的な証拠はないと結論できる。

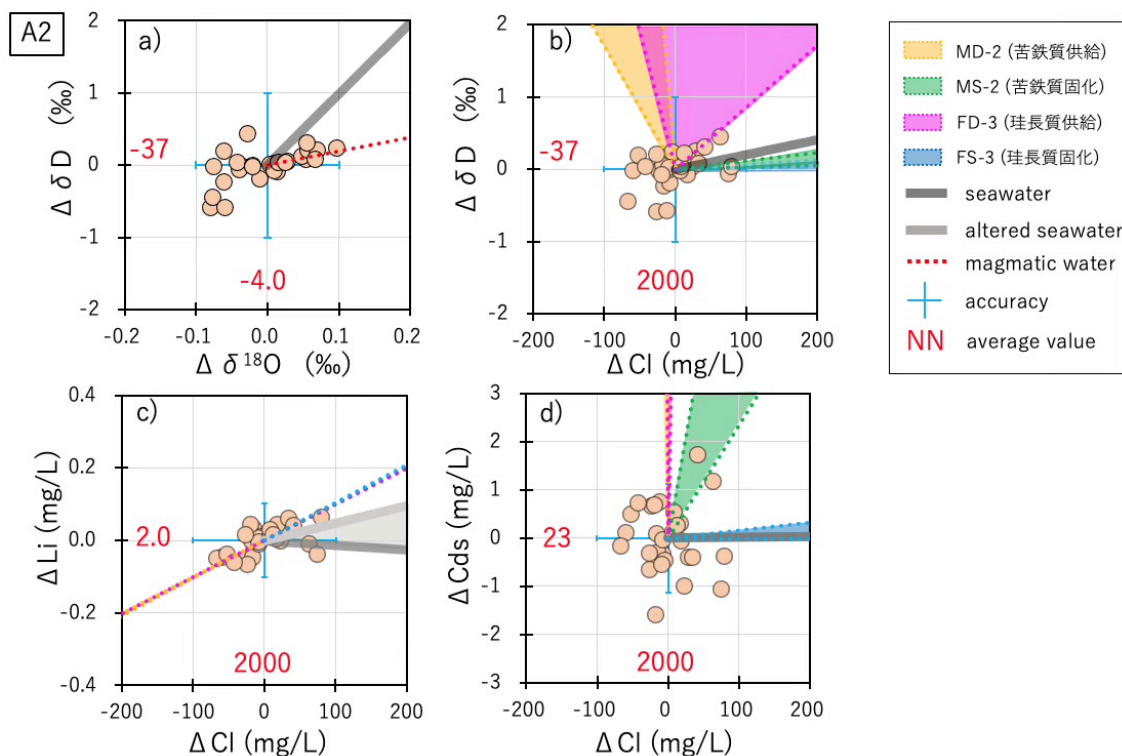


図 4.4.2-3 定期観測井 A2 における地下水の各種化学・同位体組成の変化

各図 a)-d)の表記は図 4.4.2-2 と同じ。

### 3) A3

本地点は図 4.2.2-1 によれば、C/Cl 比から珪長質マグマの生成に関連する熱水流体(FD)もしくはマグマ固化に関連する熱水(MS, FS)の混入が考えられる。また、Cl/H<sub>2</sub>O 比は非常に低いので、MS, FS の混入の場合は岩石との酸素同位体交換反応が疑われる。本地点は図 4.4.1-2 において、天水が海水及びマグマ水の両方と混合していると考えられる地点である。図 4.4.2-4 a)に示した δD と δ<sup>18</sup>O の関係では、比較的大きな変動が海水との混合比の変化によることがわかる。同図 b)でも、海水との混合関係が明瞭である。同図 c)は、Li 濃度と Cl 濃度の関係を示したものである。図 a)及び b)で明瞭な海水との混合関係があったことから、本図 c)のトレンドは Li 濃度が少し上昇した海水の混合であることがわかる。ただし、同図 d)の Cds 濃度と Cl 濃度の関係は、海水の混合とは異なる。混入する端成分である多少変質した海水が、Cds を含んでいる可能性があげられる。以上より、A3 地点の地下水は、1)天水、2)FD, MS,もしくは FS のプロセスにより放出されるマグマ水、及び 3)多少変質した(同位体的には変質していない)海水の 3つの端成分の混合により形成されたものであり、

繰り返し観測により明らかになった明瞭な変動は 1)天水と 3)少し変質した海水の混合比の変化によりもたらされており、新たなマグマの生成や供給を示めず積極的な証拠はないと結論できる。

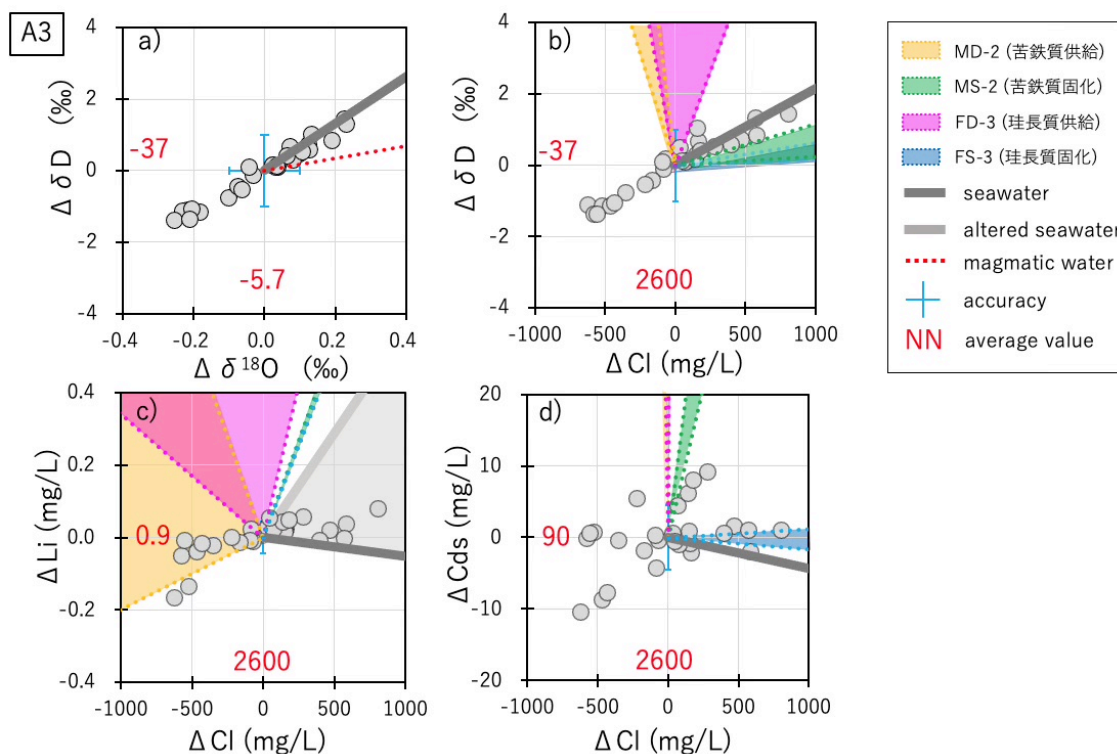


図 4.4.2-4 定期観測井 A3 における地下水の各種化学・同位体組成の変化

各図 a)-d)の表記は図 4.4.2-2 と同じ。

#### 4) A4

本地点は図 4.2.2-1 によれば、C/Cl 比からマグマの固化に関連する熱水流体(MS, FS)の混入が考えられる。また、Cl/H<sub>2</sub>O 比は非常に低いので岩石との酸素同位体交換反応が疑われる。本地点は図 4.4.1-2 において、天水がマグマ水あるいはマグマ水と海水の両方と混合していると考えられる地点である。図 4.4.2-5 a)に示した δD と δ<sup>18</sup>O の関係では、変動は小さいもののマグマ水との混合を示すベクトルと一致する。同図 b)の δD と Cl 濃度の関係では、マグマ固化に関係する熱水(MS, FS)が変動の端成分であることがわかる。同図 c)の Li 濃度と Cl 濃度の関係でも変動幅は小さいが図 b)の結果と矛盾しない。同図 d)の Cds と Cl 濃度の関係では、変動の端成分が苦鉄質マグマの固化に関係する熱水(MS)が関与していると考えられる。以上より、A4 地点の地下水は、1)天水、2) FD, MS,もしくは FS のプロセスにより放出されるマグマ水の混合した地下水、もしくは、さらに 3)海水の混合した地下水であり、繰り返し観測により明らかになった明瞭な変動は 1)天水 (+海水) と 2)苦鉄質マグマの固化(MS)に関連する熱水の端成分の混合比の変化によりもたらされていると考えら

れ、新たなマグマの生成や供給を示めず積極的な証拠はないと結論できる。

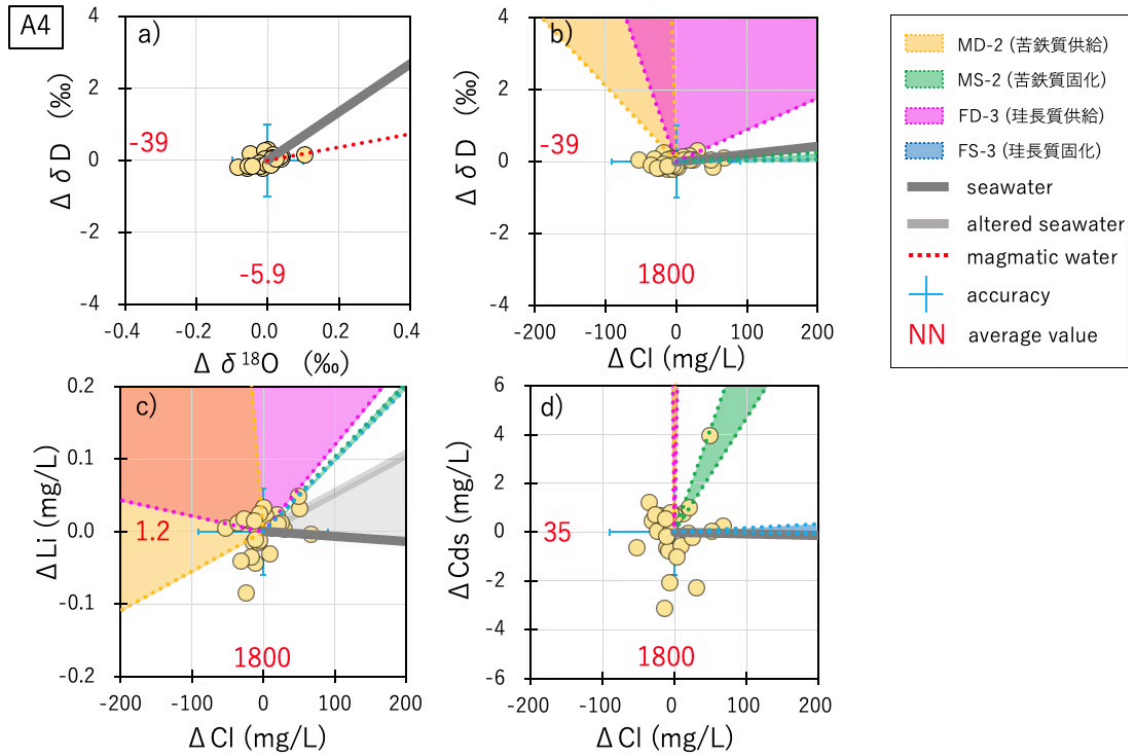


図 4.4.2-5 定期観測井 A4 における地下水の各種化学・同位体組成の変化

各図 a)-d)の表記は図 4.4.2-2 と同じ。

### 5) A5

本地点は図 4.2.2-1 によれば、精度よく C/Cl 比が求められており、珪長質マグマの生成に関連する熱水流体(FD)の混入が考えられる。また、本地点の Cl/H<sub>2</sub>O 比は、岩石との酸素同位体交換反応を考慮した場合、1 kb (～約 4 km) よりも深い深度で熱水が放出されていることを示す。ただし、本地点の Cl 濃度はわずか 22 mg/L で、図 4.4.1-2 において、同位体的には天水のみと考えられる地点である。図 4.4.2-6 a)に示した δD と δ<sup>18</sup>O の関係では、誤差範囲内に収まっており変動が見られず、年周変動もない非常に安定した地下水系であるといえる。同図 b),c)及び d)においても、変動幅は小さく、特徴的な変動は見られない。以上より、A5 地点の地下水は、天水起源であり、微量の珪長質マグマの生成に関連する熱水流体(FD)の混入が考えられ、繰り返し観測による変動幅は非常に小さい。本地点の地下水は、珪長質マグマの生成に関連する熱水流体(FD)の影響を受けているが、変動していない系であると考えられる。



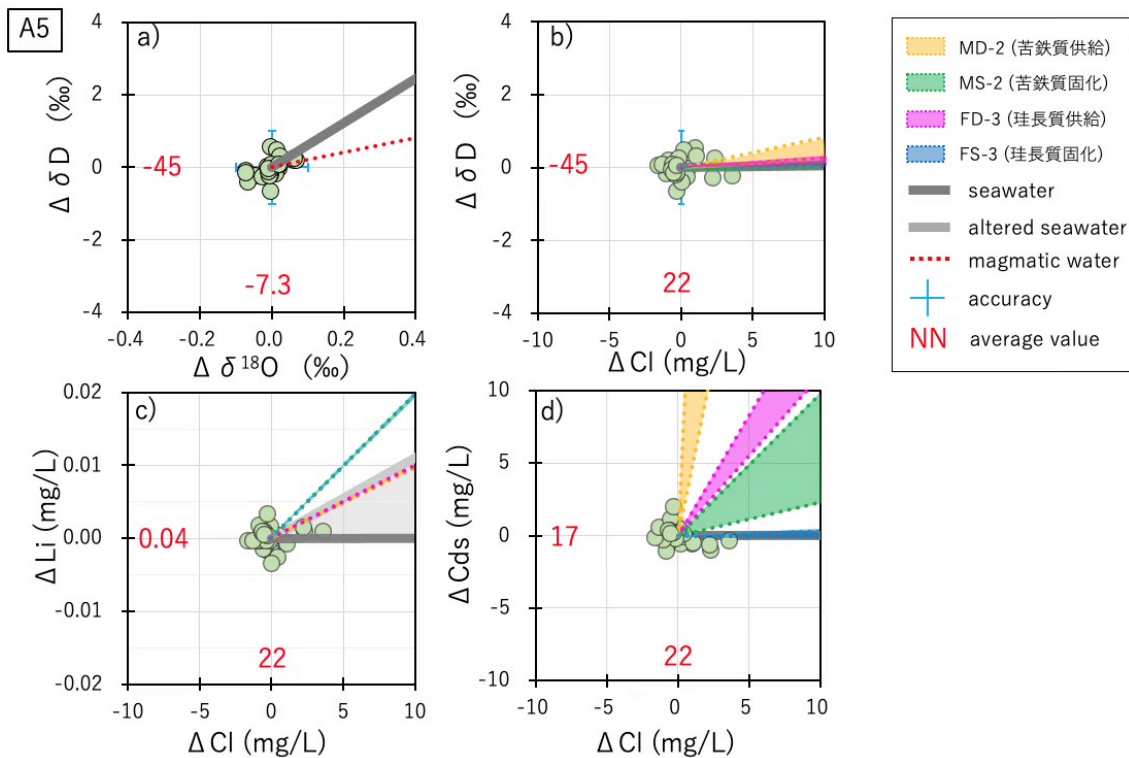


図 4.4.2-6 定期観測井 A5 における地下水の各種化学・同位体組成の変化

各図 a)-d)の表記は図 4.4.2-2 と同じ。

## 6) A6

本地点は 2020 年 4 月に新たに加わった観測地点であるため、データ数は 19 で他の地点と比較して少ない。本地点は図 4.2.2-1 によれば、比較的精度よく C/Cl 比が求められており、苦鉄質マグマの供給に関連する熱水流体(MD)の混入が考えられる。また、本地点の Cl/H<sub>2</sub>O 比は非常に低いが苦鉄質マグマの発泡・脱ガスによる熱水流体組成としては矛盾しない。本地点の Cl 濃度はわずか 38 mg/L であり天水に近い値である。図 4.4.1-2 によれば同位体的には天水に若干のマグマ水が付加したと考えられる地点であるが、蒸発によって同位体組成が変化しても説明可能である。図 4.4.2-7 a)に示した δD と δ<sup>18</sup>O の関係では、海水とマグマ水の間トレンドがあり、傾きは約 6 である。蒸発トレンド(傾き~5)と近いことも注意を要する。また、同図 b)及び c)では、海水の混入を示す変動となっている。同図 d)の Cds 濃度と Cl 濃度の関係からは特徴的トレンドがみえない。本地点の地下水はマグマ起源と考えられる CO<sub>2</sub> ガスを含んでおり、それにより弱酸性となっている。試料採取時に CO<sub>2</sub> ガスが分離されている可能性があり、Cds 濃度についての信頼性は低い点も注意を要する。以上より、A6 は苦鉄質マグマの生成に関連する熱水流体(FD)の影響を受けている地下水であるが、変動に関しては、海水(海塩)の混入や蒸発などのプロセスで説明可能である。

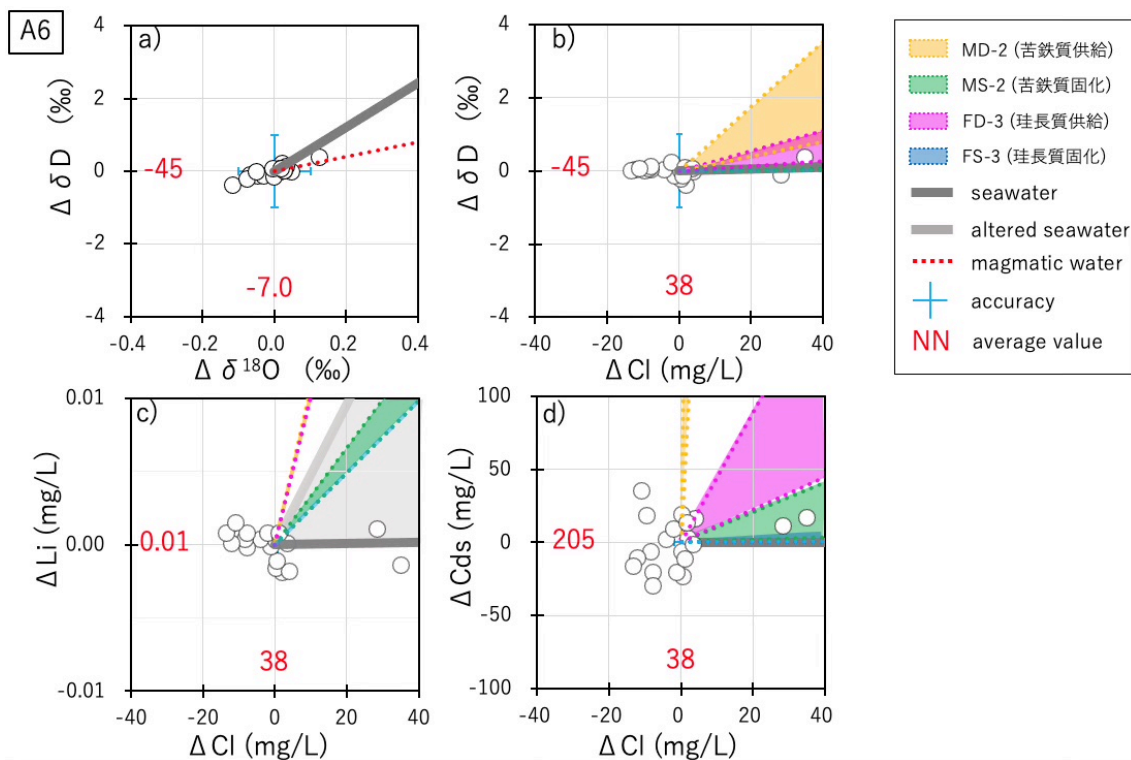


図 4.4.2-7 定期観測井 A6 における地下水の各種化学・同位体組成の変化

各図 a)-d)の表記は図 4.4.2-2 と同じ。

#### 4.4.3 まとめと課題

火山活動推移を把握するための観測項目の検討のため、マグマに関する成分の微小な変動トレンドを用い、1) マグマ活動に関する変動かどうか判定、さらには、2) 変動のベクトルを用いてマグマ活動の状態を推定するための手法を検討した。本手法は、海水が多く含まれる地下水でも、微小な変動を捉えることができれば、マグマ活動の状態評価が可能であると考えられる。

今回検討した観測地点では、約3年間のデータ集積により 1)変動の少ない安定した系、2) 海水の混合やマグマ水の混合率の変化する系が明らかになった。変動のトレンドが見られた地点は A5 を除く 5 地点である。A1 については、変動が天水と海水の混合率の変化で説明され、マグマ起源成分の変化は検出されなかった。A2 においては、元々の地下水系が天水(+海水)と苦鉄質マグマ固化に伴う熱水(MS)の混合する系であるが、変動成分も同じ MS の混入率の変化によるものであった。A3 は、天水、マグマ水、変質した海水の3つの端成分の混合により形成されたものであり、繰り返し観測による変動は 1)天水と 3)少し変質した海水の混合比の変化によるものであった。A4 の地下水系は天水、マグマ水(FD, MS, FS のいずれか)の混合したもの、もしくは、さらに 3)海水の混合したものであり、繰り返し観測により明らかになった明瞭な変動は 1)天水 (+海水) と 2)苦鉄質マグマの固化(MS)に関連する熱水の端成分の混合比の変化によりもたらされていることがわかった。A6 は苦鉄質

マグマの生成に関連する熱水流体(FD)の影響を受けている地下水であるが、変動に関しては、海水（海塩）の混入や蒸発などのプロセスで説明可能であった。

C/Cl-Cl/H<sub>2</sub>O 法(4.2 章参照)が精度の問題でマグマ溜まりプロセスを特定できない場合において、繰り返し観測の本手法により、マグマプロセスが特定できたケースがあった(A4)。また、C/Cl-Cl/H<sub>2</sub>O 法は原理的に長期的に形成された地下水系の滞留時間に対応する変化を平均化した結果を導く。一方、本手法は現在の変動を利用するため、マグマ溜まりの状態を反映する変動が認められた場合には、現在の状態を反映する。従って、本手法は、最適な観測点が見つければ、長期モニタリング手法として非常に有効であると考えられる。

今回、Br, I などのハロゲン微量成分は、井戸やタンクなどの特定不能な原因により、それらの濃度のみ変化する現象が確認された。前年度までは、これらの Br, I のデータを含めて解釈を試みていたため、間違った結論を導き出していたケースがあった。今後は、別地点での新規観測も含め、さらに別の水質・同位体パラメータを検討し、本手法の適用性について検証が必要である。

#### 【引用文献】

- Giggenbach, W.F. (1992) Isotopic shifts in waters from geothermal and volcanic system along convergent plate boundaries and their origin. *Earth Planet. Sci. Lett.* **113**, 495–510.
- You, C. F., Castillo, P. R., Gieskes, J. M., Chan, L. H. and Spivack, A. J. (1996) Trace element behavior in hydrothermal experiments: Implications for fluid processes at shallow depths in subduction zones. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 140, no. 1-4, 41-52, doi:10.1016/0012-1821x(1996)00049-00040.
- 風早康平・高橋正明・安原正也・西尾嘉朗・稲村明彦・森川徳敏・佐藤 努・高橋 浩・大沢信二・尾山洋一・大和田道子・塚本 斉・堀口桂香・戸崎裕貴・切田 司 (2014) 西南日本におけるスラブ起源深部流体の分布と特徴. *日本水文科学会誌*, 44, no. 1, 3-16.
- 西来邦章・伊藤順一・上野龍之 (2012) 第四紀火山岩体・貫入岩体データベース. *地質調査総合センター速報*, 60, 産業技術総合研究所地質調査総合センター.
- 産業技術総合研究所 (2020) 平成 31 年度原子力施設等防災対策等委託費（火山影響評価に係る技術的知見の整備）事業 平成 31 年度事業報告書.
- 産業技術総合研究所 (2021) 令和 2 年度原子力施設等防災対策等委託費（火山影響評価に係る技術的知見の整備）事業 令和 2 年度事業報告書.
- 産業技術総合研究所地質調査総合センター (2015) 20 万分の 1 日本シームレス地質図データベース 2015 年 5 月 29 日版. 産業技術総合研究所研究情報公開データベース.

## 付録：令和3年度「巨大噴火プロセス等の知見整備に係る研究」に関する検討委員会報告

### 【第1回検討委員会】

日時：令和3年6月28日（月）13：30～15：24

場所：Microsoft Teams によるリモート会議

出席者：

検討委員

小川 康雄 委員（東京工業大学）  
大場 武 委員（東海大学）  
金子 克哉 委員（神戸大学）  
前野 深 委員（東京大学地震研究所）

説明者

山元 孝広（産業技術総合研究所）  
下司 信夫（産業技術総合研究所）  
中川 光弘（北海道大学）  
畑 真紀（東京大学地震研究所）  
松島 喜雄（産業技術総合研究所）  
森川 徳敏（産業技術総合研究所）  
中村 仁美（産業技術総合研究所）

議事内容：令和3年度研究計画について

委員コメントへの回答：

[巨大噴火の噴火準備・進展過程に関する調査・研究]

[岩石学的手法によるマグマプロセスに関する調査・研究]

・始良のマグマ条件，水は顕微ラマン分光分析．CO<sub>2</sub> はどのように分析するのか？

→水は，大量に入っているのので，顕微ラマン分光分析で問題ない．CO<sub>2</sub> は少量なので，透過 FTIR，場合によっては nano-SIMS．顕微ラマン分光分析の検出限界以下．

・様々なカルデラで精力的に調査．十和田カルデラでは実験岩石学など，カルデラ毎に方法・手法が異なる．アプローチが違うが，なぜその手法を使用するのか？

→十和田カルデラは，先行して前のフェーズで先カルデラ期から後カルデラ期まで実施して終了しており，報告書にもまとめてある．残る課題として実施している．カルデラ毎に着手している時期が異なり，フェーズがずれている．一通りのデータセットを揃える，という方針で実施している．

・始良カルデラのポストカルデラ期の新島の解析．流紋岩の組成が入戸までと明瞭に異なる．鉱物組み合わせに違いはないか？

→組成は微量元素では異なるが，主成分は異ならない．蓄積条件も変わらない．鉱物

組み合わせも主要なものは同じなので、同じアプローチを進める。

- ・最近の桜島のマグマ組成が混合線にのるのは驚き。(スライドの図は Zr であるが) 他の元素の variation も全て混合線にのるのか?
- 組成はのる。同位体は未検討である。

#### [洞爺カルデラの大規模噴火事例の検討]

- ・洞爺カルデラの U-Th 非平衡。時間的スケールは?
- 時間スケールについては、個別に検討する予定。支笏では斑晶ゾーニングと U-Th 年代は、別のものを見ていることがわかってきた。
- ・違うとは?
- 鉍物はマグマバッチが集積してからの時間スケール。U-Th はその前の部分熔融開始からの年代の可能性。前者は数百年以下くらいがよくみえる。後者はより長期間のものをとらえている。
- ・U-Th 非平衡について。右に外れているものほど古いということか?
- 時間が経つと、平衡線に近づく。洞爺は部分熔融で右へ移動して、支笏は左側にあるということは、分配係数の違いを考えるしかない。
- 長流川火砕流堆積物が洞爺から出た証拠は?
- 何を持ってというのは困難だが、露頭は洞爺の南と北の 2 箇所しかなく、他の場所に無いので、洞爺周辺と考えるしかない。
- ・珪長質マグマに、主珪長質マグマと副次的珪長質マグマがあるとのことだが、どのように考えているのか?
- 主は斑晶に乏しくメルト主体、副次的は少量だが斑晶に富んでいる。結晶に富むマッシュが同時に出てきていると考えられるようなモデルを考えている。同位体比に variation があって複雑なので、もう少しモデルは磨く必要がある。

#### [活動的カルデラ火山の地下構造調査：阿蘇]

- ・Network-MT 法による 3 次元比抵抗構造モデルで、低比抵抗の深さが、新旧で異なる理由は?
- 通常の MT 法でも北東から中央に向かう低比抵抗構造。構造に大きな影響を与える可能性として、熊本地震が考えられる。このため、流体の変化があり、深さが変化したことも考えられる。
- ・実際に深さの変化があったということか?
- そう考えている。
- ・データは、新旧 Network-MT 法、通常の MT 法の 3 種類ある。熊本地震後のデータを混ぜて解析することは可能では?
- 考えたが、それぞれ違う傾向が出ているので、データを精査する必要がある。

・Network-MT 法の新旧で、本当に変化があったかどうかは モデルの不定性があるのでデータを直接比べるべきでは無いか?

→考慮していく.

・電磁場の応答はテンソルなので、射影すると見かけ上変なことにもなりうる. 同じエリアで精査するなどの工夫も必要では?ターゲットは西側の低速度層なので、観測網を西に広げるというお話だった. 電磁場応答は diffusion なので深いほど広げたエリアでみる必要がある.

→カルデラ外は観測を始めた. 今後解析する. 交流レベルが、カルデラ内は数十 mV だが、カルデラ外は数百~数千 mV. カルデラ内外で大きく異なる. ノイズの影響もあるが、母岩も違う. カルデラの外側を入れると違う構造を出す可能性もある.

・カルデラの内では抵抗が低いのは普通にありうるので、心配しなくてよい. それともデータのクオリティの問題?

→クオリティの違いはあまりなさそう. 広帯域では、擾乱のレベルの違いからカルデラ外のほうが少し悪い傾向.

・データが取得されていれば解析可能.

→外側を含めた全体の解析を今年度末までに行う.

・地震前後の違いは興味深い. 流体であって、マグマをとらえられているわけではないのか?

→流体とは、水とマグマの両方を含めている.

・地震前後、水の移動はわかるが、マグマは?

→JpGU2021 の発表に、西側で火山性の流体が出ているという発表があった. 火山性の流体の何らかの動きがあったのではないか.

・マグマそのものの動きが大きく変わるといえるのは、にわかには信じがたいが興味深い結果である.

→広帯域 MT で、新旧、何点かは同じ点で観測している. その比較では地震前後で変化が見られなかった. 地震後の低比抵抗の領域は、地震が起こったときの地震があまり起きていない領域に対応しているようだ.

「十和田カルデラ (広帯域MT 法電磁探査)」

・湖底調査とは地形調査のことか?

→MT 観測点を設置する.

→今年度末に、地下構造が見えれば良いと思っている.

・3 年目の最終年度に新たな計画が出てきた経緯は?

→青森の原子力施設などのこともあり調査は必要とされている. 3 年目ということは承知しているが、4-5 年目のことも考慮し、着手できる余裕があるうちに始める.

→多くのカルデラが、水面下にある。まずは陸域だけの調査でどれだけ見ることができるかを確認する。予算との関係もあるが、今年度の結果を見て、来年度以降は考慮する。

#### [活動的カルデラ火山の地球化学的調査]

・Eu<sup>2+</sup> 異常についての質問。Eu<sup>2+</sup> は、Ca<sup>2+</sup> とイオン半径は近いが、Ca<sup>2+</sup> とは相関はあるか？

→主成分は統計解析に押し付けている。ご指摘の観点で見直す。

・Br/Cl 比、三角ダイアグラムできれいに分けられる？

→3つの指標が必要。

・クラスター解析では、分析値が悪いものは慎重に扱う必要がある。

→物理探査は、イメージングはできるがものについての情報はもたらさない。マグマの性質 種類を判別するのに、地球化学的な手法が使えるかどうかを検証。阿蘇では整合的な結果が得られている。

### 【第2回検討委員会】

日時：令和4年1月12日（水）13：00～15：00

場所：Microsoft Teams によるリモート会議

出席者：

#### 検討委員

小川 康雄 委員（東京工業大学）

大場 武 委員（東海大学）

前野 深 委員（東京大学地震研究所）

#### 説明者

山元 孝広（産業技術総合研究所）

下司 信夫（産業技術総合研究所）

中川 光弘（北海道大学）

畑 真紀（東京大学地震研究所）

松島 喜雄（産業技術総合研究所）

森川 徳敏（産業技術総合研究所）

中村 仁美（産業技術総合研究所）

議事内容：令和3年度研究の成果について

委員コメントへの回答：

[巨大噴火の噴火準備・進展過程に関する調査・研究]

[岩石学的手法によるマグマプロセスに関する調査・研究]

- ・石英斑晶の拡散時間解析ではどの元素を使用するか。
- 石英の微量な Ti だが, Ti 含有量を反映したカソードルミネッセンス強度の累帯構造を用いた。
- ・カソードルミネッセンスとは何か。
- 電子顕微鏡下で電子が試料に当たる時に可視光が発光する現象。
- ・石英は寿命が短いということか。
- 短いことが分かった。昨年度の課題で, 始良カルデラの温度が相図上の石英晶出条件ぎりぎり, 温度の上下で石英がすぐ晶出・溶解する, という結果と整合的。
- ・始良カルデラについて, 新しい噴火の分布・層序を再確認したとのことだが, 噴火規模や, 今までの知見と比べた違いは。
- 規模はいままでと同じ。ポストカルデラの桜島噴出物は, 始良の玄武岩と流紋岩マグマの混合であるとされ, 今年度はその混合した安山岩マグマを確認したかった。今年度の成果として, P8 や P6 と呼ばれるより規模の小さいサブプリニー式噴火は, 小林ほかの層序記載はあるが露出がなかったところ, 現地調査で分布を押さえて噴出量を求めた。
- ・新島軽石について, 深度はそれまでの噴出物と同じく 4-10km とあるが, 含水量は同じでもマグマ組成は変わっているのか。
- 流紋岩の微量元素からは, 入戸以前とその後では異なるマグマ組成。
- ・後カルデラ流紋岩の圧力が 100-250MPa, 深度として 4-10km との結果は, 誤差範囲ではなく, その範囲にマグマが存在しているという意味か。
- どのように含水量から平衡圧力を求めるのか。
- 新島のメルトインクルージョン含水量が, それ以前の噴出物と同じ範囲であるのが観察事実。流紋岩の含水曲線から飽和圧力を求め, 地殻密度を仮定して平衡圧力を求めている。範囲があるのは, 含水量の測定誤差というより, 複数のメルトインクルージョンが示すばらつきによる。解釈は複数あるが, 異なる深度からもたらされたと考えている。

#### [洞爺カルデラの大規模噴火事例の検討]

- ・洞爺湖 Unit5 は巨大噴火とみてよいか。
- はい。洞爺噴出物の 8 割の体積の火砕流を出した日本でも有数の噴火。北電の原子力発電施設の近くに到達しているので噴火を明らかにする意義がある。
- ・社会的な被害に関連するが, Unit5 の始まりから終わりの継続時間は。
- 難しい問題。洞爺噴出物全体ではギャップがあるが, どれくらいの時間かは不明。Unit5 内では地質学的には連続。洞爺より 1~2 桁小さい噴火でもそれなりにつづく例もある。
- ・マフィックインジェクション無しで珪長質マグマが出るのは, マグマ溜まりの揮発



性成分の移動・濃集がトリガーか。

→ステージ1でマフィックマグマの関与が認められないが、揮発性成分の移動かどうかは今後検討。

・長流川は年代の制約は難しいか。

→過去の研究では13万年。洞爺とは1万年程度のギャップ。

・1万年は近いといえば近いか。

→はい。洞爺は11万年に巨大噴火、喜茂別・長流川も13万年に噴火している。最初にそれなりの規模の噴火をばつばつおこない、その後洞爺の主噴火となったのではないか。

・クリスタルマッシュの巨大カルデラ噴火モデルでは説明できないのでは。メルトを絞り出しのみだと、マッシュと同位体比は同じでなければならない。しかしSr同位体比がずれている。

→むしろ今回の結果から新たなクリスタルマッシュ像ができる。マグマが地殻下部から中部に上昇すると、同位体的には下部・中部の二端成分混合になる。地殻の異なった部分やマントル由来のバサルトの影響をうけつつ同位体の多様性がでているのである。Nd, Pb同位体からヒント得られるかもと考える。

#### [活動的カルデラ火山の地下構造調査：阿蘇]

・周期400-20000秒の解析で、カルデラサイズ20-25kmに対して100Ωmは低周波すぎ、波長に対し短すぎる構造を議論している。周期400秒で数10km深度と計算されることだが、不定空間が大きすぎ、様々な値をとりえるので、浅いところの構造を決めるのは無理ではないか。むしろ広帯域MTの結果で浅部構造を拘束したり、Network-MTデータをジョイントしてはどうか。

→ジョイントは今後実施予定。

→浅部構造が見えない可能性については了解した。深い方（下部地殻）は見えていると考えてよいか。

・わからない。480秒より短周期側にふるべき。10秒より下はばらつく。早いサンプリングするとか。

→方法のチェックは進めている。阿蘇Network-MTの新旧データでいずれも浅部構造があるので、数キロ-数十キロに全く感度がないわけではないと考えている。

・電磁誘導ではない可能性も考えなければいけない。むしろ短周期側のデータが重要。広帯域MTと被るが、Network-MT法のメリットは？

→阿蘇については15km以深に低比抵抗異常を仮定しても、感度検定では有意にはならなかった。

・これはいいと思う。個人的には、広帯域でも出ていないので、電磁誘導でももしあればでははず。

→広帯域の結果でも有意な変化ではなかったといっている。この周期では解析が難しいのではないか。

・周期を伸ばすと出るというロジックがわからない。

→F 検定の値を採用したモデルでは、この深さに感度はないという結果。

・一般に火山性流体は水を主体としたもので、マグマは指さない。「低比抵抗異常の主体はマグマ or 熱水」としてはどうか。

→わかりました。

「十和田カルデラ（広帯域MT 法電磁探査）」

・インダクションベクトルがこの地域で全体に北に向くのは既に言われている。メッシュや範囲はなるべく広くした方がよい。

→ありがとうございます。

[活動的カルデラ火山の地球化学的調査]

・岩石組成が流体に反映されていると考えてよいか。

→そのような論文が増えており、あると思う。

・Eu の負異常が表現されていないようだが、水にはあらわれていないのか。

→花崗岩は Eu が負だが、平衡な流体は Cl 濃度が高いと負の異常がない。

・沈殿によって Eu の正の異常が起こるメカニズムは、

→Eu の正異常は別要因。沈殿により、鉄共沈する REE 濃度が下がるが、REE 全体で一樣にならず、母岩に含まれる P1 が影響しw型になる。

## 【第2回検討委員会：追加】

日時：令和4年1月24日（月）14：00～15：00

場所：Microsoft Teams によるリモート会議

出席者：

検討委員

金子克哉 委員（神戸大学）

説明者

山元 孝広（産業技術総合研究所）

議事内容：令和3年度研究の成果について

委員コメントへの回答：

[巨大噴火の噴火準備・進展過程に関する調査・研究]

[岩石学的手法によるマグマプロセスに関する調査・研究]

・入戸噴火以前のマグマでは石英斑晶の拡散時間解析のみが試みられているが、他の

斑晶はどうか。

→斜方輝石斑晶が共通して含まれているので、次年度以降に系統的に分析する予定である。おそらく、石英斑晶とは異なる時間を記録していると予想されるので、総合的に解釈する必要がある。

- ・十和田火山の八戸・大不動火砕流の角閃石晶出の違いをもたらした違いは何か？。
- 当初は含水量の違いかと考えていたが、今回の高温高压実験ではどちらも水飽和条件下でバルク組成の違い（主にアルミ）で説明できた。マグマの温度圧力条件はどちらもほぼ同じである。

#### [洞爺カルデラの大規模噴火事例の検討]

- ・洞爺湖噴火のクリスタルマッシュ・システムについては概ね理解できるが、全体の化学組成の多様性をどのように説明するのかは Hirdleth らの他の事例を参考に考える必要がある。一方で U-Th 放射非平衡については、どのように考えるのか？
- 北大からは明確な説明がなかった。CP と CR マグマの Th 濃度の違いを、どのように考えるのか、今後注目したい。

#### [活動的カルデラ火山の地下構造調査：阿蘇]

- ・専門ではないので観測精度のことは良く理解できていないが、20km 以深で大規模なマグマ供給系の存在は示唆されないとの結論で問題ないのか？
- その結論については大きな問題はないと考えている。

#### [十和田カルデラ（広帯域MT 法電磁探査）]

- ・概ね結果は、了解した。
- ありがとうございます。

#### [活動的カルデラ火山の地球化学的調査]

- ・流体に Eu の負の異常が現れるのは、マグマに取り去られた反対物質との理解で良いか？
- そのような論文が増えており、その理解で良いと思う。
- ・十和田地域の C/Cl 解析では、一部に珪長質マグマの存在を示唆するデータがある。しかし、結論では十和田カルデラにその存在が示されないとあるが何故？
- 珪長質マグマの存在を示唆するデータが観測された地点は、十和田カルデラから西に大きく離れており、別の存在と考えた。