

3 活動的カルデラ火山の地球化学的調査

本調査では、巨大噴火を起こしたカルデラ火山など活動的火山においてマグマだまりの状態を評価するため、火山周辺の地下水・温泉水による地球化学的検討を実施した。

3.1 希土類元素組成および Sr 同位体組成によるマグマ種別判定法の検討

【実施内容】

希土類元素は、他の化学成分に比べて、深部から上昇するマグマ起源熱水流体の履歴を保持する可能性がある。カルデラ火山体内部だけでなく、その周辺も含めて地下水の希土類元素組成を比較することで、地下水に含まれるマグマ起源熱水流体を海水や天水から識別すると同時に、母岩との反応と帯水層分布・深度を推定する。これにより、マグマ成分の影響の広がりや移動経路等について流体循環に関する情報を得ることができる。今年度は、始良カルデラ周辺地域で採取された地下水および十和田カルデラ周辺の温泉について、高次元データ統計解析の精密化のために調査を行い、水質・各種同位体・希土類元素組成の分析を実施した。その上で希土類元素組成と Sr 同位体組成によるマグマ種別判定と判定法の適用性評価を行った。現段階では希土類元素組成の全ての特徴を生かすことはできなかったが、世界的に分布する珪長質岩石が示す Eu 異常に着目して珪長質マグマを判断できる見込みがある。地表で得られる流体の主溶存元素組成から統計解析により火山性のものを抽出し、希土類元素組成から珪長質かどうかを判断する、という一連の手法を提示できた点では十分な成果があった。

【調査・研究成果】

(1) 始良カルデラと十和田カルデラの希土類元素組成

高マトリクス溶液試料である温泉水・地下水試料中に溶存する極微量 (ppt~ppb レベル) の希土類元素組成を、高精度で多試料について測定するために、産総研 (2020, 2021) ではトリプル四重極誘導プラズマ質量分析計 (ICP-MS) の希土類元素に特化した最適化を行いつつ、スパイク法での分析作業のルーチン化を行った。これにより、従来の標準添加法より分析効率が上がり、1 試料につき 1~3 測定程度で定量できるようになった。検出限界は 0.1~1 ppt である。

産総研 (2023) では、始良カルデラ及び周辺で採取した産総研が保有する既存水試料から、温泉水を優先的にしつつ、対比のための湧水と河川水の試料も選定しながら分析を行った。本年度は、試料のカテゴリ (温泉水, 河川水, 湧水) と主要溶存元素組成, 及び広域を網羅するという基準で選んだ試料について、希土類元素分析を行うと共に、始良カルデラ内を中心に調査・試料採取, 分析を行った。十和田カルデラ及び周辺については、既存試料から選定し、分析を行った。その結果、143 試料 (始良周辺 72 試料, 十和田周辺 71 試料) について、新たに希土類元素組成を確定した。得られた希土類元素濃度は、表 3.1-1 と表 3.1-2 に示す。

今年度分析を行った試料を含め、測定結果が得られた全試料の採水地点を図 3.1-1 に示す。昨年度の報告で、始良カルデラ及びその周辺の試料分布が偏っていることが指摘されたが、大隅半島を含め東側で顕著に試料が少ない、または、ほぼない状態であるという点が改善されたことが分かる。これらの地域は前弧域であり付加体が露出しているため、例えば、大隅半島の中央部には採取可能な泉源がないなど、本試料分布の偏りに地質学的な関連や意味がある可能性がある。

しかし、全域を網羅という点で十分と言え、統計解析にも耐えうると考える。分析結果が得られた始良カルデラ及び周辺の試料数は計 221 試料で、その内訳は、温泉水 178 試料、湧水・河川 38 試料、海水 5 試料である。十和田カルデラ周辺は計 94 試料で、その内訳は、温泉水 35 試料、湧水・河川 59 試料である。但し、一部、複数回の採取や再測定も行っている為、同一地点の繰り返し測定試料等も含めた数である。

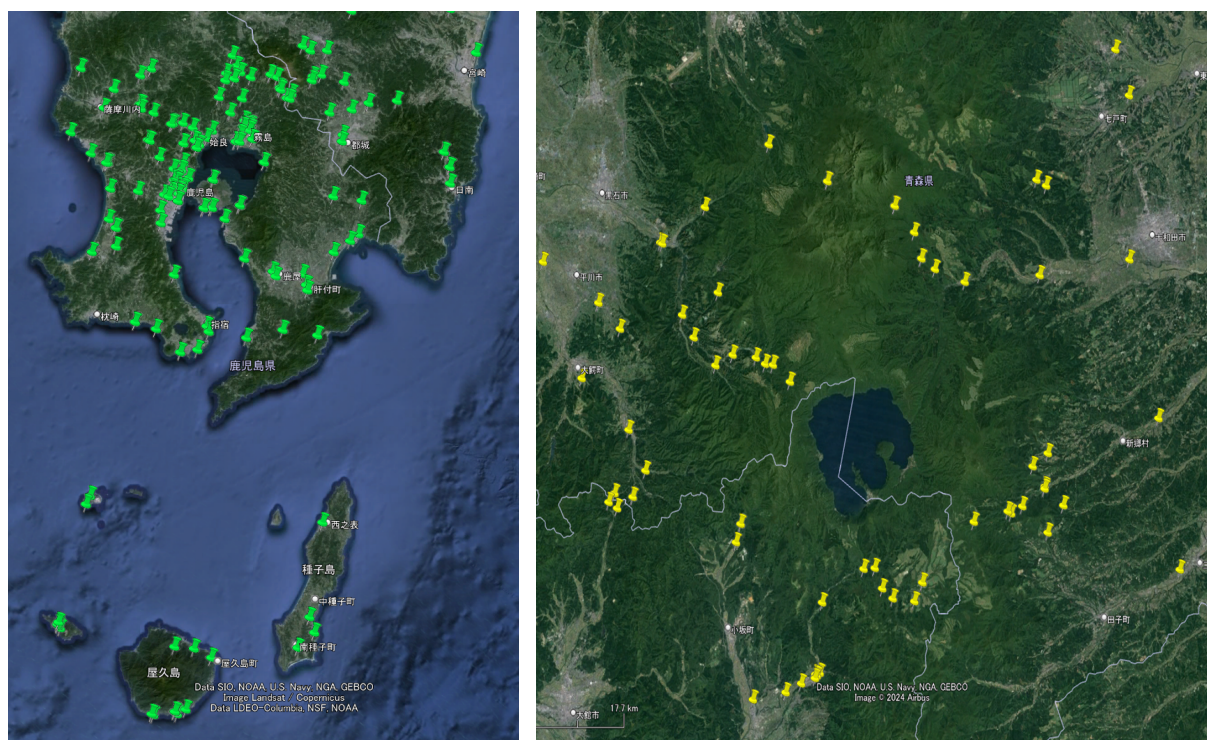


図 3.1-1 希土類元素組成を得た試料の採取地点

左図の始良カルデラ及び周辺については、既存試料を選定し分析を行った地点と、新たに調査・採水し分析を行った地点を合わせて示す。右図の十和田カルデラ及び周辺の試料については、これまでに既存試料を選定し分析を行った地点を示す。Google Earth Pro (7.3.4.8248 (64-bit))を使用した。

表 3.1-1 と表 3.1-2 を含め、これまでに得られた希土類元素組成を枯渇マンタル濃度(Workman and Hart, 2005)で規格化し、図 3.1-2～図 3.1-5 に示す。沈み込み帯のマンタルは、沈み込むプレートに由来する流体が枯渇しているマンタルに付加する構図になっている。分析で得られた流体の希土類元素組成を、枯渇マンタルで規格化することで、島弧を構成する岩石や堆積物などと比較することが容易になる。岩石との反応プロセスによる濃度変化や、マンタル以外の成分の付加や取り去りを知ることにも繋がる。始良カルデラ及び十和田カルデラ周辺の流体試料の希土類元素濃度(図 3.1-2；図 3.1-3)は、枯渇マンタルよりも低く、それらの規格化した値は、 10^{-7} ～ 10^{-1} 程度と幅広い。また、希土類元素パターンはフラットなものが多いが、Ce や Eu の異常を示すパターンや、全体的にギザギザのパターンを示すものも見られる。

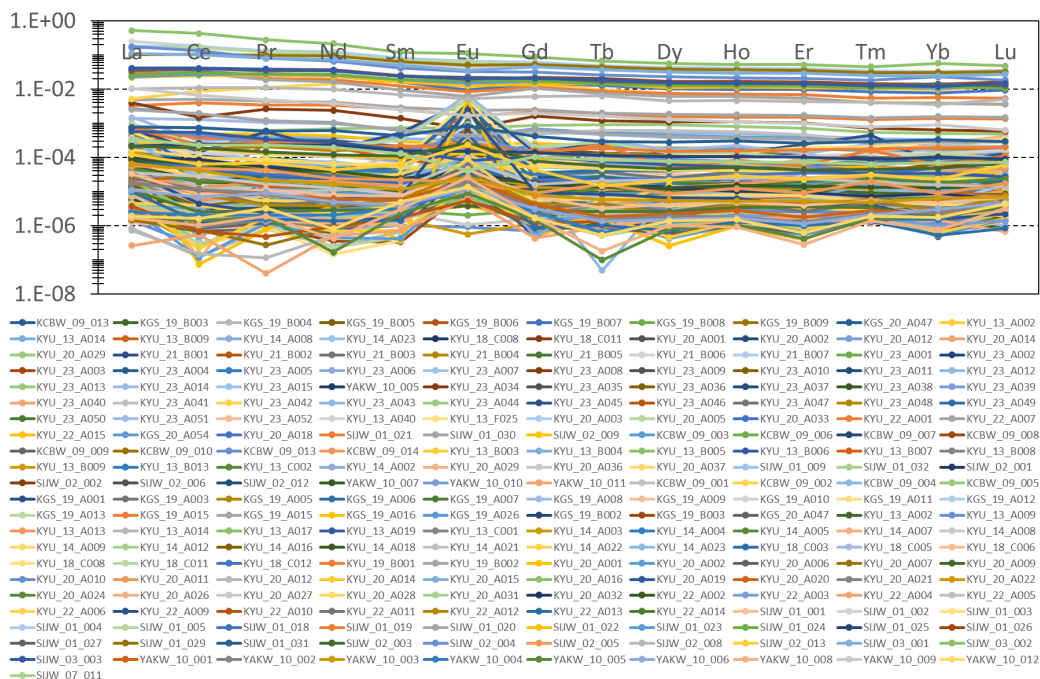


図 3.1-2 始良カルデラ及び周辺の流体試料の希土類元素組成

これまでに得られた始良カルデラ及び周辺の流体試料中の希土類元素組成を、枯渇したマントル組成 (Workman and Hart, 2005) で規格化した。シンボルと色は自動表示である。

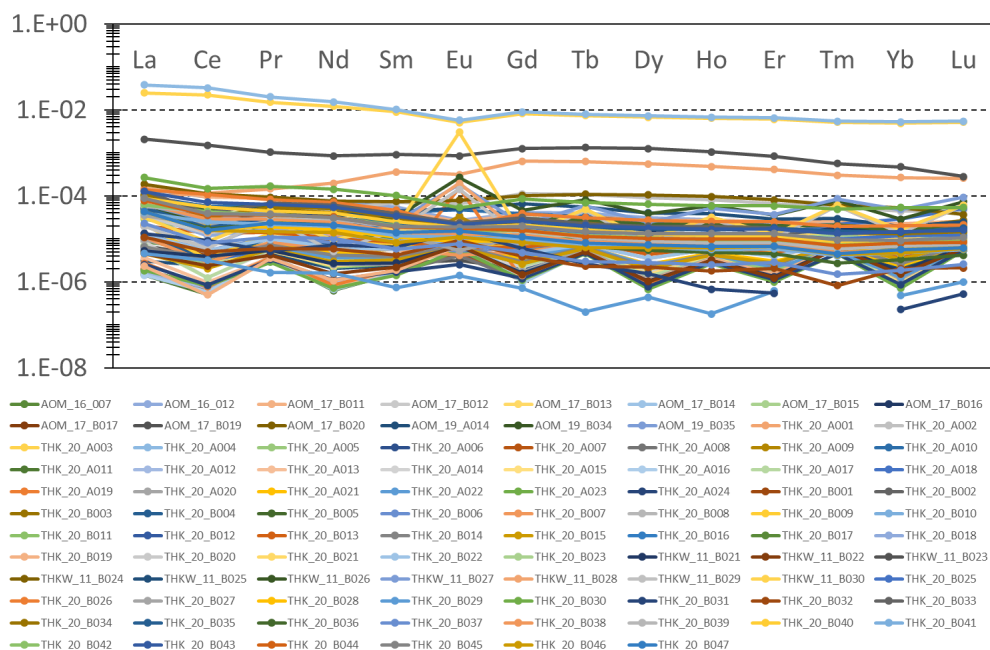


図 3.1-3 十和田カルデラ及び周辺の流体試料の希土類元素組成

これまでに得られた十和田カルデラ及び周辺の流体試料中の希土類元素組成を、枯渇したマントル組成 (Workman and Hart, 2005) で規格化した。シンボルと色は自動表示である。

始良カルデラと十和田カルデラを比較すると、規格化値 10^{-3} ~ 10^{-1} 程度の相対的に高濃度の試料が始良カルデラに多いことがわかる。例えば、中希土である Gd を基準として比較すると、阿蘇カルデラ及び周辺試料（産総研，2022）で最も高い Gd 値（3.12 ppb）を上回る試料が、始良カルデラ及び周辺には 18 試料あるが、十和田カルデラは 2 試料（THK_20_A004, THK_20_A003）である。始良カルデラ及び周辺の高濃度の試料は、いずれも温泉水に分類され、屋久島の 1 試料を除き、全て薩摩硫黄島に分布している。十和田カルデラの 2 試料は、いずれも温泉水に分類され、同じ温泉の異なる泉源である。また、これら高濃度の試料は、LREE に向かって緩やかな左上がりのフラットなパターンを示し、一部を除き明瞭な元素異常は見られない。一方、規格化値 10^{-6} ~ 10^{-4} 程度の相対的に低濃度の試料は、ほとんど全て何らかの元素異常を示しており、特に Eu 異常が際立つ。このことから、高濃度試料は希土類元素を獲得した供給源からあまりプロセスを経ず湧出しているのに対し、低濃度試料は元素異常を生じるような幾つかのプロセスを経て湧出していることが分かる。また、全体の試料数に対する高濃度試料の割合から、始良カルデラ及び周辺の試料は、カルデラや供給源の多さを反映していると考えられるが、十和田カルデラの試料は供給源を反映した試料は限定的と言える。

図 3.1-4 と図 3.1-5 に、始良カルデラ及び十和田カルデラ周辺の試料について、採取地点の状況から、温泉水、湧水、河川・湖水に分けられたカテゴリ毎の希土類元素組成を示す。なお、繰り返し測定で定めた検出限界を下回る値は、表では[-]と記しているが、各図では、パターンを議論する上での参考値として分析値を使用し、作図している。始良カルデラに比べ際立っている点は、十和田カルデラの湧水・河川水の試料の数である。約半数の試料が湧水・河川で採取されているが、濃度は温泉水と同レベルである。山体でカルデラ構造が形成・維持され、熱水や天水を含めた水系が確立していると思われる。他の化学成分に比べ、希土類元素は、深部から上昇するマグマ起源熱水流体の経た反応を保持する可能性がある。カルデラ火山体内部だけでなく、その周辺も含めて地下水の希土類元素組成を比較することで、地下水に含まれるマグマ起源流体を希土類元素パターンの違いに基づき、海水や天水から識別すると同時に、マグマ成分の影響の広がりや移動経路等について流体循環に関する情報を得ることができる。次の章では、火山性流体を識別するために、主溶存元素について統計解析を行った結果について述べる。

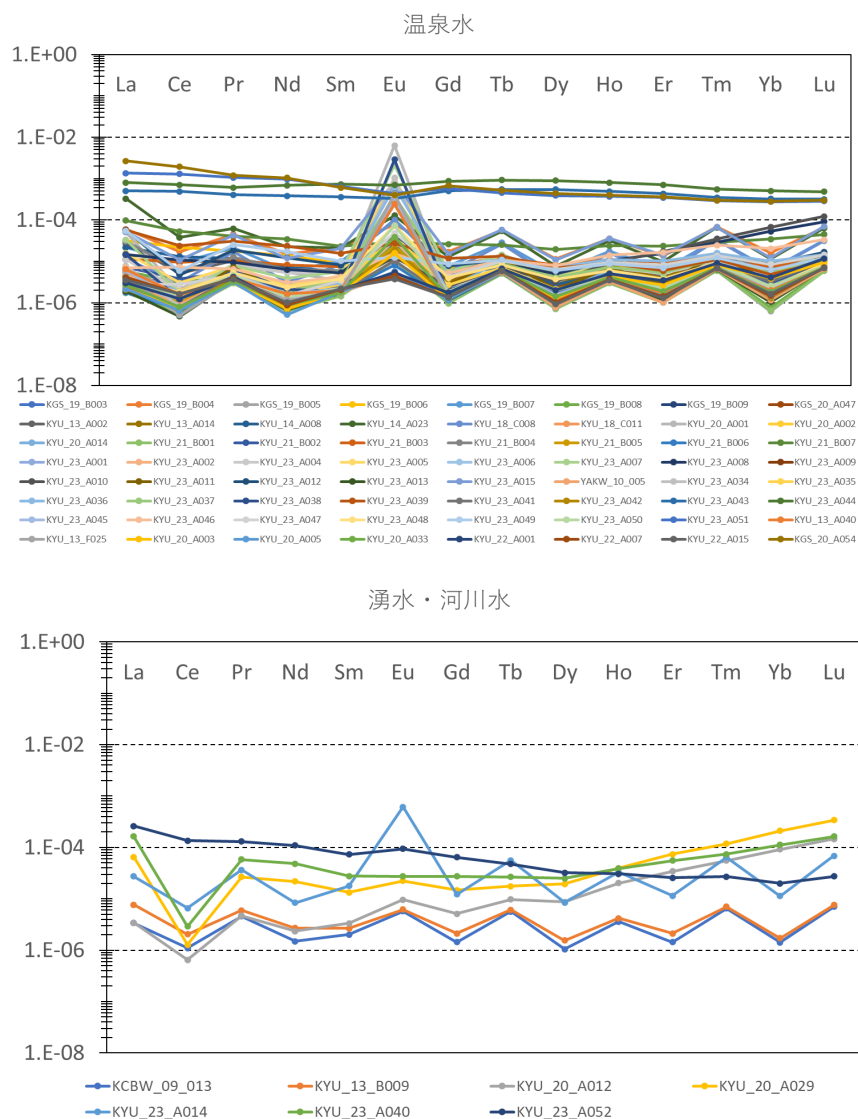


図 3.1-4 始良カルデラ及び周辺の流体試料のカテゴリ毎の希土類元素組成

測定で得られた始良カルデラ及び周辺の 72 流体試料中の希土類元素組成（表 3.1-1）をカテゴリ毎に示す。カテゴリ毎の試料数は、温泉水 64 試料，湧水・河川 7 試料である。枯渇したマントル組成（Workman and Hart, 2005）で規格化し，シンボルと色は自動表示である。

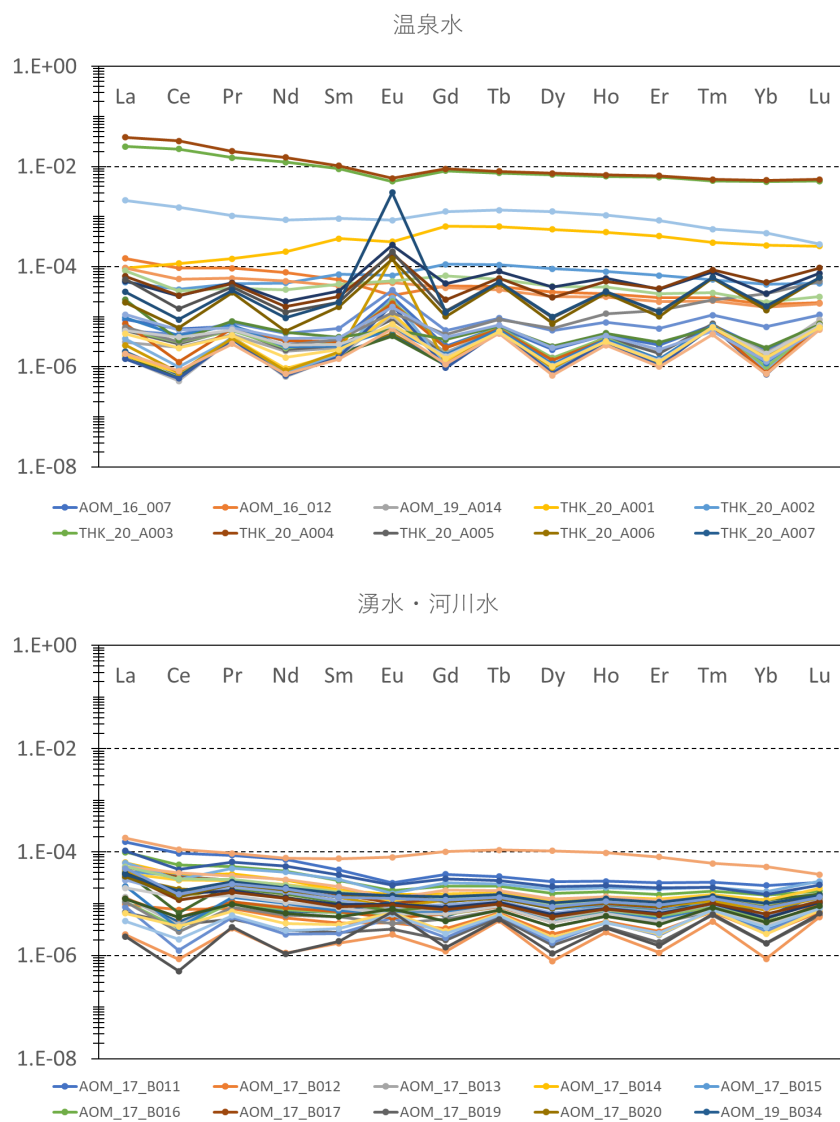


図 3.1-5 十和田カルデラ及び周辺の流体試料のカテゴリ毎の希土類元素組成

測定で得られた十和田カルデラ及び周辺の 71 流体試料中の希土類元素組成（表 3.1-2）をカテゴリ毎に示す。カテゴリ毎の試料数は、温泉水 34 試料，湧水・河川 37 試料である。枯渇したマントル組成（Workman and Hart, 2005）で規格化し，シンボルと色は自動表示である。

表 3. 1-1 始良カルデラ及び周辺の流体試料の希土類元素濃度

希土類元素濃度は ppb で示し、[-]は検出限界以下を示す。

sample_D	La	Ce	Pr	Nd	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu
KCBW_09_013	0.00065	0.00060	0.00049	0.00086	0.00048	0.00055	0.00051	0.00039	0.00053	0.00041	0.00050	0.00039	0.00052	0.00041
KGS_19_B003	0.00081	0.00077	0.00079	0.00087	0.00078	0.00140	0.00086	0.00076	0.00081	0.00075	0.00074	0.00079	0.00088	0.00074
KGS_19_B004	0.01152	0.00943	0.00480	0.00868	0.00513	0.00755	0.00605	0.00398	0.00575	0.00407	0.00469	0.00409	0.00585	0.00387
KGS_19_B005	0.00083	0.00052	0.00039	0.00068	0.00041	0.00099	0.00041	0.00036	0.00041	0.00035	0.00038	0.00036	0.00022	0.00034
KGS_19_B006	0.00618	0.01201	0.00188	0.00793	0.00211	0.00193	0.00250	0.00069	0.00265	0.00089	0.00213	0.00062	0.00199	0.00061
KGS_19_B007	0.00415	0.00505	0.00229	0.00353	0.00236	0.00883	0.00278	0.00198	0.00260	0.00200	0.00214	0.00201	0.00230	0.00190
KGS_19_B008	0.00111	0.00165	0.00048	0.00107	0.00050	0.00269	0.00055	0.00038	0.00052	0.00037	0.00044	0.00037	0.00028	0.00035
KGS_19_B009	0.00116	0.00082	0.00079	0.00089	0.00084	0.00303	0.00084	0.00076	0.00079	0.00075	0.00073	0.00079	0.00087	0.00075
KGS_20_A047	0.00107	0.00117	0.00082	0.00112	0.00090	0.00355	0.00111	0.00079	0.00117	0.00086	0.00116	0.00084	0.00112	0.00080
KGS_20_A054	0.51193	1.06198	0.12764	0.60591	0.14612	0.03826	0.24403	0.03677	0.22336	0.04640	0.12825	0.01785	0.10202	0.01742
KYU_13_A002	0.00515	0.00280	0.00111	0.00385	0.00122	0.00127	0.00157	0.00056	0.00176	0.00075	0.00148	0.00052	0.00121	0.00054
KYU_13_A014	0.00083	0.00094	0.00077	0.00083	0.00083	0.00186	0.00108	0.00081	0.00135	0.00091	0.00136	0.00088	0.00153	0.00085
KYU_13_A040	0.00124	0.00086	0.00042	0.00095	0.00047	0.02366	0.00049	0.00043	0.00059	0.00045	0.00061	0.00043	0.00073	0.00041
KYU_13_B009	0.00148	0.00112	0.00064	0.00157	0.00064	0.00060	0.00076	0.00043	0.00078	0.00048	0.00073	0.00042	0.00062	0.00044
KYU_13_F025	0.00086	0.00027	0.00036	0.00068	0.00040	0.04121	0.00044	0.00042	0.00053	0.00042	0.00051	0.00041	0.00052	0.00040
KYU_14_A008	0.00420	0.00724	0.00126	0.00420	0.00136	0.00259	0.00147	0.00054	0.00139	0.00059	0.00097	0.00046	0.00083	0.00046
KYU_14_A023	0.06349	0.02091	0.00665	0.01318	0.00504	0.01231	0.00464	0.00378	0.00387	0.00368	0.00344	0.00393	0.00420	0.00370
KYU_18_C008	0.00211	0.00170	0.00185	0.00182	0.00192	0.00969	0.00198	0.00186	0.00187	0.00182	0.00171	0.00195	0.00215	0.00184
KYU_18_C011	0.00101	0.00069	0.00075	0.00071	0.00074	0.00346	0.00081	0.00075	0.00077	0.00074	0.00073	0.00079	0.00086	0.00074
KYU_20_A001	0.00971	0.00107	0.00079	0.00319	0.00081	0.06069	0.00082	0.00076	0.00076	0.00073	0.00070	0.00078	0.00077	0.00075
KYU_20_A002	0.00089	0.00072	0.00077	0.00074	0.00078	0.00365	0.00081	0.00075	0.00077	0.00073	0.00072	0.00079	0.00082	0.00075
KYU_20_A003	0.00041	0.00040	0.00034	0.00041	0.00042	0.00150	0.00044	0.00043	0.00068	0.00050	0.00092	0.00049	0.00141	0.00055
KYU_20_A005	0.00041	0.00035	0.00034	0.00030	0.00044	0.00054	0.00043	0.00041	0.00048	0.00041	0.00050	0.00042	0.00066	0.00041
KYU_20_A012	0.00066	0.00036	0.00050	0.00136	0.00079	0.00092	0.00184	0.00068	0.00439	0.00231	0.01192	0.00333	0.03331	0.00851
KYU_20_A014	0.00063	0.00064	0.00073	0.00070	0.00079	0.00129	0.00080	0.00075	0.00075	0.00073	0.00068	0.00079	0.00081	0.00074
KYU_20_A029	0.01246	0.00070	0.00285	0.01267	0.00317	0.00216	0.00530	0.00123	0.00981	0.00453	0.02588	0.00709	0.07643	0.01983
KYU_20_A033	0.00053	0.00043	0.00036	0.00052	0.00042	0.00375	0.00051	0.00044	0.00071	0.00047	0.00066	0.00043	0.00065	0.00041
KYU_21_B001	0.00033	0.00033	0.00032	0.00037	0.00034	0.00104	0.00035	0.00035	0.00036	0.00034	0.00035	0.00036	0.00024	0.00034
KYU_21_B002	0.00138	0.00207	0.00060	0.00165	0.00066	0.00039	0.00071	0.00042	0.00089	0.00049	0.00087	0.00044	0.00100	0.00043
KYU_21_B003	0.00219	0.00522	0.00116	0.00476	0.00179	0.00102	0.00290	0.00085	0.00418	0.00129	0.00334	0.00079	0.00275	0.00069
KYU_21_B004	0.00590	0.00325	0.00136	0.00368	0.00143	0.06654	0.00191	0.00095	0.00213	0.00110	0.00183	0.00095	0.00200	0.00087
KYU_21_B005	0.00047	0.00057	0.00042	0.00043	0.00047	0.00221	0.00049	0.00040	0.00054	0.00040	0.00045	0.00041	0.00053	0.00039
KYU_21_B006	0.00034	0.00039	0.00038	0.00037	0.00041	0.00078	0.00041	0.00038	0.00039	0.00037	0.00036	0.00040	0.00055	0.00042
KYU_21_B007	0.01856	0.02933	0.00432	0.02013	0.00551	0.00277	0.00938	0.00175	0.00991	0.00276	0.00816	0.00171	0.01253	0.00261
KYU_22_A001	0.00058	0.00068	0.00046	0.00053	0.00050	0.00051	0.00063	0.00046	0.00102	0.00058	0.00121	0.00054	0.00149	0.00068
KYU_22_A007	0.00079	0.00090	0.00042	0.00051	0.00050	0.00043	0.00049	0.00042	0.00052	0.00042	0.00049	0.00041	0.00053	0.00041
KYU_22_A015	0.00068	0.00090	0.00040	0.00059	0.00052	0.00036	0.00049	0.00041	0.00046	0.00041	0.00045	0.00041	0.00060	0.00040
KYU_23_A001	0.00112	0.00085	0.00048	0.00079	0.00052	0.00302	0.00054	0.00041	0.00052	0.00040	0.00049	0.00039	0.00046	0.00041
KYU_23_A002	0.00089	0.00072	0.00050	0.00096	0.00056	0.00304	0.00057	0.00041	0.00056	0.00041	0.00051	0.00041	0.00050	0.00041
KYU_23_A003	0.00547	0.00581	0.00430	0.00628	0.00468	0.00468	0.00486	0.00401	0.00469	0.00394	0.00441	0.00393	0.00441	0.00399
KYU_23_A004	0.00210	0.00113	0.00089	0.00304	0.00131	0.00384	0.00175	0.00064	0.00208	0.00082	0.00180	0.00060	0.00163	0.00060
KYU_23_A005	0.00305	0.00167	0.00083	0.00146	0.00109	0.09612	0.00146	0.00095	0.00218	0.00110	0.00184	0.00092	0.00177	0.00090
KYU_23_A006	0.00128	0.00041	0.00041	0.00069	0.00047	0.02315	0.00050	0.00041	0.00052	0.00041	0.00050	0.00040	0.00052	0.00041
KYU_23_A007	0.00640	0.00090	0.00085	0.00229	0.00136	0.20384	0.00203	0.00101	0.00247	0.00109	0.00173	0.00091	0.00172	0.00091
KYU_23_A008	0.00280	0.00590	0.00101	0.00370	0.00128	0.00421	0.00176	0.00062	0.00253	0.00120	0.00545	0.00175	0.01927	0.00531
KYU_23_A009	0.00070	0.00040	0.00044	0.00064	0.00046	0.00144	0.00048	0.00040	0.00047	0.00039	0.00046	0.00040	0.00052	0.00045
KYU_23_A010	0.00078	0.00033	0.00048	0.00094	0.00061	0.00121	0.00088	0.00048	0.00163	0.00106	0.00602	0.00212	0.02453	0.00706
KYU_23_A011	0.00128	0.00065	0.00076	0.00099	0.00090	0.02352	0.00099	0.00081	0.00105	0.00081	0.00099	0.00082	0.00122	0.00083
KYU_23_A012	0.01108	0.00258	0.00201	0.00718	0.00194	0.00278	0.00278	0.00078	0.00312	0.00109	0.00275	0.00077	0.00315	0.00097
KYU_23_A013	0.00036	0.00026	0.00037	0.00039	0.00041	0.00174	0.00042	0.00039	0.00041	0.00038	0.00040	0.00038	0.00038	0.00040
KYU_23_A014	0.00526	0.00363	0.00393	0.00485	0.00428	0.05890	0.00440	0.00393	0.00430	0.00381	0.00399	0.00388	0.00414	0.00396
KYU_23_A015	0.00998	0.00591	0.00459	0.00687	0.00500	0.07766	0.00540	0.00407	0.00547	0.00411	0.00489	0.00400	0.00452	0.00409
KYU_23_A034	0.00150	0.00045	0.00043	0.00082	0.00044	0.10013	0.00054	0.00041	0.00065	0.00044	0.00054	0.00047	0.00059	0.00042
KYU_23_A035	0.00074	0.00110	0.00053	0.00092	0.00067	0.00362	0.00097	0.00049	0.00107	0.00050	0.00069	0.00048	0.00061	0.00043
KYU_23_A036	0.00114	0.00103	0.00050	0.00111	0.00072	0.06302	0.00154	0.00072	0.00364	0.00127	0.00353	0.00094	0.00374	0.00084
KYU_23_A037	0.00083	0.00073	0.00051	0.00113	0.00081	0.03546	0.00150	0.00061	0.00209	0.00084	0.00192	0.00067	0.00187	0.00060
KYU_23_A038	0.00284	0.00069	0.00042	0.00123	0.00046	0.27543	0.00056	0.00043	0.00087	0.00053	0.00093	0.00054	0.00118	0.00050
KYU_23_A039	0.01091	0.01318	0.00325	0.01362	0.00370	0.00264	0.00419	0.00093	0.00354	0.00102	0.00207	0.00067	0.00178	0.00059
KYU_23_A040	0.03133	0.00160	0.00623	0.02812	0.00660	0.00262	0.00981	0.00187	0.01267	0.00449	0.01932	0.00444	0.04086	0.00954
KYU_23_A041	0.00043	0.00043	0.00044	0.00049	0.00042	0.00099	0.00047	0.00040	0.00055	0.00043	0.00067	0.00052	0.00117	0.00058
KYU_23_A042	0.00040	0.00039	0.00042	0.00040	0.00043	0.00184	0.00048	0.00040	0.00054	0.00041	0.00050	0.00046	0.00048	0.00041
KYU_23_A043	0.09756	0.26832	0.04337	0.22295	0.08611	0.03153	0.18044	0.03844	0.27374	0.05681	0.15199	0.02094	0.11888	0.01840
KYU_23_A044	0.15326	0.39016	0.06537	0.39845	0.17553	0.06739	0.30850	0.06422	0.44987	0.09260	0.24814	0.03328	0.18369	0.02810
sample_D	La	Ce	Pr	Nd	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu
KYU_23_A045	0.00116	0.00067	0.00051	0.00095	0.00053	0.02959	0.00066	0.00043	0.00081	0.00050	0.00078			

表 3. 1-2 十和田カルデラ及び周辺の流体試料の希土類元素濃度

希土類元素濃度は ppb で示し、[-]は検出限界以下を示す。

sample_D	La	Ce	Pr	Nd	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu
AOM_16_007	0.00168	0.00310	0.00069	0.00189	0.00076	0.00241	0.00093	0.00043	0.00111	0.00050	0.00094	0.00041	0.00078	0.00037
AOM_16_012	0.02801	0.05182	0.00996	0.04434	0.01307	0.00255	0.01477	0.00277	0.01548	0.00327	0.00840	0.00143	0.00637	0.00110
AOM_17_B011	0.03025	0.05178	0.00926	0.04154	0.01088	0.00242	0.01330	0.00235	0.01358	0.00314	0.00875	0.00156	0.00822	0.00153
AOM_17_B012	0.00187	0.00419	0.00086	0.00310	0.00101	0.00040	0.00119	0.00046	0.00131	0.00052	0.00101	0.00042	0.00098	0.00041
AOM_17_B013	0.00605	0.00960	0.00194	0.00769	0.00212	0.00073	0.00263	0.00065	0.00250	0.00081	0.00178	0.00053	0.00162	0.00050
AOM_17_B014	0.01208	0.02002	0.00401	0.01667	0.00444	0.00143	0.00553	0.00113	0.00552	0.00144	0.00370	0.00081	0.00351	0.00080
AOM_17_B015	0.00813	0.01904	0.00303	0.01298	0.00365	0.00110	0.00407	0.00091	0.00401	0.00108	0.00261	0.00064	0.00231	0.00060
AOM_17_B016	0.01901	0.03135	0.00566	0.02520	0.00668	0.00174	0.00783	0.00152	0.00791	0.00197	0.00522	0.00105	0.00532	0.00102
AOM_17_B017	0.00983	0.01781	0.00308	0.01303	0.00359	0.00101	0.00426	0.00096	0.00432	0.00117	0.00296	0.00073	0.00326	0.00073
AOM_17_B019	0.00131	0.00218	0.00054	0.00178	0.00067	0.00031	0.00070	0.00038	0.00079	0.00041	0.00062	0.00036	0.00062	0.00035
AOM_17_B020	0.00623	0.01057	0.00190	0.00769	0.00225	0.00084	0.00253	0.00065	0.00255	0.00079	0.00175	0.00055	0.00163	0.00050
AOM_19_A014	0.00060	0.00133	0.00048	0.00119	0.00057	0.00099	0.00069	0.00039	0.00076	0.00041	0.00068	0.00038	0.00071	0.00036
AOM_19_B034	0.00247	0.00245	0.00117	0.00411	0.00161	0.00104	0.00205	0.00084	0.00220	0.00100	0.00207	0.00088	0.00210	0.00088
AOM_19_B035	0.00774	0.00365	0.00270	0.01107	0.00317	0.00134	0.00392	0.00094	0.00446	0.00131	0.00352	0.00084	0.00428	0.00089
THK_20_A001	0.01779	0.06405	0.01547	0.11546	0.08676	0.03035	0.22874	0.04391	0.28079	0.05579	0.14233	0.01829	0.09718	0.01495
THK_20_A002	0.00934	0.01929	0.00485	0.02753	0.01673	0.00642	0.03981	0.00756	0.04587	0.00923	0.02312	0.00328	0.01621	0.00270
THK_20_A003	4.81101	12.29663	1.61208	7.09130	2.15084	0.48698	2.93487	0.52192	3.44676	0.73254	2.13055	0.30871	1.80776	0.29784
THK_20_A004	7.34281	17.86733	2.14765	8.87543	2.46046	0.55556	3.20185	0.56056	3.69597	0.78306	2.27982	0.32987	1.93703	0.31979
THK_20_A005	0.00102	0.00156	0.00059	0.00127	0.00064	0.00084	0.00061	0.00040	0.00069	0.00045	0.00065	0.00043	0.00053	0.00042
THK_20_A006	0.00036	0.00041	0.00039	0.00043	0.00039	0.00045	0.00039	0.00036	0.00040	0.00036	0.00036	0.00039	0.00033	0.00039
THK_20_A007	0.00038	0.00038	0.00041	0.00049	0.00044	0.00040	0.00041	0.00036	0.00043	0.00037	0.00039	0.00039	0.00029	0.00039
THK_20_A008	0.00032	0.00032	0.00039	0.00043	0.00043	0.00039	0.00038	0.00036	0.00042	0.00037	0.00040	0.00039	0.00032	0.00038
THK_20_A009	0.00100	0.00241	0.00081	0.00273	0.00140	0.00326	0.00191	0.00066	0.00267	0.00089	0.00202	0.00065	0.00228	0.00064
THK_20_A010	0.01818	0.03086	0.00625	0.02988	0.00978	0.00458	0.01359	0.00238	0.01286	0.00285	0.00695	0.00124	0.00571	0.00105
THK_20_A011	0.00028	0.00028	0.00038	0.00037	0.00039	0.00101	0.00041	0.00037	0.00048	0.00038	0.00045	0.00040	0.00062	0.00050
THK_20_A012	0.00032	0.00041	0.00040	0.00054	0.00043	0.00111	0.00045	0.00037	0.00051	0.00040	0.00049	0.00040	0.00044	0.00040
THK_20_A013	0.00070	0.00054	0.00039	0.00046	0.00040	0.00226	0.00036	0.00036	0.00041	0.00036	0.00037	0.00039	0.00033	0.00038
THK_20_A014	0.00167	0.00069	0.00058	0.00148	0.00064	0.00051	0.00079	0.00042	0.00089	0.00051	0.00086	0.00047	0.00104	0.00048
THK_20_A015	0.00107	0.00169	0.00057	0.00138	0.00071	0.00194	0.00085	0.00042	0.00076	0.00043	0.00048	0.00040	0.00037	0.00038
THK_20_A016	0.00028	0.00032	0.00038	0.00038	0.00038	0.00163	0.00034	0.00035	0.00038	0.00036	0.00037	0.00038	0.00025	0.00038
THK_20_A017	0.00138	0.00068	0.00063	0.00191	0.00075	0.00177	0.00086	0.00040	0.00068	0.00040	0.00044	0.00039	0.00028	0.00038
THK_20_A018	0.00117	0.00172	0.00059	0.00156	0.00083	0.00116	0.00156	0.00061	0.00296	0.00131	0.00465	0.00129	0.01047	0.00295
THK_20_A019	0.00052	0.00042	0.00039	0.00048	0.00048	0.01472	0.00041	0.00037	0.00048	0.00039	0.00046	0.00041	0.00058	0.00042
THK_20_A020	0.00183	0.00232	0.00074	0.00146	0.00061	0.00053	0.00062	0.00039	0.00058	0.00041	0.00050	0.00041	0.00043	0.00041
THK_20_A021	0.00416	0.00186	0.00087	0.00283	0.00094	0.00053	0.00125	0.00045	0.00128	0.00054	0.00107	0.00036	0.00086	0.00041
THK_20_A022	0.00211	0.00299	0.00064	0.00212	0.00090	0.00149	0.00139	0.00047	0.00121	0.00048	0.00076	0.00031	0.00047	0.00034
THK_20_A023	0.00035	0.00045	0.00031	0.00042	0.00034	0.00055	0.00040	0.00032	0.00034	0.00031	0.00035	0.00027	0.00026	0.00032
THK_20_A024	0.00049	0.00046	0.00036	0.00065	0.00041	0.00024	0.00043	0.00033	0.00039	0.00032	0.00039	0.00027	0.00031	0.00032
THK_20_B001	0.00257	0.00219	0.00115	0.00502	0.00173	0.00077	0.00246	0.00066	0.00259	0.00086	0.00212	0.00053	0.00183	0.00065
THK_20_B002	0.00737	0.01574	0.00303	0.01371	0.00428	0.00111	0.00540	0.00112	0.00560	0.00155	0.00435	0.00090	0.00433	0.00116
THK_20_B003	0.01196	0.01639	0.00517	0.02371	0.00708	0.00151	0.00912	0.00171	0.00947	0.00234	0.00680	0.00124	0.00631	0.00158
THK_20_B004	0.00211	0.00188	0.00113	0.00452	0.00159	0.00058	0.00221	0.00061	0.00231	0.00079	0.00188	0.00051	0.00184	0.00065
THK_20_B005	0.02018	0.02527	0.00684	0.03080	0.00863	0.00220	0.01087	0.00195	0.01090	0.00259	0.00715	0.00124	0.00557	0.00134
THK_20_B006	0.00243	0.00299	0.00115	0.00482	0.00167	0.00050	0.00225	0.00060	0.00219	0.00074	0.00173	0.00047	0.00142	0.00057
THK_20_B007	0.00209	0.00158	0.00090	0.00348	0.00134	0.00040	0.00183	0.00053	0.00181	0.00066	0.00148	0.00043	0.00137	0.00052
THK_20_B008	0.00876	0.00667	0.00257	0.01132	0.00318	0.00085	0.00419	0.00090	0.00427	0.00123	0.00313	0.00067	0.00273	0.00074
THK_20_B009	0.00417	0.00187	0.00144	0.00588	0.00173	0.00064	0.00242	0.00064	0.00225	0.00077	0.00174	0.00046	0.00122	0.00049
THK_20_B010	0.00738	0.00791	0.00213	0.00891	0.00252	0.00068	0.00339	0.00079	0.00330	0.00101	0.00248	0.00057	0.00210	0.00063

sample_D	La	Ce	Pr	Nd	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu
THK_20_B011	0.00548	0.00845	0.00221	0.00957	0.00277	0.00083	0.00347	0.00078	0.00334	0.00099	0.00243	0.00058	0.00202	0.00068
THK_20_B012	0.01003	0.02174	0.00369	0.01711	0.00513	0.00121	0.00658	0.00126	0.00625	0.00158	0.00403	0.00078	0.00294	0.00083
THK_20_B013	0.00388	0.00740	0.00152	0.00617	0.00197	0.00060	0.00228	0.00062	0.00222	0.00074	0.00160	0.00045	0.00142	0.00052
THK_20_B014	0.00125	0.00200	0.00076	0.00242	0.00094	0.00064	0.00106	0.00044	0.00113	0.00050	0.00089	0.00044	0.00095	0.00044
THK_20_B015	0.00088	0.00113	0.00063	0.00174	0.00079	0.00059	0.00094	0.00042	0.00100	0.00049	0.00094	0.00045	0.00126	0.00047
THK_20_B016	0.01002	0.01684	0.00319	0.01326	0.00395	0.00131	0.00481	0.00101	0.00484	0.00134	0.00329	0.00079	0.00335	0.00080
THK_20_B017	0.00737	0.00840	0.00194	0.00759	0.00231	0.00094	0.00302	0.00074	0.00307	0.00093	0.00223	0.00061	0.00194	0.00062
THK_20_B018	0.00705	0.00647	0.00179	0.00735	0.00210	0.00089	0.00277	0.00068	0.00281	0.00092	0.00213	0.00061	0.00230	0.00065
THK_20_B019	0.00044	0.00027	0.00038	0.00062	0.00045	0.00067	0.00051	0.00035	0.00055	0.00039	0.00054	0.00038	0.00063	0.00038
THK_20_B020	0.00644	0.00750	0.00250	0.01068	0.00319	0.00141	0.00402	0.00089	0.00411	0.00122	0.00313	0.00076	0.00313	0.00079
THK_20_B021	0.00716	0.00959	0.00285	0.01189	0.00378	0.00137	0.00493	0.00107	0.00521	0.00143	0.00371	0.00084	0.00372	0.00084
THK_20_B022	0.00238	0.00303	0.00105	0.00380	0.00135	0.00076	0.00164	0.00053	0.00180	0.00066	0.00138	0.00051	0.00160	0.00053
THK_20_B023	0.00923	0.00832	0.00258	0.01125	0.00321	0.00120	0.00424	0.00093	0.00441	0.00127	0.00328	0.00076	0.00304	0.00078
THKW_11_B021	0.00101	0.00214	0.00058	0.00156	0.00066	0.00064	0.00057	0.00035	0.00052	0.00037	0.00046	0.00037	0.00066	0.00039
THKW_11_B022	0.00088	0.00130	0.00045	0.00089	0.00052	0.00069	0.00052	0.00035	0.00051	0.00036	0.00043	0.00037	0.00055	0.00035
THKW_11_B023	0.40250	0.83759	0.11166	0.49839	0.21903	0.08175	0.45048	0.09410	0.63458	0.12246	0.29207	0.03370	0.17226	0.01629
THKW_11_B024	0.03605	0.06211	0.01005	0.04422	0.01782	0.00758	0.03646	0.00771	0.05315	0.01116	0.02808	0.00362	0.01909	0.00212
THKW_11_B025	0.01596	0.01790	0.00394	0.02013	0.01069	0.00493	0.02352	0.00391	0.02029	0.00446	0.00997	0.00180	0.00712	0.00145
THKW_11_B026	0.00984	0.01441	0.00509	0.01179	0.00778	0.002582	0.01645	0.00565	0.01975	0.00676	0.01229	0.00465	0.01050	0.00426
THKW_11_B027	0.01237	0.01460	0.00488	0.00916	0.00611	0.01755	0.00784	0.00411	0.01213	0.00588	0.01275	0.00514	0.01758	0.00545
THKW_11_B028	0.01063	0.00791	0.00415	0.00707	0.00469	0.01910	0.00464	0.00341	0.00475	0.00366	0.00433	0.00361	0.00508	0.00349
THKW_11_B029	0.00370	0.00326	0.00326	0.00295	0.00379	0.01363	0.00361	0.00323	0.00371	0.00336	0.00353	0.00357	0.00493	0.00353
THKW_11_B030	0.00601	0.00480	0.00360	0.00551	0.00466	0.28981	0.00439	0.00344	0.00500	0.00366	0.00438	0.00367	0.00593	0.00354

2) 始良カルデラを含む九州南部の統計解析

ここでは、昨年度に引き続き、始良カルデラを含む九州南部（島嶼部を含む）の地下水・深部流体の地球化学データの統計解析を行った結果を示す。温泉水、鉱泉水、湧水などの地下水および河川水の組成変化を生み出す独立な要素を抽出するためには、地球化学データの多変量統計解析が有効である。主成分分析（Principal Component Analysis）は、代表的な手法の一つであるが、データ分布が正確に多変量正規分布（joint Gaussian distribution）に従う時以外、すなわちデータが非正規分布（non-Gaussian distribution）を示す時には、独立な要素を抽出することができず、独立成分分析（Independent Component Analysis, ICA）あるいは白色化されたデータに基づくクラスタ分析（whitened data-based K-means Cluster Analysis, whitened KCA）を用いる必要がある（Iwamori et al., 2017）。白色化とは、多次元データの構造（データの分布の仕方）やそこに潜む独立な基底ベクトルを見つけるため、見かけの強度に左右されないように規格化したデータのことである。阿蘇カルデラおよび九重火山を含む九州中央部における地下水の研究（Iwamori et al., 2023）および始良カルデラを含む九州南部における予察的研究は、実際のデータが非正規分布を示し、上記の非正規分布に対応する手法が有効であることを示している。そこで、まずデータの分布と構造を吟味する。

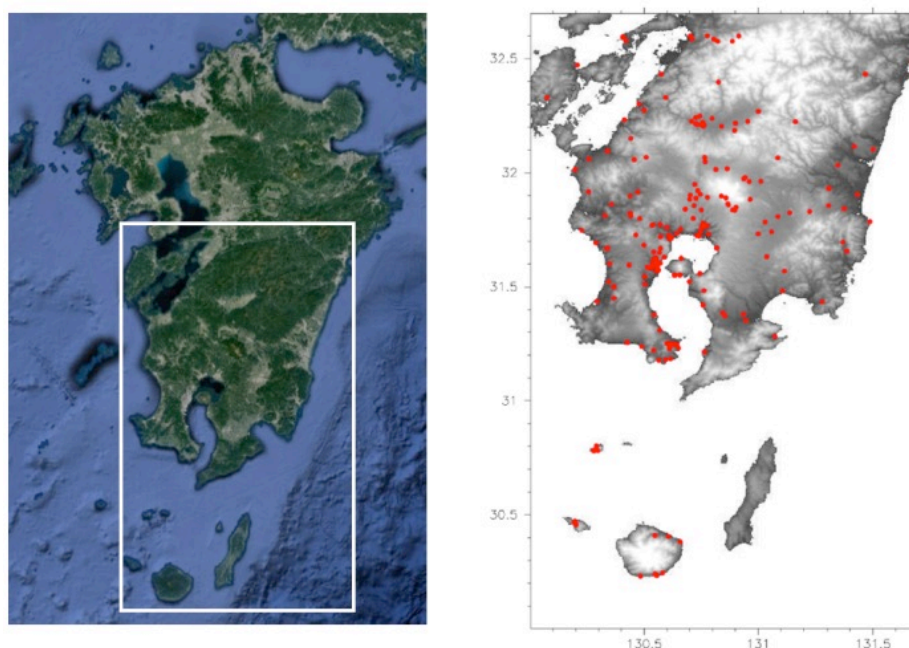


図 3.1-6 統計解析で用いた 438 試料の採取地点

九州における本研究対象地域（白四角）と試料採取地点（右図）を赤点で示す。溶存元素組成データ（高橋ほか（2018）および未公表データ）から、Na, K, Mg, Ca, Li, Cl, SO₄, HCO₃, F, NO₃, Br, Total C の 12 項目が揃っている試料を用いている。

今年度は、昨年度の予察的研究で用いたデータセットを拡張し、同じ手法（ICA および KCA）により、地下水組成に記録されている独立な要素（流体ソースおよび移動・循環中のプロセスなどに対応）の検出と解釈を行った。用いたデータは、始良カルデラを含む九州南部（島嶼部を含む）のおよそ 160 km（東西）×300 km（南北）の領域に分布する 438 試料（図 3.1-6）の溶存元素組成データ（高橋ほか（2018）および未公表データ）である。高橋ほか（2018）および今回用いた未公表データには、100 を超える記載および数値データ項目が含まれるが、その中から Na, K, Mg, Ca, Li, Cl, SO₄, HCO₃, F, NO₃, Br, Total C の 12 項目が揃っているデータ（438 試料のデータ）を解析した。より項目数を増やすと、対象項目をデータにもつ試料総数が減る一方、より項目数を減らすと、データ次元・情報が減少する。両者のバランスおよびこれまでの九州中部における研究との整合性を考慮し、上記の 12 項目を用いた。図 3.1-6 はこれらのデータの頻度図である。左の 12 セットは線形濃度頻度図、右の 12 セットは対数濃度頻度図に対応する。線形濃度頻度図（図 3.1-6 の左図）では、低濃度部分での密集とまばらな高濃度部分への広がりが見られ、顕著な歪度（3 次のモーメントとしての非正規性）を示す。濃度の対数をとると（図 3.1-6 の右図）正規分布に近づくが、まだバイモーダル分布などの非正規性がみられる。

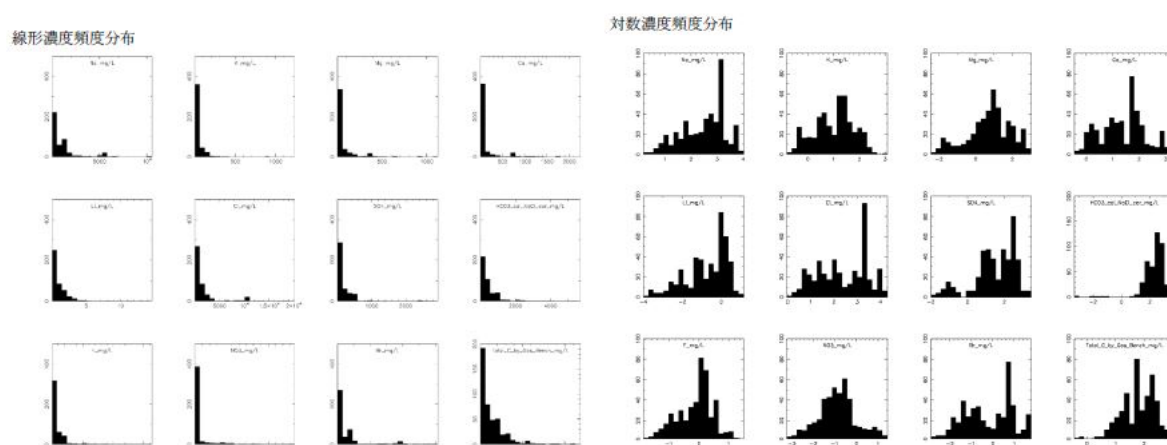


図 3.1-6 統計解析で用いた 438 試料 12 項目の頻度分布

左は線形プロットの頻度分布を示し、右は対数プロットの頻度分布を示す。線形プロットでは、低濃度側に試料が集中するため、顕著な非正規性が見られる。対数プロットでは正規性に近づくが、一部バイモーダルなどの非正規性も見られる。このため、対数を白色化することで見かけの強度に左右されないようにした上で解析を行う（Iwamori et al., 2020）。

そこで、昨年度と同様に、独立成分分析（ICA）あるいは白色化されたデータに基づくクラスタ分析（whitened KCA）を用いて（Iwamori et al., 2017; 2020）、地下水組成に記録されている独立な要素（流体ソースおよび移動・循環中のプロセスなどに対応）の検出を行った。まず、固有値解析に基づき、クラスタ数を 5～12 の間で変化させて計算を行った。各固有値は、固有値合計に占める割合が大きい順に、0.507, 0.194, 0.125, 6.00E-02, 4.53E-02, 2.00E-02（7 番目以降は省略）である。積算割合が 90%を超えるのは、5 番目までの固有値の合計（93.1%）、および

6 番目までの合計 (95.1%) である。このため、きめ細かく特徴を再現するには、25 (= 32) から 26 (=64) 程度のクラスタ数が想定されるが、総試料数 438 に対して過多の傾向にある。そこで、地域性を考慮しながら、今回はクラスタ数を 5~12 の間で変化させて計算を行った。同時に、それぞれのクラスタ数について、データの次元縮約（強度の高い主成分により張られる部分空間への投影）も 3~12 の間で変化させて計算を行った。結果として $8 \times 10 = 80$ 通りの解析結果を得て検討した結果、比較的地域性が最も良くみられるクラスタ数 = 8、縮約次元 = 6 を採用し、図 3.1-7 と図 3.1-8 に示す。

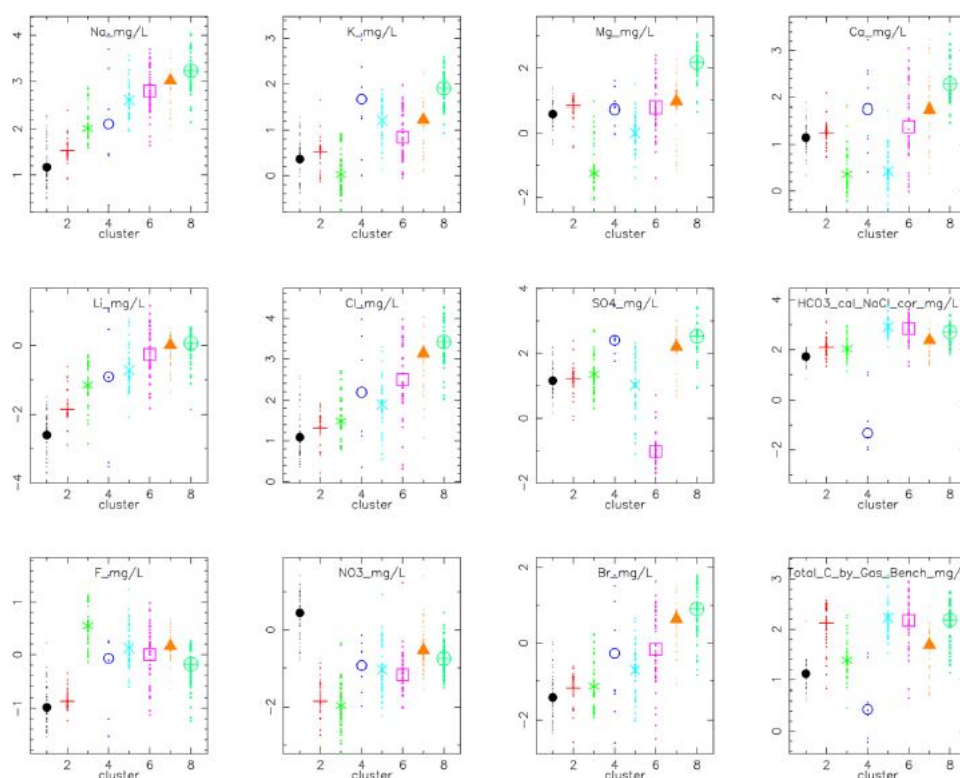


図 3.1-7 8つのクラスタの濃度分布と平均値

項目毎の8つのクラスタの濃度分布（小さな点）と平均濃度（大きなシンボル）を示す。Na 濃度（左上図）を基準として、平均値が低いクラスタ（左端）から大きいクラスタ（右端）に並べてシンボル分けし、残り 11 項目について、Na 濃度と対比させながら傾向をみることができる。

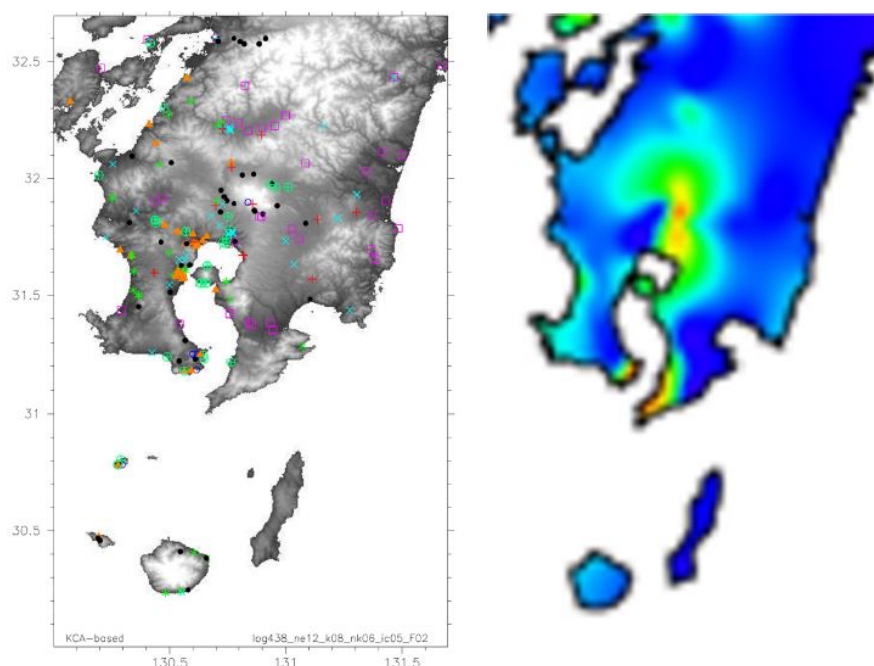


図 3.1-8 8つのクラスタの広域分布

左図は8つのクラスタの広域地理分布を示す。クラスタシンボルは図3.1.2-3と共通である。右図は地温勾配の地理分布（矢野ほか，1999）を示す。

各クラスタの特徴と推定される成因について以下に記す。クラスタ1 (●) は、最も低い平均Naと最も高いNO₃濃度で特徴づけられる。地域全体に分布するが、霧島火山をとりまく分布や、九州中部の九州山地北縁（～北緯32.6度）に特徴的に見られる（図3.1-8）。天水が表層付近で循環した地下水と位置づけられる。高いNO₃濃度は、地表付近の循環の間に、人為的要因の関与が示唆される。クラスタ2 (+) は、クラスタ1に次いで平均Na濃度が低く、調査地域全体に散在する点ではクラスタ1に似るが（図3.1-8）、NO₃が顕著に低く、Total_Cが高い点で異なる（図3.1-7）。これらの特徴は、やや循環経路が長く、基盤岩石と若干反応が進んだクラスタと考えられる。クラスタ3 (*) は、低いK, Mg, Caおよび最も高いFの平均濃度で特徴づけられ（図3.1-7）、一部試料を除き研究対象地域の西側と屋久島に産する（図3.1-8の左図）。いずれも比較的地温勾配が高い領域におよそ対応する（図3.1-8の右図）。天水が地殻内を循環し、特に花崗岩類などと反応して地球化学的特徴を獲得したと考えられる。クラスタ4 (○) は、高いSO₄と低いHCO₃, Total_Cで特徴づけられ（図3.1-7）、霧島、指宿、および鬼界カルデラ西縁に位置する硫黄島にみられる（図3.1-8）。火山性流体（マグマ由来流体、あるいは天水に火山ガスが加わった後、強い酸性が維持される程度（中程度）に岩石と反応した流体）と考えられる。

クラスタ5 (×) は本地域全体に散在するようにみられ、Li, HCO₃, F, Total_Cは高い濃度レベルを示す（図3.1-7）。クラスタ3 (*) およびクラスタ6 (□) の中間的な性質を示し、地殻を循環する天水起源流体と、深部由来流体の混合の可能性がある。クラスタ6 (□) は、Na（およびLi, Cl, Br, Total_C）の平均濃度が8つのクラスタのうちで3番目に高い一方、最も低いSO₄で特徴づけられる（図3.1-7）。地域全体に散在するが、特に前弧領域に多く分布し、比較的

地温勾配が低い地域に対応する傾向がある(図 3.1-8). クラスタ 7 (▲) とクラスタ 8 (⊕) は、Na の平均濃度および SO_4 をはじめとする他の溶存イオン濃度が高く、F と NO_3 を除けば、クラスタ 8 の方がより平均濃度が高いものの、両者の区別はやや不明瞭である(図 3.1-7). 地理的には、いずれも研究対象地域の西側(およそ火山フロント以西)に分布し、島嶼部では硫黄島にみられる(図 3.1-8). 以上のことから、クラスタ 4, 7, 8 は火山活動に関連した流体の可能性があると考えられる.

ここで、統計解析に用いた 12 項目以外の指標について検討する. 図 3.1-9 は、水試料の起源を考える上で通常用いられている指標であるが、分析された試料が少ないため、統計解析には用いられていない. 図 3.1-9 の 4 つの図において、クラスタ 4 (○) は、 50°C 以上と高温であり、一試料を除き 4 以下の低い pH を示し、なおかつ天水線から高酸素同位体比側へのシフトが見られる. クラスタ 5 (×) は、ヘリウムや温度、pH のいずれについても、クラスタ 3 (*) と 6 (□) の間にプロットされ、混合しているものとみられる. これは、統計解析の結果、中間的な組成を示すとされたことと矛盾しない. クラスタ 6 (□) は、温度のばらつきが大きく、またヘリウム同位体比が 1 以下から ~5 程度までと比較的幅広い. 酸素-水素同位体比は、天水線から高酸素同位体比側にシフトしたトレンドを示すが、比較的水素同位体比が高いトレンドと、比較的低いトレンドの 2 つがあるようにも見える. これらの幅広さ・多様性は、クラスタ 6 (□) が複数の成因・プロセスを含むグループである可能性を示唆する. そのような流体としては、宮崎・日南周辺に分布するガス田に伴う地層水・変質した古海水(例えば、加藤ほか, 2011) や、高温での岩石との反応ないし沈み込んだプレート由来流体(例えば、Kusuda et al., 2014) などが考えられる. 同時に、これらをクラスタとして分離するには、さらにクラスタ数を増やすか、あるいは、12 溶存成分に加えて同位体比(酸素-水素、ヘリウム)や温度、pH を分類の基準に加える必要がある.

クラスタ 7, 8 は、酸素水素同位体比空間では天水線からややはずれ、海水組成との混合傾向が認められる. クラスタ 7 の試料の一部は、この混合傾向をはずれ、やや高い酸素同位体比を示すものがあるが、それらを除けば、両クラスタとも、ほぼ天水線に乗る部分から海水に近い組成まで、幅広い混合傾向・範囲を示す. 但し、クラスタ 8 の方がより海水に近い試料が多い(図 3.1-9 の右下). ヘリウム同位体比(図 3.1-9 の左下)も、両クラスタとも幅広い組成を示し、縦軸の値 7 を超える試料が存在する. 温度と pH については、クラスタ 7 の方が平均的にはやや高く、違いが認められる. これらの特徴は、天水-海水が、火山性のガスや岩石からのイオンを溶存しつつ、循環・湧出したことを示唆する. 始良カルデラ及び周辺の流体を広域的に把握した結果、高い SO_4 、比較的高い温度と $^3\text{He}/^4\text{He}$ (幅広いレンジを示すが、多くが、あるいは平均的には、比較的高い値を示す)、及び地質に基づいて、火山性流体を総合的に判断した. そこで、火山性の可能性が高いと判断された、クラスタ 4, 7, 8 に分類される試料の希土類元素組成について次の章で述べる.

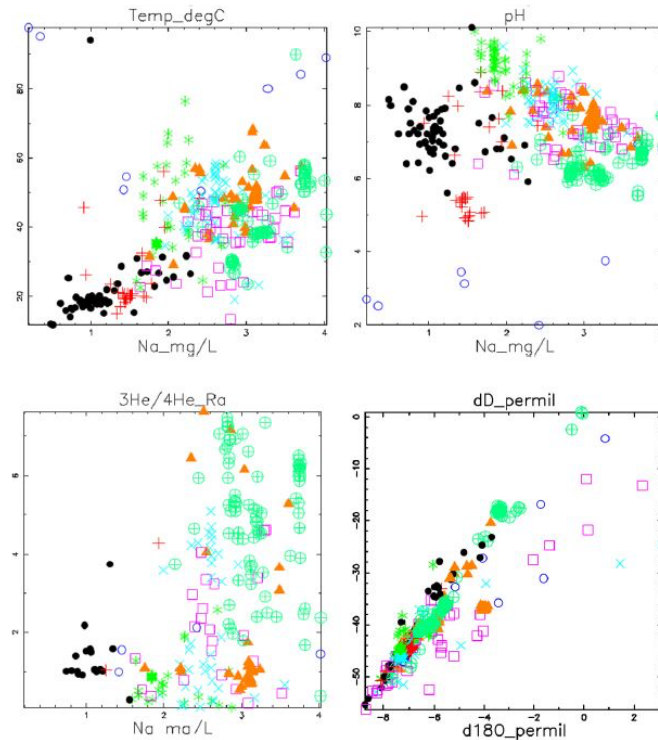


図 3.1-9 統計解析に用いていない指標上でのクラスタ分布

クラスタ分類の基準に用いていない温度（左上）、pH（右上）、ヘリウム同位体比（左下）、酸素-水素同位体比（右下）上での、クラスタに分けられた試料の分布を示す。横軸はいずれも Na の対数濃度。クラスタシンボルは図 3.1-7 と共通である。

3) 始良カルデラを含む九州南部のマグマの種別

前章で火山性の可能性が高いと判断されたクラスタ 4, 7, 8 について、希土類元素組成からマグマの種類について検討する。産総研（2022）でも述べたように、花崗岩質マグマと平衡にあるマグマ性流体の希土類元素組成には、強い Eu 負異常が現れる。カナダのニューブランズウィック州レイクジョージ貫入岩体の花崗閃緑岩と石英長石斑岩を用いて、花崗岩質マグマと平衡にある流体の組成を算出した結果、花崗閃緑岩と石英長石斑岩では軽度の Eu 負異常であるのに対し、マグマ性流体には強い Eu 負異常が現れている（Yang, 2019）。また、変質程度や年代に依存し、世界中の花崗岩類を起源とする堆積岩には Eu 負異常が見られる（Gao and Wedepohl, 1995）。従って、珪長質な物質との熱水反応（＝変質）を経た地下水には、Eu 負異常が現れる可能性が高くなる。火山性流体に Eu 負異常がないならば、珪長質マグマではないと言えるだろう。そこで、定量的に Eu/Eu^* 値 (< 1) を珪長質の指標とし、これを満たす試料を赤で図 3.1-10 中に示す。Eu* はイオン半径を根拠として隣接する元素から推定される期待値であり、ここでは Sm と Gd の中間値として算出する。

図 3.1-10 は、火山性の可能性が高いと判断されたクラスタ 4, 7, 8 の希土類元素組成をクラスタ毎に示している。また、比較のため、火山性ではないクラスタ 1 の希土類元素組成を図 3.1-11 に示す。希土類元素は、クラスタの判定に用いた 12 項目に含まれていない。クラスタ 1 は天水

起源の流体と考えられるが、濃度は規格化値 10^{-4} ~ 10^{-6} 程度で密である。また、規格化値 10^{-4} ~ 10^{-5} 程度の高濃度の試料は Ce 負異常が見られるが、規格化値 10^{-5} ~ 10^{-6} の低濃度試料は Eu 負異常が見られる試料もあり、W 型のパターンを示す点においても、火山性のクラスタ 7, 8 と明瞭な相違は見られない。Eu 正異常を伴う W 型のパターンは、沈殿物を生成した後の上澄みと考えられており (Nakamura et al., 2015, 2016), 阿蘇カルデラ内の試料でも観察されている (産総研, 2021)。従って、希土類元素組成はクラスタ毎に一樣ではなく、例えば、クラスタ 7 には明瞭な Eu 正異常を示す試料と、元素異常を伴わないフラットなパターンなど、図 3.1-11 で示したこの地域で見られる多様なパターンが混在していると言える (図 3.1-10 の中央図)。このことは、希土類元素組成がクラスタ判定とは相関がなく、起源やプロセスの積算であることを示唆しており、Nakamura et al. (2016) で指摘されている見解と矛盾しない。

クラスタ 4 は、希土類元素組成が分析された試料数は少ないが、計算上わずかに Eu 負異常が見られる。また、クラスタ 8 には明瞭な Eu 負異常が見られる。一方、クラスタ 7 には負異常は認められない。これら Eu 負異常を示す 4 試料の Eu/Eu* 値として、クラスタ 4 の KYU_23_A043 は 0.76, KYU_23_A044 は 0.88, クラスタ 8 の KYU_14_A009 は 0.96, KYU_18_C012 は 0.34 である。これらは先の Eu 指標に基づき、珪長質の可能性があると判断される。但し、同じ地点で複数回採取された試料でも、化学組成が変化していることが度々ある。例えば、主溶存元素から解析で得られるクラスタ番号は変わらないが、希土類元素組成及び Eu 異常は変化している泉源がある。これは、主溶存元素のバランスを大きく崩すものではないが、希釈や濃縮、沈殿、または新たな流体の混入など、何らかの要因に伴って流体組成が変動する泉源と考えられる。希土類元素は一つの元素群でありながら、イオン半径や価数の違いがあるため、固相・液相への入りやすさが異なる。つまり、環境の変化に敏感と言い換えることができ、上昇プロセスを反映しやすいと言えるだろう。珪長質かどうかを判断する為には、火山性の流体を選定した上で、定点観測や定期観測を行うことで化学組成の変動の有無、及び変動のベースラインを見極めた上で判断するという段階的研究手法が必須と思われる。

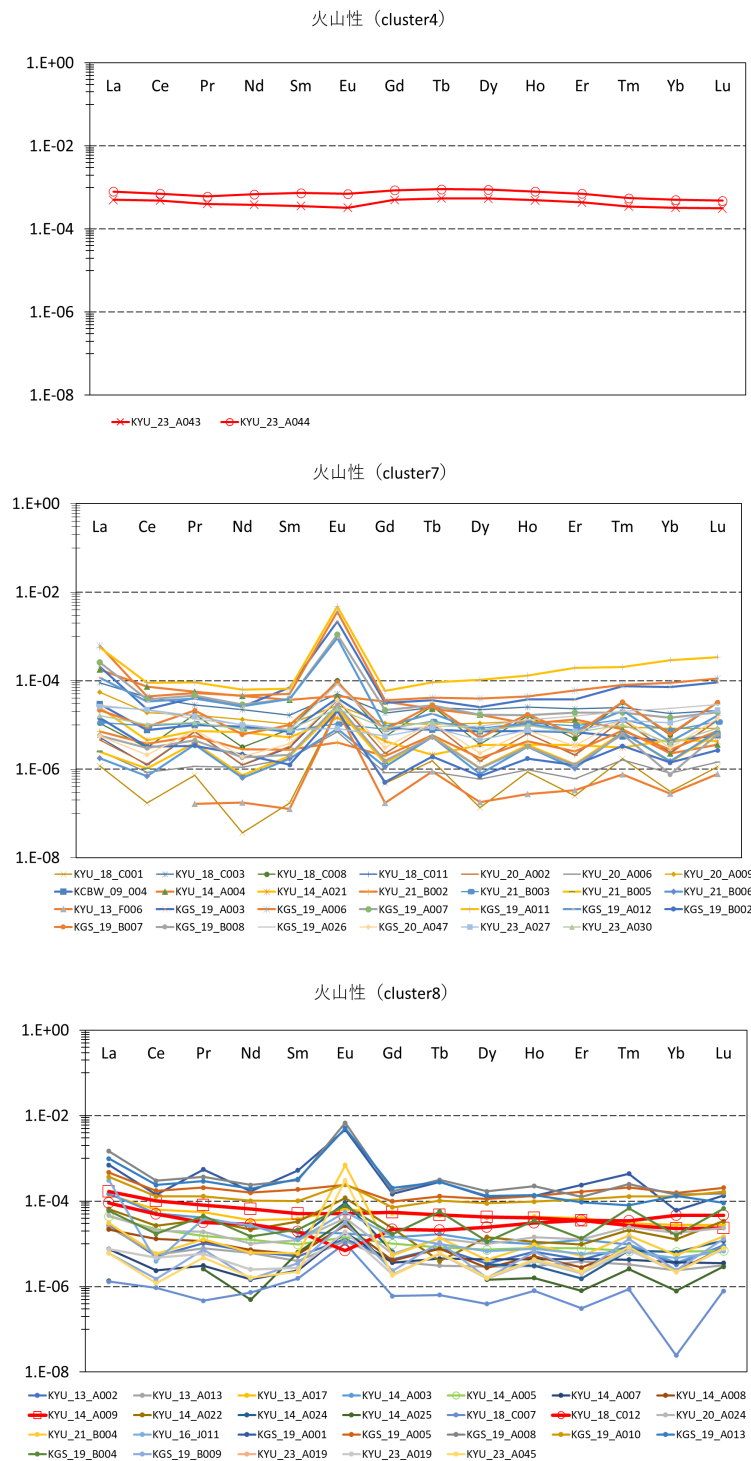


図 3.1-10 火山性クラスタ 4, 7, 8 の希土類元素組成

クラスタ 4 (上), クラスタ 7 (中央), クラスタ 8 (下) の希土類元素組成を, 枯渇したマントル組成 (Workman and Hart, 2005) で規格化した. 各図中において, 珪長質と判断された試料は赤太線, それ以外のシンボルと色は自動表示である. クラスタ 7 (中央) の試料には珪長質に該当するものは見あたらないが, 統計解析を行った試料数と希土類元素分析を行った試料数は同じでないため, クラスタ 7 には珪長質がないということの意味するものではなく, クラスタ分類とマグマの種別 (珪長質) には相関はない.

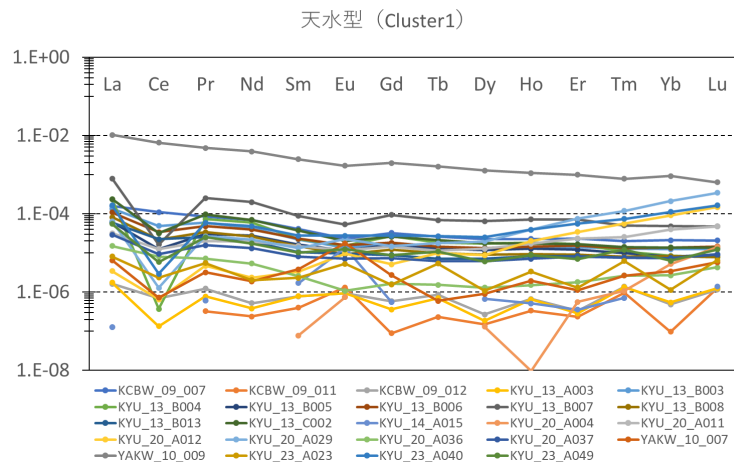


図 3.1-11 天水型クラスタ 1 の希土類元素組成

クラスタ 1 の希土類元素組成を、枯渇したマントル組成 (Workman and Hart, 2005) で規格化した。シンボルと色は自動表示である。Eu 負異常 ($\text{Eu}/\text{Eu}^* < 1$) を示す試料も複数あるが、火山性でないため、珪長質マグマに由来するものではないと考えられる。

これら珪長質の可能性のある 4 つの試料の分布を、火山性の代表的な試料の希土類元素組成とともに地図上に示す (図 3.1-12)。前者の希土類元素組成は赤で示し、後者は青で示す。図 3.1-12 中の南側から順に、赤・青を比較させながら分かることを以下に述べる。開聞岳、薩摩硫黄島は第四紀火山であり、その近隣の地点で採取された試料 (KYU_14_A021; KCBW_09_004) の希土類元素組成はやや左上がりのパターンを示し、かつ Eu 正異常を示す点において類似している。但し、開聞岳と薩摩硫黄島で、その岩石学的特徴は異なる。開聞岳は円錐形の山体を持つ小型の玄武岩質成層火山であり、西暦 800 年代に噴火記録がある (川辺・坂口, 2005)。薩摩硫黄島は鬼界カルデラの縁を構成する火山であり、二つの山体 (硫黄岳、稲村岳) から成り、約 5 千年前に活動を開始した硫黄岳は流紋岩で、最新の噴火は約 3 千年前の稲村岳 (玄武岩質) とされている (篠原ほか, 2008)。溶岩は過去のマグマであり、マグマが固化せず活動状態にあるならば化学組成が変化している可能性があるため、現在のマグマ状態を反映しているとは限らない点について留意する必要がある。錦江湾の西縁の試料 (KGS_19_A007) は、やや Eu 異常が強いが、開聞岳や薩摩硫黄島の近隣で採取された試料と類似したパターンを示す。これらは、火山性流体が、上昇途中に地殻との反応などで Eu 正異常を獲得しているが、あまり沈殿物を生成していない、という共通点が見られる。帯水層が発達しておらず、火山性流体が多く時間や組成改変を経ずに上昇するような水みちができていて、というシナリオが推定できる。但し、同じ火山性流体と考え、錦江湾の西縁の試料 (KGS_19_A007) はやや濃度が高く Eu 正異常も強いことから、供給源が異なるか、供給源が同一であっても上昇過程や帯水層での滞留時間が長いなど、地殻内プロセスが異なるような、岩石との反応がより進む環境にあると考えられる。一方、始良カルデラ北西部の薩摩川内方面の試料 (KYU_14_A009) は、明瞭な Eu 負異常を示してはいないが、赤字で示す通り計算上は負異常と判断される。岩石や天水との接触があれば元素間の分別が生じや

すいため、何らかの変化が希土類元素に現れ易いことを考えると、火山性流体がほぼそのまま上昇している可能性があり、注視する必要がある。但し、この地域には複数の泉源が湧出しており、正異常と負異常を示す試料が混在するため、更なる検討が必要であろう。錦江湾の北西の試料 (KYU_14_A004) は、左上がりの急峻なパターンを持ち、やや滑らかでなく、重希土側 (Ho, Yb) に負異常が見られる。Eu 異常は見られないことから、単純に沈殿物を形成したのではなく、重希土側の特徴的な元素を取り込むような鉱物の関与が疑われる。霧島方面の 2 試料 (KYU_23_A043 ; KYU_23_A044) は、いずれも隣接した泉源で採取されており、パターン上では明瞭な Eu 負異常ではないが、やや珪長質と判断される。霧島火山は、加久藤カルデラの南縁部に生じた小型の成層火山・火砕丘であり、20 余りの火山体が識別できる。岩石学的には、玄武岩からデイサイトまで変化に富む (井村・小林, 2001)。霧島の新燃岳では 2008 年から 2010 年にかけて小規模な噴火が続き、2011 年に本格的なマグマ噴火が発生し、安山岩質マグマが関与したと考えられている (産総研, 2018)。桜島の南部の試料 (KYU_18_C012) は、パターン上でも明瞭な Eu 負異常を示し、珪長質と考えられる。但し、下にやや凸のパターンを示しており、直接マグマから来た流体ではなく、何らかのプロセスを経ていると思われる。これらの珪長質が疑われる地点には、隣接する泉源や湧水があり、それらとの比較によって詳細に検討していく必要があるだろう。

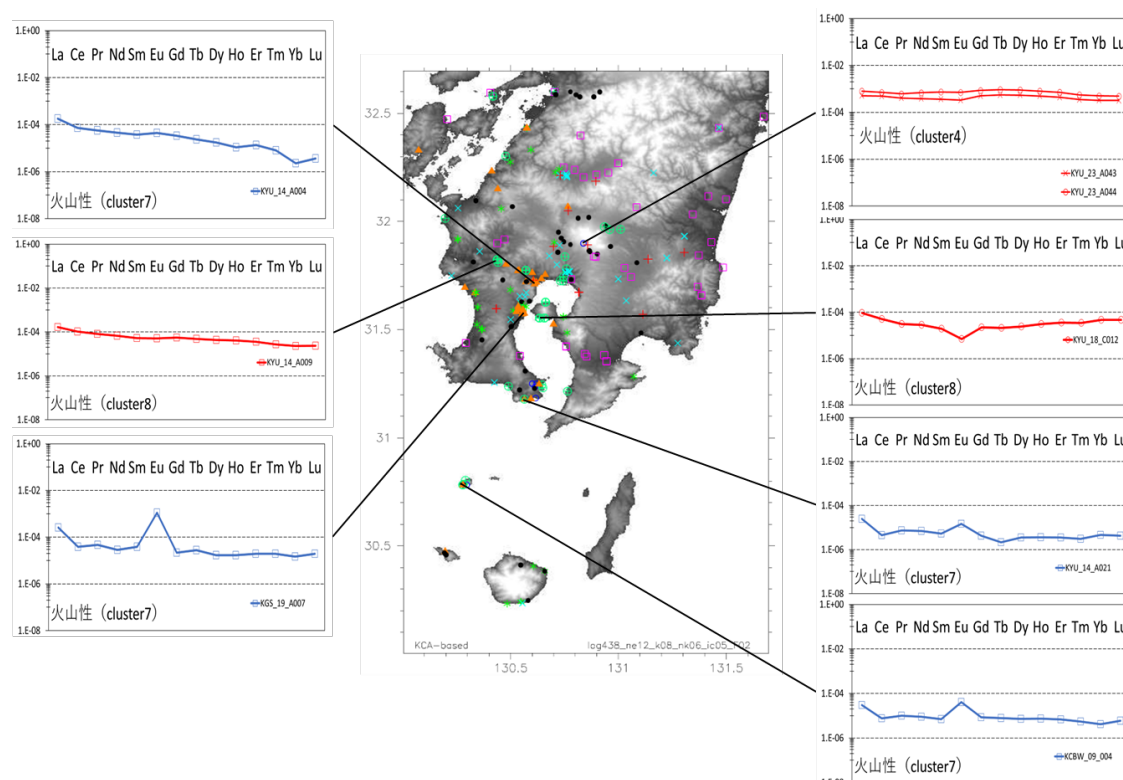


図 3.1-12 火山性クラスタ 4, 7, 8 の代表的な希土類元素組成と分布

代表的な火山性クラスタの分布と、その希土類元素組成を枯渇したマントル組成 (Workman and Hart, 2005) で規格化した。赤は珪長質の可能性があり、青は珪長質ではないことを示す。各図に、判定に用いた試料名を付記している。

4) 始良カルデラのマグマの種別

次に、産総研（2022）において提案された、始良カルデラ周辺の地下水のマグマ起源 C/Cl 比に基づいた地域分け A1~A9（図 3.1-13 左図）に従って、地域毎の希土類元素組成（図 3.1-13 右図）を比較する。C/Cl 比に基づいた地域分け A1~A9 に使われた、同一試料の希土類元素組成を示している。これらの Cl 濃度や Cl/H₂O 及び C/Cl に基づく選定方法は、簡易的でかつ明瞭であり、多数の温泉や湧水を含む水試料の分析データから選定しやすいという点において、非常に優れている。実際、これらの指標が、より深部の情報を持つ試料の選定に飛躍的な成果をもたらした（例えば、風早ほか、2014）、近年行われてきた深部流体に係る研究の大きな流れとなり（例えば、高橋、2014；文部科学省、2019）、広域かつ複雑なテクトニクス場にある日本列島全体の深部流体の把握にも繋がるなど、関連する研究に及ぼした影響は計り知れない。しかし、ここではまだ検証の予知があることを指摘したい。

C/Cl 法で判定することができた地域は A2~A9 である。A1 は Cl の起源が変質した海水を示し、マグマ起源の値を算出することができなかったと考えられる。A1（KGS_19_A008）は、12 項目の統計解析の結果ではクラスタ 8 に分類され、その希土類元素組成は、図 3.1-13 右図で最も高い Eu 正異常を示し、希土類元素全体にギザギザのパターンが見られ、弱いながらも Ce 異常も見られることから、海水などに含まれる元素の干渉をやや受けた分析結果となっている。従って、火山性だが珪長質ではないと判断される。A2（KGS_19_A011）は、C/Cl 法で苦鉄質供給と判断されている。統計解析の結果ではクラスタ 7 に分類され、その希土類元素組成は、A1 に次ぐ強い Eu 正異常を示し、かつやや沈殿物を形成したパターンを示す。³⁶Cl-⁴He から、滞留時間の長い泉源であることが指摘されていることと矛盾しない。従って、火山性だが珪長質ではないと判断される。A3（KGS_19_A015）は、C/Cl 法で珪長質マグマ関与と判断されている。統計解析の結果ではクラスタ 8 に分類されるが、希土類元素組成は弱い Eu 正異常を示す（図 3.1-13 右図、灰色）。しかし、図 3.1-12 で、同じ地点の試料（KYU_18_C012）には、強い Eu 負異常が見られる。これらは、同じ地点で、異なる時（2018 年度と 2019 年度）に採取されており、先述したように、主溶存元素の変化は顕著ではないが、希土類元素組成が変動する泉源の好例である。変動の要因を探り、化学組成のベースラインを明らかにすることが今後必要となる。従って、火山性であることは確実で、珪長質マグマの関与が疑われると判断される。A4（KGS_19_A007）は、C/Cl 法で苦鉄質と判断されている。統計解析の結果ではクラスタ 7 に分類され、その希土類元素組成は強い Eu 正異常を示すが、沈殿物形成の程度は A2 より強くない。³⁶Cl-⁴He から、滞留時間の長い泉源であることが指摘されている。従って、火山性だが、珪長質の関与ではないと判断される。A5（KGS_19_A009）は、C/Cl 法で珪長質マグマ関与と判断されている。統計解析の結果ではクラスタ 3 に分類され、その希土類元素組成は強い Eu 正異常を持ち、A1 と同様に、海水などの影響で元素の干渉をやや受けたパターンを示す（図 3.1-13 右図、水色）。なお、同じ地点で採取された複数の試料も全てクラスタ 3 に分類される。従って、非火山性であり、珪長質判断には不適な試料と考えられる。A6（KYU_19_B002）は、C/Cl 法で苦鉄質マグマ供給と判断されている。統計解析の結果ではクラスタ 2 に分類され、その希土類元素組成は弱い Eu 負異常を示し、沈殿物などの生成は見られない。希土類元素パターンだけからは、珪長質の特徴に見えるが、同一地点の他の試料もクラスタ 2 に分類されるため、非火山性と考えられる。非火山性であるため、珪

長質判断には不適な試料と言える。A7 (KYU_20_A016) は、C/Cl 法で苦鉄質マグマ供給と判断されている。統計解析の結果ではクラスタ 8 に分類され、その希土類元素組成は低濃度で、弱い Eu 正異常を示すとともに Ce 異常が見られ、海水などの影響を若干受けていると思われる (図 3.1-13 右図, 紺色)。従って、火山性であるが珪長質ではないと判断される。A8 (KYU_18_C006) は、C/Cl 法で珪長質マグマ関与と判断されている。統計解析の結果ではクラスタ 5 に分類され、その希土類元素組成は強い Eu 正異常を示し、最も濃度が低く、軽希土より重希土に富む特異な特徴を示す。同地点の他の試料は、クラスタ 5 または 6 に分類される。従って、非火山性であり、珪長質判断には不適な試料と言える。A9 (KYU_14_A005) は、C/Cl 法で珪長質マグマ関与と判断される。統計解析の結果ではクラスタ 8 に分類され、その希土類元素組成は弱い Eu 負異常を示し、沈殿物などの生成は見られない。隣接した地点で採取された試料 (KYU_14_A009) にも、同様に弱い Eu 負異常が見られる (図 3.1-12 の左中図)。従って、火山性であり珪長質の可能性が高いと判断される。しかし、異常の程度が弱く、また、同一地点の試料が少ないため、化学組成の変動の有無を含め、化学組成のベースラインを明らかにするなど、更なる検証が必要と考える。以上をまとめ、表 3.1-3 に示す。珪長質と判断されるもの以外については、苦鉄質と珪長質の中間的または遷移的な組成を示すと考えられ、今後の検討が必要であるため、ここでは一括して「火山性」としている。

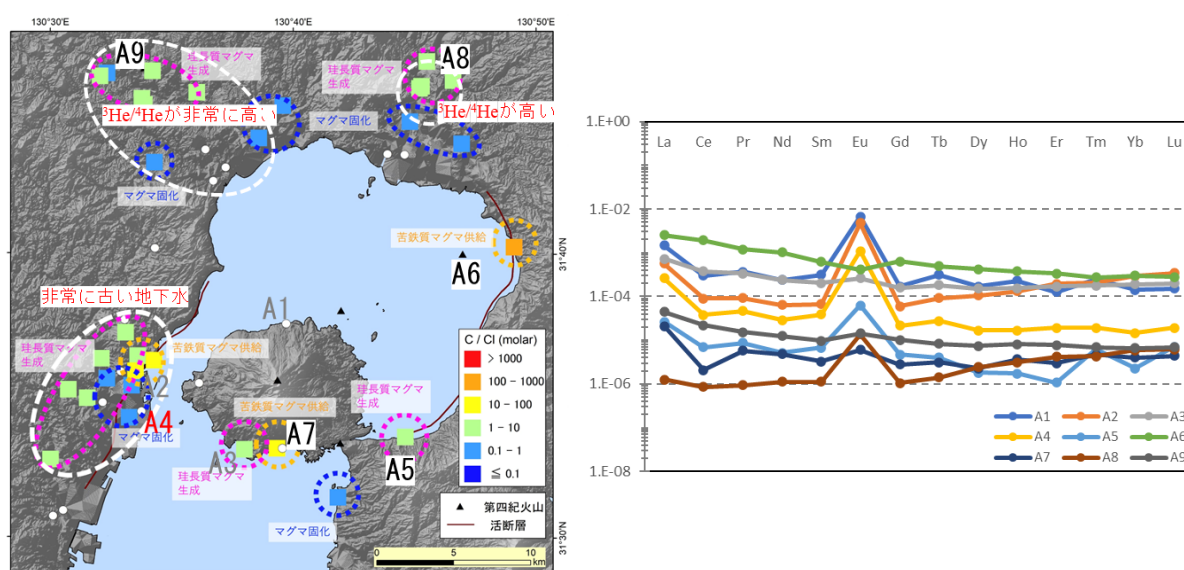


図 3.1-13 C/Cl による地域分けと希土類元素組成の比較

左図は、C/Cl-Cl/H₂O 法による各地点のマグマの状態分布 (産総研, 2022) を示す。色は C/Cl 比の違いを示し、青から赤に向かって比が高くなる。また、珪長質と判断された地域はピンクの点線、苦鉄質と判断された地域は青の点線で、オレンジ黄色も同様に、マグマの状態を図中に付記し示している。なお、A5~A9 の地点では、2023 年度に定期観測が行われている。右図は、左図で用いられた各地点の試料の希土類元素組成を示す。その希土類元素組成を枯渇したマントル組成 (Workman and Hart, 2005) で規格化した。色は自動表示である。

表 3.1-3 C/Cl 法と REE 法の比較

地域	C/Cl法の結果	クラスタ番号	Eu異常	REE法の結果	判定比較
A1	判定なし	8	強い正異常	火山性	判定不可
A2	マグマ固化	7	強い正異常	火山性	一致
A3	珪長質	8	強い負異常	珪長質	一致
A4	マグマ固化	7	強い正異常	火山性	一致
A5	珪長質	3	弱い正異常	非火山性	一致せず
A6	苦鉄質	2	弱い負異常	非火山性	一致せず
A7	苦鉄質	8	弱い正異常	火山性	一致
A8	珪長質	5	強い正異常	非火山性	一致せず
A9	珪長質	8	弱い負異常	珪長質	一致

但し、A1 は中間的あるいは珪長質、A3 は中間的、A5 は滞留時間が長い状態ではない可能性があり、珪長質とも考えられ、A7 は中間的、A8 苦鉄質～珪長質と判断される。

5) 始良カルデラのマグマの種別と同位体比

図 3.1-14 と図 3.1-15 に、ストロンチウム同位体比測定を行った試料の分布と結果を示す。Sr 同位体比の組成幅が広く（図 3.1-15）、西南日本広域に分布する花崗岩類の組成幅（ $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$: 0.7050-0.7130）とほぼ一致している（e.g., Nakamura et al., 2014）。また、1 試料（KYU_14_A004: 40ppm）を除き、Sr 濃度は高くないことから、Sr 濃度の高い物質の混入によるものではなく、個々の流体が生成した場や地質を反映していると考えられる。これは、水の組成が地下の状態を探るのに有効であることを示唆する。地質図（図 3.1-14 の右図）を見ると、東側は前弧域の付加体岩石が露出していて、クラスタ解析の結果でも、水色やピンクの試料番号で示される非火山性の泉源（クラスタ 5, 6）が多い。一方、西側の火山域では、クラスタ解析で火山性と判断されたオレンジや緑の試料番号で示される泉源（クラスタ 7, 8）が分布している。

火山性の統計解析により得られたクラスタ結果と同位体比には一定の相関が見られ、例えばクラスタ 5, 6 は同位体比が高い一方で、クラスタ 4, 7, 8 は相対的に低い方に偏っている（図 3.1-15 挿図）。火山性でかつ珪長質の可能性のある試料のうち、KYU_18_C012 については同位体比が高く、整合的な結果である。一方で、火山性であるが、Eu 負異常の程度が弱かった試料（KYU_14_A009）の同位体比は低い。珪長質が関与していれば同位体比は高くなると考えられ、反応程度が弱い、または獲得しつつある段階と解釈でき、更なる検討が必要と思われる。

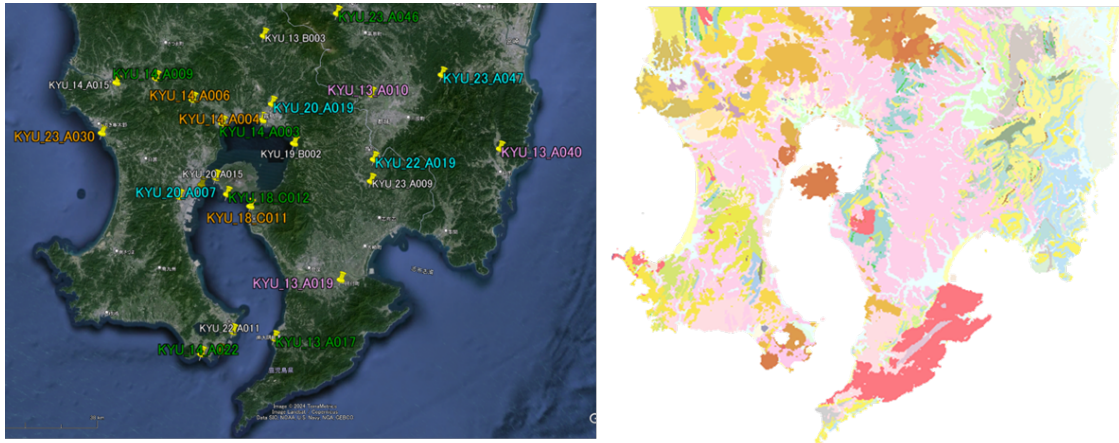


図 3.1-14 ストロンチウム同位体比分析試料の分布と地質

広域を網羅するように選定した試料の分布（左）と地質図（右）を示す。左図中の黄色ピンは試料採取地点を示し、付記したサンプル番号は、統計解析の結果得られたクラスタの結果を色別に示す。火山性と推定されるクラスタ 4, 7, 8（紺、橙、緑）及び特徴的なクラスタ 5, 6（水色、ピンク）については、クラスタ解析と同じ色（図 3.1-7）で分けて示す。右図は、産総研地質調査総合センター（2022）20 万分の 1 日本シームレス地質図 v2 を使用した。広域に見られるピンクは、更新新後期デイサイト流紋岩大規模火砕流、大隅半島南部の赤は、中新世花崗閃緑岩トータル岩、桜島・霧島・開聞岳などに見られる茶系は、完新世安山岩・玄武岩質安山岩溶岩・火砕岩を示す。その他の色は、<https://gbank.gsj.jp/seamless/>を参照されたい。

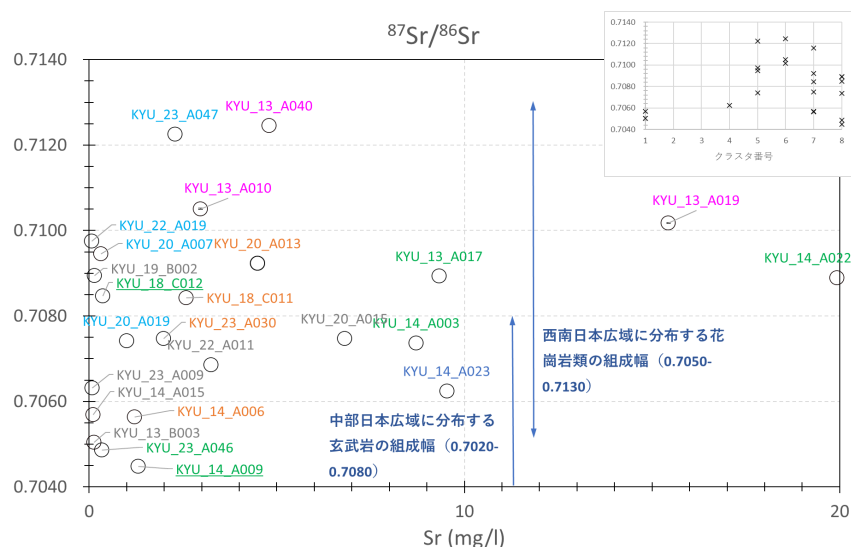


図 3.1-15 ストロンチウム同位体比と分析試料の分布

ストロンチウム同位体比（縦軸）と濃度（横軸）のプロットを示す。挿図は、クラスタ番号と同位体比の関係を示す。付記したサンプル番号はクラスタの結果を色別に示す。火山性と推定されるクラスタ 4, 7, 8（紺、橙、緑）及び特徴的なクラスタ 5, 6（水色、ピンク）については、クラスタ解析と同じ色（図 3.1-7）で分けて示す。その他のクラスタは、ここでは色分けせず灰色で示す。火山性かつ珪長質と判断された 2 試料には、下線を付けている。分析誤差はいずれもシンボルの中に収まる。

6) まとめ

令和元年度より、熱水中の希土類元素の特性の検討、及び解析のために必要となるカルデラ火山周辺の岩石・海水などの既存データの収集を開始した。阿蘇カルデラについては、阿蘇カルデラを含む九州中部のおよそ 120 km（東西）×80 km（南北）の領域に分布する地下水 590 試料の溶存元素組成データ（高橋ほか，2018）及び未公表データを統計解析することで、組成的特徴とその空間分布の成因あるいは生成機構を推定し、火山性流体を起源とする試料を抽出することに成功した（Iwamori et al., 2023）。カルデラの狭い領域で多様な希土類元素組成パターンが検出されたが、高次元データ統計解析から火山性と判断された地下水の希土類元素組成パターンを検討した結果、もっとも火山性流体に近いと考えられるパターンをもつ流体を抽出することができた（産総研，2021；2022）。火山性流体に Eu 負異常がないことは、起源とするマグマが珪長質でないことを示している。このことは、火山性流体の示す低いストロンチウム同位体比からも支持される。

令和三年度からは、始良カルデラについても希土類元素データの取得を開始した。当初、阿蘇カルデラのデータ量に比べ、5 倍の面積でありながら、試料数は約 3 分の 1 と極めて少ない点が問題になったが、令和四年度の追加調査などにより、広域を網羅する方向で試料数を増やすことで、火山性抽出の確実性を高める工夫を行った。その結果、始良カルデラを含む九州南部（島嶼部を含む）のおよそ 160 km（東西）×300 km（南北）の領域で 438 試料の溶存元素組成データを用いることができた。解析に際しては、高次元データ統計解析を用いて試料群を形成する成分を見い出すことにより、火山性と考えられる群を抽出し、マグマの種別判定に相応しい試料を選定した。選定された試料の希土類元素組成を、主溶存元素や $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比と合わせて検討することで、海水の影響に関わらず、マグマの種別判定が可能になる。同時に、ストロンチウム同位体比もあわせて、深部マグマだまりに存在するマグマの種別判定への適用性を試みた。

これら数年に渡る試行錯誤により、九州中南部域の流体を対象とした統計解析の為のシステムを構築することに成功した。九州中南部域のデータを集約し、整形・選択するためのスクリプトプログラム群を作成し、データベースを作成した。これを Iwamori et al. (2017) で k 旺回されている統計解析プログラム群で試行させるとともに、統計解析結果の可視化プログラム群を作成した。同時に、これらを実行するために必要な各種基盤環境・コンパイラ・インタープリタ (Cygwin, FORTRAN, AWK, SED, SH など)、作図基盤プログラム (PGPLOT, GNUPLOT など) からなるシステムを構築した。

十和田カルデラについては、本手法の適用を試みるために分析を進めた。十和田カルデラは、カルデラ構造を反映した天水循環系が発達している故の湧水の多さという点において、始良カルデラよりも阿蘇カルデラにより似ていると言える。始良カルデラは、カルデラが複数あると考えられていることもあってか、カルデラ構造が明瞭でなく、天水循環系はより局所的に形成されていると思われる。天水循環系と火山性流体が独立しておらず、より混合する機会が多くなっていると考えられる。これに対し、十和田カルデラは、天水循環系が形成されていると考えられるが（図 3.1-5）、同時に Eu 負異常が幾つか見られ、火山性かどうか検討する必要がある。

三つのカルデラを対象として対比させてきた結果、カルデラを含むより広域で火山性を把握すること、加えて、温泉水・湧水・河川など満遍なく採取することで、より火山性の分布と特徴を

して広がりをもたらし、ということが分かった。その上で、火山性流体がどのような種類のマグマと接触し地球化学的特徴を獲得したのか、という点について、希土類元素がその答えを持っている可能性があることが分かった。現段階では希土類元素組成の全ての特徴を生かすことはできなかったが、世界的に分布する珪長質岩石が示す Eu 異常に着目して珪長質マグマを判断した。これらの手順、すなわち、C/Cl 法による広域マッピングを行い、地表で得られる流体の主溶存元素組成から火山性を検出し、希土類元素組成から珪長質かどうかを判断する、という手法に確かな成果があったと考えている。今後、C/Cl 法を用いて得られたマグマ種別との整合性を詳細に検討して行くことにより、本手法の確度の向上が期待できる。C/Cl 法を用いた手法は、Cl が低濃度の場合、あるいは、高濃度成分である海水の混入・特に変質海水が混入した場合、解析が困難であることが分かっている (3.2 章参照)。これに対し、希土類元素を用いた本手法は、海水が極端な希土類元素濃度を持たず、また Eu の異常もない為、海水が混入している地下水についても Eu 異常を用いたマグマ種別判定が有効であるが、一方で、特に低濃度試料では、水-岩石反応などによりマグマから得られた時点での流体の組成を反映していない場合がある。温泉水の地球化学調査からマグマの種別を推定する手法では、適用可能な試料を選定することが最重要と考える。

引用文献

井村隆介・小林哲夫 (2001) 霧島火山地質図, 地質調査所.

Gao, S and Wedepohl, K.H. (1995) The negative Eu anomaly in Archean sedimentary rocks: implications for decomposition, age and importance of their granitic sources. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 133, 81-94.

Iwamori, H., Yoshida, K., Nakamura, H., Kuwatani, T., Hamada, M., Haraguchi, S. and Ueki, K. (2017) Classification of geochemical data based on multivariate statistical analyses: Complementary roles of cluster, principal component, and independent component analyses. *Geochem. Geophys. Geosys.* 18, 994–1012, doi:10.1002/2016GC006663

Iwamori, H., Nakamura, H., Chang, Q., Morikawa, N., Haraguchi, S. (2020) Multivariate statistical analyses of rare earth element compositions of spring waters from the Arima and Kii areas, Southwest Japan. *Geochem. J.*, 54, 165-182, <https://doi.org/10.2343/geochemj.2.0583>

Iwamori, H., Nakamura, H., Morikawa, N., Takahashi, M., Inamura, A., Haraguchi, S., Nishizawa, T. and Sakata, S. (2023) Groundwaters and deep-seated fluid circulation around Aso Volcano, Southwest Japan, revealed by multivariate statistical analysis of the geochemical data. *J. Volcanol. Geotherm. Res.*, 433, doi: 10.1016/j.jvolgeores.2022.107739

加藤 進, 早稲田 周, 岩野裕継 (2011) : 宮崎県の水溶性天然ガス田における地球化学. 石油技術協会誌, 76, 244-253.

川辺禎久・阪口圭一 (2005) 詳細火山データ集 : 開聞岳. 日本の火山, 産総研地質調査総合センター, https://gbank.gsj.jp/volcano/Act_Vol/kaimondake/index.html

- 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, 北岡豪一, 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, 1-14.
- Kusuda C, Iwamori H, Nakamura H, Kazahaya K, Morikawa N (2014) Arima hot spring waters as a deep-seated brine from subducting slab. *Earth Planets Space* 66(1):119. doi: 10.1186/1880-5981-66-119.
- 文部科学省 (2019) 災害の軽減に貢献するための地震火山観測研究計画 (第 2 次) の推進について (建議) https://www.mext.go.jp/b_menu/shingi/gijyutu/gijyutu6/toushin/1413118.htm
- Nakamura H, Fujita Y, Nakai S, Yokoyama T, Iwamori H (2014) Rare Earth Elements and Sr-Nd-Pb Isotopic Analyses of the Arima Hot Spring Waters, Southwest Japan: Implications for Origin of the Arima-type Brine. *J Geol Geosci*, 3, 161. doi: 10.4172/2329-6755.1000161
- Nakamura, H., Chiba, K., Chang, Q., Nakai, S., Kazahaya, K., Iwamori, H. (2015) Rare Earth Elements of the Arima Spring Waters, Southwest Japan: Implications for Fluid-Crust Interaction during Ascent of Deep Brine. *J. Geol. Geophys.*, 4, 217. doi:10.4172/jgg.1000217
- Nakamura, H., Chiba, K., Chang, Q., Morikawa, N., Kazahaya, K. and Iwamori, H. (2016) Origin of the Arima-type and associated spring waters in the Kinki District, Southwest Japan. *J. Geol. Geophys.*, 1000240. doi:10.4172/2381-8719.1000240.
- 産業技術総合研究所 (2018) 霧島山新燃岳の噴火情報,
<https://www.gsj.jp/hazards/volcano/kirishima/index.html>
- 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 (巨大噴火プロセス等の知見整備に係る研究) 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 (巨大噴火プロセス等の知見整備に係る研究) 事業 令和 2 年度事業報告書
- 産業技術総合研究所 (2022) 令和 3 年度原子力施設等防災対策等委託費 (巨大噴火プロセス等の知見整備に係る研究) 事業 令和 3 年度事業報告書
- 産業技術総合研究所 (2023) 令和 4 年度原子力施設等防災対策等委託費 (巨大噴火プロセス等の知見整備に係る研究) 事業 令和 4 年度事業報告書
- 産総研地質調査総合センター (2022) 20 万分の 1 日本シームレス地質図 V2.
<https://gbank.gsj.jp/seamless>
- 篠原宏志・斎藤元治・松島喜雄・川辺禎久・風早康平・浦井 稔・西 祐司・斎藤英二・濱崎聡志・東宮昭彦・森川徳敏・駒澤正夫・安原正也・宮城磯治 (2008) 火山研究解説集: 薩摩硫黄島. 産総研地質調査総合センター,
https://gbank.gsj.jp/volcano/Act_Vol/satsumaoujima/vr/index.html
- 高橋栄一 (2014) 平成 26 年度科学研究費助成金「新学術領域研究 (研究領域提案型)」に係る事後評価報告書, 「地殻流体: その実態と沈み込み変動への役割」
https://kaken.nii.ac.jp/ja/file/KAKENHI-AREA-2108/2108_jigo_hyoka_hokoku_ja.pdf
- 高橋正明ほか (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.

Workman, R.K. and Hart, S.R. (2005) Major and trace element composition of the depleted MORB mantle (DMM). *Earth Planet. Sci. Lett.* 231, 53-72.

Yang, X.-M. (2019) Using Rare Earth Elements (REE) to Decipher the Origin of Ore Fluids Associated with Granite Intrusions. *Minerals*, 9, 426, doi:10.3390/min9070426

矢野雄策・田中明子・高橋正明・大久保泰邦・笹田政克・梅田浩司・中司 昇（1999）300 万分の 1 日本列島地温勾配図，地質調査所

3.2 マグマ起源成分 (C/Cl) 等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】

マグマ進化の各段階において放出されるマグマ起源流体中の C/Cl 比及び Cl/H₂O 比の理論計算値と、地下水中に含まれるマグマ起源成分の C/Cl 及び Cl/H₂O 比を比較することによって、火山周辺の各地点における深部マグマの状態・種別を推定する手法の改良を行い、陸上カルデラ（阿蘇）、海底カルデラ（始良）、湖底カルデラ（十和田）に対しての有効性・適用性評価を行った。加えて、始良カルデラ周辺観測地点の温泉水試料の定期観測調査を引き続き行い、微小な組成の変動に基づいたマグマ起源成分の特徴を明らかにする手法の適用性評価結果をとりまとめた。その結果、マグマ溜まりの状態推定を目的とした C/Cl-Cl/H₂O 法は、変質海水が存在しない場合において、海底カルデラを含めて有効であることが確認できた。

【調査・研究成果】

(1) C/Cl-Cl/H₂O 法の改良

昨年度までに提案し改良を行ってきた C/Cl 法及び Cl/H₂O 法の両方を用いた手法(C/Cl-Cl/H₂O 法)により、マグマ溜まりから放出される熱水流体の脱ガスモード(マグマタイプや深さにより放出される熱水流体の化学組成が決定される)の違いによる熱水流体の組成が大きく異なることを示した。また、火山近傍の地下水中に含まれるマグマ起源 DIC(溶存無機炭素)、マグマ起源 Cl およびマグマ水について分析を行い、脱ガスモードと照らし合わせることで、マグマ溜まりのマグマタイプや活動状態を推定することが可能であることを示した。産総研(2023)においては、近年の研究成果によりマグマ溜まりが 15 km 以深の深部に存在する場合があることを考慮し、150–400 MPa までの圧力範囲で評価した。また、苦鉄質マグマから珪長質マグマが生成する際の結晶分化および地殻同化作用について、新たに $r = \text{メルト生成量} / \text{結晶量(重量比)}$ (Tegner et al., 2005)を導入し、 r 値が C/Cl 比等に与える影響が非常に小さいことを示した。本年度は、これらの手法を発展させ、さらに、活発な脱ガス活動を行っている火山(阿蘇、桜島等)について、火道系上部で生成する脱ガスマグマが火道内対流によりマグマ溜まりに下降して上昇マグマと混合する場合について脱ガスモードがどのような特徴を示すのかについて検討を行った。活発な脱ガス活動を行う火山に適用可能な C/Cl-Cl/H₂O 法を示すとともに、阿蘇、始良カルデラ等に適用した結果を取りまとめる。また、地下水の調査・分析により、マグマ起源の DIC、Cl および水の濃度を求める手法と留意点についてもまとめる。

1-1) C/Cl-Cl/H₂O 法の改良モデル

マグマ溜まりから放出される熱水の組成を求めるために用いるマグマ溜まりの進化モデルは、2023 年度に 150–400 MPa(深さ 6–15 km)の範囲に拡張した。また、他の変更点としては、珪長質マグマを生成する際の結晶分化・地殻同化(AFC)作用の程度を表す r 値($r = \text{珪長質メルト生成量} / \text{結晶量(重量比)}$)について、Tegner et al. (2005)による地殻同化作用の r 値の範囲(0.12–0.27)と BubbleMag (Tattitch et al., 2021)により求められる SiO₂ が 50–52wt%の苦鉄質マグマから 76–77wt%の珪長質マグマが生成されるときに r 値の範囲(0.15–0.25)を考慮し、 $r = 0.12$ と $r = 0.25$ の 2 つの場合について検討した。地殻同化作用において地殻がガス種を含まないと仮定すると結

晶分化と地殻同化の区別は必要ない．苦鉄質マグマから珪長質マグマが生成する場合は全てのガス種は引き継がれるとし，苦鉄質のメルトから生成した珪長質のメルト量は r 値で決まるとした． r 値の違いにより，マグマ溜まりから放出される熱水流体の化学組成はほとんど変化しないことが示され，放出される熱水流体の量が異なることが示された．本年度は， r 値を 0.25 とした結果について示す．

① メルト- H_2O - CO_2 システム

マグマ溜まりの進化モデルに沿って，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_2O 比の関係を計算する手法は，産総研(2023)に示した．今回の変更点はメルト-熱水間の Cl の分配係数(D^{f-m}_{Cl})についてであり，Hsu et al. (2019)による CO_2 の存在を考慮に入れた珪長質マグマと熱水間の D^{f-m}_{Cl} を用いている．以下に概略をまとめる．

玄武岩質メルト- H_2O - CO_2 系のガス種の気液二相間の分配については，Dixon et al. (1995)が Silver and Stolper (1989)の溶解度モデルを使用し確立した．Newman and Lowenstern (2002)は，Dixon et al. (1995)に基づいて，玄武岩質および流紋岩質メルトの H_2O ， CO_2 濃度から平衡に存在する気相の H_2O ， CO_2 の分率を求めるための「VolatileCalc」と呼ばれる解析コードを示した．本研究で使用された計算は Newman and Lowenstern (2002)による手法と基本的に同じ理論を用いているが，まず，マグマ中の揮発性物質の初期含有量を設定し，マグマ溜まりの圧力下で平衡になった液(メルト)相の H_2O ， CO_2 の溶解量と気相中の H_2O ， CO_2 の分率を求めている．メルト中の H_2O ， CO_2 は，初期バルク含有量とメルト中に残存する H_2O ， CO_2 量の差として表されるため，メルトと共存する気相の CO_2/H_2O モル比は，以下の式で示される．

$$CO_2/H_2O = W_w (C_c^0 - C_c(P,T)) / W_c (C_w^0 - C_w(P,T)) = X_c^f / X_w^f \quad (3.2-1)$$

ここで， C_i^0 は成分*i*の初期含有量(*i*: H_2O ， CO_2)で単位はg/100gメルトである． $C_i(P,T)$ は，あるP,T状態における成分*i*のメルト中の濃度である． W_i は成分*i*の分子量， X_i^f は気相中の成分*i*のモル分率である．

メルトに溶解した H_2O は分子状 H_2O とOHで構成され，これらは温度と圧力に依存し分配される (Silver and Stolper, 1989)． H_2O と CO_2 は，メルト-流体間でヘンリーの法則に従うため(Dixon et al., 1995)，メルトに溶解している H_2O と CO_2 の濃度は次式で示される．

$$C_w(P,T) = C_{w_{mol}^{pure}}(P,T) \cdot X_w^f + C_{w_{OH}}(P,T) \quad (3.2-2)$$

$$C_c(P,T) = C_{c^{pure}}(P,T) \cdot X_c^f \quad (3.2-3)$$

$$X_w^f + X_c^f = 1 \quad (3.2-4)$$

ここで， $C_{w_{mol}^{pure}}$ はある P,Tにおける分子状 H_2O の溶解度(メルト- H_2O システム); $C_{c^{pure}}$ は CO_2 の溶解度 *i* (メルト- CO_2 システム); $C_{w_{OH}}$ は OH としてメルトに含まれる H_2O の溶解度である ($C_{w_{OH}} = 2 \times OH$ 濃度)．出発物質として苦鉄質メルト(1200°C)の初期バルク濃度を $H_2O = 4-6$ wt%， $CO_2 = 0.3-0.7$ wt%，圧力 150–400 MPa として計算を行った．

H₂O および Cl の初期濃度は、本邦の活火山のマグマ噴出物（九重，霧島，阿蘇，薩摩硫黄島，伊豆大島，三宅島，摩周，屈斜路）に含まれるメルトインクルージョンの分析値および分析により推定された初期含有量の範囲(Hamada et al., 2007; Kawaguchi et al., 2022; Miyagi et al., 2012; Saito et al., 2001, 2005, 2018, 2023)から設定した。また，CO₂ の初期濃度は苦鉄質マグマ中に 0.3wt%以上含まれる (Wallace, 2005)と考えられることから 0.3–0.7wt%と設定している。珪長質メルトの温度は 800°Cに設定した。なお，「VolatileCalc」Newman and Lowenstern (2002)により求められる熱水の CO₂/H₂O 比は，Lesne et al. (2011)の比較結果によると，ストロンボリ火山の玄武岩質マグマの場合 CO₂/H₂O > 0.3 のときに最大で 5 倍ほど過大評価する。ただし，マサヤ火山の玄武岩マグマの実験結果とはよく一致する(Lesne et al., 2011)。

② メルト-H₂O-CO₂-Cl システム

メルト・H₂O-CO₂ システムの計算結果を使用して，Cl の気液二相間の分配を単純に追加した。この仮定は，メルトと熱水流体の両方の Cl 濃度がメルト・H₂O-CO₂ 系の結果に影響しない場合，すなわち十分に Cl が低濃度である場合に成立する。実際に計算した結果は Cl のモル分率は 0.04 以下であり，本手法による H₂O-CO₂-Cl の分配の計算結果(後述)は妥当であると考えられる。流体とメルト間の Cl 分配は分配係数(D_{Cl})で表され，メルトと熱水流体の両方の Cl 濃度(wt%)は，モデルで設定した初期含有量の Cl が D_{Cl} により分配されるとして計算することができる。

$$D_{Cl} = C_{Cl\text{-fluid}}/C_{Cl\text{-melt}} \text{ (wt\% basis)} \quad (3.2-5)$$

苦鉄質メルト系については，たとえば，エトナ火山の玄武岩マグマの場合でD^{f-m}_{Cl} (wt%)値が約 10とする実験結果(Alletti et al.,2009)と約1とする結果(Stelling et al., 2008; Beermann et al., 2015)が混在する。Beermann et al. (2015)は，Alletti et al. (2009)の結果は反応時間が少なすぎて平衡に達していない可能性を指摘している。ここでは，苦鉄質メルトに用いるD^{f-m}_{Cl} (wt%)値を 1.5とし，圧力に依存しないものとする(Beermann et al., 2015)。

苦鉄質メルトの初期Cl含有量は0.05–0.15wt%に設定した。珪長質メルトシステムのD_{Cl}(wt% basis)は，圧力 (P; MPa)，温度 (T; K)，流体中のCl濃度 (C_{Clf}; wt%)，および流体中のCO₂のモル分率(X_{CO2})の関数として下記の式で与えられ (Hsu et al., 2019)，前節において計算したメルト・H₂O-CO₂システムの熱水流体のX_{CO2}の結果を用いて，初期含有量に応じたメルト及び熱水流体のCl濃度をそれぞれ計算することができる。

$$\begin{aligned} \ln[D_{Cl}] = & 1.419(\pm 0.048) \cdot \ln[P] + 0.912(\pm 0.031) \cdot \ln[C_{Clf} + 1.434(\pm 0.031)] \\ & + 4547(\pm 443)/T - 4.026(\pm 0.155) \cdot X_{CO2} - 9.790(\pm 0.440) \end{aligned} \quad (3.2-6)$$

③ 脱ガス活動のない火山における脱ガスモード

モデル

脱ガス活動のない火山についてのマグマ溜まりの成長モデルを図 3.2-1 に示す。珪長質マグマの生成には，まず，マントル・地殻下部からの苦鉄質マグマの供給が必要で，その苦鉄質マグマが結晶分化することと苦鉄質マグマにより地殻の岩石を溶融・同化することのどちらかあるいは

両方の過程が必要である。地殻の同化作用と結晶分化作用を合わせて AFC 作用と呼ぶ。供給される苦鉄質マグマは、設定した初期ガス濃度の範囲ではマグマ溜まりの圧力条件(150–400 MPa)で気泡を生じる。この気泡放出を脱ガスモード MB (mafic bubble)とする。ここでは、気泡が苦鉄質マグマから分離されずに AFC により珪長質マグマを生成する場合(closed system)と気泡が分離された後に珪長質マグマが生成する場合(open system)の 2 つのケースを考え、比較のためこの二つの両極端なモデルを用いて計算を行う。実際のマグマプロセスはこの両モデルの間にあるものと考えられる。AFC により生成された珪長質マグマは AFC の程度を表す r 値(0.25)の場合は、多くの結晶を生成し、苦鉄質マグマの持っていたガス種を濃縮しその濃度を 5 倍にする。そのため珪長質マグマは多くの気泡を生成し系外に放出する。この気泡放出を脱ガスモード FB (felsic bubble)とする。珪長質マグマの固化に伴い、メルトに溶解していたガス種が放出される。この熱水放出を脱ガスモード FS (felsic solidification)とする。これらの脱ガスモードに伴う熱水流体の組成(H_2O , CO_2 , Cl)は、前節に示した手法で計算することができるが、その際、AFC 作用で溶融する地殻岩石や脱ガスモード FS で結晶化したマグマのガス濃度は無視できるほど低いと仮定した。

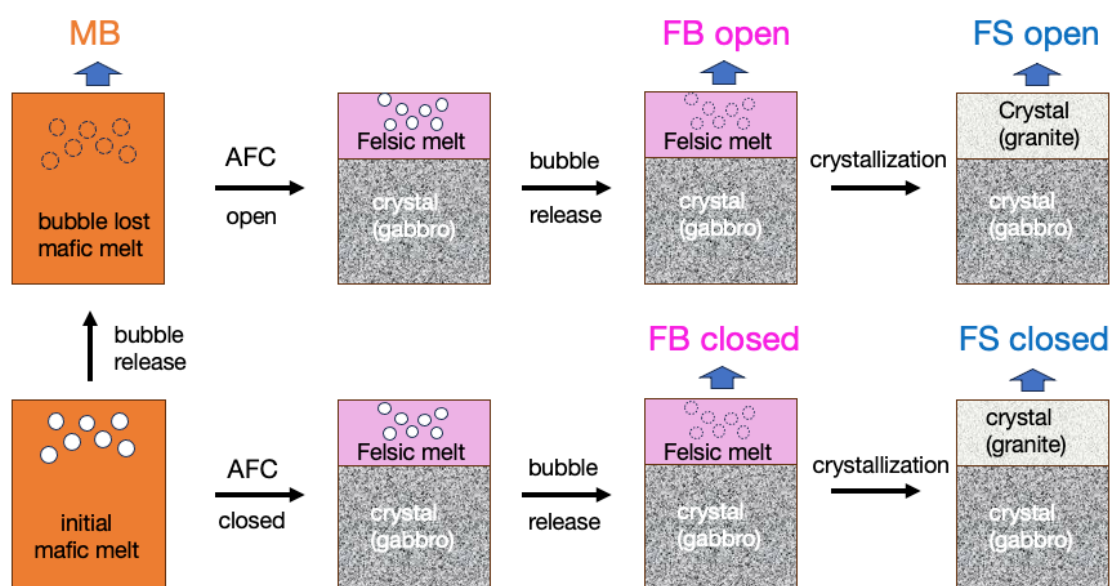


図 3.2-1 脱ガス活動のない火山のマグマ溜まりの成長モデル

マグマ溜まりから放出されるガス組成($CO_2/Cl-Cl/H_2O$)

上述した理論およびモデルを用い、脱ガス活動のない火山のマグマ溜まりから放出される熱水流体の各脱ガスモードにおける C/Cl 及び Cl/H_2O を計算した結果を図 3.2-2 に示す。マグマ溜まりの圧力範囲 150–400 MPa では、苦鉄質マグマの発泡により生成する熱水流体を示す脱ガスモード MB (以下, MB)は、 CO_2/Cl 比が 40 以上になること、珪長質マグマの生成時に放出される熱水流体を示す脱ガスモード FB (以下, FB)は、 CO_2/Cl 比が 0.01–20 の範囲にあること、また、珪長質マグマ固化時に放出される熱水流体の脱ガスモード FS (以下, FS)は、 CO_2/Cl 比が 0.0003–

0.7 の範囲にあることがわかる。これは、マグマ溜まりの状態に応じて、分離・放出される熱水流体の CO_2/Cl 比が最大 6 桁の範囲を持つことを示している。しかし、open と closed の区別ができない場合は、 CO_2/Cl 比において FB と FS の範囲が重なっており区分がむずかしい。Kazahaya et al. (in review) は、火山ガス活動をおこなっていない火山では closed system になり、活発な火山ガス活動を行う火山では、open system のケースに近くなると考えている。したがって、昨年度までに検討してきた九重火山、十和田火山のような closed system の火山では、 CO_2/Cl 比=1 で FB と FS が区分でき、阿蘇火山や桜島火山のような open system の火山では、マグマ溜まりの圧力により変化するが CO_2/Cl 比が 0.3–0.01 で区分できると考えられる。Open system の場合、マグマ溜まりの存在深度が地球物理学的あるいは岩石学的に決定できている場合は、脱ガスモードによる熱水流体の CO_2/Cl の範囲を限定・分離することができる。また、マグマ溜まりが深い(高圧)場合は、FB(closed)を除いて、各脱ガスモードの CO_2/Cl 比が高いこと、および $\text{Cl}/\text{H}_2\text{O}$ 比が低いことがわかる。なお、火山ガス放出火山については、火道内マグマ対流により脱ガスした苦鉄質マグマから珪長質マグマが生成する場合についてより詳細な検討を次節で行う。

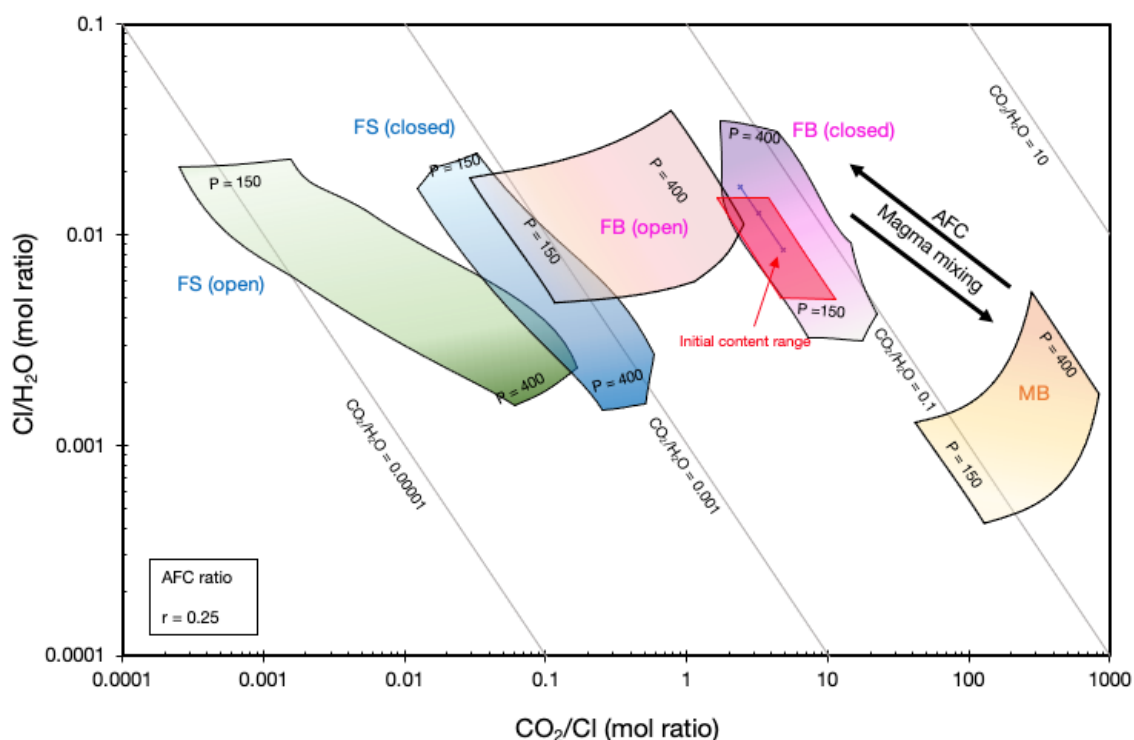


図 3.2-2 活発な脱ガス活動のない火山のマグマ溜まりの進化に伴い放出される熱水流体の C/Cl 及び $\text{Cl}/\text{H}_2\text{O}$ の関係

図 3.2-1 の進化モデルに基づいて MB, FB, FS の各熱水流体の C/Cl 及び $\text{Cl}/\text{H}_2\text{O}$ 比を計算した。基準の苦鉄質供給マグマは、 $\text{H}_2\text{O}=4\text{--}6\text{ wt\%}$, $\text{CO}_2=0.3\text{--}0.7\text{ wt\%}$, $\text{Cl}=0.05\text{--}0.15\text{ wt\%}$ とした。マグマの H_2O 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。

④ 活発な脱ガス活動を行う火山の脱ガスモード

モデル

活発な脱ガスを行う火山についてのマグマ溜まりの成長モデルを図 3.2-3 に示す。本モデルは、火道内マグマ対流によりマグマ溜まりのマグマが脱ガスし、その脱ガスした苦鉄質マグマから AFC 過程により珪長質マグマを生成する。火道上部のマグマはその圧力に応じてガス成分を分離し、火山ガスとして放出する。脱ガスしたマグマは密度が高くなるため、火道下部もしくはマグマ溜まりのマグマと入れ替わるように下降するため、火道内で対流が起きる(Kazahaya et al., 1994)。したがって、珪長質マグマ生成の元になるマグマは、下降した脱ガスマグマが主体になると考えられる。下降するマグマは上昇するマグマと混合する(Witham, 2011)ため、様々なガス組成を持つ苦鉄質マグマが珪長質マグマ生成の元になると考えられる。ここでは、この元になる苦鉄質マグマが上昇および下降マグマの混合により生成し、その混合を上昇マグマの混合比率($f=0.0-1.0$)とする。この後に続く AFC 過程は、図 3.2-1 に示したモデルと同じである。

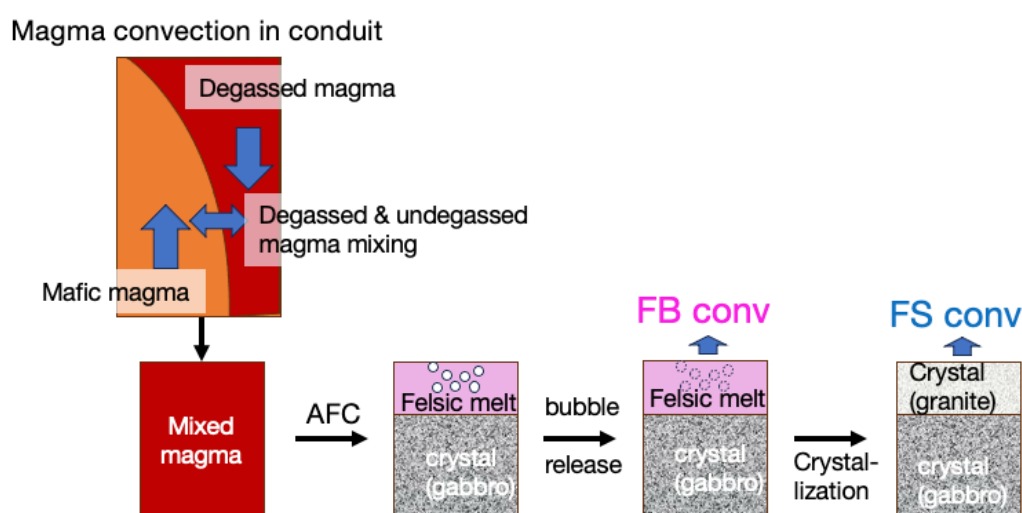


図 3.2-3 活発な脱ガスを行う火山のマグマ溜まりの成長モデル

マグマ溜まりから放出されるガスの組成($\text{CO}_2/\text{Cl-Cl}/\text{H}_2\text{O}$)

活発な脱ガスを行う火山のマグマ溜まりから放出される各脱ガスモードにおける熱水流体の C/Cl 及び $\text{Cl}/\text{H}_2\text{O}$ を計算した結果を図 3.2-4 に示す。ここでは、阿蘇火山を想定し、苦鉄質マグマの初期含有量をそれぞれ $\text{H}_2\text{O} = 5 \text{ wt\%}$, $\text{CO}_2 = 0.7 \text{ wt\%}$, $\text{Cl} = 0.07 \text{ wt\%}$ とした結果を示す。この初期値は Kawaguchi et al. (2022) を参考にして決定した。珪長質マグマは、火道上部で脱ガスした下降する苦鉄質マグマとマグマ溜まりから上昇する苦鉄質マグマが混合してできたマグマを元に生成される(図 3.2-3)。ここでは、火道上部の圧力環境を 10 MPa および 20 MPa の 2 つの場合について計算を行った。なお、低圧での脱ガスに伴うマグマ中の Cl 濃度は Alletti (2009) による低圧環境での熱水-玄武岩質メルト間の分配係数の圧力依存性を用いた。混合比は、上昇マグマの混合率 $f (= 0.0-1.0)$ で与えており、 $f = 1.0$ の場合は前節で示した open system の場合に一致する。火道上部で脱ガスしたマグマの混合比が増える(f が減少)と、熱水 FB および FS の $\text{Cl}/\text{H}_2\text{O}$

比が上昇する傾向があり、 CO_2/Cl 比には大きく影響しないことがわかる(図 3.2-4). 一方、 $f=0.0$ の場合は、火道上部で脱ガスしたマグマがそのまま混合しないで珪長質マグマを生成する場合であるが、150–400 MPa のすべての圧力範囲で生成される珪長質マグマは気泡を生じない. つまり、マグマ溜まりは深部で熱水放出を伴わずに珪長質マグマを生成し成長することになる. 噴出した珪長質マグマは、メルトインクルージョンの研究によると飽和していた場合と未飽和の場合があるようである. 未飽和な場合は原理的に本手法によりマグマ溜まりの状態を把握することができない. 図 3.2-4 より、 $f > 0.2$ になると珪長質マグマが過飽和となり気泡が存在する. 苦鉄質マグマの発泡により生成する熱水 MB の組成は、前節と同じ方法で求めることができる. 珪長質マグマの生成時に放出される熱水流体 FB は、 CO_2/Cl 比が 0.03–2 の範囲にあること、また、珪長質マグマ固化時に放出される熱水流体 FS は、 CO_2/Cl 比が 0.0004–0.3 の範囲にあることがわかる. マグマ溜まりの深度が推定できる場合は CO_2/Cl 比で脱ガスモードを区分できる. たとえば、マグマ溜まりが 300–400 MPa の圧力(深度 12–16 km)にある場合は、 CO_2/Cl 比が 0.3 より高い場合は FB, あるいは低い場合は FS として判定できると考えられる(図 3.2-4).

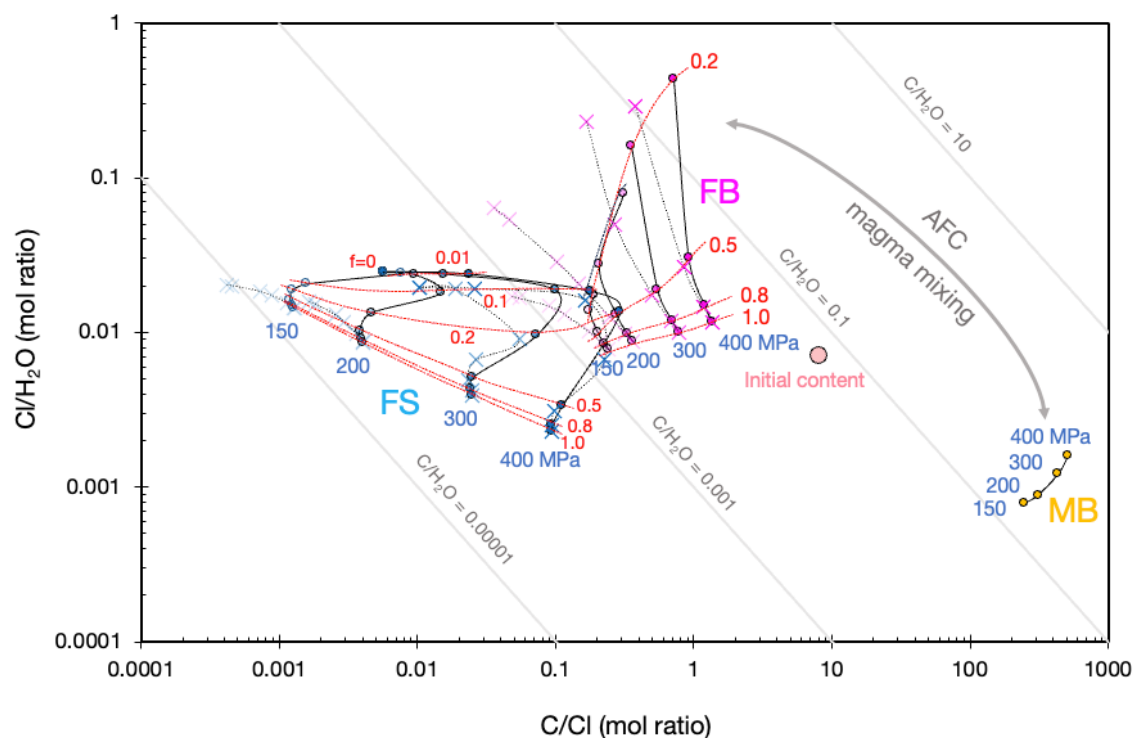


図 3.2-4 活発に脱ガスする火山における各脱ガスモードのマグマ溜まりから放出される熱水流体の CO_2/Cl 及び $\text{Cl}/\text{H}_2\text{O}$ の関係

図 3.2-3 の火道上部で脱ガスした苦鉄質マグマが下降し珪長質マグマを生成するモデルに基づいて脱ガスモード MB, FB, FS の各熱水流体の C/Cl 及び $\text{Cl}/\text{H}_2\text{O}$ 比を計算した. 図中の FB, FS の○で示した点は 10MPa で脱ガスした場合で、×で示した点は 20MPa で脱ガスした場合を示す. 基準の苦鉄質供給マグマは、 $\text{H}_2\text{O}=5 \text{ wt\%}$, $\text{CO}_2=0.7 \text{ wt\%}$, $\text{Cl}=0.07 \text{ wt\%}$ とした. 上昇マグマの混入比率 f を等値線で示した. マグマ溜まりの圧力は 150–400MPa とした.

(2) 地下水調査・解析手法

2-1) 地下水調査の留意点

カルデラ下に存在するマグマ溜まりの状態の推定を地下水の分析により行うためには、地下水調査をカルデラ内あるいは少なくともその周辺で行うことが望ましい。また、地下水には浅層を速く流動するものと深層で長期間とどまっている地下水がある。地下水に溶解するマグマ起源の熱水に含まれるガス種(特に DIC, Cl および H_2O)は、いつ、どこから、どのように来たのかについて把握し、現在のマグマ溜まりから確かに放出されたのかどうかについて保証されなければならない。マグマ溜まりの脱ガスモードと地下水の分析結果を利用して、マグマ溜まりの状態を推定する手法(以下、C/Cl-Cl/ H_2O 法)を用いるため、地下水に含まれる C/Cl と Cl/ H_2O 比を精度よく推定することが重要となる。以下に、地下水の調査、分析および解析についての留意点および手法を示す。

2-2) 地下水の起源と滞留時間

地下水に溶解するマグマ溜まりから放出された成分の組成を求めるには、まずその場所に存在する地下水を理解する必要がある。活火山では、強酸性の温泉が存在する 경우가多いが、強酸性の原因は火山ガスが地下水に吹き込み温泉化したためである。このような火山ガスが関与する地下水は、マグマ溜まりから直接放出された熱水ではなく、浅部のマグマ火道・マグマヘッドから分離されたものであり、マグマ溜まりの情報を保持していない。Shinohara (2009)によれば、100 MPa より低い圧力環境では、マグマと平衡にある熱水流体は HCl が卓越し熱水流体は強酸性になる。より高い圧力環境では、放出される Cl は NaCl として熱水中に存在する。したがって、地下水が $\text{pH} < 4$ の場合は、本研究の目的では使用しないことが重要である。

地下水は一般に天水起源であるが、海岸に近い地域では海水も混入する。混合成分を明らかにした上で、マグマ起源水などの混入を検討できるようになる(3.2 章 2-4 節③を参照)。また、東北地方では内陸においても古海水が存在し天水と混合した地下水を形成する。

地下水は重力により帯水層内を流動するので、地下水流動についての理解が重要である。地下水に含まれるマグマ成分は、地下水調査地点の直下の情報を示しているのではなく、地下水流動系の上流側の情報を保持していることも留意する必要がある。また、地下水の流れを理解する上で重要なのは、その帯水層における平均滞留時間である。浅層地下水は核実験起源のトリチウムが含まれることが多いため、一般に、数十年～数百年の平均滞留時間を持ち、深層地下水は、数千年～数万年以上の平均滞留時間を持つことが知られている(たとえば、Morikawa et al., 2005)。したがって、地下水に含まれるマグマ起源成分は、地下水の平均滞留時間の時間スケール内において混入したものであり、長期停滞水の場合は現在のマグマの情報を持っているわけではないことに留意が必要である。本項では、以下に地下水の平均滞留時間を推定する手法を述べる。

① ヘリウム同位体

ヘリウムによる地下水滞留時間の推定は、非大気起源の ^4He が地下水流動・滞留中に蓄積される量を年代の指標として応用したものである。第一近似的には、 ^4He 濃度と蓄積時間が比例関係にあるため、非常に古い地下水に対しての適用が有効である。 ^4He を生ずる反応としては、U-Th 系列核種の α 壊変

が挙げられる．空隙率 p の帯水層において単位時間あたりに生成される ^4He 量 ($P(^4\text{He})$; $\text{cm}^3\text{STP}/\text{cm}^3/\text{yr}$)は以下の式で表される．

$$P(^4\text{He}) = (1-p) \rho_R \{1.19 \times 10^{-13} [\text{U}] + 2.88 \times 10^{-14} [\text{Th}]\} \quad (\text{cm}^3\text{STP}/\text{cm}^3/\text{yr}) \quad (3.2-7)$$

ここで, ρ_R は岩石の密度 (g/cm^3), $[\text{U}]$ および $[\text{Th}]$ は岩石中の U および Th 濃度 ($\mu\text{g}/\text{g}$)を表す．地下水中のヘリウムの起源は, 帯水層由来のみとみなすことができる場合と, 帯水層のみならず全地殻からのフラックス, あるいは地域によってはマントル起源ヘリウムのフラックスが顕著な場合がある．

ヘリウムの起源が帯水層のみの場合, 地下水滞留時間 (t) は,

$$t = C(^4\text{He}) \cdot \frac{p \cdot \rho_w}{P(^4\text{He})} \quad (3.2-8)$$

で表される．地殻およびマントル起源ヘリウムフラックスがある場合は,

$$t = C(^4\text{He}) \cdot \left(1 - \frac{R_o}{R_m}\right) \frac{p \cdot \rho_w}{\left[P(^4\text{He}) + \frac{F(^4\text{He})}{h}\right]} \quad (3.2-9)$$

で表される．ここで $C(^4\text{He})$ は地下水中の非大気起源の ^4He 濃度 ($\text{cm}^3\text{STP}/\text{gH}_2\text{O}$), $F(^4\text{He})$ は地殻起源のヘリウムフラックス ($\text{cm}^3\text{STP}/\text{cm}^2/\text{yr}$), R_o および R_m は地下水およびマントル中の $^3\text{He}/^4\text{He}$, p は空隙率, ρ_w は水の密度 (g/cm^3), h は帯水層の厚さ (cm)を示す．

② 放射性塩素

地下水に溶存する Cl のうち, 放射性塩素同位体 (^{36}Cl) 濃度は帯水層の岩石組成・滞留時間に応じた変化を示す． ^{36}Cl は地下においては ^{35}Cl と熱中性子との反応によって生成され, その生成量は, $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比として表すと以下の時間の関数として表され, 約 100 万年程度で一定の値, 放射平衡値に達する:

$$t = -\frac{1}{\lambda} \ln \frac{R_e - R_g}{R_e - R_i} \quad (3.2-10)$$

ここで, λ は ^{36}Cl の壊変定数 ($2.30 \times 10^{-6} \text{ yr}^{-1}$), R_e, R_g, R_i はそれぞれ $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 放射平衡値, 現在の地下水の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$, 天水起源 Cl の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ の初期値を示す．放射平衡値は岩石の化学組成, 特に U・Th 濃度に依存する(Snyder and Fabryka-Martin, 2007).

2-3) マグマ起源熱水の組成を変化させる要因

マグマ起源熱水は深所に存在するマグマ溜まりから放出され上昇する過程で様々な物理・化学的過程, すなわち, 相分離, 鉱物の溶解・沈殿などを経ると考えられる．これらがどの程度熱水組成(特に Cl/Cl および $\text{Cl}/\text{H}_2\text{O}$ 比)の変化に影響するかについて検討を行っておく必要がある．以下, 相分離, 熱水上昇過程, 地下水系における発泡による影響についてまとめる．

① 熱水流体の相変化

マグマ流体の相分離と化学反応が生じれば、元の流体組成は保持されない。したがって、地下水に含まれるマグマ流体の組成特性を利用してマグマだまりの状態を知るには、上昇時の熱水流体の化学組成の変化を考慮する必要がある。マグマの温度範囲では 100 MPa 以下で流体相の気液二相分離が起こる可能性が高いが、本研究でマグマ溜まりに使用した圧力条件(150–400 MPa)では、非混和相の発生は生じない(Shinohara, 1994)。これは、マグマ流体の放出が深部のマグマだまりから単相の超臨界流体として起こったことを示す。しかし、マグマ溜まりから放出された熱水流体の相境界は温度と圧力の低下に伴って変化するため、上昇中に流体組成が保持されていることを示すものではない。

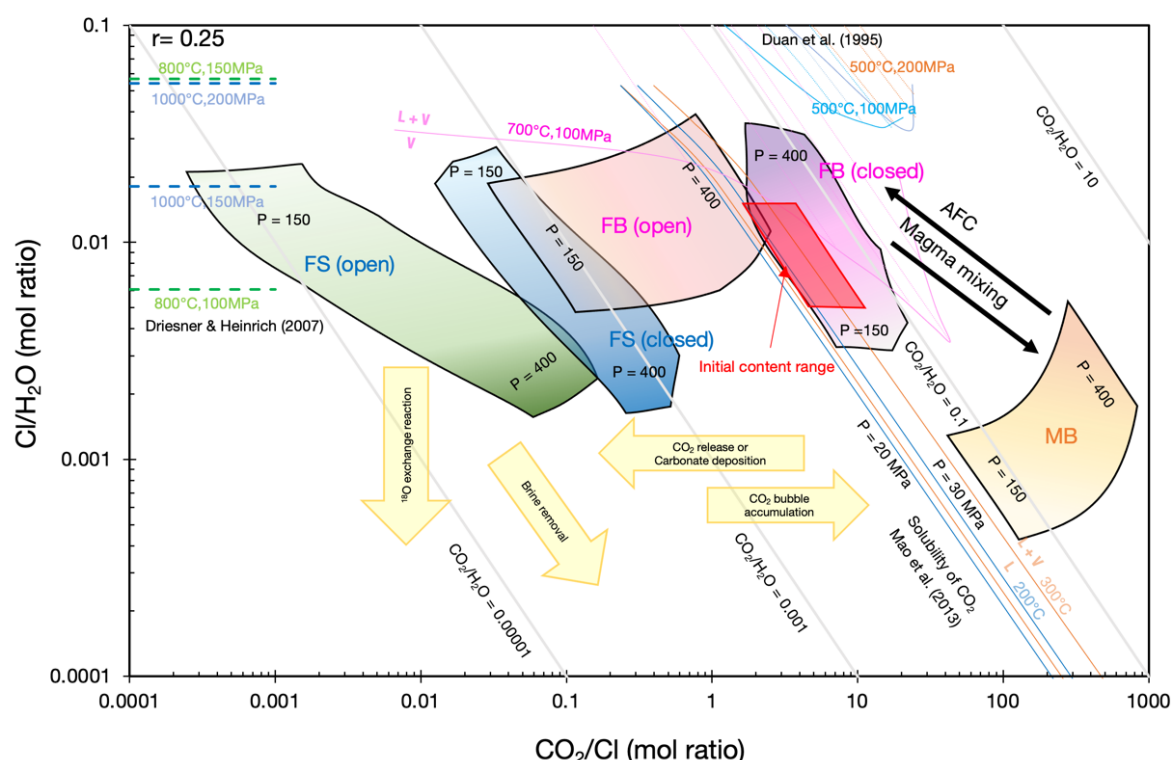


図 3.2-5 温度・圧力条件による相境界と熱水流体の CO_2/Cl と $\text{Cl}/\text{H}_2\text{O}$ の関係

NaCl-H₂O 系の相境界として、NaCl に富む液相と気相の境界(Driesner and Heinrich, 2007) および NaCl-H₂O-CO₂ 系の液相と気相の境界(Duan et al., 1995) および Mao et al. (2013) による熱水環境における CO₂ の溶解度を示す。黄色矢印は 様々な物理・化学過程における各脱ガスモードの組成の変化方向を示す。図 3.2-2 に加筆。

Kazahaya et al. (in review)による。

図 3.2-5 に Driesner and Heinrich (2007)による NaCl-H₂O 系および Duan et al. (1995)による NaCl-H₂O-CO₂ 系について、その温度・圧力条件における二相領域の境界を示す。図 3.2-5 は、図 3.2-2 に相分離境界、溶解度等の情報を加え、各プロセスにおける変化方向を示したものである。たとえば、温度 800°C、圧力 120 MPa 未満では、珪長質マグマから放出される熱水流体 FB

および FS は二相領域にあることがわかる。圧力が低下し、温度が十分に高ければ二相領域が拡大し、特定の圧力と温度の条件が達成されると、上昇中に熱水流体が二相に分離する。Duan et al. (1995)が示した分離線（点線）から予想されるように、二相分離は $\text{CO}_2/\text{H}_2\text{O}$ のほぼ等値線に沿って起こり、NaCl 濃度の非常に高い熱水流体が深層環境に残ることになる。以上より、高温 ($>800^\circ\text{C}$)・低圧環境 ($<120\text{ MPa}$) では、上昇する熱水流体が二相分離し、低密度の流体が選択的に上昇する可能性があることに留意しておく必要がある。

② 熱水上昇過程

マグマ溜まりから分離された熱水流体は、ほぼ静岩圧下の条件にあり、流体の過圧（間隙圧力の増加と差応力の上昇）によって地殻の破壊が起こると上昇する(Sibson, 2017 ; 2020a)。Sibson (2020b) によると、深さ数キロメートルの深い熱水条件に浸透性障壁が存在し、流体圧力は障壁の下部では静岩圧に近く、障壁の上では地下水の帯水層が存在する静水圧に近い。障壁を境にして流体の圧力差が非常に大きい、かつ、流体の上昇により過剰圧が失われるため、断層バルブモデル(Sibson, 2020a)によると、障壁を通過する流体の上昇が周期的に発生する。マグマ溜まりの発達には非常に長い時間を要するため、断層バルブによる熱水流体の浅い環境への輸送が効率よく繰り返されていると考えられる。

熱水流体には CO_2 がある程度含まれているため、浅所の熱水環境では気液の二相状態(NaCl 熱水相と CO_2 ガス相)が存在すると考えられる。もし、 CO_2 ガスが気泡として分離し断層に沿って上昇すると、熱水流体の相分離により化学組成に大きな違いが生じうる。日本の有馬温泉では、気液二相流体が有馬高槻断層に沿って直接湧き出しており、有馬温泉水には 6wt%の NaCl と沸騰温度で多量の CO_2 ガスが含まれているため、元々の熱水組成を保持し、フィリピン海スラブに由来する熱水であると考えられている(Kusuda et al., 2014)。したがって、静岩圧環境から静水圧環境である地下水層へ断層を通して上昇する流体は、二相であるかどうかに関係なく、その組成を保持すると思われる。ただし、流体が地下水帯水層に注入された後は、地下水系内における CO_2 気泡の分離の影響を考慮する必要がある。Morikawa et al. (2016)は、有馬温泉水の CO_2 に富むスラブ由来流体が堆積岩帯水層の地下水に注入されると、帯水層内において CO_2 気泡が選択的に上昇し、深層では NaCl 型地下水が生成し、浅層には NaHCO_3 型地下水が生成されることを示した。

以上より、熱水流体は、マグマ溜まりの深度から地下水帯水層まで上昇する過程では、120 MPa 以下の圧力(5 km より浅い)で 800°C 以下であれば、熱水流体から brine が分離されることはないが帯水層に熱水流体が注入された後に CO_2 気泡が生じる場合は、 CO_2 を失った深層地下水と CO_2 が付加された浅層地下水が生成される点を考慮しなければならない。

③ 地下水系における CO_2 分離

CO_2 は地下水において、発泡をコントロールする重要分子のひとつである。図 3.2-5 には、Mao et al. (2013)による熱水環境における CO_2 の溶解度曲線(圧力: 10, 30 MPa ; 温度: 200, 300°C)を示す。この溶解度曲線の右上の領域が二相領域である。熱水流体 FB (closed)と MB は CO_2 に過飽和で二相領域にあり、熱水流体 FS は CO_2 に不飽和であることがわかる。また、熱水流体 FB

(open)は 400 MPa 時に溶解度曲線とほぼ同じ領域に存在する．熱水流体は地下水と混合するので，混合の度合いによっては，FB (closed)，MB の熱水流体も CO_2 に不飽和になる場合がある．不飽和になるのに必要な地下水による熱水流体の希釈は，図より熱水流体 FB (closed)で約 10 倍，MB で約 100 倍である．一方，pH によりコントロールされる反応($\text{H}_2\text{O} + \text{CO}_2 \rightarrow \text{H}^+ + \text{HCO}_3^-$)により，地下水中の CO_2 は HCO_3^- に変化する．一般的な地下水は帯水層の鉱物等により pH 7–8 にバッファーされるため，この反応は非常に速やかに進行し，マグマ起源の CO_2 は HCO_3^- として保持される可能性がある． CO_2 が気泡により除去される場合と HCO_3^- で保持される場合が考えられるため，この点は解析に際しよく留意されなければならない．

④ 地下水系における沈澱・溶解

マグマ起源の熱水流体の組成(特に C/Cl 比)を変化させる他の要因として，炭酸塩鉱物の沈澱と炭酸塩鉱物の溶解が挙げられる．図 3.2-5 に沈澱・溶解による変化の方向を矢印で示した．炭酸塩鉱物の沈澱は高い DIC 濃度， Ca^{2+} 濃度かつ pH 8 以上で起こる．Ohwada et al. (2007)は，海成のグリーントフの地層内で緑泥石，石膏が存在するため， CO_2 の供給により $\text{CaSO}_4 + \text{H}_2\text{O} + \text{CO}_2 \rightarrow \text{CaCO}_3 + 2\text{H}^+ + \text{SO}_4^{2-}$ の反応が生じ， SO_4 型のグリーントフ型温泉水ができることを示した．この場合，地下水中の DIC 濃度は 1/1000 まで減少した例があり，地下水の C/Cl 比を大きく変動させる．グリーントフ層は東北～中部～山陰の火山地域および伊豆弧において地下に広く存在しているため，日本の火山地域の地下水を調査する際にはグリーントフ中の反応に留意しなければならない．一方，炭酸塩鉱物の溶解は地下水の DIC 濃度を上昇させるが，その反応($\text{CaCO}_3 + \text{H}_2\text{O} + \text{CO}_2 \rightarrow \text{Ca}^{2+} + 2\text{HCO}_3^-$)は DIC 濃度を 2 倍にする．上記の沈澱による非常に大きな変化に比べて小さな変化といえる．有機物由来の DIC については，DIC の炭素同位体比($\delta^{13}\text{C}$)により補正し，除外するのが一般的である(3.2 章 2-4 節②参照)．以上より，炭酸塩鉱物の沈澱による DIC 濃度の減少は非常に大きな問題となるが，後述するように地下水の ^3He 濃度を用いてマグマ起源の DIC 濃度を推定することにより問題を回避できる(3.2 章 2-4 節②参照)．

2-4) マグマ起源成分の濃度

① マグマ起源 Cl

地下水中の Cl には，通常，降水中の海塩，海水（沿岸域），古海水（内陸）等が含まれる．マグマ起源の Cl 濃度を求めるにはこれらの海水起源の Cl を取り除く必要がある．降水中の海塩は沿岸部では ~10 mg/L に達することがあるが，内陸部では 1 mg/L 以下の場合が多い．したがって，Cl 濃度が十分に高い場合は無視することができる．問題となるのは，沿岸部における地下水への海水の侵入や，海成の Green Tuff 層や第三系堆積岩が存在する地域における古海水（あるいは鹹水）の寄与である．これまでの研究で，海水・古海水起源の Cl を取り除き，マグマ起源の Cl 濃度を求めるため，ハロゲン元素を用いた塩素の起源分離 (Cl-Br-I 法) を行ってきた（産総研, 2018, 2019, 2020, 2021, 2022）．Cl, Br, I のうち，I は有機物との親和性が特に高いため，堆積物間隙水や油田・ガス田付随水などの古海水の I/Cl 比は非常に高い特徴がある（例えば Muramatsu et al., 2001; 2007）．そのため，調査対象地域においてこのような古海水が存在する可能性がある場合は，I を利用した解析が有効である．一方で，海水や古海水を考慮する必要が

ない場合は、マグマ起源 Cl の推定法を簡略化することが可能である。これらを踏まえて、マグマ起源 Cl の推定について以下の 3 パターンに分けて整理する。

Cl の起源として海水・古海水を考慮する必要がある場合

海成堆積岩や Green Tuff 層が存在する地域では、地下に古海水が存在している可能性がある。ここで、Cl 濃度が高い試料を対象とすることで天水起源の Cl を無視すると、主な Cl の起源としては「マグマ水」「海水」「古海水（油田・ガス田付随水、続成流体なども含む）」となる。これらの端成分の Br/Cl 比および I/Cl 比を仮定すると、以下の 3 式を用いた 3 成分混合解析により各成分に由来する Cl 濃度を求めることができる。なお、添え字の m はマグマ水、sw は海水、a は古海水を意味する。

$$Cl_m + Cl_{sw} + Cl_a = Cl_{sample} \quad (3.2-11)$$

$$Cl_m (Br/Cl)_m + Cl_{sw} (Br/Cl)_{sw} + Cl_a (Br/Cl)_a = Br_{sample} \quad (3.2-12)$$

$$Cl_m (I/Cl)_m + Cl_{sw} (I/Cl)_{sw} + Cl_a (I/Cl)_a = I_{sample} \quad (3.2-13)$$

次節で検討した地域のうち、十和田カルデラ地域がこれに該当する(図 3.2-6)。古海水の端成分には、Br/Cl 比や I/Cl 比が高い油田・ガス田付随水の値が使用されるため、有機物分解成分が認められる地域ではこれを適用すべきである。

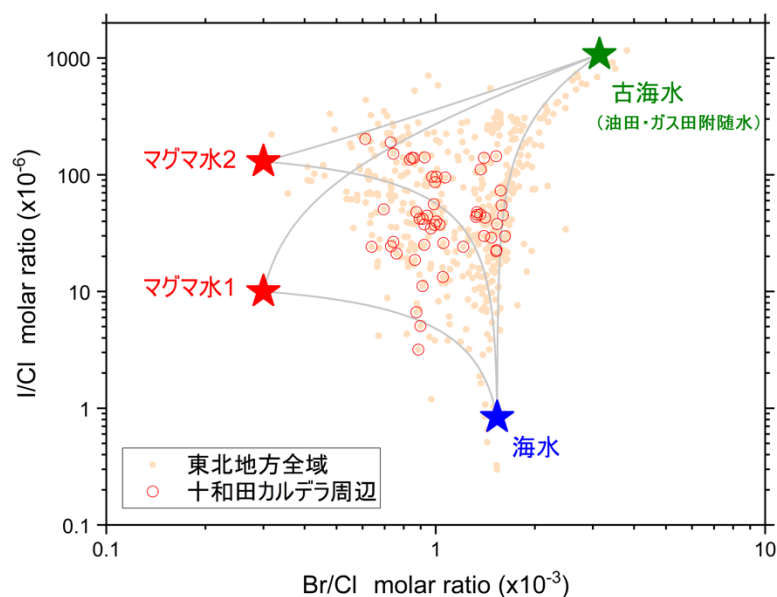


図 3.2-6 十和田カルデラ周辺で採取した試料の Br/Cl 比および I/Cl 比の関係

マグマ水の端成分決定のために参考にした東北全域のデータを合わせて示した。

灰色の線は各端成分の混合曲線。端成分の値は産総研(2022)による。

Cl の起源として海水を考慮する必要がある場合

沿岸域に火山やカルデラが存在する場合、地下水には高濃度の海水起源 Cl が含まれる。Green Tuff 層や有機物の熟成が進んだ海成堆積岩が存在しない地域では、Br/Cl 比を使用して以下の 3 式を用いた二成分混合でマグマ起源 Cl を求めることができる。なお、 X_{Cl_sw} は海水由来 Cl の割合、 X_{Cl_m} はマグマ水由来 Cl の割合である。

$$X_{Cl_sw} + X_{Cl_m} = 1 \quad (3.2-14)$$

$$X_{Cl_sw} = \{ (Br/Cl)_{sample} - (Br/Cl)_m \} / \{ (Br/Cl)_{sw} - (Br/Cl)_m \} \quad (3.2-15)$$

$$Cl_m = Cl_{sample}(1 - X_{Cl_sw}) \quad (3.2-16)$$

次節で検討した地域のうち、始良カルデラ地域・鬼界カルデラ地域がこれに該当する。

Cl の起源として海水・古海水を考慮する必要がない場合

内陸部に位置し、主に火成岩で構成されている地域においては、地下に海水や古海水が存在している可能性が低い。そのため、Cl 濃度が天水よりも明らかに高い試料については、全てマグマ起源 Cl とみなすことができる。次節で検討した地域のうち、九重火山や阿蘇カルデラがこれに該当する。

② マグマ起源 DIC

地下水中に溶解する DIC は、通常生物起源の DIC であるが、火山地域ではマグマ起源 DIC が混入する。生物起源 DIC は $\delta^{13}C$ が約 -20‰ であり、マグマ起源 DIC の $\delta^{13}C$ が約 -4‰ であることを利用して、標準的手法では、地下水の DIC の $\delta^{13}C$ の分析値から、マグマ起源 DIC 濃度を求める (DIC_c とする)。ただし、マグマ起源熱水に含まれる DIC は、マグマ溜まりから放出され上昇する過程において、高温、高圧下の状態を経由しており炭酸塩の沈殿・溶解や気液二相分離 (CO_2 の場合) 等によりその濃度が大きく変化しうることには注意が必要である。

一方で、産総研(2023)では、地下水中のマグマ起源 DIC の濃度を求める別の手法として、火山ガス中の $CO_2/{}^3He$ 比 ($= (1.69 \pm 0.9) \times 10^{10}$) がほぼ一定であること (Sano and Marty, 1995) を利用して、マグマ溜まりから放出される DIC 濃度について 3He 濃度を用いて求めることができるとしている (この手法で求めた DIC 濃度を DIC_h とする)。ここで用いる 3He 濃度は、Morikawa et al.(2016) による気液二相分離により希ガスが失われても希ガス組成から元の分離前の 3He 濃度を推定できる手法を利用し、決定した 3He 濃度を用いる。この手法の利点は、熱水流体中の DIC が沈殿・溶解や気液二相分離により変化しても元の DIC 濃度を推定できる点にある。九重火山において、 DIC_c と DIC_h 濃度を比較した結果はよく一致している (産総研, 2023)。ただし、気液二相分離の後に大気希ガスと平衡になった地下水には用いることができない点も留意しなければならない。地下水採取時に CO_2 気泡を含む場合は DIC_h 濃度を用いると過小評価される可能性がある。

Ohwada et al. (2007)によれば、Green Tuff 中の地下水は沈殿により DIC 濃度が 1/1000 になる場合があることを報告しており、地下水が Green Tuff の帯水層に存在する場合は DIC_c ではなく DIC_h を用いなければならない。一方、 ^3He 濃度が利用できない場合は、DIC の変動過程についてよく吟味した上で DIC_c を用いる。地下水に含まれるマグマ起源の C/Cl 比は、マグマ起源 DIC 濃度とマグマ起源 Cl の比から求めることができる。実際の適用については、後述する各火山への適用例の中で述べる。

③ マグマ起源 H_2O (マグマ水)

地下水に含まれるマグマ水の割合は、その同位体比(δD および $\delta^{18}\text{O}$)が天水、海水と大きく異なることを利用して求めることができる。天水の同位体比は、降水の同位体標高効果、内陸効果などにより地域差が顕著なため、調査対象地域において湧水や浅層地下水の採取を行い、その同位体比の分布範囲を調査しておく必要がある。マグマ水の同位体比は主に火山ガスの分析により多くのデータが得られており、それぞれ $\delta\text{D} = -35 \sim -15\text{‰}$ 、 $\delta^{18}\text{O} = +6 \sim +10\text{‰}$ である。対象とする火山について、火山ガスの同位体比がわかっている場合はその値を用いる。地下水が単純な天水-マグマ水混合系であれば、地下水の同位体比からマグマ水の割合を求めることができる。ただし、地下水は岩石との酸素同位体交換反応によって、その $\delta^{18}\text{O}$ 値が大きくなる方向にシフトする場合がある。このような反応は地熱系において見られることがある。この場合はマグマ起源 H_2O の割合を過大評価することに留意する必要がある。図 3.2-5 に示したように、酸素同位体交換反応の影響により、地下水に含まれるマグマ成分の Cl/ H_2O 比が低い値を示すことになる。

地下水に海水起源の Cl が含まれる場合には、海水を加えた 3 成分系でマグマ水の割合を求める。マグマ起源 Cl 濃度とマグマ水の割合からマグマ起源の Cl/ H_2O 比を求めることができる。実際の適用については、後述する各火山への適用例の中で述べる。

2-5) 海底湧水の調査の解析

海没カルデラにおいては、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が海中に湧出していると想定され、その検討のための採取・解析手法の構築を試みた(産総研, 2022; 2023)。海底湧出水の化学組成と湧出量の推定は、海底面に伏せて設置したロート内部の水の化学組成の時間変化および、海底面に突き刺したシリンジ内部の水の化学組成から試みた(図 3.2-7)。以後、それぞれ「連続採水」と「直接採水」と表記する。ここでは、令和 4 年度に実施した鬼界カルデラの薩摩硫黄島の坂本温泉沖・ウタン浜海岸、昭和硫黄島沖の 3 つの調査エリアでの調査を例に(産総研, 2023)、海底湧出水の試料採取・解析手法を示す。

① 海底湧出水およびガスの採取手法(連続採水・直接採水)

連続採水では、海底面にロートを伏せて設置し、時間経過とともにロート内の水を採取した(図 3.2-7)。調査で使ったロートのサイズは、坂本温泉沖とウタン浜海岸で 1 L と 2 L(各 1 回)、昭和硫黄島沖で 3 L(2 回)である。採水時以外はロート上部のバルブは開放し、採水時に流路の切り替えとチューブ内の水の排出をして、1 L ロートでは 50 mL ずつ、2 L および 3 L ロートでは 100 mL(50 mL $\times$ 2)ずつ、ロート上部からロート内部の中央付近までのばしたチューブを通じて、50

mL のディスポシリンジを用いて試料水を採取した。連続採水では、ロートを設置した直後の採水が時間的に難しいため、ロートを設置する直前に設置環境の海水を採取しておき、連続採水の開始時の試料とした。採取した試料は陸上に持ち帰り、pH の測定と測定成分ごとに処理と容器への分取を行った。どの調査エリアにおいても、海底から CO₂ ガス(気泡)が湧出しているため、ガスの湧出量と組成を測定した。ロート内部に溜まったガス量は、数十秒から数分間隔で、あらかじめロートにつけた目盛りを読み取って測定した。ガス湧出量が多い場合には、ロート上部のガス採取口を開けてガスを排出した。一連の水試料の採取が終了したら、ロート内に溜まったガスを採取し、後日、ガス組成の測定を行った。

直接採水では、50 mL ディスポシリンジの外筒部のフィンガーフランジ部分を切断して、円筒部のみを海底面に突き刺して、しばらく待ってから、内部の水を採取した。連続採水のロートの周辺にシリンジをおおよそ 10 cm 程度の深さまで突き刺して、1 地点につき 3 試料を採取した。採取時には砂等の巻き込みを防止するために、ディスクフィルター(孔径 1 μm・直径 25 mm・濾過材ガラスフィルター)を接続し、チューブ内の水を排出した後に、50 mL のディスポシリンジに吸引して試料水を採取した。

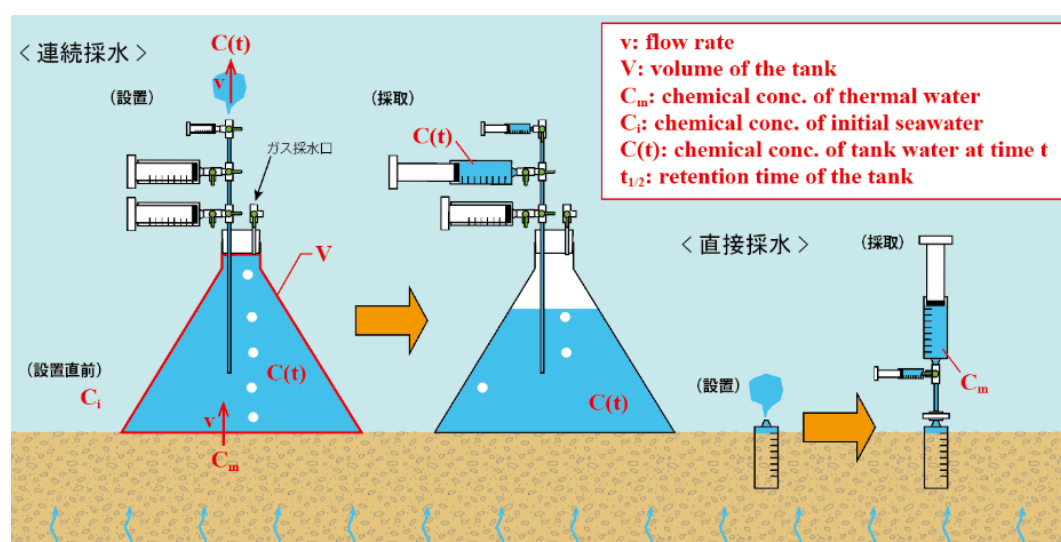


図 3.2-7 海底湧出ガス・水の試料採取方法模式図。(産総研, 2023 に加筆)

赤文字は完全混合タンクモデルの変数を示す。ロートを用いた連続採水と海底にシリンジ外筒部を設置した直接採水(実際の調査ではロート周辺に 3 カ所程度を設置)。

② 海底湧出水の流量とガス/水比

各方法で得られた水試料の主要化学成分、 $\delta^{18}\text{O}$ ・ δD ならびにガス試料のドライガス成分の組成分析を行って、解析を実施した。海底湧出水の流量 v は、以下の 2 式を用いた完全混合タンクモデル(図 3.2-7)を用いて算出した。

$$1 - (C(t) - C_i) / (C_m - C_i) = \exp(-t/t_{1/2}) \quad (3.2-17)$$

$$t_{1/2} = V/v \quad (3.2-18)$$

ここで、 V は調査で使ったロートの容量であり、 C_m (流入する熱水の Cl 濃度)は、各調査エリアで直接採水した水試料の Cl 濃度の平均値を用いた。解析の一例として、坂本温泉沖での結果を示す(図 3.2-8)。1 回目(坂本 1)は 1 L ロート、2 回目(坂本 2)は 2 L ロートを用いた。坂本 1 では約 5 分程度でロート内の水の Cl 濃度と直接採水試料の Cl 濃度が同程度となったが、坂本 2 では 48 分後でも Cl 濃度が減少していた。坂本 1 において、完全混合タンクモデルを用いて算出した熱水の流量は 1.3 L/min、現地観測したガスの流量は 0.0017 L/min であり、ガス/水比は 0.0013 と求まった。坂本 2 では熱水の流量は 0.065 L/min、ガスの流量は 8.8×10^{-5} L/min であり、ガス/水比は 0.0014 であった。坂本 1 と坂本 2 は流量が異なるにも関わらず、ガス/水比は同程度で求まっており、同じ混合モデルと C_m による解析で 2 地点の Cl 濃度変化を再現できている。つまり、計算に用いているモデルや C_m は妥当なものであると考えることができ、海底面に突き刺したシリンジでも湧出水の組成の測定が可能であることを示している。ところで、図 3.2-8 に示したウタン浜での調査では、1 回目は時間とともに Cl 濃度が減少したが、2 回目では増加した。これはウタン浜の採取地点の陸側から淡水を供給する小さな流れがあって、採取地点やその状況によって連続採水を開始するときの Cl 濃度が湧出水の Cl 濃度よりも高くなったり、低くなったりするためであるが、どちらの状況においても湧出水の流量を求めることができる。

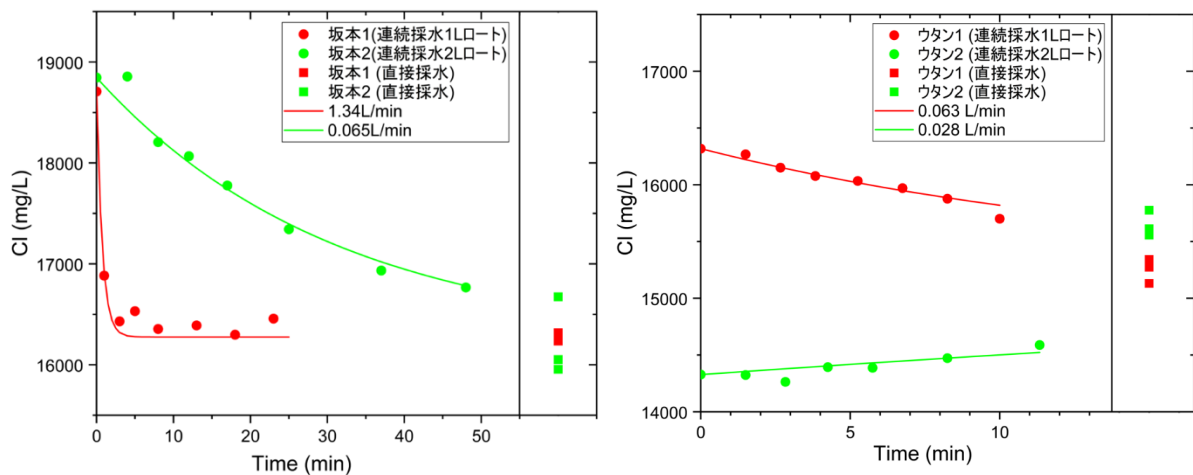


図 3.2-8 坂本温泉沖およびウタン浜における連続採水と直接採水試料の Cl 濃度(産総研, 2023)

完全混合タンクモデルを用いて求めた湧出水の流量における理論曲線を示した。

③ 海底湧出水の起源

連続採水と直接採水で採取した水試料の $\delta^{18}O$ - δD は、海水-天水混合線に沿って分布することから海水と天水の混合で形成されており、その分布域から海水の寄与が高いことがわかる(産総研, 2023)。同じ地点の一連の連続採水試料に着目すると、時間経過とともに直接採水試料の値に向かって変化している。同様な変化は、 $\delta^{18}O$ - Cl 、 δD - Cl (図 3.2-9)でも見られ、それぞれの連続採水に

において海底湧出水の混入による組成変化を捉えていると解釈できる。また、坂本温泉、ウタン浜、昭和硫黄島の各調査エリアでも同じ変化が確認できており、ウタン浜では図 3.2-8 で示したように Cl 濃度の時間変化が増加と減少の 2 つの傾向にある一連の試料の向かう先が、ほぼ同じ領域にあることも注目すべきことである。これらは、連続採水と直接採水の手法が海底湧出水の湧出量と化学組成を得るために適切なものであることを示している。

ウタン浜の海底湧出水と天水を結んだ線の近傍に坂本温泉沖や昭和硫黄島の海底湧出水がプロットされている(図 3.2-9)。これは 3 カ所での海底湧出水の組成が非常に類似しており、天水の混合割合が異なることを示唆している。陸上部分が非常に狭い昭和硫黄島では、海底湧出水に天水の混入がないと考えられることから、連続採取の試料から直接採取試料へ向けて伸ばした矢印の先に、天水の影響がない海底湧出水の組成があると推定される。およそその組成として、Cl 濃度は 18200–18400 mg/L、 $\delta^{18}\text{O}$ は 0.2‰、 δD は 1‰が得られた。この組成の水は海水とマグマ水との混合では説明できず、火山体内部で海水が循環する間に組成変化をもたらす変質海水の形成プロセスの関与を示唆しているが、海底湧出水の Cl 濃度の低下や $\delta^{18}\text{O}$ や δD の上昇を定量的に説明することができないため、海底湧出水に含まれるマグマ水の寄与の推定が困難である。3 つの調査エリアでの連続採取による調査で、マグマ起源の CO_2 の湧出量を求めることができるが、マグマ起源 Cl の湧出量が求まらないため、マグマ水の C/Cl 比を決定できなかった。このような特徴的な組成を持つ変質海水は始良カルデラでも確認されており、海底カルデラの特徴の可能性はある。

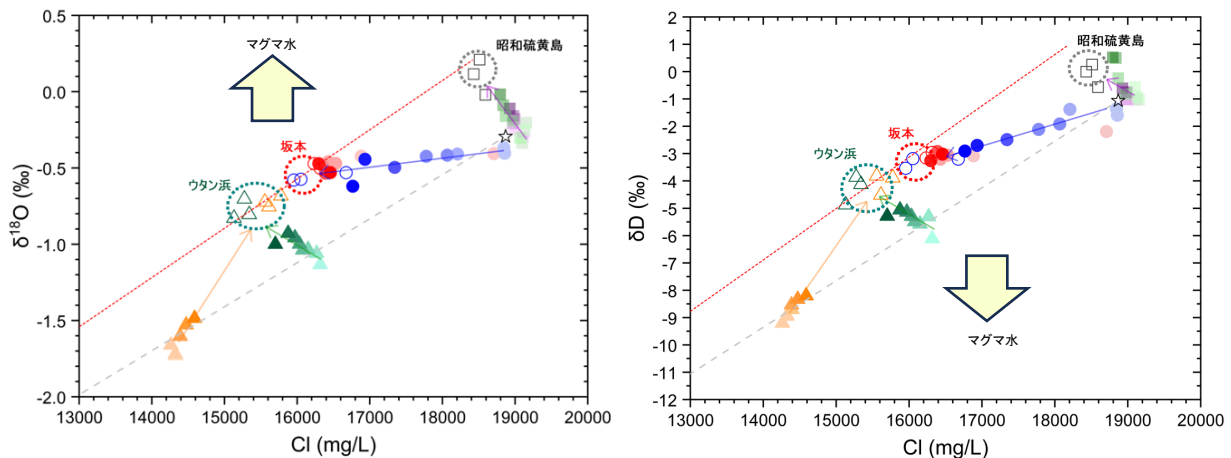


図 3.2-9 坂本温泉沖・ウタン浜・薩摩硫黄島で採取した連続採水試料および直接採水試料の酸素同位体比および水素同位体比と塩素濃度の関係(産総研, 2023 に加筆)

連続採水試料は、シリーズごとに異なるシンボルを用い、色の濃さは時系列に対応する(薄い色から濃い色に向かって変化している。変化の方向をそれぞれ矢印で示した)。各調査地点の白抜きのシンボルは直接採水の値である。各調査地点の湧水の端成分と考えられる値を点線丸で、天水と海水の混合線を灰長点線で、天水とウタン浜の直接採水試料の組成領域の混合線を赤点線で、マグマ水の混入による変化方向を太矢印(薄黄色)で示した。

(3) カルデラ火山への適用

3-1) 九重火山

① 概要

3.2 章(1)でまとめたように、マグマ溜まりから放出される熱水の脱ガスモード(MB, FB, FS)により熱水は固有の C/Cl , Cl/H_2O 比を持つことが示された。この手法の適用性・有効性を確認するため九重火山に適用した。九重火山は約 22 万年にわたり火山活動を続け、その噴火中心が西から東へ移動し、東部では苦鉄質マグマ活動が、西部では珪長質マグマ活動が卓越している。したがって、地下のマグマ溜まりは、それぞれ東西に分離されて存在していると考えられるため、各脱ガスモード別に地域差が出るのではないかと考えられる。以下、Kazahaya et al. (in review) に基づいて記載する。

図 3.2-10 に九重火山の活動履歴、深部低周波地震活動、地下水採取地点、ヘリウム同位体比(Ra 値, $^3He/^4He$)を示す。九重火山はステージ 1~4 に活動区分されており(川邊ほか, 2015)、ステージ 1 からステージ 4 の間に噴火活動中心が西から東に移動している。過去 20 万年の期間に 3 度の火砕流を伴う大きなプリニー式噴火を起こしており、最も新しいのは 5.4 ka の飯田火砕流噴火である。最新のステージ 4 では、東部において苦鉄質マグマ活動が主体となっており、深部低周波地震も東部に見られる。深部低周波地震は深度 10–31 km(平均深度 25 km)で生じており、地殻下部から供給される苦鉄質マグマの上昇と関連しているものと推定される(Yukutake et al., 2019)。地下水の採取は九重火山の噴火中心を取り囲むように行った。その際、火山ガスあるいは火道からの脱ガスの影響による熱水を排除するため、地下水の pH が 4 以下のものは除外した。地下水に溶存する $^3He/^4He$ 比(Ra)は 5.0–7.5 であり非常に高い値を示すため、マグマ起源成分を含んでいることは明らかである。地下水に含まれるマグマ起源成分の C/Cl , Cl/H_2O を推定するため、各種分析・解析を行った結果を以下に示す。なお、ヘリウム同位体比の測定は、希ガス用質量分析計 (Micromass 5400) を用いて行った (詳細は、Morikawa et al. (2016)を参照)。

② マグマ起源 Cl

地下水の Cl 濃度は 1.5–1400 mg/L の範囲にあった。また、中岳および大船山の火口湖で採取した湖水(L1, L2 ; 図 3.2-10)の Cl 濃度は 0.7 mg/L であった。湖水は天水起源であり、天水から供給される海塩起源の Cl は 1 mg/L 以下であることを示している。また、この地域は内陸であり地下水への海水の侵入は考慮しなくてよいため、地下水中の Cl は、Cl 濃度が十分に高いものについては大部分がマグマ起源であると考えられる。 $^{36}Cl/Cl$ 比は、8 地点の地下水試料で分析した結果、 $(1.0–5.2) \times 10^{-15}$ の範囲であった。これらの試料にはいずれもトリチウムが検出され(0.1–1 TU)、明らかに人為起源あるいは宇宙線起源の ^{36}Cl が含まれているはずであるが、約 100 万年で達成される放射平衡値(10^{-13} – 10^{-14})に比べて十分に低いことから、22 万年の九重火山の活動によりもたらされたマグマ起源 Cl であるとして矛盾しない結果である。

Cl は微量ながら火山性の地層から溶出することも考えられるため、当該地域の地下水で Cl 濃度が 50mg/L より高いものについて、 C/Cl および Cl/H_2O 比の推定に用いることにする。

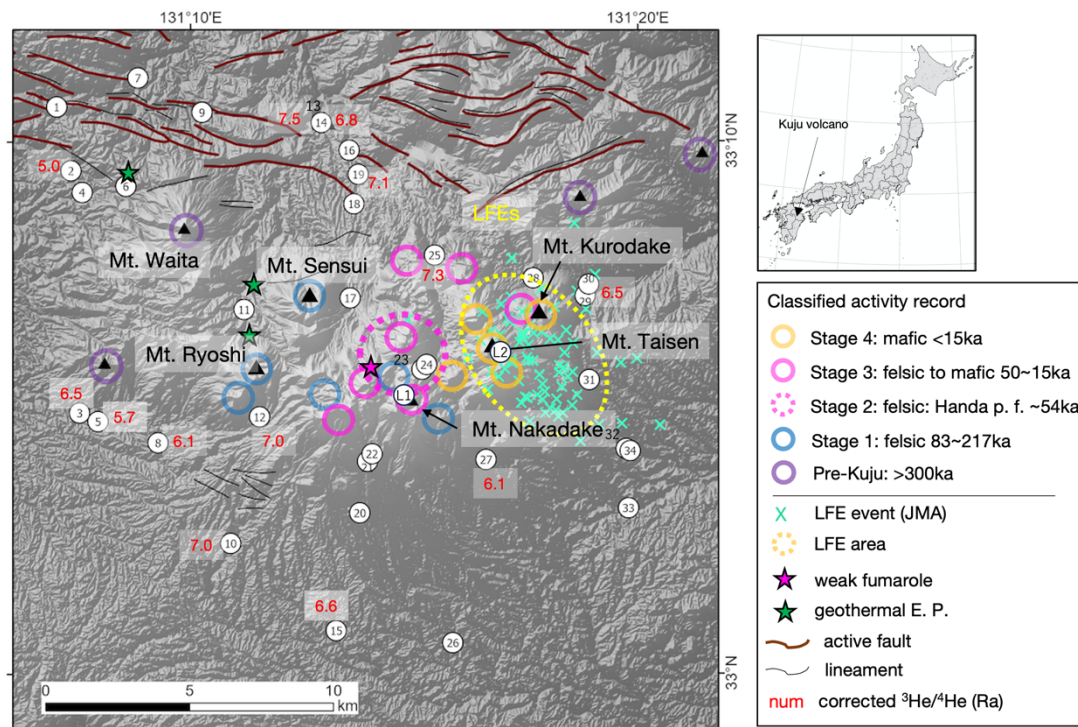


図 3.2-10 九重火山周辺の地下水採取位置図

ヘリウム同位体比 (Ra 値) を赤字で示した。第四紀火山の活動履歴は西来ほか (2012) による。深部低周波地震は気象庁一元化データ (1998–2021) による。地形データは基盤地図情報 (国土地理院) による。

③ マグマ起源 DIC

地下水のマグマ起源 DIC 濃度は前述したように、DIC の $\delta^{13}\text{C}$ を用いてマグマ起源 DIC 濃度 (DIC_c) を求める通常法と地下水の ^3He 濃度を用いて DIC 濃度 (DIC_h) を求める手法がある。DIC 濃度および $\delta^{13}\text{C}$ は、水試料に酸を添加して発生した CO_2 を連続フロー型軽元素同位体質量分析計 (Delta-V advantage および GasBench II) により測定した (Takahashi et al., 2019)。図 3.2-11 にそれぞれ比較した結果を示す。マグマ起源 DIC 濃度は、ほぼ 4 桁に渡る非常に大きなバリエーションがあることがわかる。また、 DIC_c と DIC_h は比較的良い相関を示していることから、九重火山では 3.2 章(2)で述べた炭酸塩の沈澱などの影響がほぼないものと考えられる。また、九重火山東部の Cl 濃度の低い一部の CO_2 気泡を有する湧水を除いて、地下水の pH は中性～弱アルカリ性であり、ほぼ HCO_3^- で構成されている。そのため、このような地下水では帯水層における気液二相分離の影響もないと考えられる。 CO_2 気泡を生じている湧水・地下水については、先に議論したように、地下水系で気液二相分離していると考えられ、 CO_2 気泡が選択的に上昇し浅層地下水系に混入したものであろう。これらについては、C/Cl 比の推定値を用いないことにする。以上より、 ^3He のデータがあるものについては、 DIC_h 濃度を、データのないものについては DIC_c 濃度をマグマ起源 DIC 濃度として用いる。

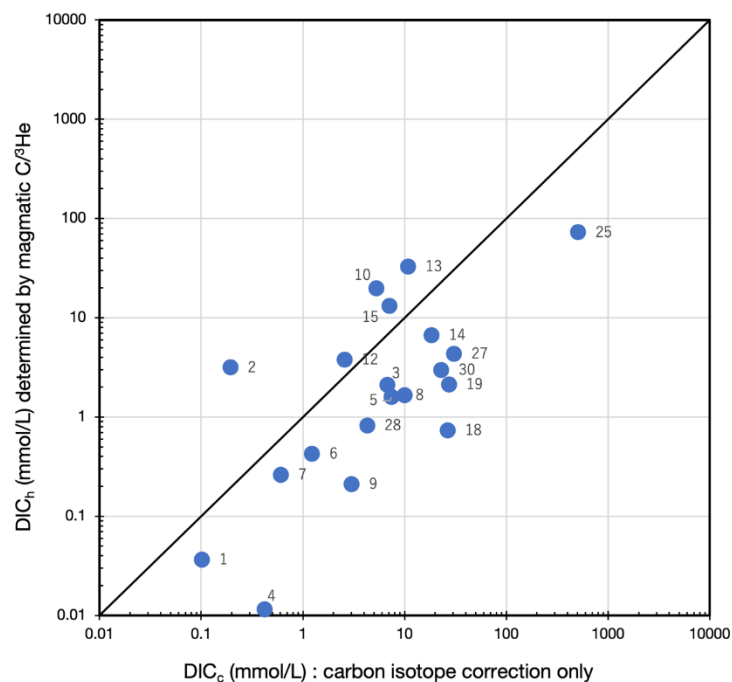


図 3.2-11 九重地域における地下水中のマグマ起源 DIC 濃度の推定手法 (DIC_h 及び DIC_c) の比較
 数字は図 3.2-10 に示した地点番号.

④ マグマ起源 H₂O

地下水に含まれるマグマ起源 H₂O の割合は、3.2 章 2-4 節③に示した水の同位体比(δD, δ¹⁸O)を用いて推定することができる。図 3.2-12 に九重火山における地下水の同位体比を示す。Cl 濃度が 5 mg/L 以下の地下水を用いて、天水線(MWL)の範囲を決定した。地下水の同位体比は天水起源の範囲とマグマ水(Mizutani et al., 1986)混合線の範囲にあることわかる。この混合関係を利用して、地下水の同位体比が天水の範囲外にある場合はマグマ起源 H₂O の割合を求めることができる。34 地点の地下水試料のうち、マグマ起源 H₂O の割合を求めることができたのは、15 地点であった。

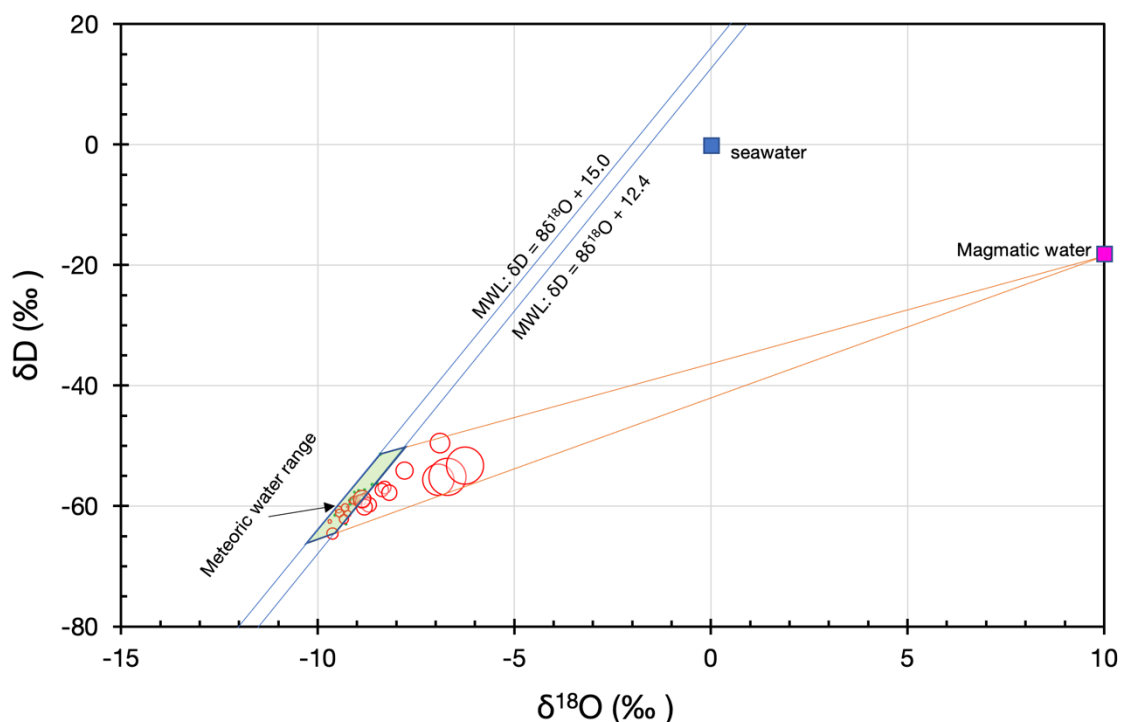


図 3.2-12 九重火山周辺地域の地下水の同位体比

天水起源の領域(緑)は、 $\text{Cl} < 5\text{mg/L}$ の湧水、地下水を用いて決定した。九重火山の地下水(赤丸)は二つの天水線に囲まれた範囲とマグマ水の混合を示す範囲内にある。丸の大きさは Cl 濃度を示す。

⑤ C/Cl - $\text{Cl}/\text{H}_2\text{O}$ 法の適用

前節で求めたマグマ起源の Cl 、 DIC 及び H_2O の濃度を用いて、地下水に含まれるマグマ成分の C/Cl 及び $\text{Cl}/\text{H}_2\text{O}$ を計算した。図 3.2-13 にその結果を示した。図 3.2-13 に示されたそれぞれの脱ガスモードの組成範囲は、汎用性を持たせるため苦鉄質マグマの揮発物質含有量の初期値に範囲を与えており、それぞれ $\text{H}_2\text{O} = 4\text{--}6\text{wt\%}$ 、 $\text{CO}_2 = 0.3\text{--}0.7\text{wt\%}$ 、 $\text{Cl} = 0.05\text{--}0.15\text{wt\%}$ としている。苦鉄質マグマの揮発物質含有量の初期値は、カンラン石などの初期に晶出した斑晶のメルト包有物に保持されている。Kawaguchi et al. (2022)は、メルト包有物の分析により九重火山に供給された苦鉄質マグマの初期 H_2O 、 Cl 含有量はそれぞれ $4.39\text{ wt\%}$ 、 $0.10\text{ wt\%}$ と推定している。この値は今回用いた初期組成の範囲のほぼ中央値である。図 3.2-13 では、さらに地下水のマグマ成分の C/Cl 、 $\text{Cl}/\text{H}_2\text{O}$ 比を変質させる可能性のあるプロセスを太い黄色の矢印で示した。

水の同位体比が天水の範囲内にあったためマグマ起源成分の $\text{Cl}/\text{H}_2\text{O}$ 比が決定できなかった場合は、 C/Cl 比のみ図の一番上にプロットした(図 3.2-13)。灰色の○で示したデータは Cl 濃度が 5 mg/L より高いが 50 mg/L 以下のものであり参考値として示しており、No. 25 は CO_2 気泡を含んでいる。No. 25 は自噴井でありガス/水の流量比を測定しており、ガスも加えて C/Cl 比を計算している。 C/Cl 比は非常に高い値を示し約 500 であった。しかしながら、帯水層内で CO_2 の気泡が選択的に上位の地下水系に流入した可能性があるため参考値として記載する。九重火山周辺の地下水のマグマ起源成分の C/Cl 比は $0.001\text{--}14$ の範囲にあり、4 桁の違いがあることがわかる。

CO₂気泡が確認された地下水は、No. 25, 29, 30, 31 であり、いずれも九重火山の東部に位置する。3.2 章 2-3 節③で述べたように、地下水の希釈によっても CO₂気泡として分離される可能性が高いのが脱ガスモード MB と FB (closed)の場合である。したがって、マグマ起源の CO₂気泡を含む地下水は MB もしくは FB (closed)であると考えられる。

一方、マグマ起源成分の Cl/H₂O 比は、1.5 桁の範囲にある。脱ガスモード FS よりも低い Cl/H₂O 比を示すデータがあるが、酸素同位体交換反応の影響によるマグマ起源 H₂O の割合の過大評価によるものかもしれない。

九重火山では、噴気活動が比較的小規模であるので、脱ガスモードは closed システムであるとした。図 3.2-13 に示した各地下水のマグマ起源成分の C/Cl 及び Cl/H₂O 比と各脱ガスモード (MB, FB-closed 及び FS-closed)の比較を行い、それぞれの地下水の脱ガスモードを決定した。MB はなく、C/Cl 比=1 を FB と FS の境界とした。

地下水データから決定した脱ガスモードの空間分布を図 3.2-14 に示す。脱ガスモード FS は珪長質マグマの固化時に放出される熱水流体を、FB は珪長質マグマ生成に伴い放出される熱水流体をそれぞれ示すが、FS は九重火山の西部に広く分布し、FB は中央～東部に分布する。また、MB または FB と考えられる CO₂気泡を含む地下水は、東部に存在する。これは、西部が比較的古い珪長質の火山が存在し、中央～東部には比較的古い珪長質～苦鉄質の火山が存在することと調和的である。また、深部からの苦鉄質マグマの供給によると考えられる深部低周波地震の分布と CO₂の気泡の存在する範囲は共に九重火山東部にあり、ほぼ一致することから、CO₂は苦鉄質マグマから供給されたものである可能性がある。

地下水は、重力ポテンシャルにより流下するので、ある地下水により示される脱ガスモードはその地下水採取の場所の直下の情報を持つわけではなく、地下水流動経路の上流側の情報を持つと考えられる。したがって、特に九重火山のように火山体が複数ある場合は地下水の流下方向を考慮する必要がある。図 3.2-14 に、山体の地形に沿って流下する地下水流動の方向も示す。地下水の流れを踏まえて考えると、FS は西部の比較的古い珪長質の山体の下にあるマグマ溜まりを元にし、FB は中央部の火山の下のマグマ溜まり、そして MB は苦鉄質マグマ噴火により形成された東部の山体の直下のマグマ溜まりに由来するとして矛盾はない。

地下水は、いずれも半減期 12.3 年のトリチウムが検出されているうえ、ヘリウム同位体比が上部マントル値に近い非常に高い値を示しており、地殻内に滞留している間に蓄積される放射壊変起源の ⁴He が少ないことを示していることから地下水の平均滞留時間は数百年よりも短いと考えられる。比較的古い地下水流動を生じている系であるので、その地下水に混入するマグマ起源成分はほぼ現在のマグマ溜まりの状態を表しているものと考えられる。したがって、脱ガスモード分布の解釈により、九重火山では現在、1)九重火山西部の珪長質マグマ溜まりは固化しつつあり、新たなマグマ供給はないこと、2)中央部には珪長質マグマを生成しているマグマ溜まりが存在すること、3)東部には苦鉄質マグマの供給により苦鉄質マグマ溜まりが存在すると推定できる。さらに、この分布は過去 5 万年間の火山活動と一致することから、現在の火山活動もその延長にあると考えられる。

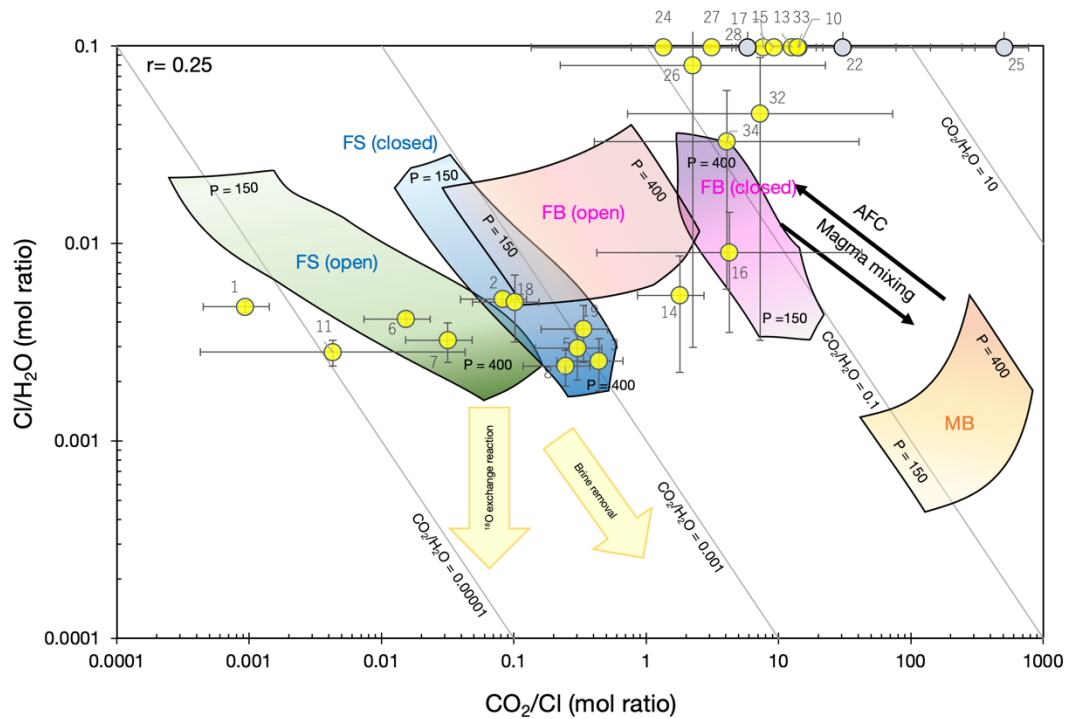


図 3.2-13 九重地域における地下水に含まれるマグマ成分の C/Cl 及び Cl/H₂O の計算結果
 灰色の○のデータは CO₂ 気泡を生じている地下水のデータで参考値。図 3.2-2 上にデータをプロットした。
 Cl/H₂O 比が決定できなかった地下水は最上段に C/Cl 比のみ示す。

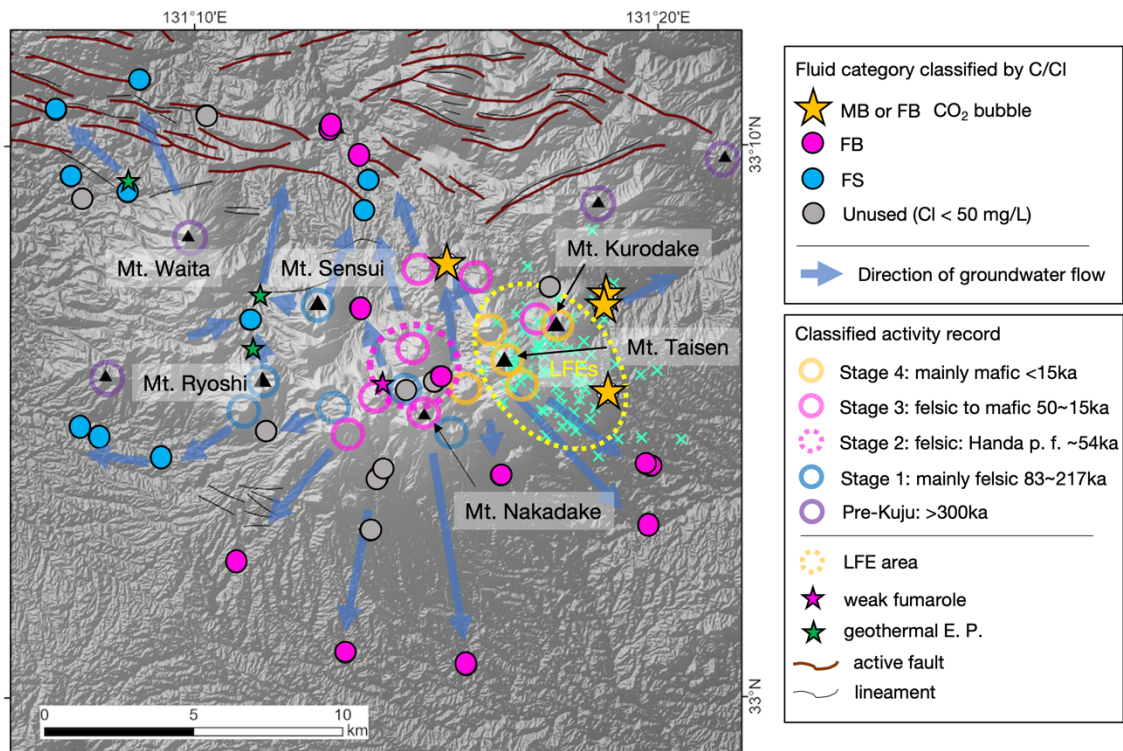


図 3.2-14 九重地域における地下水のマグマ成分により推定した脱ガスモードの空間分布
 CO₂ 気泡がある地下水を☆印で示した。また、地下水流動の方向を青い矢印で示した。地形データは基盤地図情報(国土地理院)、断層の情報は産総研地質調査総合センター(2015)による。

3-2) 阿蘇カルデラ

① 概要

阿蘇火山は約 30 万年前に活動を開始し、これまでに約 27 万年前の Aso-1 から約 9 万年前の ASO-4 までの 4 度のカルデラ噴火を起こしている。Aso-4 以降に現在のカルデラ地形ができており、中央火口丘群に多くの苦鉄質～珪長質の火山が生成している。現在も活動が続けている中岳は、活発な噴火活動とともに常時火山ガスを放出し続けている。

図 3.2-15 に阿蘇火山の活動履歴、深部低周波地震活動、地下水採取地点、 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比(Ra)を示す。カルデラ形成後にできた中央火口丘群は、層序から鬼界アカホヤ Ah(ca.7 ka)の前後及び始良 AT(ca. 30 ka)以前に区分される(小野・渡辺, 1985)。AT 以前に珪長質噴火があり(草千里火山, 本塚),その後は苦鉄質マグマ活動が中心となっている。深部低周波地震は中岳の東側に見られる。深部低周波地震は深度 11-28 km(平均深度 18 km)で生じており、地殻下部から供給される苦鉄質マグマの上昇と関連しているものと推定される(Yukutake et al., 2019)。地下水の採取は阿蘇カルデラ内にて行った。その際、火山ガスあるいは火道からの脱ガスの影響による熱水を排除するため、影響が推定された浅層地下水は除外し、深度 500 m 以上の井戸から採取された深層地下水及び深度不明でも火山ガスの影響のない地下水を用いた。ここで用いた深層地下水は合計 10 ヶ所で地下水試料は複数回採取した地下水試料を含めて総数が 13 試料である。地下水に溶存する $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比は 1.6–8.2 Ra である。 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比が高いものはウェッジマントルの値とほぼ同じ非常に高い値を示す。 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比が低い地下水については、後述するように平均滞留時間が長いこと地殻起源の ^4He が付加されたのが原因と考えられる。地下水に含まれるマグマ起源成分の C/Cl 及び Cl/H₂O を推定するため、各種分析・解析を行った結果を以下に示す。

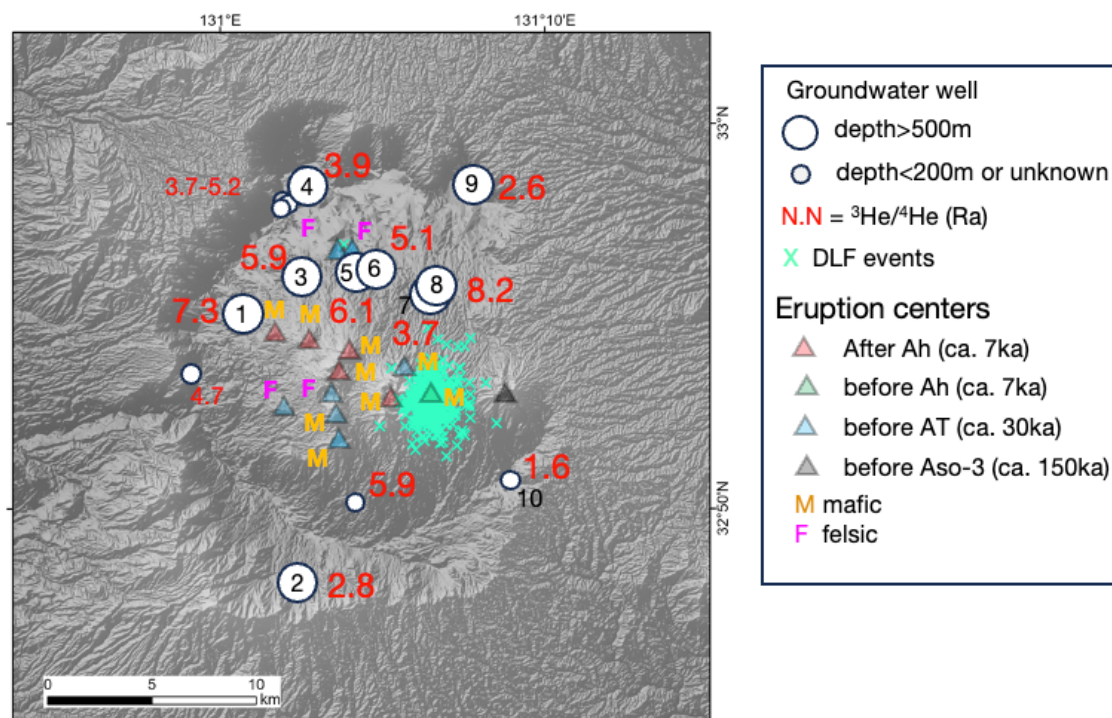


図 3.2-15 阿蘇カルデラ内の地下水採取位置図

第四紀火山の活動履歴(小野・渡辺, 1985), 深部低周波地震(気象庁一元化データ(1998-2021)による)及びヘリウム同位体比(Ra 値)を示した。地形データは基盤地図情報(国土地理院)による。

② マグマ起源 Cl

地下水の Cl 濃度は 5.3–334 mg/L の範囲にあった。また、比較のために採取した天水起源の湧水・地下水試料(35 試料)は、Cl 濃度が 1.3–3.1 mg/L であった。天水から供給される海塩起源の Cl は 3 mg/L 以下であることを示している。また、この地域は内陸であり地下水への海水の侵入は考慮しなくてよいため、地下水中の Cl は、Cl 濃度が十分に高いものについては大部分がマグマ起源であると考えられる。放射性塩素同位体比($^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比)は、4 地点の地下水試料で分析した結果、 $(0.8\text{--}1.2) \times 10^{-15}$ の範囲であった。もっとも高い $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比を示す試料にのみトリチウムが検出されたが非常に低い値で 0.085 TU であった。その他はいずれもトリチウムの検出限界(0.03 TU)以下であった。 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比は、約 100 万年で到達する放射平衡値($10^{-13}\text{--}10^{-14}$)に比べて十分に低く、カルデラ形成後から現在までに存在したマグマから放出された熱水流体のものであると考えられる。一方、マグマに含まれる Cl の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比は、地殻内にマグマが滞留している間に $^{35}\text{Cl}(\text{n},\gamma)^{36}\text{Cl}$ 反応により生成される ^{36}Cl が ^{36}Cl の放射壊変量を上回るため、マグマ溜まりの形成から時間の経過とともに上昇する。このため、地下水の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比を用いて、珪長質マグマ溜まりの形成・成長の時間スケールに制約を与えることができる。3.2 章 3-2 節⑥にて検討した結果を示す。

Cl は微量ながら火山性の地層から溶出することも考えられるため、当該地域の地下水で Cl 濃度が 50 mg/L より高いものについて、C/Cl および Cl/H₂O 比の推定に用いることにする。50 mg/L 以下のものについても海塩起源の Cl 濃度(3 mg/L)よりも高い場合は、Cl 濃度の最大値として取り扱う。

③ マグマ起源 DIC

図 3.2-16 に DIC の $\delta^{13}\text{C}$ を用いてマグマ起源 DIC 濃度(DIC_c)と地下水の ^3He 濃度を用いて DIC 濃度(DIC_h)を比較した結果を示す。マグマ起源 DIC 濃度は、最大でも 20mmol/L 程度であって、非常に小さなバリエーションを示し、濃度範囲が広い九重火山(図 3.2-11)とは対照的である。また、DIC_c と DIC_h は比較的良い相関を示していることから、九重火山の時と同様に 3.2 章(2)で述べた炭酸塩の沈澱などの影響がほばないものと考えられる。地下水の pH は中性～弱アルカリ性であり、DIC はほぼ HCO₃⁻で構成されていることがわかっている。全ての地下水に ^3He のデータがあるので、DIC_h 濃度をマグマ起源 DIC 濃度として用いる。

④ マグマ起源 H₂O

図 3.2-17 に阿蘇火山における地下水の同位体比を示す。Cl 濃度が 5 mg/L 以下の湧水・浅層地下水を用いて、天水線(MWL)の範囲を決定した。その結果、全ての深層地下水が天水線の範囲内に収まった。したがって、マグマ起源水の寄与は水の同位体比から決定できるほど大きくないことがわかる。さらに、深層地下水(深さ 500 m 以上)は、天水線の間にあるものの現在の湧水・浅層地下水の同位体比と比較して低い同位体比を持つ。これは、地下水の平均滞留時間が長く涵養時期が寒冷期(氷期)である可能性がある。この点については、次節で検討する。阿蘇カルデラの地下水では、マグマ起源 H₂O の割合を求めることができなかったため、Cl/H₂O 比は決定できない。したがって、C/Cl 比のみが利用可能である。

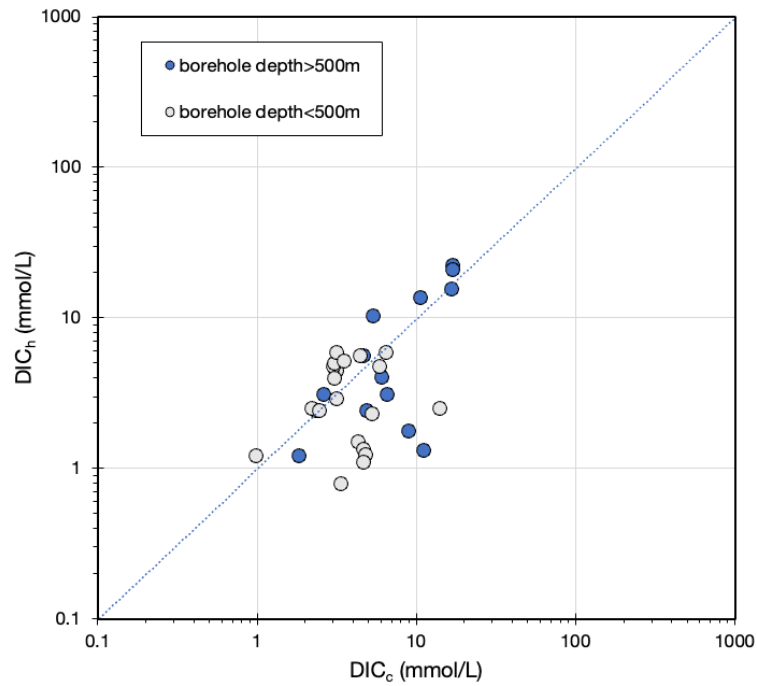


図 3.2-16 阿蘇カルデラにおける地下水中のマグマ起源 DIC 濃度の推定手法 (DIC_h 及び DIC_c) の比較

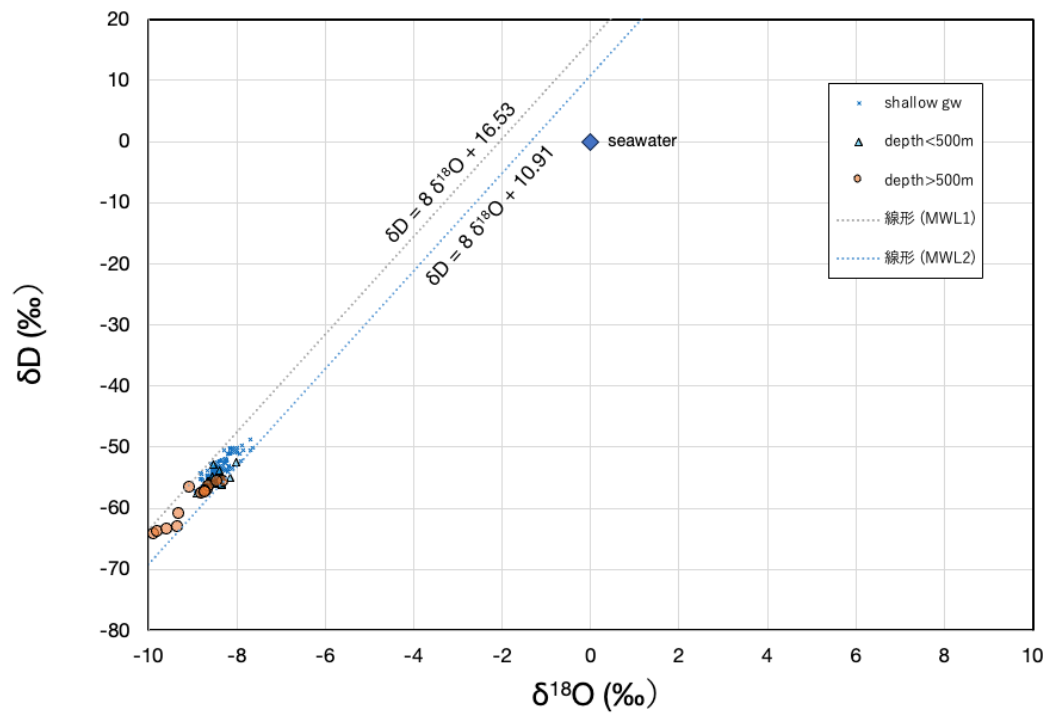


図 3.2-17 阿蘇カルデラにおける地下水の酸素・水素同位体比

天水起源の領域は、 $\text{Cl} < 5\text{mg/L}$ の湧水、地下水を用いて決定した。阿蘇カルデラの地下水は二つの天水線に囲まれた範囲内にある。

⑤ C/Cl-Cl/H₂O 法の適用

Kawaguchi et al. (2022)は、阿蘇火山に供給された苦鉄質マグマの初期 H₂O, Cl 含有量についてメルト包有物の研究によりそれぞれ 5.75wt%, 0.074wt%と推定している。図 3.2-18 は、脱ガスモードによる熱水組成範囲は図 3.2-4 のものと同じであり、火道上部において脱ガスした苦鉄質マグマが下降し、上昇するマグマと混合した苦鉄質マグマが AFC 課程により珪長質マグマを生成するモデルを用いて脱ガスモードの組成範囲を示している。図 3.2-18 に示したそれぞれの脱ガスモードを求める際に用いた苦鉄質マグマの揮発物質の初期組成は、Kawaguchi et al. (2022) による初期組成に近いそれぞれ H₂O = 5wt%, CO₂ = 0.7wt%, Cl = 0.07wt%としている。阿蘇火山のマグマ溜まりの深さはASO-4噴火時で12 km より深く (Miyagi et al., 2023), Abe et al.(2017) によると、現在、15.5km の深さでシル状のマグマ溜まりがあるとしている。したがって、ここではマグマ溜まりの圧力が 300–400 MPa (深度：12–16km)の脱ガスモード(FB, FS)を採用する。阿蘇火山のマグマ溜まりのモデルを図 3.2-19 に示す。珪長質マグマの噴出がカルデラ内の北および西部にあることから、深部低周波地震域において上昇した苦鉄質マグマは中岳の火道上部で脱ガス・沈降し、深さ 12 km 以深で北西側にシル状に広がり、珪長質マグマを生成するというモデルである。

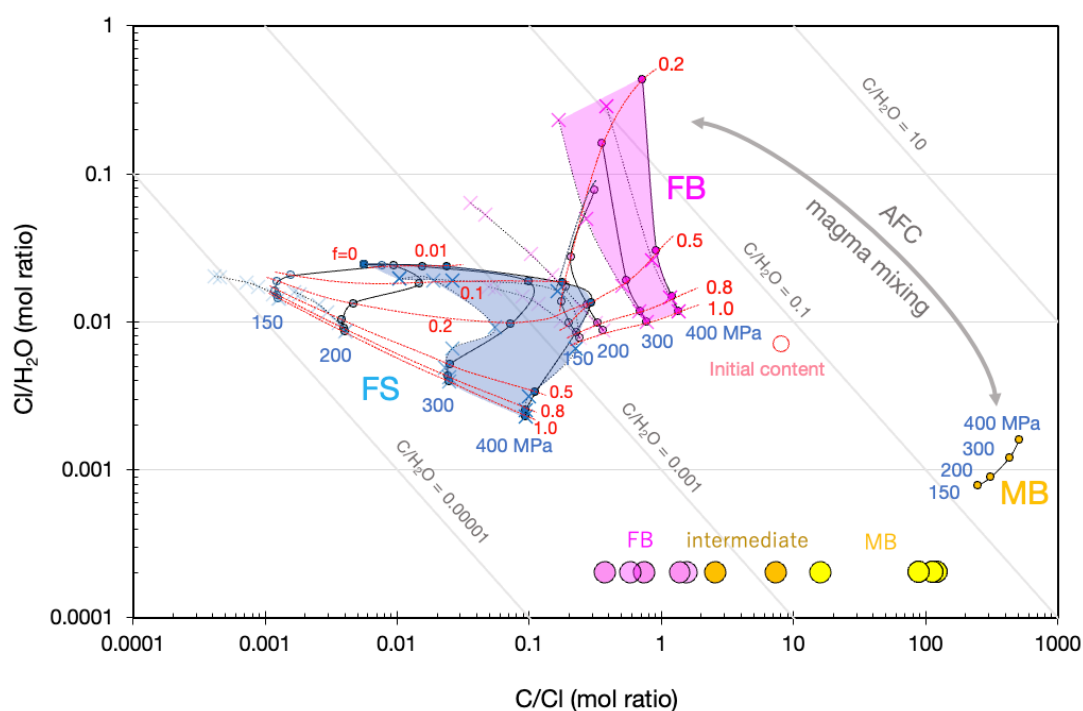


図 3.2-18 阿蘇カルデラにおける地下水に含まれるマグマ成分の C/Cl 及び Cl/H₂O の計算結果
Cl/H₂O 比が決定できなかったため、C/Cl 比のみを示す。図 3.2-4 上にデータをプロットした。使用する脱ガスモードの範囲は 300–400 MPa とした。

では、現在よりも海面が約 120 m 低かったため、深層地下水の流動は活発であったが、その後の海面上昇により深層地下水が停滞したことで説明可能である。最終氷期に涵養されたとすれば 2 万年以前になる。したがって、カルデラ南部の地下水 No. 2, 10 及び北東部の No. 9 は、少なくとも約 2 万年前から現在までに供給されたマグマ起源成分が蓄積されていると考えられる。一方、No. 1 と 8 の地下水は、 $\text{rad-}^4\text{He}$ 濃度が非常に低く平均滞留時間が短いと考えられるため、最近のマグマ活動のみ反映しているものと考えられる。No.4~7 の地下水は、上述の地下水の中間にあるので過去数千年間の活動を反映していると推定できる。なお、No.3 の地下水には、微量のトリチウム(0.09 TU)が検出されているので、浅層地下水が混入していると考えられる。

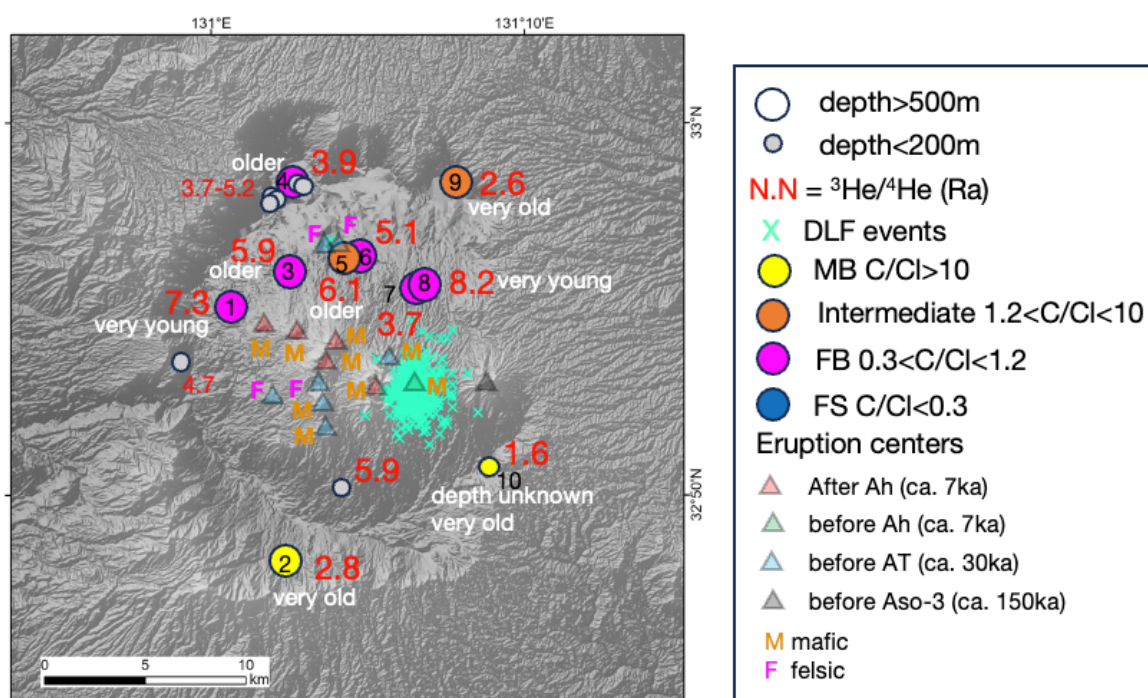


図 3.2-20 阿蘇カルデラにおける地下水のマグマ成分により推定した脱ガスモードの空間分布
図 3.2-15 上にプロットした。地形データは基盤地図情報(国土地理院)による。

阿蘇カルデラ内の深層地下水は、その同位体比からは天水で説明可能な範囲にあり、マグマ水の混入は微少である。また、溶存している成分も九重火山に比較して少ない。さらに、この深層地下水はその滞留時間が非常に短い九重火山地域に比べて長いので、地下水系へのマグマ起源成分の流入フラックスは非常に小さいはずである。この原因は、マグマによってもたらされる熱水成分のほとんどが、火山ガスや火道上部から放出されるためではないかと考えられる。図 3.2-18 に示したように、阿蘇火山のような火山ガスを活発に放出する火山では、火道上部で脱ガスした苦鉄質マグマを基にして珪長質マグマが生成される。図 3.2-18 に示すように火道上部の 10 MPa の圧力で脱ガスした下降マグマに混入する上昇マグマの混入率が 0.2 以上にならないと AFC により生成された珪長質マグマは発泡しないことも重要な点である。珪長質マグマが仮に発泡したとしても、飽和するガス量は九重火山のような closed システムの火山に比べると非常に小さいは

ずである。以上より、阿蘇カルデラの深層地下水に含まれるマグマ起源成分が少ないのは、下部地殻から供給される苦鉄質マグマに含まれるガス種の大部分が山頂から火山ガスとして放出されるためである。

次に、地下水の滞留時間を含めて脱ガスモードと火山活動の関係を考察する。中央火口丘群の珪長質マグマ活動はカルデラの北部～西部にあるが約3万年よりも古い(図3.2-20)こと、及び、カルデラ内の北部地域において滞留時間が短いあるいは数千年程度～の地下水(No. 1, 3, 4, 6, 7, 8)にFB熱水が含まれることから、FB熱水を放出する珪長質のマグマ溜まりが中央火口丘北部～北西部に生成していることを示唆する。また、カルデラ南部の深層地下水(No. 2, 10)は、脱ガスモードが苦鉄質マグマの発泡によるMB熱水となっており、北部で見られるFB熱水はない。苦鉄質マグマの供給により生じていると考えられる深部低周波地震の分布も南東部にあり空間的に整合的である。さらに、この深層地下水は氷期すなわち約2万年前に涵養された地下水と考えられるため、長期に渡りFB熱水が供給されていないことを示している。すなわちカルデラ南部では、少なくとも2万年間にわたり苦鉄質マグマの影響のみが見られ、珪長質のマグマ活動の痕跡がないことになる。これは、カルデラ南東部において珪長質マグマ活動がないことと整合的である。

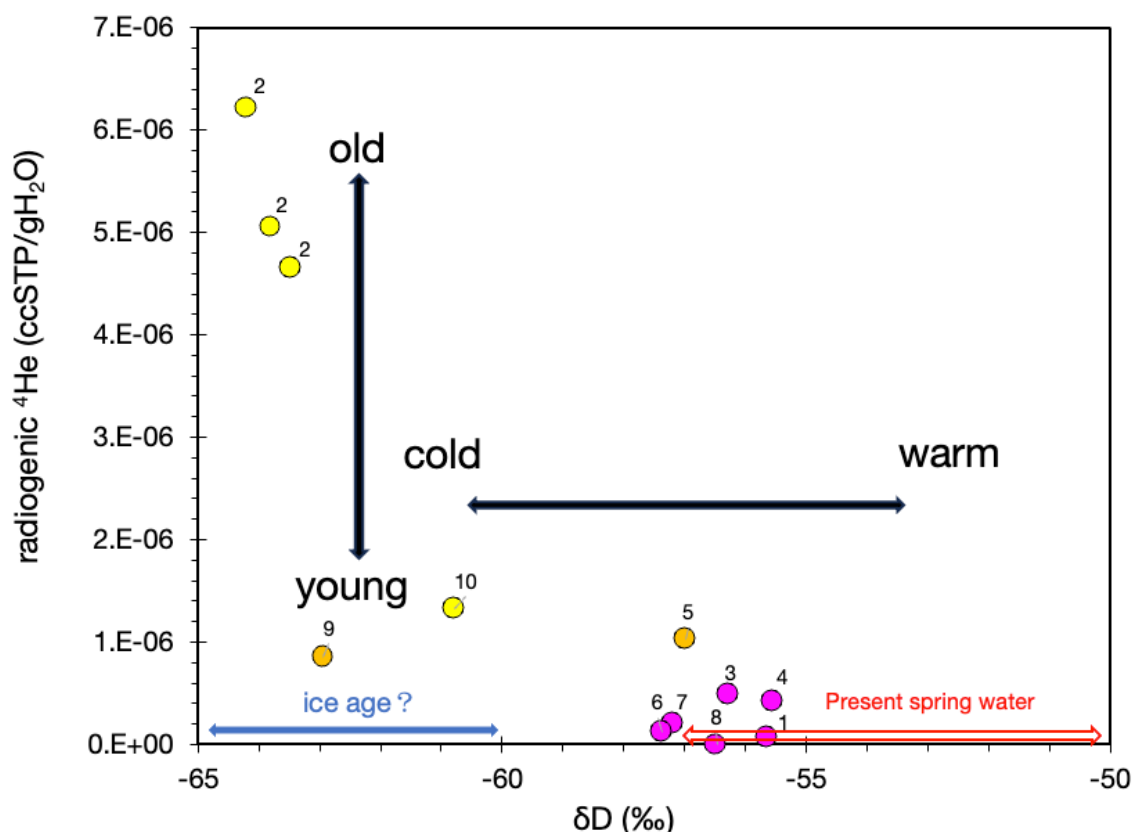


図3.2-21 阿蘇カルデラにおける深層地下水の δD と放射壊変起源の ^4He 濃度 ($\text{rad-}^4\text{He}$) の関係
各地下水データは、C/Cl 比により決定した脱ガスモードを色分けして表示した(●: MB, ●: intermediate, ●: FB)。また、地下水の年代(滞留時間)や気候(温暖・寒冷)による変化方向を示した。

⑥ $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比による珪長質マグマ溜まりの形成・成長の時間的制約

放射性塩素同位体(^{36}Cl)による地下水滞留時間の推定をマグマの滞留に応用すると $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比はマグマの組成・地殻内の滞留に応じた変化を示す。地下水中の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比の代わりにマグマ中の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比を置くと滞留時間は以下の関数として表される：

$$t = -\frac{1}{\lambda} \ln \frac{R_e - R_{mag}}{R_e - R_i} \quad (3.2-19)$$

(3.2-19)式より、マグマ中の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ の経時変化は、

$$R_{mag} = R_e - (R_e - R_i)e^{-\lambda t} \quad (3.2-20)$$

となる。ここで、 λ は ^{36}Cl の壊変定数($2.30 \times 10^{-6} \text{ yr}^{-1}$)、 R_e , R_{mag} , R_i はそれぞれ $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 放射平衡値、現在のマグマ中の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比、マグマ起源 Cl の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比の初期値を示す。放射平衡値は岩石・流体の化学組成、特に U・Th 濃度に依存する(Snyder and Fabryka-Martin, 2007)。

マグマ起源 Cl の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比の初期値は DMM (depleted MORBs mantle) の U・Th の濃度(3.2 ppb・7.9 ppb)を考慮に入れて、最小値として 5×10^{-17} と見積もられている(産総研深部地質環境研究コア, 2013)。また、珪長質マグマの $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 放射平衡値は、日本島弧の流紋岩の主要元素、Li・U・Th・REE 等より $2.2 \pm 0.8 \times 10^{-14}$ と計算される(産総研, 2019)。マグマの $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 初期値と珪長質マグマの $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 放射平衡値および(3.2-20)式より、マグマの滞留とともに $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比は高くなることがわかる。

産総研(2020)では、上記の放射平衡値およびマグマ中の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 初期値を用いて、マグマの $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比の時間変化が苦鉄質と、珪長質マグマによってどの程度異なるかを計算した。阿蘇カルデラにおける前回のカルデラ噴火が約 9 万年であることをふまえ、現在から 9 万年前に新たにマグマが供給された場合に現在のマグマ中の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比が取り得る値を示した。苦鉄質マグマ中の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比は 6.7×10^{-16} (放射平衡値の誤差を考慮にいと $1.2 \sim 11.0 \times 10^{-16}$ の範囲をとる)まで上昇する計算となり、珪長質マグマが 9 万年経過すると $4.2 \pm 1.4 \times 10^{-15}$ となり、珪長質マグマの方が $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比が高くなる傾向となる。ただし、実際には、上部マントルにおいて生成された初生マグマはいったん下部地殻内に滞留し、そこから連続的にマグマ溜りに供給されと考えられる。初生マグマが数万年程度地殻下部に滞留し、そこから苦鉄質マグマが上昇し、マグマ溜りに連続的に供給され、その後珪長質に変化した場合のモデル計算結果を示す(図 3.2-22)。モデル計算結果と阿蘇カルデラ内の深層地下水の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比を比較した結果、深層地下水の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比は苦鉄質マグマの進化曲線の範囲内あるいは、珪長質マグマであってもその成長期間は比較的短いと考えられ、大規模な珪長質マグマの形成は考えにくい。このように、マグマに含まれる Cl の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比は、マグマ溜まり形成から時間の経過とともに上昇するため、地下水の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比を用いたモデルにより、マグマ溜まりの種別・成長の時間スケールに制約を与えることができる。

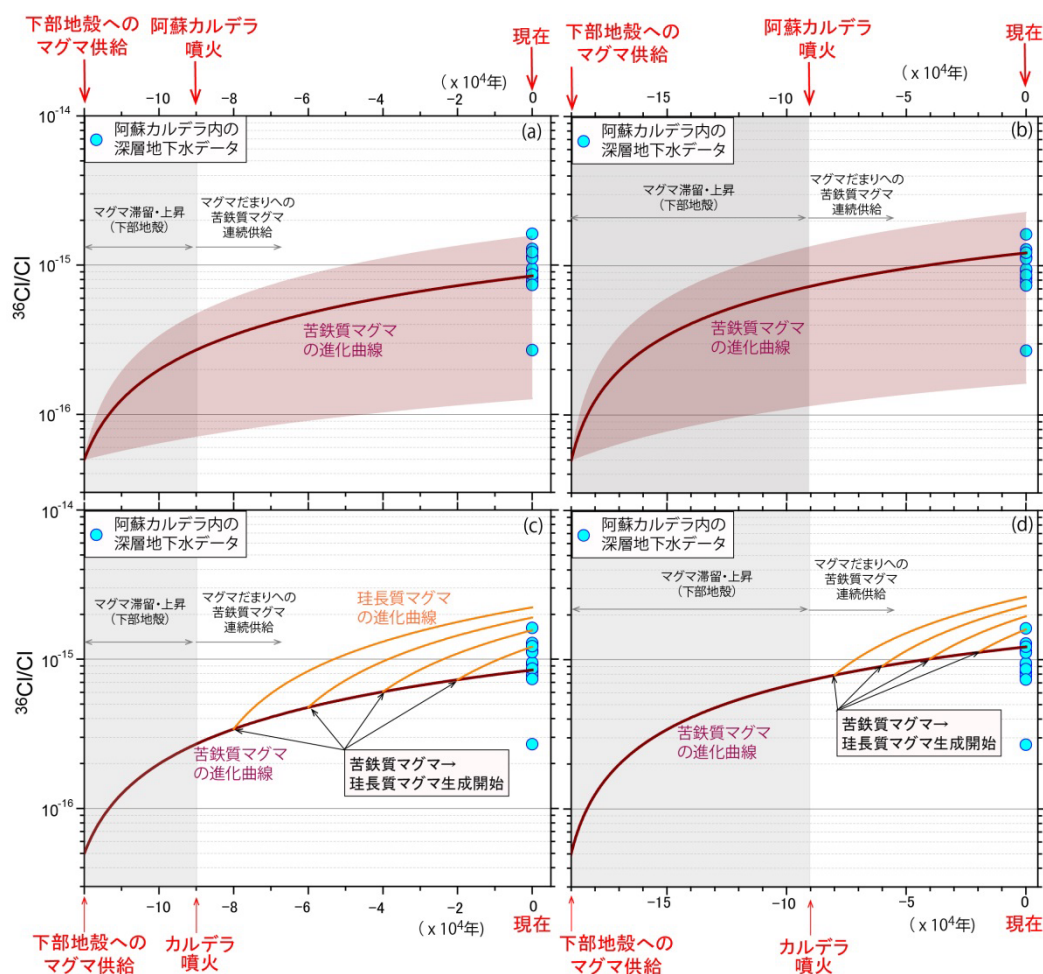


図 3.2-22 苦鉄質および珪長質マグマ滞留中の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ の進化曲線 (産総研, 2019)

阿蘇火山において、下部地殻において初生マグマが滞留し、そこから約 9 万年前のカルデラ噴火後に連続的にマグマ溜りに苦鉄質マグマが供給された場合の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ の進化図。(a) では下部地殻におけるマグマ滞留の期間を 3 万年とした場合、(b) 下部地殻におけるマグマ滞留の期間を 10 万年とした場合のモデル計算を新たに行った。(c)、(d) では(a)、(b)のモデルに加え、珪長質マグマが生成された場合のモデル進化図(産総研, 2018)。珪長質マグマの生成とともに、連続的に $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ の低い苦鉄質マグマの供給を考慮に入れた計算を行っている。

3-3) 十和田カルデラ

① 概要

図 3.2-23 に十和田火山及びその周辺部の第四紀カルデラ分布、深部低周波地震、地下水の採取地点を示す。十和田火山は約 20 万年前から活動を開始し、現在の十和田湖を形成するカルデラ噴火は 15.5 ka である(西来ほか, 2012)。カルデラ形成後は、主に十和田湖内の中湖において、苦鉄質～珪長質の噴火を何度も起こしている。最も新しい噴火は AD915 年に中湖を給源とする軽石・火砕流噴火で噴出量は約 5.3 km³ とされる(広井ほか, 2015)。Nakatani et al. (2022)によると、カルデラ噴火(36 ka および 15.5 ka)直前に存在していたマグマ溜まりは実験岩石学的に 850°C、150–170 MPa(すなわち深度 6–7 km)であったと推定している。

十和田カルデラの北西に沖浦カルデラ(1.5 Ma)、碓ヶ関カルデラ(2.4–1.4 Ma)がある。北に八甲田火山があり、強酸性の熱水・火山ガスを放出している。十和田火山は、十和田湖周辺に熱水変質の痕跡があり、現在中湖の湖底から熱水が放出されていると考えられるが地表の噴気活動はない。深部低周波地震は十和田湖の南東部(深度 23–33 km ; 平均 27 km)、及び、十和田湖から約 15 km 西の小坂(16–27 km ; 平均 20 km)において多数観測される(高橋・宮村, 2009)。

地下水の採取は十和田カルデラ周辺で行ったが、図 3.2-23 に示した地点は、DIC_h 濃度を求めるのに必要なヘリウム同位体の分析ができた点のみ示している。十和田カルデラ内では、中湖湖底から湧出するマグマ起源熱水成分を推定するため十和田湖の湖水を 6 ケ所で採取した。また、図中に $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比 (Ra 値) を赤字で示した。小坂深部低周波地震域の近傍は 6.5–7.5 Ra であり非常に高い。古い沖浦カルデラ、碓ヶ関カルデラの周辺では 3.2–4.1 である。 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比の違いについては、 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比とともに、地下水の年代と関係がある。詳しくは後述する。

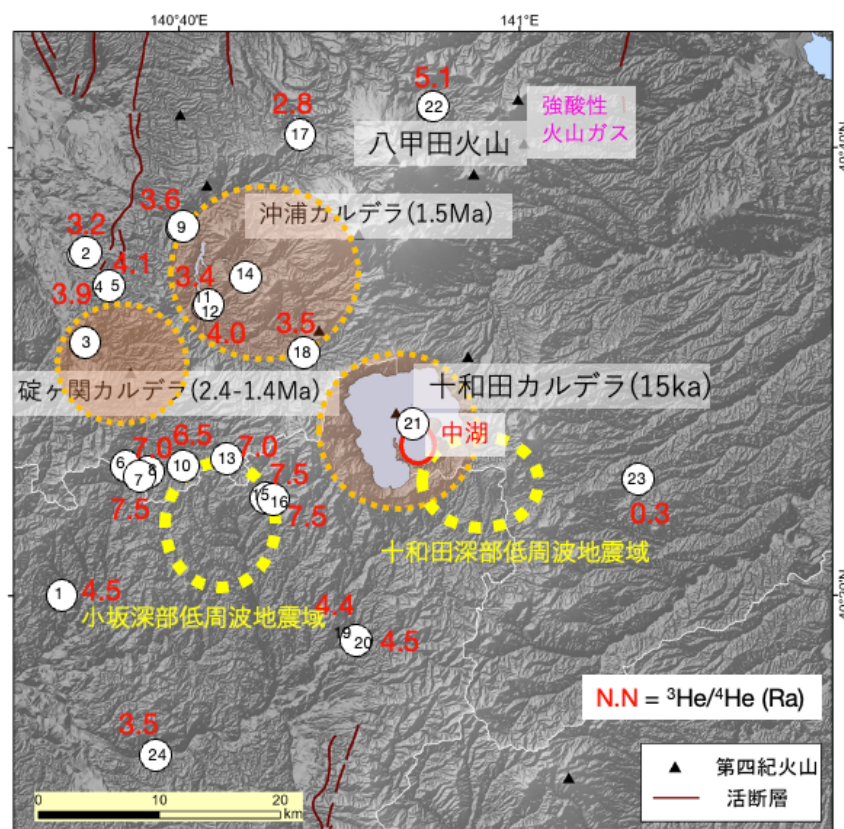


図 3.2-23 十和田カルデラ周辺の地下水採取位置図

深部低周波地震の範囲(高橋・宮村, 2009)及びヘリウム同位体比 (Ra 値) を示した。第四紀火山の位置及び活動履歴は(西来ほか, 2012)による。断層の情報は産総研地質調査総合センター(2015)による。地形データは基盤地図情報(国土地理院)による。

② マグマ起源 Cl

地下水の Cl 濃度は 67–5000 mg/L の範囲にあった。また、比較のために採取した天水起源の湧水・地下水試料(29 試料)は、Cl 濃度が 10 mg/L 以下であった。天水から供給される海塩起源

の Cl は河川水等の分析により約 5 mg/L である．本地域の地下水には，マグマ水以外にも海水，有機物を含む古海水起源の塩水が含まれるため，3.2 章 2-4 節①に述べた Cl, Br および I を用いた手法により，Cl の起源分離を行いマグマ起源の Cl の割合を求めた(図 3.2-6 参照)．

② マグマ起源 DIC

十和田カルデラのある東北日本弧では，地下にグリーントフ層が厚く堆積している．3.2 章 2-3 節④で述べたように，グリーントフ層内では，CO₂ は炭酸塩として沈澱するため Ohwada et al. (2007)の手法により評価した．図 3.2-24a に DIC/³He 比と δ¹³C の関係を示す．火山から放出される熱水流体の炭素種は，海成炭酸塩，有機物およびマントルに含まれる炭素である(Sano and Marty, 1995)．これら 3 種の混合のみでマグマ起源炭素種が地下水に溶解しているならば，これらの混合範囲内にプロットされ，DIC/³He 比は MORB よりも下にはいかない．十和田カルデラの周辺の地下水は DIC/³He 比が非常に低いものがあり，これは CO₂ が炭酸塩として沈澱した結果であると考えられる．図 3.2-24b に，δ¹³C を用いて求めたマグマ起源 DIC 濃度(DIC_c)と地下水の ³He 濃度を用いて DIC 濃度(DIC_h)を比較した結果を示す．マグマ起源 DIC 濃度の範囲は，3 桁以上の非常に大きなバリエーションを示し，九重火山の場合と同様であった．また，DIC_c と DIC_h の相関はあるものの約 2 桁 DIC_c の方が DIC_h よりも低くなっていることがわかる．したがって，十和田カルデラ地域では，³He のデータがある地下水についてのみ扱い，DIC_h 濃度をマグマ起源 DIC 濃度として用いる．

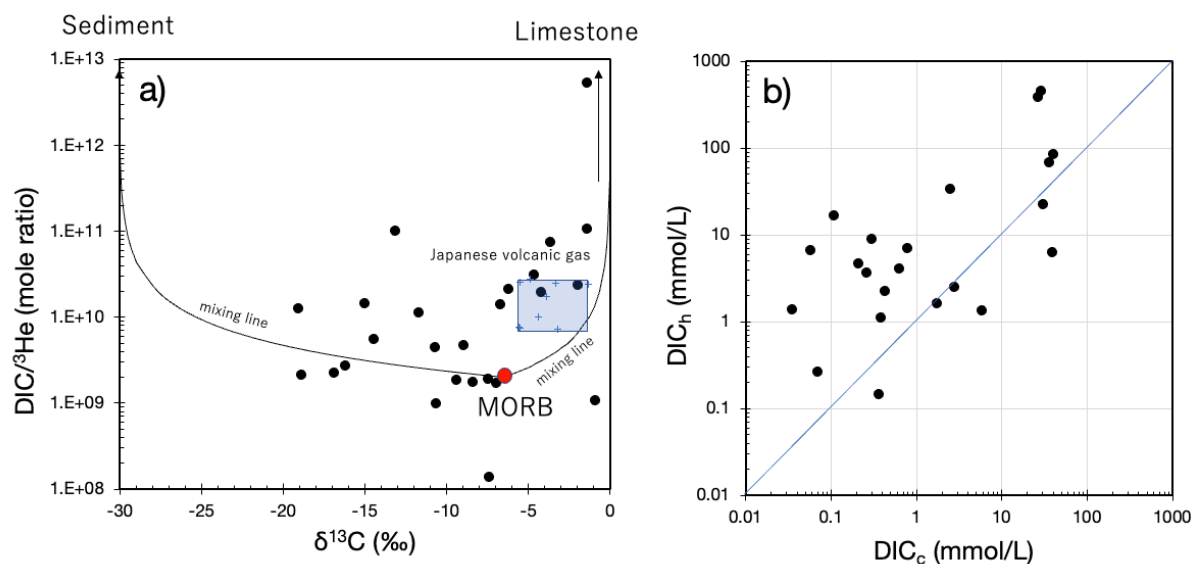


図 3.2-24 十和田カルデラ周辺の地下水の DIC に関する結果

a) DIC/³He 比と DIC の δ¹³C の関係(元図は Sano and Marty, 1995 による)．b) 地下水中のマグマ起源 DIC 濃度の推定手法(DIC_h 及び DIC_c)の比較．

③ マグマ起源 H₂O

図 3.2-25a に十和田カルデラ周辺における地下水の同位体比を示す．Cl 濃度が 10 mg/L 以下の湧水・浅層地下水を用いて，天水線(MWL)の範囲を決定した．その結果，多くの深層地下水が

天水線の範囲内に収まっているが、一部の Cl 濃度の高い地下水は海水あるいはマグマ水と混合していることがわかる。前節で述べたように Cl の起源分離をおこなっているため、海水、古海水成分（Cl 濃度と同位体比は同じと仮定）の割合を用いて、これらの海水成分を除去した。図 3.2-25b に、除去後の水の同位体比と Cl 濃度（○の大きさ）をプロットした。その結果、天水領域からはみ出した水は、マグマ水と天水の単純混合の領域にはいることがわかる。この混合関係を用いて、マグマ起源 H₂O の割合を求めた。

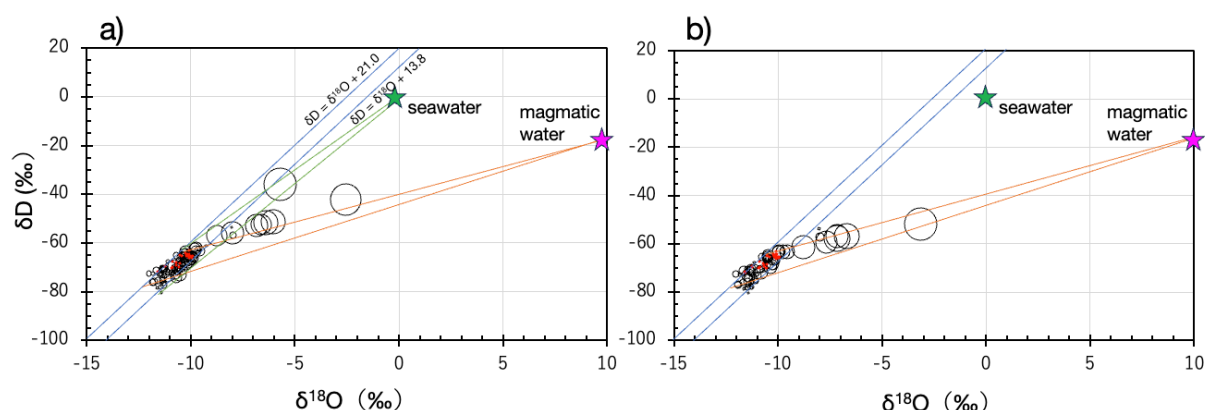


図 3.2-25 十和田カルデラ周辺における地下水の酸素・水素同位体比の関係

a) 天水起源の領域は、Cl<10mg/L の湧水，地下水を用いて決定した。○の大きさは Cl 濃度の大きさを示す。十和田カルデラの地下水は天水の範囲，海水及びマグマ水の混合範囲内にある。b) Cl-Br-I の関係を利用して求めた地下水中の海水起源 Cl の割合を用いて，海水成分を除去した後の水の同位体比。海水成分除去後は天水領域とマグマ水の単純混合の関係にある。

⑤ C/Cl-Cl/H₂O 法の適用

十和田火山においては，苦鉄質マグマの揮発成分含有量が不明なので，九重火山と同じく日本の火山の範囲である H₂O = 4–6 wt%，CO₂ = 0.3–0.7 wt%，および Cl = 0.05–0.15 wt%とした。Nakatani et al. (2022)によると，カルデラ噴火前のマグマ溜まりの圧力は150–170 MPaである。しかし，今回の調査範囲は比較的広く，十和田火山以外の古いカルデラや噴火履歴がない小坂深部低周波地震域においてもマグマ起源熱水の成分が地下水から検出されている。これらについては，そもそもマグマ溜まりがあるのかどうかを含め，圧力は不明である。したがって，図 3.2-26 に示した脱ガスモードはマグマ溜まりの圧力 150–400 MPa に対応した領域で地下水との比較を行う。脱ガスモードはそれぞれ MB については C/Cl > 30，FB は C/Cl 比(1 < C/Cl < 30)とし，FS は C/Cl < 1 とした。

前節で求めたマグマ起源の Cl，DIC 濃度およびマグマ起源 H₂O の割合を用いて，地下水に含まれるマグマ成分の C/Cl および Cl/H₂O 比を計算した結果を図 3.2-26 に示す。十和田火山では，C/Cl 比は 22 地点，Cl/H₂O 比は 3 地点について求めることができた。Cl/H₂O を求めることができなかった地点については，図 3.2-26 の上部に C/Cl 比の値のみ用いてプロットしている。C/Cl の範囲は 0.07 から 18 の範囲であった。Cl/H₂O が求められた 3 地点のうちひとつは，脱ガスモ

ードの範囲を大きくはずれてプロットされている。この場所は古い碓ヶ関カルデラの近傍にあり、 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比も高くないため、長期間帯水層に停滞し岩石と酸素同位体交換反応を起こした可能性がある。地下水のデータを各脱ガスモードに対応させた結果、十和田カルデラの周辺では、FB と FS のみであった。なお、カルデラ内の唯一の調査地点である十和田湖水(6ヶ所)から求められた C/Cl 比は 2.9 ± 0.2 であり、脱ガスモードは FB(珪長質マグマの生成)となる。カルデラ噴火後に珪長質マグマ噴火を繰り返していることと整合的である(産総研, 2023)。

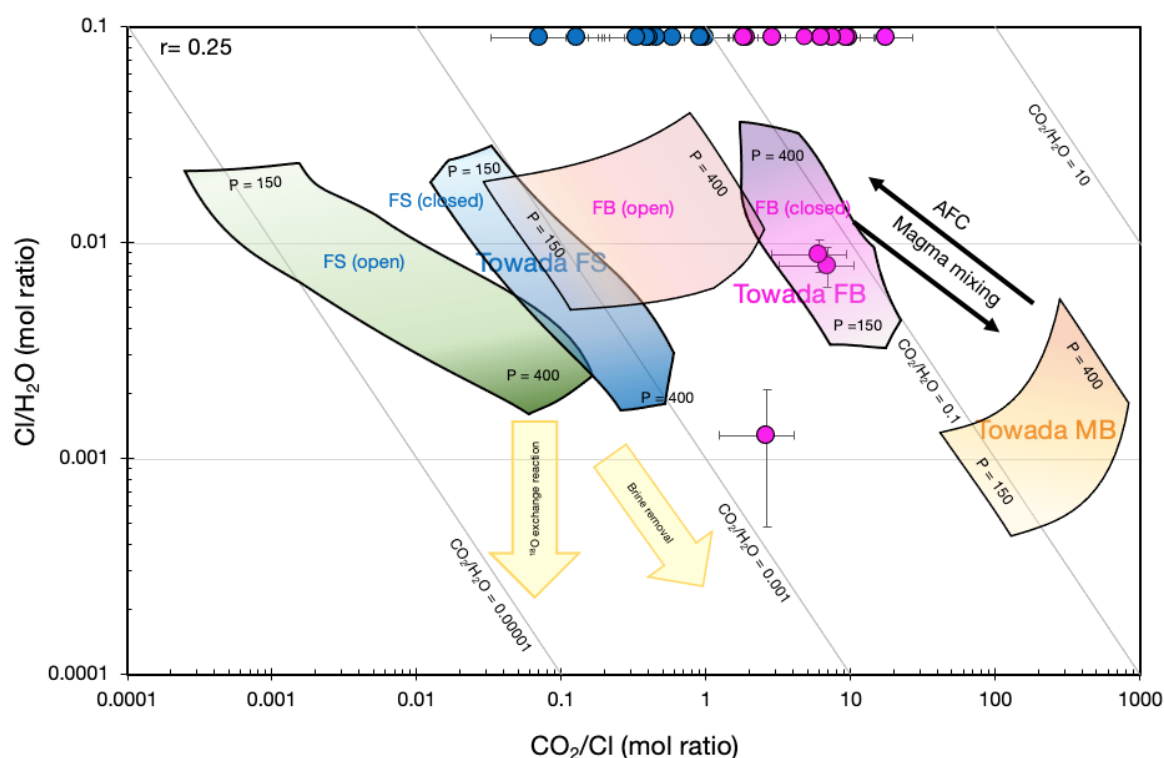


図 3.2-26 十和田カルデラ地域における地下水に含まれるマグマ成分の C/Cl 及び Cl/H₂O の計算結果

図 3.2-2 上にデータをプロットした。Cl/H₂O 比が決定できなかった地下水は最上段に C/Cl 比のみ示す。

次に、脱ガスモードの空間分布を図 3.2-27 に示す。空間分布の特徴として、十和田火山の北西～西側の古いカルデラ地域と小坂深部低周波地震域において脱ガスモード FB(珪長質マグマ生成)がみられた。東側では FS(マグマ固化)であった。ただし、小坂深部低周波地震域では、CO₂ 気泡を生じる温泉水が 3ヶ所あり、いずれも FB であった。九重火山の事例で議論したように CO₂ 気泡を生じるのは FB(closed)もしくは MB である。また、 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比も非常に高いため、フレッシュなマグマ起源熱水が供給されている地域であり、深部低周波地震との関連が考えられる。この地域は噴火履歴のない場所であり、現在、苦鉄質のマグマ供給に伴い、珪長質マグマが生成している可能性がある。

一方、十和田火山の北西にある 2つの古いカルデラ周辺においても FB がみついている。十和田湖畔、八甲田火山山麓の深層地下水および十和田カルデラより南西約 10 km 地点の湧水の

$^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比は比較的低い値($1.5\text{--}2.5 \times 10^{-15}$)を示すのに対し、これらの地域は一地点を除き、高い値を示している($6\text{--}9 \times 10^{-15}$; 図 3.2-28). また、 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比は、マントル起源のヘリウムを含むものの $3\text{--}4\text{ Ra}$ (大気成分の影響を取り除いた **corrected Ra 値**)とやや低い値を示している(図 3.2-29). これは、十和田カルデラより南西約 10 km 地点の湧水や、約 20 km 西方の温泉などでは $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比は 7 Ra 以上とほぼマントル値に近い値を示していたり、八甲田北麓の深層地下水もそれほどではないが高い値($5.1\text{--}5.8\text{ Ra}$)を示していたりすることとは対照的である. 高い $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比および低い $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比を示す地点はマグマが供給されてからの経過時間が長い可能性が考えられる. 十和田火山の北西にある 2 つの古いカルデラ周辺の高い $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比は流紋岩質マグマ組成の放射平衡値($2.2 \pm 0.8 \times 10^{-14}$; 産総研, 2019)よりも低いものの、数十万年程度の滞留時間に相当する.

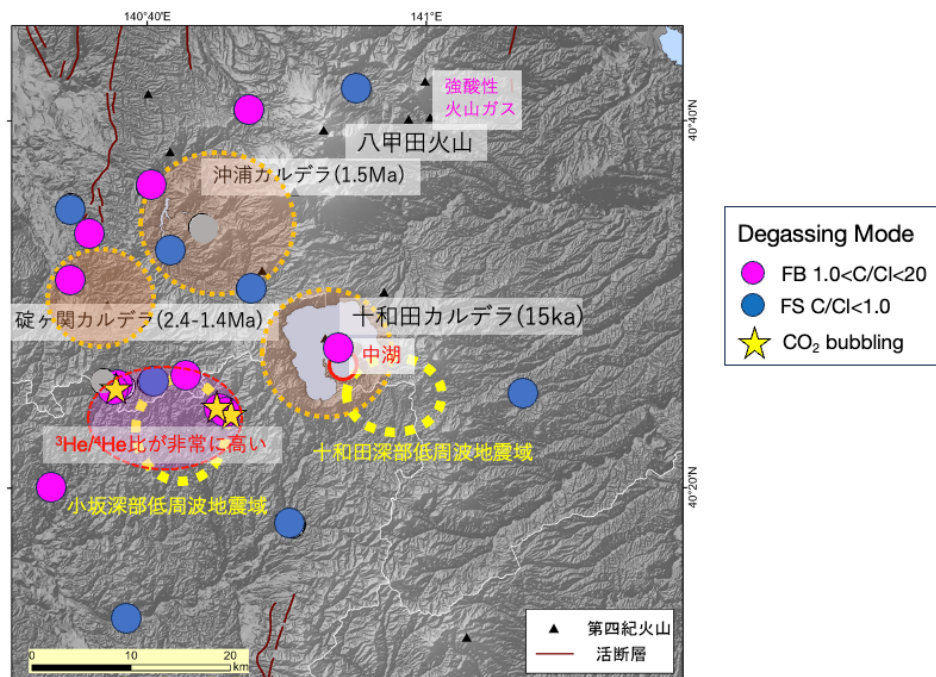


図 3. 2-27 十和田カルデラ周辺における地下水のマグマ成分により推定した脱ガスモードの空間分布

図 3. 2-23 上にプロットした. 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)による. 地形データは基盤地図情報(国土地理院)による.

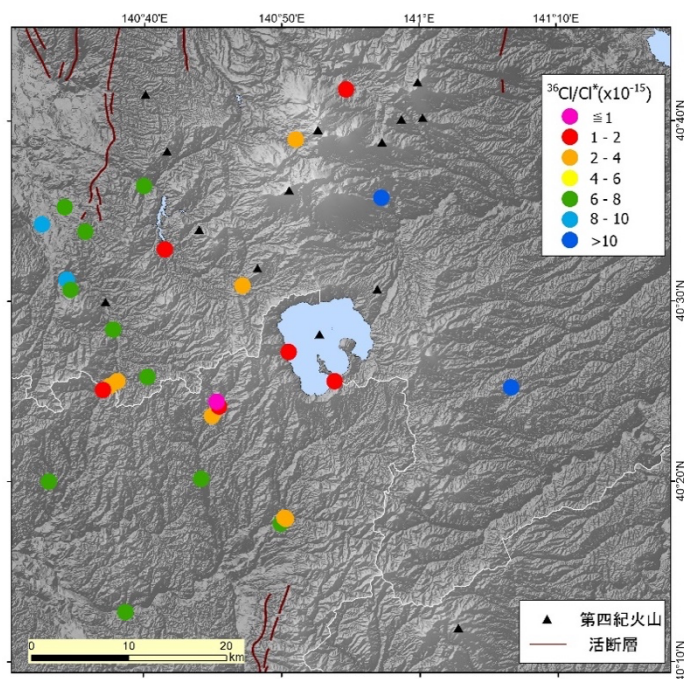


図 3.2-28 十和田カルデラ周辺における深層地下水の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 補正值 ($^{36}\text{Cl}/\text{Cl}^*$) の地域分布
断層の情報は産総研地質調査総合センター(2015), 第四紀火山は西来ほか(2012)による. 地形データは基盤地図
情報(国土地理院)による.

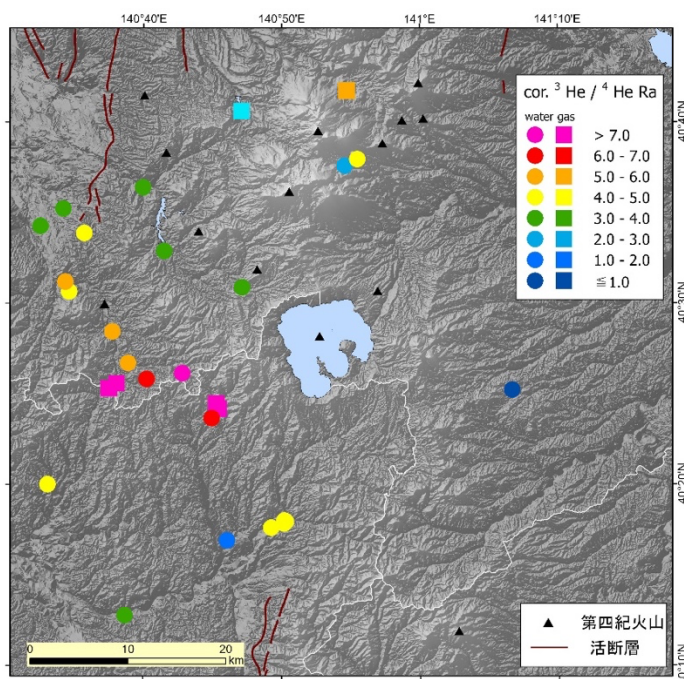


図 3.2-29 十和田カルデラ周辺における深層地下水の $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比の地域分布
凡例の色は $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比(大気成分の影響を取り除いた corrected Ra 値)を示し, ■は遊離ガスのヘリウム, ●は深
層地下水溶存ガスのデータを示している. なお, 大気の混入率が大きく corrected Ra 値の誤差が大きい地点
($^4\text{He}/^{20}\text{Ne} = 1$ を閾値とした)はプロットしていない. 断層の情報は産総研地質調査総合センター(2015), 第四紀
火山は西来ほか(2012)による. 地形データは基盤地図情報(国土地理院)による.

3-4) 始良カルデラ

① 概要

図3.2-30に始良カルデラ及びその周辺部の第四紀火山，深部低周波地震，地下水の採取地点を示す．始良カルデラは，24万年前，11万年前および3万年前の巨大噴火で形成された(鹿野ほか，2022)．29 kaのカルデラ噴火では，約500 km³のテフラを放出した(町田・新井，2003)．その後，桜島火山が26 kaより活動を開始し，若尊カルデラの形成は16 kaである(西来ほか，2012)．また，カルデラ外の北部には，玄武岩質の米丸火山，住吉池マールの噴火活動が7kaにある．その他の第四紀火山はいずれも始良カルデラの活動よりも古い．

始良カルデラおよびその周辺では，苦鉄質マグマ活動と考えられる深部低周波地震がカルデラ内外にみられる．カルデラ内では，桜島直下と若尊カルデラにあり深度は10–32 kmで，平均深度は，桜島南部で27 km，桜島東部で24 km，若尊カルデラ直下で24 kmである．その他に，カルデラ外の北部に若尊北部12–17 kmおよび米丸住吉24 kmがある(高橋・宮村，2009)．

地下水の採取は始良カルデラ周辺において合計61ヶ所で行った．また，³He/⁴He比の測定ができた地点では，その同位体比(Ra値)を図に示した．桜島内および米丸・住吉で非常に高い³He/⁴He比(6.2–7.7 Ra)を示す．これは地下水にマグマ起源成分が含まれ，かつ，滞留時間が短いことを示しており，現在の地下のマグマの活動を反映していると考えられる．また，カルデラ外の北部(国分北部，加治木)においても高い値(5.4–6.4 Ra)であり，国分南部のカルデラ縁では，低い値(2.5–2.7 Ra)である．一方，鹿児島，垂水では国分東部では，非常に低い値(0.02–1.3 Ra)を示し，放射壊変起源の⁴Heを多く含むことから当該地域の地下水の滞留時間は非常に長いと考えられる．鹿児島市内の地下水では放射壊変起源の⁴He濃度が10⁻⁵ (ccSTP/gH₂O)を超えるものがあり，阿蘇火山において氷期に涵養されたと考えられる地下水よりも高い．これは，地下水の涵養年代として，数万年よりも古い可能性を示唆する．したがって，鹿児島市，垂水の地下水はカルデラ形成期前後あるいはそれよりも古い可能性があり，カルデラ形成前から現在までの情報が含まれていると考えられる．

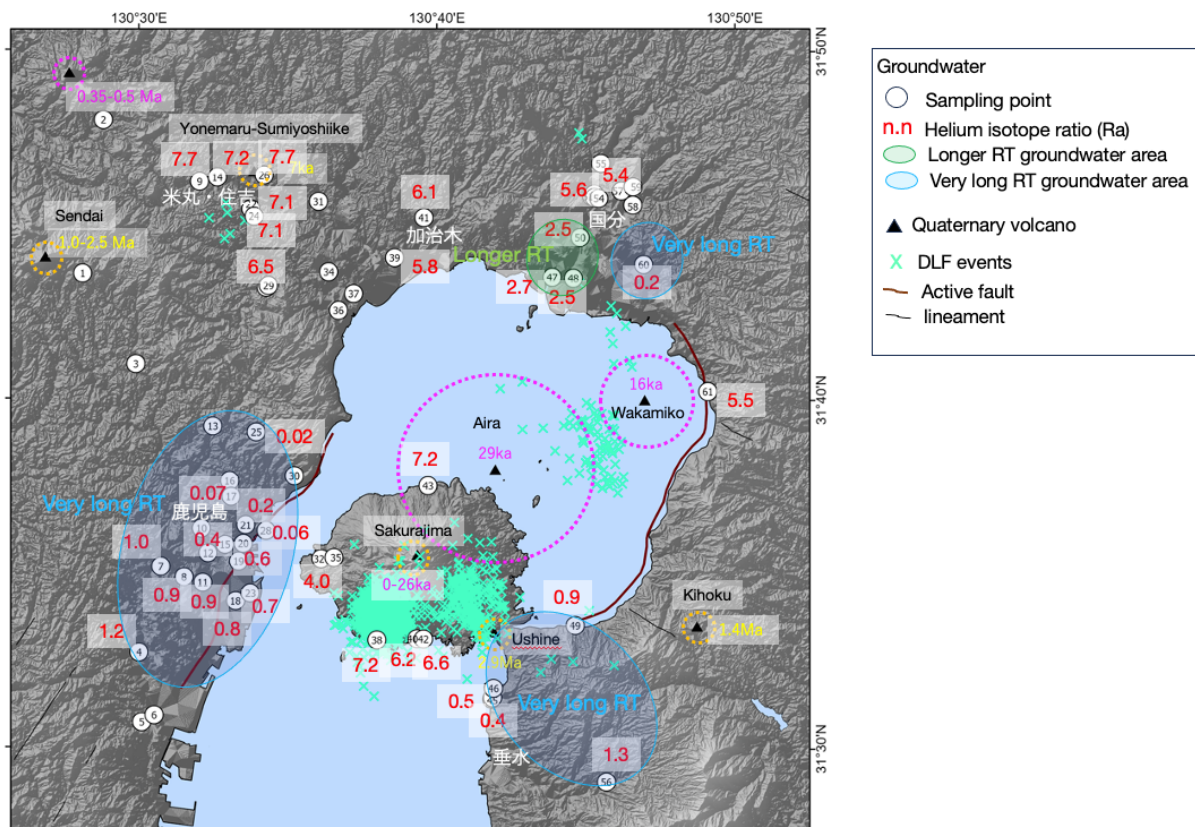


図 3.2-30 始良カルデラ周辺の地下水採取位置図

深部低周波地震(気象庁一元化データ(1998-2021)による)及びヘリウム同位体比(R_a 値)を示した。第四紀火山の位置、マグマタイプ(○: 苦鉄質, ○: 珪長質)及び活動履歴は(西来ほか, 2012)による。断層の情報は産総研地質調査総合センター(2015)による。地形データは基盤地図情報(国土地理院)による。

次に、マグマ溜まりの位置および微小地震、深部低周波地震の分布を図3.2-31に示す。地震の震源は、気象庁一元化データ(1998-2022)による。マグマ溜まりは、地殻変動に基づく圧力源および地震波速度構造(V_p/V_s)等に基づく密度構造等から推定されている。まず、圧力源はHotta et al. (2016)により示された圧力源AおよびKである(他にMがあるが非常に浅いためここでは示さない)が、Aは始良カルデラの主マグマ溜まりと考えられ深度約10 kmである。Kは桜島南岳に供給するマグマ溜まりと考えられ深度3.6 kmである。為栗ほか(2022)は、地震波速度構造より高い V_p/V_s を示す領域から深度15 kmでカルデラ中央部にマグマ溜まりLSを推定している。Miyamachi et al. (2023)も同様の手法でマグマ溜まりLVSを深度15 kmに推定している。Miyamachi et al. (2023)によれば、LSの位置には高速度域があり、固化しつつあるマグマであるとしている。両者は互いに一致していないが、LSは圧力源と位置的には整合するし、LVZは直下にマグマ供給と考えられる深部低周波地震群がある点で整合的である。以下、これら二つのマグマ溜まりモデルについて留意しつつ議論を進める。

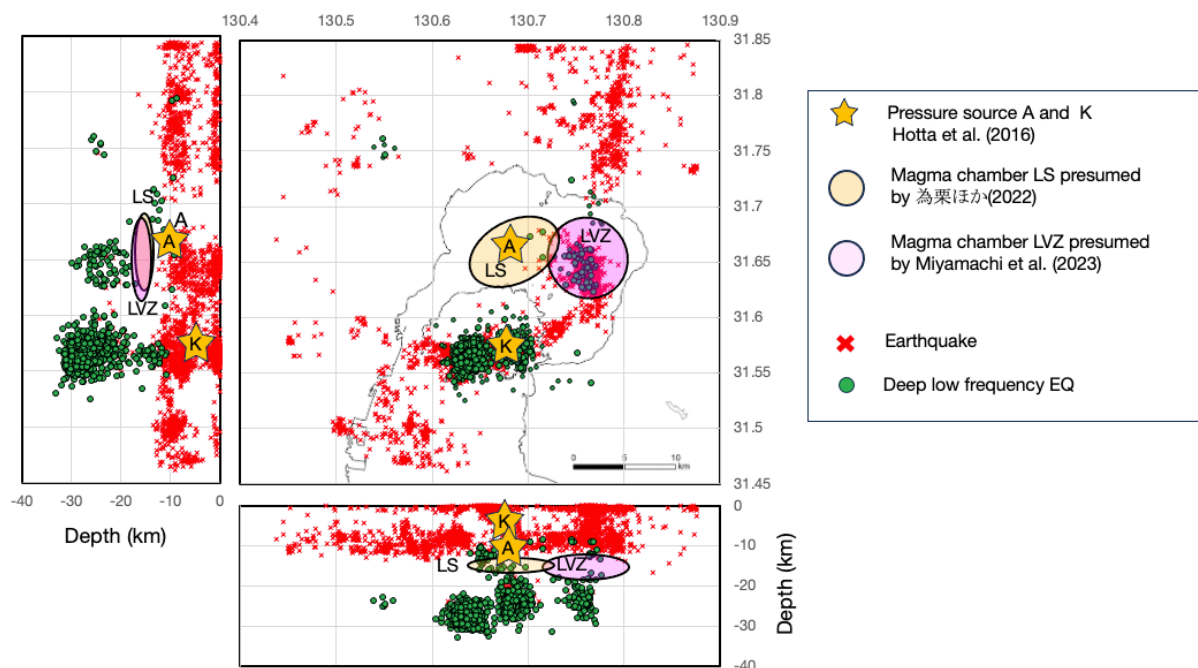


図3.2-31 始良カルデラ周辺の微小地震及び深部低周波地震の分布

微小地震及び深部低周波地震の位置は気象庁一元化データ(1998-2021)による。また、始良カルデラにおける圧力源K及びA(Hotta et al., 2016)、為栗ほか(2022)によるマグマ溜まり(LS)、及びMiyamachi et al. (2023)によるマグマ溜まり(LVZ)の位置を示した。

② マグマ起源 Cl

地下水のCl濃度は5-13200 mg/Lの範囲にあった。本地域では、海水が混入した地下水が存在するため、地下水中のマグマ起源Cl濃度を求めるためには、海水の補正が必要になる。3.2章2-4節①に記載したように、本地域ではBr/Cl比(マグマ起源と海水起源で大きな違いがある)を利用して、それぞれの起源のClの割合を求め、地下水中のマグマ起源Cl濃度を求めた。その際、海水の侵入がないと考えられる9ヶ所の浅層地下水・湧水のCl濃度が4.7-9.8mg/Lであることから海塩起源のClは、5mg/L程度であると考えられる。よって、マグマ起源Clの計算はClが50 mg/L以上の地下水について行った。

② マグマ起源 DIC

図 3.2-32 に DIC の $\delta^{13}\text{C}$ を用いてマグマ起源 DIC 濃度(DIC_c)を求める通常法と地下水の ^3He 濃度を用いて DIC 濃度(DIC_h)を求める手法を比較した結果を示す。マグマ起源 DIC_h濃度は、ほぼ 4 桁、DIC_c濃度は 2 桁のバリエーションがそれぞれあることがわかる。DIC_cと DIC_hの相関は九重・阿蘇火山と比較してよくない。始良カルデラについては、その範囲が非常に広いこと、および、海水が含まれる系があることなどが関係しているのかもしれない。いずれにしても、DIC_cには補正しきれない炭酸カルシウムの沈澱などの影響が考えられるため、ここでは原則として DIC_h濃度をマグマ起源 DIC 濃度として採用する。なお、CO₂気泡を生じる井戸からも採取を行っているが、気泡が分離された後に採取しているため、これらの試料については、CO₂分離後にヘリウムが大気と平衡になった(あるいは近づいた)可能性がある。DIC_h濃度を用いる際の唯一の

欠点は、ガスを含んだ地下水の場合、ガスが分離された後に地下水中の希ガスに大気中の希ガスが混入する場合である。この場合は、 DIC_h 濃度は大幅に過小評価されてしまう。以上より、 CO_2 の気泡が存在するあるいはその可能性がある地下水(溶存 CO_2 濃度 $> 100 \text{ mg/L}$: pH と全炭酸濃度を用いて計算)については、炭酸カルシウムの沈殿の影響がないと考えられるため DIC_c 濃度を採用する。また、 DIC_h 濃度が求められなかった地点(希ガスデータがない、あるいは、希ガス濃度が大気に近い値を示した場合)については、九重火山の場合と同様に DIC_c 濃度を採用する。マグマ起源 Cl が検出できた地下水のうち DIC_h 濃度が求められたのは 18 ケ所の地下水、また DIC_c 濃度を用いた地下水は 12 ケ所であった。

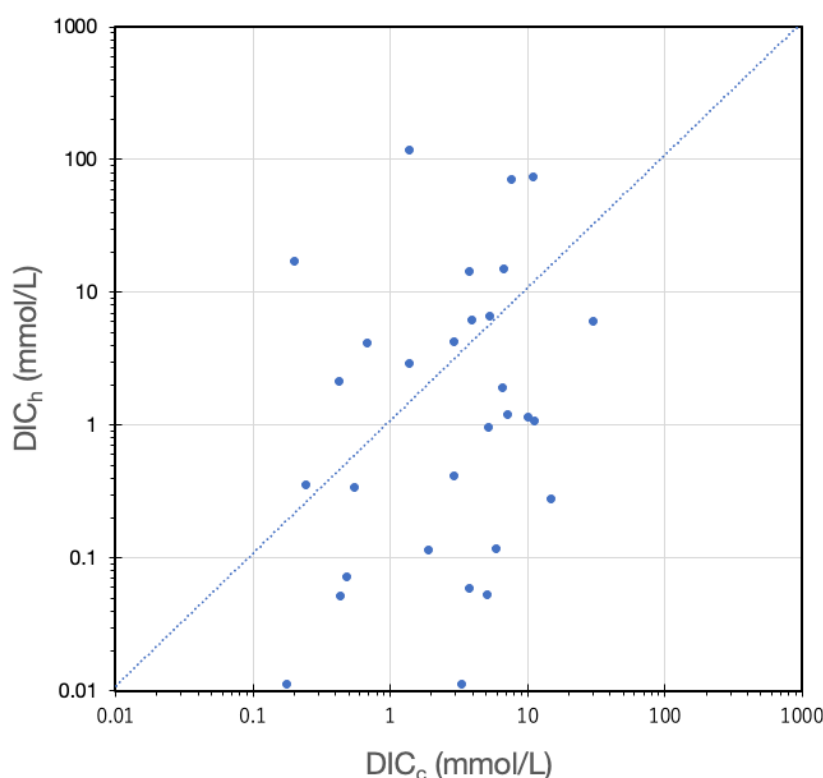


図 3.2-32 始良カルデラにおける地下水中のマグマ起源 DIC 濃度の推定手法 (DIC_h 及び DIC_c) の比較

③ マグマ起源 H_2O

図 3.2-33 に始良カルデラ周辺における地下水の同位体比を示す。Cl 濃度が 10 mg/L 以下の湧水・浅層地下水を用いて、天水線(MWL)の範囲を決定した。その結果、多くの深層地下水が天水線の範囲内に収まっているが、一部の Cl 濃度の高い地下水は海水あるいはマグマ水と混合していることがわかる。一部の地下水では天水-海水の混合線の左にプロットされており、薩摩硫黄島で湧出した水と同様の火山体内部で海水が対流してできた変質海水と思われる水の混合が認められる。前節にて求めた Cl の海水起源成分の割合を用いて、海水成分を除去した結果も同図に示す。その結果、天水の範囲およびマグマ水と天水の単純混合の領域からはみ出した水が 6 ケ所で認められた。これらは、変質海水が関与していると考えられ、マグマ起源 H_2O は求めることがで

きない。マグマ水と天水の単純混合の領域にあるもののみ(7ヶ所)，マグマ起源 H_2O の割合を求めた。

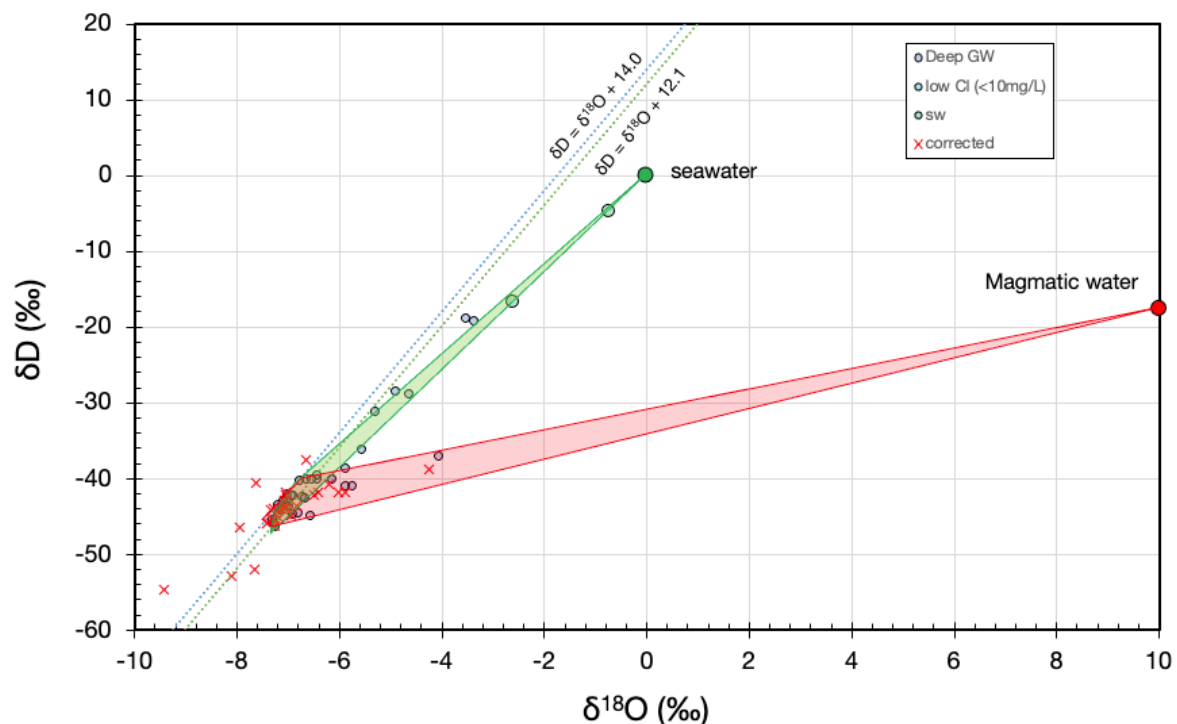


図 3.2-33 始良カルデラ周辺における地下水の酸素・水素同位体比の関係

天水起源の領域は、 $\text{Cl} < 10\text{mg/L}$ の湧水，地下水を用いて決定した。地下水の分析値は○で示し，×は海水の補正を行った後のデータを示す。補正後に天水の範囲から大きく逸脱する地下水は変質海水などの影響によるものと思われる。

⑤ マグマ溜まりのモデル

始良カルデラおよびその周辺では，複数のマグマ溜まりが想定されるため，本来は個別に評価しなければならない。しかし，前述したように地球物理学的に推定されるマグマ溜まりの位置はそれぞれの研究で整合していない(図 3.2-31)。図 3.2-31 におけるマグマ溜まり LS が圧力源 A と一致することから，この場所にマグマ溜まりがあるものとする。為栗ほか(2022)では LS は V_p/V_s が高いため部分溶融のメルトが存在しているとしている。一方，Miyamachi et al. (2023)による LS の位置には，高速度域の固化マグマが存在するとしている。ここでは，以下の仮定を置き，マグマ溜まりのモデルとしたい。1)マグマ溜まり LS の直下には，深部低周波地震が存在しないため，直下からの苦鉄質マグマの供給はないものと仮定する。2)LS には部分溶融もしくは固化過程にあるマグマ溜まりがある。3)マグマ溜まり LS へのマグマ供給は桜島で脱ガスした苦鉄質マグマが下降しシル状に広がったものである。ここで 3)は 1)のマグマ供給が直下からないことを補うものであり，マグマシステムとしては阿蘇カルデラで想定したモデルと基本的に同じである。すなわち，深部低周波地震群のある桜島直下から供給される苦鉄質マグマは，南岳火道上部で脱ガスし，脱ガスマグマは火道を下降して深度 15 km において北側にシル状に広がりマグマ溜まり

LS(圧力源 A)に供給される。マグマ溜まり LS は、AFC により珪長質マグマを生じる(時間がたてば固化する)とする。若尊カルデラ、米丸・住吉および国分の直下にも深部低周波地震群があり、それぞれ別の苦鉄質マグマ供給システムがあり、マグマ溜まりを形成あるいは形成中であるとする。

⑥ C/Cl-Cl/H₂O 法の適用

桜島内の地下水

まず、桜島内の地下水について、C/Cl-Cl/H₂O 法を適用する。桜島は南岳より活発な脱ガス活動を続けているため、阿蘇火山と同様に脱ガス火山のモデルを適用する必要がある。桜島に供給される苦鉄質マグマの揮発性成分量は明らかでないため、阿蘇火山で用いた初期濃度(H₂O = 5wt%, CO₂ = 0.7wt%, Cl = 0.07wt%)をそのまま用いる。図 3.2-34 は、脱ガスモードによる熱水組成範囲は図 3.2-18 のものと同じであり、阿蘇火山の事例と同様に火道上部において脱ガスした苦鉄質マグマが下降し、上昇するマグマと混合した苦鉄質マグマが AFC 課程により珪長質マグマを生成するモデルを用いて脱ガスモードの組成範囲を示している。

まず、桜島内の地下水に含まれるマグマ起源成分の脱ガスモードについて考察する。以下、圧力源 K とマグマ溜まり LS の 2 つのマグマ溜まりを考慮する。桜島の南側の地下水は北側にあるマグマ溜まり LS の影響は受けないと考え、桜島直下の圧力源 K(地下 3.6 km : 100 MPa)を考慮した。圧力源 K のマグマ溜まりで AFC 過程が進行した場合の脱ガスモードを珪長質マグマ生成 FB(K)および珪長質マグマ固化 FS(K)とする。また、桜島の北側は圧力源 K あるいはマグマ溜まり LS の影響を受けるとした。ここで、マグマ溜まり LS は深さ 15 km(300–400 MPa)とし、脱ガスモードはそれぞれ FB(LS)、FS(LS)とした。

桜島南側の No.38 および 40 は、マグマ溜まり(圧力源 K)から熱水流体が供給されるとしているので、FB(K)と MB と比較する。FB(K)と MB の間にあるので脱ガスモードは intermediate, すなわち安山岩質マグマの供給によるものとなる。No.38 は CO₂ 気泡を生じている場所である(大西・鎌田,1980)。また、No.40 も pH 値は CO₂ による酸性を示す 5.9 であり CO₂ 気泡が存在していることを示す。なお、No.35 は、水質的に No.32(マグマ起源 Cl を決定できなかった)とほぼ同じで、No.32 の ³He/⁴He 比が少し低いため、No.38,40 に比べて長期間(古い)情報を示していると考えられる。また、桜島の北部にある No.43 は深度 1000 m の坑井であり、マグマ溜まり LS の南端に位置し、また、マグマ溜まり K の北に位置する。どちらのマグマ溜まりから来ているのかについては、このデータだけでは結論できないが、深度 1000 m では、桜島の山体の浅層地下水流動系(つまり高標高から低標高へ地下水が流下する)とは関連せず、直下の情報を持っている可能性がある。No.43 は、Cl/H₂O が決定できていないが、C/Cl 比でみるとマグマ溜まり K の場合は、安山岩質マグマ供給を示す intermediate となる。No.43 がマグマ溜まり LS から供給されたものである場合は、珪長質マグマの生成を示す FB(LS)となる。No.43 については、後述の定期観測による変動ベクトルの解析によりさらに検討を行う。

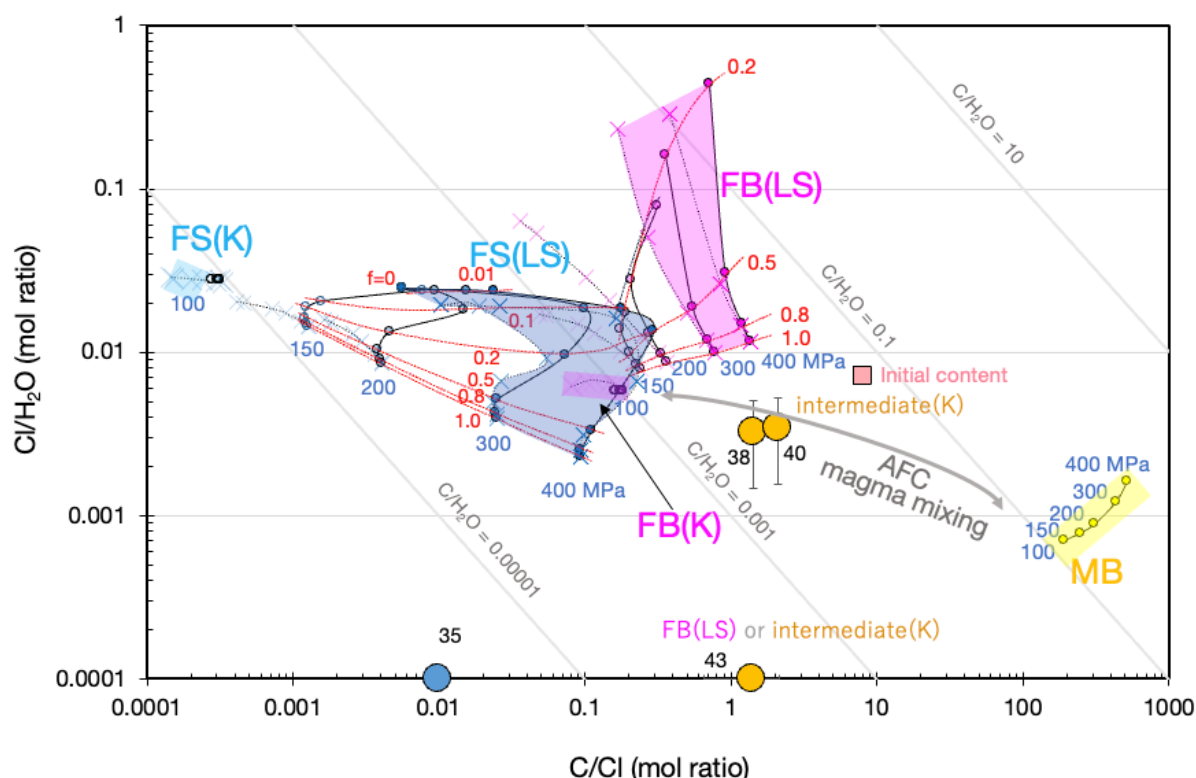


図 3.2-34 桜島の地下水に含まれるマグマ成分の C/Cl 及び Cl/H₂O の計算結果

No. 35 及び 43 の地下水は Cl/H₂O 比が決定できなかったため、C/Cl 比のみ最下段に示す。図 3.2-4 上にデータをプロットした。使用する脱ガスモードの範囲はマグマ溜まり K は 100 MPa, LS は 300–400 MPa とした。

桜島以外の地下水

次に、桜島を除く始良カルデラ周辺の地下水について C/Cl–Cl/H₂O 法による脱ガスモードを検討する。以下、桜島島内以外の地下水データを取り扱うが、始良カルデラの南半分は鹿児島及び垂水で多数の調査地点がある(図 3.2-30)。これらの地下水は全て、³He/⁴He 比が非常に低く、停留時間が数万年以上になる可能性があることを前節で述べた。したがって、脱ガスモードを求めることはできるが、その脱ガスモードの結果は現在のマグマ活動を表しているのではなく、数万年間の平均値を示すことに留意しなければならない。また、始良カルデラの北半分とさらに北部の地域(米丸, 加治木, 国分, 若尊)は、³He/⁴He 比が高く、地下水の停留時間も短いと考えられ、最近のマグマの情報を保持していると考えられる。また、カルデラの北に位置する米丸, 国分周辺では若尊カルデラと同様に深部低周波地震が発生しており、桜島マグマとは別のマグマ供給系があると考えられる。これらの苦鉄質マグマ供給系は九重火山と同じく日本の火山の範囲である H₂O = 4–6 wt%, CO₂ = 0.3–0.7 wt%, および Cl = 0.05–0.15 wt% とした。また、脱ガス火山ではなく九重, 十和田と同様の closed システムである仮定した。図 3.2-35 に脱ガスモードと桜島以外の地下水のマグマ成分の組成を示す。脱ガスモードは、九重火山と同様にそれぞれ MB については C/Cl > 20, FB は C/Cl 比(1 < C/Cl < 20)とし, FS は C/Cl < 1 とした。停留時間の長い地下水は X 印で示し、現在の情報を保持していない可能性が高いため、議論に用いない。Cl/H₂O が決定できたのは 5 ヶ所の地下水であるが、全て停留時間の長い地下水であった。No.7 と 8 は

Cl/H₂O 比が低いが、長期停滞しているので岩石との酸素同位体交換反応が進行し、マグマ起源 H₂O の割合を過大評価している可能性がある。

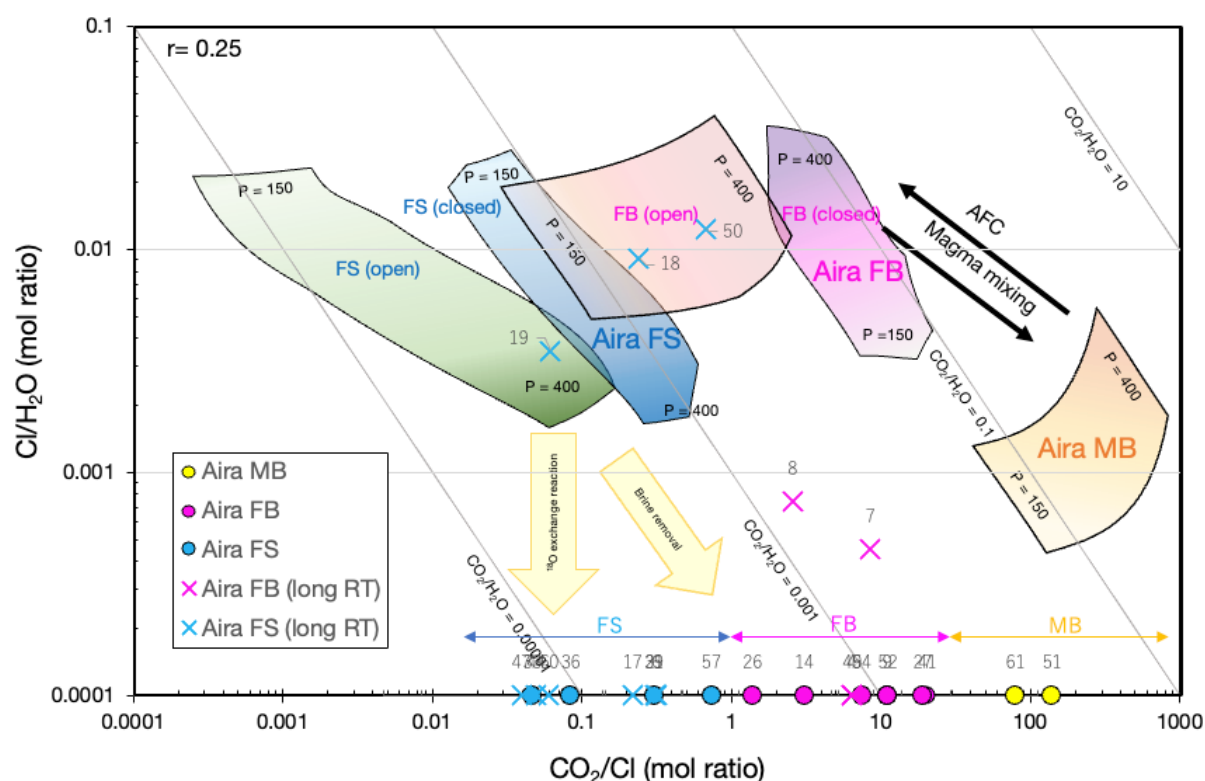


図 3.2-35 桜島以外の始良カルデラ周辺の地下水に含まれるマグマ成分の C/Cl 及び Cl/H₂O の計算結果

Cl/H₂O 比が決定できなかった地下水は、C/Cl 比のみ最下段に示す。X は ³He/⁴He 比が非常に低く滞留時間の長い地下水を表す。図 3.2-2 上にデータをプロットした。使用する脱ガスモードの範囲は closed システム (150-400 MPa) とした。

脱ガスモードの空間分布

次に、脱ガスモードの空間分布を図 3.2-36 に示す。先に述べたように、桜島内の地下水はマグマ溜まり K(100 MPa)から供給されたものとして、脱ガス火山用のモデルを使用して脱ガスモードを求めた。No.43 の地下水(深度 1000 m)は、マグマ溜まり LS(300-400 MPa)に関連する場合についても求めた。それ以外の地下水は、九重火山と同様の closed システムのモデルを用いて、脱ガスモードを求めている。空間分布の特徴として、非常に滞留時間の長い地下水系が鹿児島、国分南部、垂水周辺に広がっていることがわかる。前述したようにこれらの地下水に含まれるマグマ起源成分は非常に古い可能性が高いため、現在のマグマシステムを反映するものではないと考えられるため、以下の議論から除外する。まず、桜島内の脱ガスモードであるが、マグマ溜まり K 由来の熱水とした場合には全て intermediate(安山岩質に相当する)なマグマの供給に関連している。現在の桜島の火山活動と調和的結果である。桜島北部の No.43 の深層地下水(1000 m)はマグマ溜まり LS の南端に位置することから、LS から供給されたものとした場合について求めた

脱ガスモードは FB(珪長質マグマの生成)であった。No.43 の地下水のマグマ成分が K からならば, intermediate(安山岩質)マグマの生成に起因し, LS からのものであれば, マグマ溜まり LS は, 珪長質マグマの生成段階にあることになる。

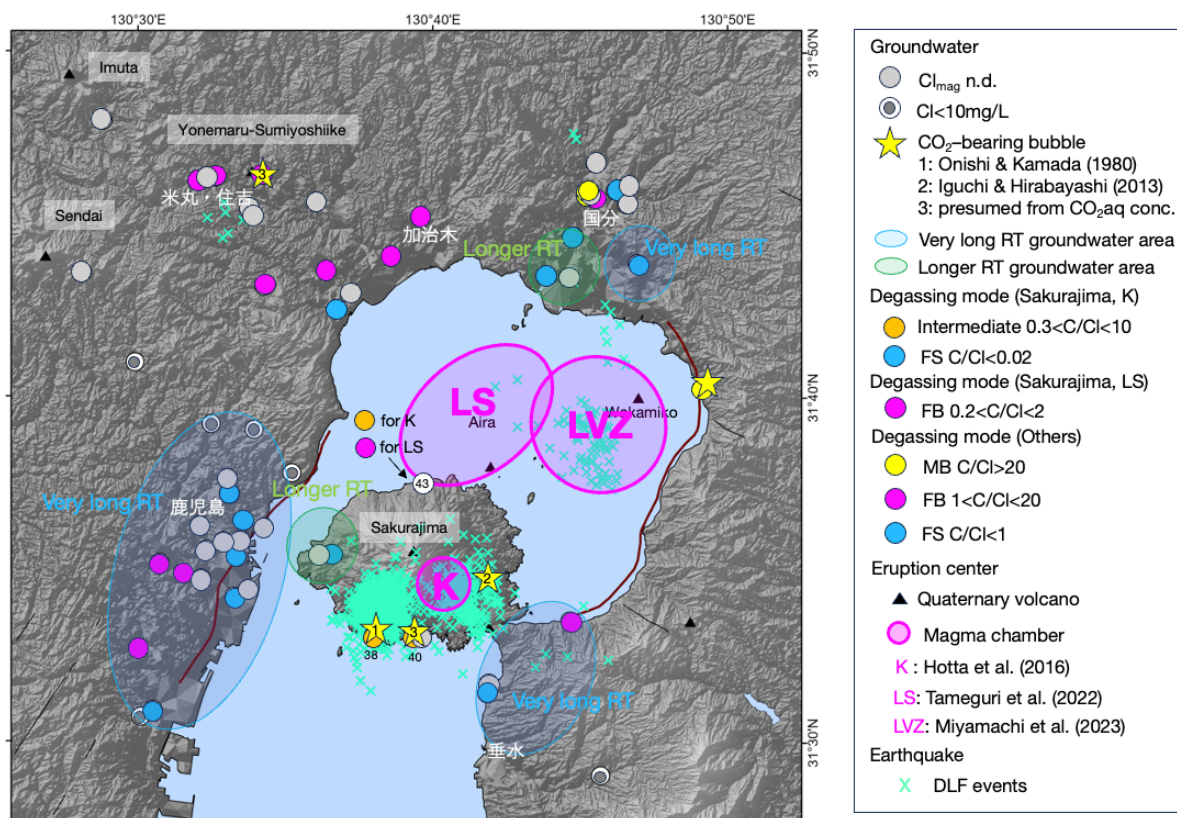


図 3. 2-36 始良カルデラ周辺における地下水のマグマ成分により推定した脱ガスモードの空間分布

脱ガスモードは用いるマグマ溜まりのモデル及びマグマ溜まりの圧力により変化する。図 3. 2-30 上にプロットした。図 3. 2-31 に示したマグマ溜まりの位置を示した。滞留時間の長い地下水が存在する範囲も示した。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)による。地形データは基盤地図情報(国土地理院)による。

図 3.2-36 に示したように, 始良カルデラ及びその周辺では深部低周波地震域が少なくとも 4 地域に存在する。すなわち, 桜島, 若尊カルデラ, 米丸及び国分である。これらの地域では, CO_2 の発泡した地下水(大西・鎌田, 1980 ; 井口・平林, 2013)あるいは, 溶存 CO_2 が 200 mg/L 以上)が見られる。この特徴は, 九重火山, 十和田火山においても見られた。すなわち, 深部低周波地震が苦鉄質マグマの上昇・供給に関連していると考えられる。ため, 脱ガスモード MB の熱水流体が深部から供給されていることを示唆する。米丸・住吉地域は, $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比も非常に高いため, フレッシュなマグマ起源熱水が供給されている地域であり, 現在, 苦鉄質のマグマ供給に伴い, 珪長質マグマが生成している可能性がある。国分地域では MB, FB が確認されている。この地域では噴火履歴がないが, 周辺に深部低周波地震を生じている。米丸地域と同様に苦鉄質のマグマ

供給に伴い、珪長質マグマが生成している可能性がある。若尊カルデラ下にも深部低周波地震が生じている。この近傍(東)に MB があるが、これは若尊カルデラの下部に苦鉄質マグマが供給されていることと関連があるのかもしれない。加治木～米丸南部に FB が見られるが、これは米丸・住吉のマグマに関係しているのか、始良カルデラに関係しているのか不明である。 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比は Ra 値で 5.8–6.5 であり、かなり高い値である。したがって、現在、マグマ性の熱水流体 FB がこの地域で上昇していることは確かであろう。

⑦ 定期観測の利用と結果

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について月一回の定期観測を 6 地点で 2019 年 8 月から開始した(産総研, 2022)。2022 年度から No.26, 40, 54 の 3 地点を新たに設定した。No.18, 19 は非常に古い地下水であること、No.38 は変動が海水の侵入によること、また No.43 については変質海水の混入によることなどにより、2021 年度までで観測を中止している(産総研, 2022)。定期観測により地下水に含まれるマグマ起源成分について火山活動に関連する水質変化を検出することが期待され、その変化から C/Cl-Cl/H₂O 法による脱ガスモードの組成と比較検討することにより、マグマの種別、活動に関する情報を得ることができると考えられる。観測地点を図 3.2-37 に示す。桜島を除くカルデラ周辺地域の地下水(No. 26, 49, 54, 61)については、C/Cl-Cl/H₂O 法による脱ガスモードと変動トレンドは一致もしくは矛盾しないという結果が得られている(産総研, 2023)ため、本稿では改めて記載しない。以下、新たに構築した脱ガス火山における C/Cl-Cl/H₂O 法を適用した桜島内の地下水(特に重要な No.43)について検討を行う。

桜島内の観測点(3 ヶ所)であるが、No.38 は C/Cl によれば脱ガスモードは intermediate であるが、定期観測による変動は海水成分のみであったため(産総研, 2022)、ここでは詳しく記載しない。No.43 は、前節で検討したように、新たに構築した脱ガス火山における C/Cl-Cl/H₂O 法を用いること、および、マグマ起源 DIC に DIC_h 濃度を用いることにより、この熱水成分がマグマ溜まり K(3.6km; 100 MPa)から供給された場合の脱ガスモードは intermediate(安山岩質マグマ供給)になり、マグマ溜まり LS(15km; 300–400 MPa)から供給された場合は、FB(珪長質マグマ生成)となった。それぞれのマグマ溜まりの圧力が異なるため、脱ガスモードによる熱水組成に大きな違いがある。したがって、定期観測による組成変動により、どちらのマグマ溜まりから供給されているのか判定できる可能性がある。

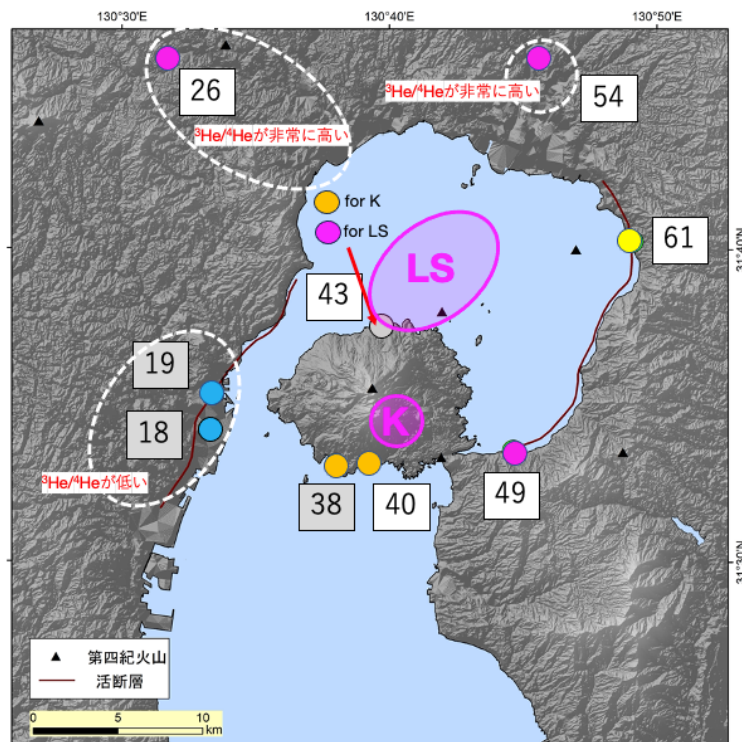


図 3.2-37 地下水の定期観測点の位置図

C/Cl-Cl/H₂O 法による脱ガスモード(● : MB, ● : intermediate, ● : FB, ● : FS) も合わせて示した。図 3.2-31 に示したマグマ溜まり K 及び LS の位置を示した。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)による。地形データは基盤地図情報(国土地理院)による。

まず, No.43 の定期観測では, 希ガスのデータがあるので, DIC_h 濃度を用いてマグマ起源 DIC を決定した。さらに, ふたつのマグマ溜まり K と LS におけるそれぞれの脱ガスモード(MB, FB, FS)の値の範囲を用いて, 変動方向の範囲を定めて, 実際のデータの変動ベクトルと比較する。図 3.2-38 は, No.43 について定期観測のデータを用い, それぞれ平均からのずれを用い変動のベクトルを示した図である。マグマ溜まり K と LS の違いによる比較結果を示している。地下水の酸素・水素同位体比の変動を示した図 3.2-38a より, この地下水は, 変動トレンドがマグマ水との混合線と変質海水との混合線の間に来ることから, マグマ水と変質海水がほぼ 1:1 で混合した地下水成分が変動の原因であることがわかる。図 3.2-38b~図 3.2-38e にこの変動トレンドと変質海水の混合線から想定されるマグマ水(マグマ水:変質海水=1:1 より推定)のベクトルを赤い矢印で示す。図 3.2-38b はマグマ溜まり K の場合の Cl と δ¹⁸O の変化成分を示しているが, マグマ成分のベクトルと合致する脱ガスモードは唯一 FS の可能性があり, C/Cl 法による intermediate の結果と異なる。次に, 図 3.2-38d はマグマ溜まり LS の場合であるが, マグマ成分のベクトルに合致するのは脱ガスモード FB であり, C/Cl 法による結果とも一致する。図 3.2-38c および図 3.2-38e は, DIC_h と Cl の変化を示しているが, 変動トレンドが決定できなかった。ただし, 測定精度等を考慮すると Cl は測定誤差(±5%)の範囲内であり, DIC_h 濃度は実際には測定誤差を大き

く超えて 7–51 mg-carbon/L の範囲で変動している．したがって、 DIC_h 濃度の変動が有意であることから、マグマ成分ベクトルは上向きであろう(図 3.2-38 中では"?"付きの赤矢印; 傾きはわからない)．その場合は、マグマ溜まり K の場合も LS の場合も MB もしくは FB であると思われる．以上より、定期観測データの変動から No.43 はマグマ溜まり LS に由来し、熱水流体は珪長質マグマの生成を意味する FB である可能性がある．

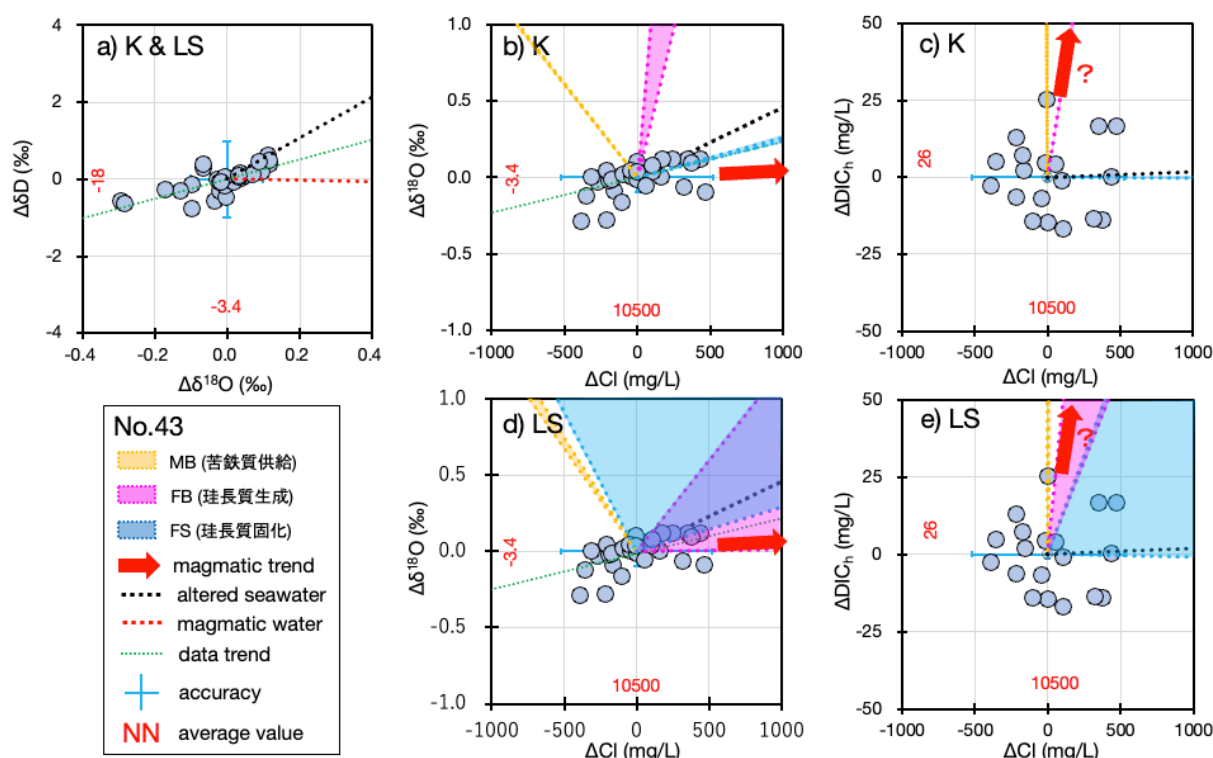


図 3.2-38 定期観測井 No. 43 における地下水の a) δD と $\delta^{18}O$, b), d) $\delta^{18}O$ と Cl 濃度及び c), e) DIC_h 濃度と Cl 濃度の変化(期間: 2019 年 8 月~2022 年 3 月)

マグマ溜まり K 及び LS それぞれについて、 $\text{C}/\text{Cl}-\text{Cl}/\text{H}_2\text{O}$ 法により求められた各脱ガスモード(MB, FB, FS)の熱水流体の組成範囲を混合の端成分として、地下水が混合により変化するベクトルの範囲を脱ガスモード別に示した。a) 水の同位体比の変動(K, LS は同じ), b) 及び c) はマグマ溜まり K とした場合の各脱ガスモードの変動ベクトルを示した。d) 及び e) はマグマ溜まり LS とした場合の各脱ガスモードの変動ベクトルを示した。

(4) まとめ

$\text{C}/\text{Cl}-\text{Cl}/\text{H}_2\text{O}$ 法は、マグマ進化モデルの各段階(マグマの種別、状態変化)において放出されるマグマ起源流体の C/Cl 比及び $\text{Cl}/\text{H}_2\text{O}$ 比の理論計算値と、地下水に含まれるマグマ起源成分の C/Cl 及び $\text{Cl}/\text{H}_2\text{O}$ 比を比較することによって、火山の深部マグマの状態・種別を推定する手法である。本手法は、九重火山において適用の有効性の確認が行われ、陸上カルデラ(阿蘇カルデラ)、海底(始良・鬼界カルデラ)・湖底カルデラ(十和田火山)へ適用した。モデルの概要、地下水の分析・解析および本手法のカルデラ火山への適用に際しての有効性・適用性評価を行った結果を以下にまとめる。

1) マグマ溜まりから放出される熱水の組成を求める手法

苦鉄質マグマの供給から始まる一連のマグマ溜まりの進化過程において、苦鉄質マグマの発泡に伴うマグマ起源流体(MB), 苦鉄質マグマの分化過程より生成した珪長質マグマの発泡に伴うマグマ起源流体(FB), および珪長質マグマが固化する際に放出されるマグマ起源流体(FS)について、それぞれの流体の化学組成を求める手法を開発した。その結果、マグマから放出される熱水流体は、マグマの種別・状態の違いにより C/Cl 比で 6 桁, Cl/H₂O 比で 2 桁の違いがあることを示した。さらに、マグマ溜まりの進化モデルについては、活発な脱ガス活動を行う火山にも適用できるよう改良を行った。

2) 地下水に含まれるマグマ成分組成の決定

C/Cl-Cl/H₂O 法の適用にあたっては、マグマ溜まりの種別・状態を判別するために必要な地下水に含まれるマグマ起源成分の C/Cl と Cl/H₂O 比を求める必要がある。そのため、地下水の各種化学成分濃度に加え、溶存無機炭素(DIC), ヘリウム, 水の水素・酸素の各同位体比を利用した。まず、地下水に含まれるマグマ起源成分の C/Cl と Cl/H₂O 比を求めるために必要なのは、マグマ起源の DIC 濃度, Cl 濃度およびマグマ起源水の割合である。マグマ起源 DIC 濃度は、従来法では炭素同位体比を用いて生物起源の DIC を除去して求める(DIC_c 濃度)が、地下水の DIC 濃度は生物起源 DIC の混入だけでなく、鉱物の溶解・沈殿および帯水層での CO₂ 気泡の発生により変化する可能性がある。そこで、新たに CO₂/³He 比がマグマ起源の熱水流体で一定の値を持つことを利用し、鉱物の溶解・沈殿の影響を受けず、CO₂ の気泡発生によるロスを補正可能な ³He 濃度を用いてマグマ起源 DIC 濃度(DIC_h 濃度)を求める手法を開発し、九重火山において適用の有効性を示し、他火山にも適用した。マグマ起源 Cl 濃度は、海水あるいは続成作用を受けた古い海水の混入がある場合にはそれらを除外する必要がある。そこで、マグマ起源 Cl の割合をハロゲン組成比(Br/Cl および I/Cl)により求めることにより、マグマ起源 Cl 濃度を推定する手法を開発し適用した(始良カルデラ, 十和田火山)。地下水に含まれるマグマ起源水の割合は、地下水の水素・酸素同位体比を用いてマグマ水と天水の混合比を求めることにより決定した(九重火山)。地下水に海水が含まれる場合は、ハロゲン組成比(Br/Cl および I/Cl)を用いて海水等の混入率を求め、それらを除去した上でマグマ水の割合をもとめた(始良カルデラ・十和田火山)。阿蘇カルデラでは、マグマ水の混入が非常に少ないためマグマ水の混入割合を決定できなかった。

3) 地下水の年代の評価

地下水は、その流動系の特徴により比較的短い時間で流動する場合(九重火山)と長期間停滞している場合(阿蘇カルデラの一部の深層地下水, 始良カルデラ周辺の一部の地下水)がある。したがって、地下水に含まれるマグマ起源成分はその滞留時間に対応した期間のマグマの情報を持つため、C/Cl-Cl/H₂O 法を適用するにあたり滞留時間の長さを考慮した評価が重要となる。火山地域の地下水の滞留時間の評価には、トリチウム濃度(九重火山, 阿蘇カルデラ), ³He/⁴He 比(始良カルデラ, 十和田火山), ³⁶Cl/Cl 比(十和田火山)等を利用した。

4) C/Cl-Cl/H₂O 法の適用と評価

九重火山：まず、珪長質マグマ活動と苦鉄質マグマ活動の時空間分布が異なっている九重火山について適用した結果、地下水のマグマ起源成分の C/Cl 比と Cl/H₂O 比から求められる脱ガスモードの空間分布が九重火山のマグマ活動の空間分布と整合的であることが示された。具体的には、

苦鉄質活動の地域では地下水中のマグマ起源 C/Cl 比が高く、珪長質活動の地域では C/Cl 比が珪長質マグマの発泡を示す範囲にあり、古い山体の地域では、珪長質マグマの固化により放出される非常に低い C/Cl 比を持つことが示され、C/Cl-Cl/H₂O 法の有効性が確認された。

阿蘇カルデラ：浅層地下水では火道系～火山ガスの汚染があることから、深井戸(深度 500m 以上)に絞り解析を行なった。新たに開発した脱ガス火山へ適用可能なモデルを用いた。C/Cl-Cl/H₂O 法を適用するため、地下水解析を行った結果、Cl/H₂O 比が求められなかったため、C/Cl 比により評価した。地下水の C/Cl 比はカルデラ内の南側で高い値を示し、苦鉄質マグマの供給により放出された熱水が存在すること、また、この地下水は 2 万年以上の滞留時間を示しており、長期にわたり苦鉄質マグマ活動の影響のみが蓄積されていることがわかった。一方、カルデラ内の北側では、C/Cl 比から現在～数千年間にわたる intermediate～珪長質マグマ活動の影響が見られた。この結果は、北側にのみ確認される珪長質マグマ活動と整合的であり、適用の有効性を示すものと考えられる。さらに、³⁶Cl/Cl 比を用いた解析の結果、現在活動中の珪長質マグマ溜まりは小規模であり、大規模な珪長質マグマ溜まりの成長は見られないことがわかった。

十和田カルデラ：マグマ起源 DIC 濃度を求める上で DIC_h 濃度を用いること、および、地下水のハロゲン元素比を用い海水(古海水)成分を除去することにより適用可能であることが示された。十和田湖水に混入する熱水成分の C/Cl 比の結果から、十和田湖の湖底に供給される熱水は、現在の珪長質マグマ生成によるものであること、またカルデラの外側南西部の深部低周波地震域近傍では苦鉄質～珪長質マグマの脱ガスによる熱水が上昇していることが示され、十和田カルデラとは別のマグマ供給系による活動の存在が示唆された。非常に古いカルデラがある十和田火山の北西側に珪長質マグマ生成に関連する熱水が認められたが、³He/⁴He 及び ³⁶C/Cl 比の検討結果では、これらの熱水は非常に古いカルデラ形成活動と関連づけられ、現在の活動を反映していないと評価された。

始良カルデラ：³He/⁴He 比により鹿児島市街、垂水、国分南の地域で非常に古い地下水系を形成していることがわかった。これらの地域では、数万年間にわたるマグマ活動の情報を蓄積していると考えられるため、現在の情報を持つと考えられる ³He/⁴He 比が高い地域について C/Cl-Cl/H₂O 法を用いてマグマ溜まりの活動評価を行った。³He/⁴He 比の高い桜島南部の地下水は、安山岩質マグマの供給(深度 4km ; 100MPa)に関連する熱水が見られ現在の桜島の火山活動と整合する結果が得られた。若尊カルデラ近傍で苦鉄質マグマの供給を示した。また、カルデラ外の北側の 2 地域(米丸、国分北)において苦鉄質～珪長質マグマの生成活動と推定される熱水活動が見られた。これら 2 地域では近傍に深部低周波地震活動があり、始良カルデラ内のマグマ活動とは別のマグマ活動であると思われる。一方、定期観測によるマグマ起源成分の変動の方向から C/Cl-Cl/H₂O 法を応用しマグマ溜まりの状態を推定する手法により、桜島北部の地下水には、始良カルデラ中央部の珪長質マグマ生成(12～16km; 300-400MPa)に関連する熱水が含まれることが示唆された。

鬼界カルデラ：海底湧水の採取・分析することにより適用を試みたが、熱水化した変質海水の存在により補正による海水成分除去ができず、マグマ起源成分の組成を決定できなかった。変質海水の組成は求めることができ、同様の影響が見られた桜島北部の地下水の解析に応用した。陸域が小さい活発な脱ガス活動を行う海底カルデラの評価は本手法では難しいと結論された。

なお、九重火山、十和田および始良カルデラの周辺では苦鉄質マグマの上昇に起因すると考えられる深部低周波地震(20~30km)を生じている地域があるが、これらの深部低周波地震域近傍では、遊離 CO₂ を含む地下水が存在することが示された。C/Cl 法では、これらの遊離 CO₂ を含む地下水は C/Cl が非常に高い苦鉄質マグマ起源流体が混入した結果と考えられる。深部低周波地震活動が苦鉄質マグマの上昇に関連していることと整合的である。

以上より、C/Cl-Cl/H₂O 法は、本研究により提案した地下水解析手法を用い、地下水年代を評価することにより、カルデラ火山のマグマ溜まりの種別・状態を推定する目的において一部の対象を除き有効であると結論される。なお、一部の対象とは、変質海水が存在する海底カルデラである。

引用文献

- Abe, Y., Ohkura, T., Shibutani, T., Hirahara, K., Yoshikawa, S., Inoue, H. (2017) Low-velocity zones in the crust beneath Aso caldera, Kyushu, Japan, derived from receiver function analyses. *J. Geophys. Res. Solid Earth*, 122, 2013–2033.
- Alletti, M., Baker, D.R., Scaillet, B. Aiuppa, A., Moretti, R., Ottolini L. (2009) Chlorine partitioning between a basaltic melt and H₂O–CO₂ fluids at Mount Etna. *Chem. Geol.*, 263, 37–50.
- Beermann, O., Botcharnikov, R.E., Nowak, M. (2015) Partitioning of sulfur and chlorine between aqueous fluid and basaltic melt at 1050°C, 100 and 200 MPa. *Chem. Geol.* 418, 132–157.
- Dixon, J.E., Stolper, E.M., Holloway, J.R. (1995) An experimental study of water and carbon dioxide solubilities in Mid-Ocean Ridge basaltic liquids. part I: Calibration and solubility models. *J. Petrol.* 36, 1607–1631.
- Driesner, T., Heinrich, C.A. (2007) The system H₂O–NaCl. part I: Correlation formulae for phase relations in temperature–pressure–composition space from 0 to 1000°C, 0 to 5000bar, and 0 to 1 X_{NaCl}. *Geochim. Cosmochim. Acta* 71, 4880–4901.
- Duan, Z., Møller, N., Weare, J.H. (1995) Equation of state for the NaCl–H₂O–CO₂ system: Prediction of phase equilibria and volumetric properties. *Geochim. Cosmochim. Acta* 59, 2869–2882.
- Hamada, M., Fujii, T. (2007) H₂O-rich island arc low-K tholeiite magma inferred from Ca-rich plagioclase-melt inclusion equilibria. *Geochem. J.*, 41, 437–461.
- 広井 良美・宮本 毅・田中 倫久 (2015) 十和田火山平安噴火(噴火エピソード A)の噴出物層序及び噴火推移の再検討, *火山* 60, 187–209.
- Hotta, K., Iguchi, M., Tameguri, T. (2016) Rapid dike intrusion into Sakurajima volcano on August 15, 2015, as detected by multi-parameter ground deformation observations. *Earth Planet Space* 68, 68.

- Hsu, Y.-J., Zajacz, Z., Ulmer, P., Heinrich, C.A. (2019) Chlorine partitioning between granitic melt and H₂O-CO₂-NaCl fluids in the Earth's upper crust and implications for magmatic-hydrothermal ore genesis. *Geochim. Cosmochim. Acta* 261, 171–190.
- 井口正人・平林順一 (2013) 桜島・黒神における温泉ガス濃度(2012年・2013年), 「桜島火山における多項目観測に基づく火山噴火準備過程解明のための研究」平成24年度報告書, 71-74.
- 鹿野和彦・柳沢幸夫・奥野 充・中川光弘・内村公大・味喜大介・井口正人(2022) 鹿児島湾奥, 始良カルデラにおける後カルデラ火山活動と環境の変遷. *地質学雑誌* 128, 43–62.
- Kawaguchi, M., Koga, K.T., Rose-Koga, E.F., Shimizu, K., Ushikubo, T., Yoshiasa A. (2022) Sulfur isotope and trace element systematics in arc magmas: seeing through the degassing via a melt inclusion study of Kyushu Island volcanoes, Japan. *J. Petrol.* 63, 1–31.
- 川辺禎久・星住英夫・伊藤順一・山崎誠子 (2015) 九重火山地質図 19, 産業技術総合研究所地質調査総合センター.
- Kazahaya, K., Shinohara, H., Saito, G. (1994) Excessive degassing of Izu-Oshima volcano: Magma convection in a conduit. *Bull. Volcanol.* 56, 207-216.
- Kusuda, C., Iwamori, H., Nakamura, H., Kazahaya, K., Morikawa, N. (2014) Arima hot spring waters as a deep-seated brine from subducting slab. *Earth Planets Space* 66, 119.
- Lesne, P., Kohn, S.C., Blundy, J., Witham, F., Botcharnikov, R.E., Behrens, H. (2011) Experimental simulation of closed-system degassing in the system basalt–H₂O–CO₂–S–Cl. *J. Petrol.* 52, 1737-1762.
- 町田 洋・新井房夫 (2003) 新編 火山灰アトラス. 東京大学出版会, 336p.
- Mao, S., Zhang, D., Li, Y., Liu, N. (2013) An improved model for calculating CO₂ solubility in aqueous NaCl solutions and the application to CO₂–H₂O–NaCl fluid inclusions. *Chem. Geol.* 347, 43-58.
- Miyagi, I., Itoh, J., Hoang, N., Morishita, Y. (2012) Magma systems of the Kutcharo and Mashu volcanoes (NE Hokkaido, Japan): Petrogenesis of the medium-K trend and the excess volatile problem. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 231-232, 50-60.
- Miyagi, I., Hoshizumi, H., Suda, T., Saito, G., Miyabuchi, Y., Geshi, N. (2023) Importance of long-term shallow degassing of basaltic magma on the genesis of massive felsic magma reservoirs: a case study of Aso Caldera, Kyushu, Japan. *J. Petrol.* 64, egad009.
- Miyamachi, H., Yakiwara, H., Kobayashi, R. *et al.* (2023) Solidified magma reservoir derived from active source seismic experiments in the Aira caldera, southern Kyushu, Japan. *Earth Planets Space* 75, 166.
- Mizutani, Y., Hayashi, S., Sugiura, T. (1986) Chemical and isotopic compositions of fumarolic from Kuju-Iwoyama, Kyushu, Japan. *Geochem. J.* 20, 273-285.
- Morikawa, N., Kazahaya, K., Yasuhara, M., Inamura, A., Nagao, K., Sumino, H., Ohwada, M. (2005) Estimation of groundwater residence time in a geologically active region by coupling ⁴He concentration with helium isotopic ratios. *Geophys. Res. Lett.* 32, L02406.

- Morikawa, N., Kazahaya, K., Takahashi, M., Inamura, A., Takahashi, H. A., Yasuhara, M., Ohwada, M., Sato, T., Nakama, A., Handa, H., Sumino, H., Nagao, K. (2016) Widespread distribution of ascending fluids transporting mantle helium in the fore-arc region and their upwelling processes: Noble gas and major element composition of deep groundwater in the Kii Peninsula, southwest Japan. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 182, 173-196.
- 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.
- Nakatani, T., Kudo, T., Suzuki, T. (2022) Experimental constraints on magma storage conditions of two caldera-forming eruptions at Towada volcano, Japan. *J. Geophys. Res.: Solid Earth* 127, e2021JB023665.
- Newman, S., Lowenstern, J.B. (2002) VolatileCalc: A silicate melt-H₂O-CO₂ solution model written in Visual Basic for excel. *Comput. Geosci.* 28, 597-604.
- 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.
- Ohwada, M., Satake, H., Nagao, K., Kazahaya, K. (2007) Formation processes of thermal waters in Green Tuff: A geochemical study in the Hokuriku district, central Japan. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 168, 55-67.
- 大西富雄・鎌田政明 (1980) 桜島火山持木足投海岸温泉ガスの微量成分と火山活動, 火山 25, 119-120.
- 小野晃司・渡辺一徳(1985) 阿蘇火山地質図 4, 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深部地質環境研究コア (2013) 地質処分に係る地質情報データの整備: 平成 24 年度事業報告書.
- 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 (2022) 令和 3 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 3 年度事業報告書.
- 産業技術総合研究所 (2023) 令和 4 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 4 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.
- Saito, G., Kazahaya, K., Shinohara, H., Stimac, J., Kawanabe, Y. (2001) Variation of volatile concentration in a magma system of Satsuma-Iwojima volcano deduced from melt inclusion analyses. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 108, 11-31.
- Saito, G., Uto, K., Kazahaya, K., Shinohara, H., Kawanabe, Y., Satoh, H. (2005) Petrological characteristics and volatile content of magma from the 2000 eruption of Miyakejima Volcano, Japan. *Bull. Volcanol.* 67, 268-280.
- Saito, G., Ishizuka O., Ishizuka, Y., Hoshizumi, H., Miyagi, I. (2018) Petrological characteristics and volatile content of magma of the 1979, 1989, and 2014 eruptions of Nakadake, Aso volcano, Japan. *Earth Planets Space*, 70, 197.
- Saito, G., Oikawa, T., Ishizuka, O. (2023) Magma ascent and degassing processes of the 2011 and 2017–18 eruptions of Shinmoedake in Kirishima volcano group, Japan, based on petrological characteristics and volatile content of magmas. *Earth Planets Space* 75, 89.
- Sano, Y., Marty, B. (1995) Origin of carbon in fumarolic gas from island arcs. *Chem. Geol.* 119, 265-274.
- Shinohara, H. (1994) Exsolution of immiscible vapor and liquid phases from a crystallizing silicate melt: Implications for chlorine and metal transport. *Geochim. Cosmochim. Acta* 58, 5215-5221.
- Shinohara (2009) A missing link between volcanic degassing and experimental studies on chloride partitioning. *Chem. Geol.*, 263, 51-59.
- Sibson, R.H. (2017) Tensile overpressure compartments on low-angle thrust faults. *Earth Planets Space* 69, 113.
- Sibson, R.H. (2020a) Dual-driven fault failure in the lower seismogenic zone. *Bull. Seismol. Soc. Am.* 110, 850–862.
- Sibson, R.H. (2020b) Preparation zones for large crustal earthquakes consequent on fault-valve action. *Earth Planets Space* 72, 31.
- Silver, L.A., Stolper, E.M. (1989) Water in albitic glasses. *J. Petrol.* 30, 667-709.
- Snyder, G., Fabryka-Martin, J.T. (2007) ¹²⁹I and ³⁶Cl in dilute hydrocarbon waters: Marine-cosmogenic, in situ, and anthropogenic sources. *Appl. Geochem.* 22, 692-714.
- Stelling, J., Botcharnikov, R.E., Beermann, O., Nowak, M. (2008) Solubility of H₂O- and chlorine-bearing fluids in basaltic melt of Mount Etna at T = 1050-1250 °C and P = 200 MPa. *Chem. Geol.* 256, 102-110.
- 高橋浩晃, 宮村淳一 (2009) 日本列島における深部低周波地震の発生状況, 北海道大学地球物理学研究報告 72, 177-190.
- Takahashi, H. A., Handa, H., Sugiyama, A., Matsushita, 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. *Geochem. J.*, 53, 305-318.
- 為栗健, 八木原寛, 筒井智樹, 井口正人 (2022) 高分解能な 3 次元地震波速度構造解析による始良カルデラ下のイメージング. *火山* 67, 69-76.
- Tattitch, B., Chelle-Michou, C., Blundy, J., Loucks, R.R. (2021) Chemical feedbacks during magma degassing control chlorine partitioning and metal extraction in volcanic arcs. *Nat. Commun.* 12, 1774.
- Tegner, C., Wilson, J.R., Robins, B. (2005) Crustal assimilation in basalt and jotunite: Constraints from layered intrusions. *Lithos* 83, 299-316.
- Tosaki, Y., Morikawa, N., Kazahaya, K., Tsukamoto, H., Sato, T., Takahashi, H. A., Takahashi, M., Inamura A. (2023) Deep groundwater flow in the Kamikita Plain, Japan, inferred from geochemical tracers including ^{36}Cl . *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. Sect B* 535, 205-214.
- Wallace, P.J. (2005) Volatiles in subduction zone magmas: Concentrations and fluxes based on melt inclusion and volcanic gas data. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 140, 217-240.
- Witham, F. (2011) Conduit convection, magma mixing, and melt inclusion trends at persistently degassing volcanoes. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 301, 345-352.
- Yukutake, Y., Abe, Y., Doke, R. (2019) Deep low-frequency earthquakes beneath the Hakone volcano, central Japan, and their relation to volcanic activity. *Geophys. Res. Lett.* 46, 11035-11043.

付録：令和５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５年７月２４日（月）１３：３０～１５：３０

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）
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５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]

・小アビ山火砕流は地質情報が少なく、噴火そのものがわかっていないと思うが、どのような認識か。

→小アビ山火砕流は陸上分布が狭くわかっていない。今回現地調査で、1980年代作成の５万分の１地質図の解釈は再検討する必要がある。特に硫黄島と竹島の対比について、硫黄島の小アビ山火砕流堆積物は竹島のものとは対比できないのではという結論。竹島側の記載を模式露頭として小アビ山の制約を考えている。

・ラマン分析について、 SiO_2 による影響が明らかに見える。一般的に使用する場合、 SiO_2 のみにより評価してよいのか？始良が対象か。

→先ほどの試料は始良だけでなく様々な流紋岩～玄武岩までを使っている。傾きの変化は一般性があると考え。指摘の通り、シリケート側は SiO_2 の Si-O ボンドが影響するが、他に鉄やアルミの結合も影響するので今後検討する。

・ナノライトがあっても、全部がガラスだった時の水の量を測りたいとして求めたいという考えか。

→そうである。ラマン分析は数ミクロン四方を分析するがナノライトはこれよりも小さい。分析はナノライト込みのバルク部分に該当。その部分における含水量をそもそも測れるかも含め検討したい。

・メルトインクルージョンの結晶化について、ナノライトできると水が液相か気相に失われることはあるか。

→ナノライトが発生した場合、残りのメルト部分は水過飽和になり、しばしば発泡する。そうすると元々のバルクの含水量評価が困難となり測定不適となる。それも含めて、結晶化が進んでいても分析領域全体として含水量が測定可能かどうか検討したい。

・形態をみれば脱ガスしたかわかる？

→ラマンスペクトル形態を見れば結晶化はわかる。脱ガスは含水量を見ないと難しいが、脱ガスすれば閉鎖系なら気泡が発生しているので、そのテクスチャから測定可能かがわかると考える。

・ラマンについて、測定精度はよくはなると思うが、現在の方法と比べてエラー、測定精度はどの程度よくなるか。

→例えば流紋岩 3 点のばらつきは図のようになる。ガラス組成の検量線傾きは直線性があるので、相対誤差で一割以下には理論上は持ち込めるのではと。運用上の測定誤差はもっと大きくなるが、透過 FTIR かそれ以下、かつ空間分解能が小さくなると期待している。

・FT-IR の場合は試料をスライスして厚さを決め吸光度を求める必要があるが、ラマン法は？

→焦点の周りの励起領域に発生するスペクトルを見ている。その必要は無い。そのかわり、水ピークに対するホストガラスピーク両方評価の必要がある。

・両面研磨の必要がない？

→理論上は片面研磨もしなくていい。破断面や中に埋もれていても焦点を当てて分析可能。流体包有物にかなり使われている手法である。

[洞爺カルデラの大規模噴火事例の検討]

・洞爺カルデラの噴火モデルについて、CP マグマがバサルトのインジェクションで噴火するモデルだと思うが、CP の水の含有量が少しずつ上昇して最後に飽和して噴火すると考えてよいのか。

→CP の含有量が増加したかをどう捉えるかが問題。柱状図に基づくサンプリングで CP マグマを検討すると、S1 と S2 で大きな差は認められない。マグマの組成、精度の問題もあるが水の含有量もそれほどの差は無い。インジェクションは捉えられているが、噴火に至る一年ほどの間にどのようなプロセスがあったかはまだわからない。

・ CP の深さは？

→2kbar 前後である.

・ U-Th 非平衡でレジデントタイムの研究を進めているようだが、どのような見通しか.

→U-Th 非平衡と、斑晶鉱物の時間スケールは全然別物を見ているという実感. U-Th は長時間の時間スケール. 洞爺で U-Th で見ていくのは、カルデラ形成と、ポストカルデラ（中島など）の放射非平衡. これらで違いが見えるのか、見えた場合はどう考えるかという研究を進めている. カルデラ形成については、CP, CR で放射非平衡測定を進めているが、値は出るが、解釈に苦しむという結果.

・期待している. また、時間間隔が両カルデラにあり S1 と S2 に分かれるのが興味深い. S1 は総噴出量に対してどれくらいか.

→噴出量は柱状図で定性的に合わせている. 洞爺も支笏も S2 の 1/3 以下程度.

・前兆と捉えるものではないということですね.

→洞爺も支笏もカルデラ形成噴火直前、先行噴火は、ボーリング探査をしたが見つからなかった. 現時点では、地質学的には突然 S1 から始まったと考えている.

・噴火インターバルはどれぐらいか評価できるか.

→支笏はインターバルが二つある. S1 と S2 のインターバルは短く浸食間隙程度.

もう一つの S2 と S3 の間は、マグネで方位に差が出ており、数百年程度のインターバルの可能性. S1 と S2 についてはマグネで検討したが見えなかったため、短く考える. 洞爺も浸食間隙があるが、長いとは考えていない.

・洞爺と支笏の比較の際、テクトニクスの影響は？広域的なテクトニクスの違いは考えなくてよいか. 空間的・時間的に違いは出るか.

→空間的にも近いので、大きなテクトニクスの差は無いのかもしれない. ただし、東には日高山脈という非常に大きなテクトニクスラインがあり、それにより近い支笏と洞爺が全く同じテクトニクス場かは問題. というのも、洞爺から始まりだんだん東に移動しているので、移動がテクトニクスに関係しているかもしれない. 否定できないが、現時点ではわからないとしか言えない.

・K の量が背弧に従って増加するようにはなっていないように見えたが.

→背弧に向かって K₂O 増加は見えるので、島弧の特徴は持っているとは言える.

・発表のグラフで見えないように思ったが.

→例えば、クッタラはフロント側、羊蹄と、大まかには広域変化は成り立っているといえる.

[活動的カルデラ火山の地下構造調査]

・マグマ溜まりに対応する低比抵抗体はなさそうということで感度テストをしていたが、もう少し大きなものを置いて、これよりは小さいなど制約はできないか. 地震の

データは精度は高いと思っていい？

→気象庁の一元化震源はその程度のもの．系統的に地震の無いところは地震が無い
と思っていい．

・地震は湖の南側に集中しているようだが，低比抵抗構造の水平方向の分布との対応
は？

→5km の深さの断面を見ると，比較的低い比抵抗の物が中心部にある．周囲は高
比抵抗がある．その境界部分に地震が起こっている．水平は 5km の深さなので顕
著な低比抵抗領域はないが，やや低比抵抗が地震の分布と対応する．

・地震が発生している下の方，グリーンの部分が周りより抵抗が低いように見えるが，
それがどのくらい正しいかわかれば，地震の震源よりも深いところについては計算す
ればメルトフラクションについて話せるのでは．

→感度テストで示したように，感度はないので，今回は 5km しか感度がある構造
は得られていないと考えている．

・周りのブルーの部分に比べると低いと思え，下から $100\ \Omega \cdot \text{m}$ 切るぐらい 柱状の
ものがあるようにも見える．下に行くほど広げないとだめだが，そういう意味で，か
なり大きいものを置くと，感じるかもしれないと思う．ブルー，つまり 1000 とかに
すると，レスポンスが合わなくなるのではという提案．その点では，十和田の下はま
だ異常と思えるという印象．

→わかりました．深さや大きさを変えてやってみる．

・深くて小さいのが見えないのはわかるが，横に広げて頭がその辺にくるものを置く
と何かなるかもしれないし，グリーンをブルーにすると合わないかどうか確かめるな
ど，可能性があるのでは．

→わかりました．やってみる．

・湖の底から温泉水があると聞くと，湖底の観測について検討とは，何かやるのか．
→湖底は MT をやるかを検討するのが目的．ただ今日発表した範囲では，効果的な
方法ではないかもと考える．中海の場合は 400m と深いので，いずれにせよここ
ではできない．

[活動的カルデラ火山の地球化学的調査]

・クラスター分けの縦軸横軸の意味を教えてください．

→12 成分，主溶存元素を用いて，クラスター解析を行い，結果，8 個のクラスター
に分けられた．図でオレンジ，ピンク，緑，黒が見えている．阿蘇も一緒に解析し
たが，始良の結果だけを見せており，8 個は出ていない．

・左の図では縦軸横軸はマイナスだがこれは何か．

→酸素水素同位体比の図です．

・多次元 AI 解析というのは主成分分析のようなものか．

- 統計解析のひとつで、データ群が何成分から構成されているかを抽出する。この場合は阿蘇と同様の 8 成分でよいだろうとなった。成分数は決まっていない。データから導かれる。
- ・主成分分析だと PC1, とかでてくるが、そのような一般的な解析はしていないのか。
→その IC にあたる。それよりも独立成分分析, IC になる。IC1, IC2…と IC1 からふっていつている。
 - ・IC, Independent Component というのは、例えば全体の分散をいくつまで使えば説明できるとかはあるのか。
→それをいくつも分析してどこが妥当かを見出している。予察的な結果だが、データ量が多い方がいい。
 - ・希土類の組成は、温泉の場合、熱水リザーバーの母岩を構成する岩石を反映すると思う。マグマを見るのが主目的だと思うが、マグマ、つまり深いところの情報は、熱水リザーバーの浅い情報にかき消されると思うがどうか。
→Sr の同位体比に表れている。Sr は統計解析には入っていないが、Sr 同位体比のレンジが広く、高い値を持つものは堆積岩や付加体の影響を受けているので、温泉水も表層情報に上書きされていることはあると思う。だが、注目しているのが黒と赤の違い。これが、単に地質を反映しているのか、少しは深い情報を持ったまま、わりと速いとか周辺の岩石とのインタラクションが飽和しているとか、そういうものがあるのではないかという視点で、選んで REE を見ていくしかないと思う。すべてが地質を反映していないというスタンスではなく、情報を残しているものを見つけないというスタンス。
 - ・13 枚目、Cl/H₂O-C/Cl 評価について、考え方は素晴らしいと思うが、初生のものを仮定して気泡分離か固化かというプロセスを仮定するとこの分類になるということか。
→まずはスタート物質としてこのような組成を仮定し、例えば玄武岩マグマの場合、そこから脱ガスする、メルトとガスの溶解度が、それぞれ Cl/H₂O と炭素で違うので、熱力学的計算から出てくるガスがどういったものかや、固化する場合は全岩そのもののデータを反映していると思われるので、それがどういった比率なのかを計算している。
 - ・つまりバブルの分離は平衡で計算し分配が効くが、ソルビリティ計算では全てが出てくるとのことか。
→そうだ。
 - ・マグマ状態を評価する上で有用な方法と思うが、実際に本当のプロセスと対応関係を確認することはどのように行うのか、アイディアは？
→九重は現在の活動と整合的なデータがでているので、ある程度評価できると考えている段階。他にも、それぞれの火山についてどのようなマグマが出ているかわか

っているところで適用し、妥当性を考えようと思う。

【第2回検討委員会】

日時：令和5年12月13日（水）10：00～12：00

場所：航空会館 504 号室 〒105-0004 東京都港区新橋 1-18-1

出席者：

検討委員

金子克哉 委員（神戸大学）

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）

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5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]

・スライド6のCa/Sr図は、結晶分化が5万年続いていたことを示す？

→巨大成長の時期であり、マグマはほとんど噴火しないでたまっている。その間に、周縁部で分化が起こっていると考える。

・スライド8について、阿蘇の後カルデラはレジームマップにプロットできないのは？階段図で（マグマ供給率 M_{in} を示す）赤線をどのように引いた？

→後カルデラのマグマ供給率は、黒線と重なるように直線回帰して求めた。マグマだまりの体積は地物データに基づいて推定している。

[岩石学的手法によるマグマプロセスに関する調査・研究]

・始良の深さよく決まった。ラマンの手法開発もよい。ラマン法は従来法（FTIR など）と比べて何がよい？

→前処理が簡単で、空間分解能が高い。

・スライド10の鬼界と阿蘇の含水量は、FTIR とラマンの結果を比較？

→どちらもラマン分析の結果。旧検量線を使用した結果と、今回新たに作成した複合検量線の結果を比較している。

- ・ ナノライトの入っている包有物を測定する必要あるか？
→徐冷された火砕流堆積物ではナノライトが出ており，必要と考える．
- ・ 滞留時間は何を意味する？
→マグマ的な温度にいた時間．存在していたマグマ溜まりの大きさはわからない．
- ・ 苦鉄質マグマ注入は拡散プロファイルに記録されうる？
→高温で急激な拡散が起こると，プロファイルが変わりうる．ただ，それを検出できる分解能はないと考える．
- ・ 試料ごとの滞留時間の差はどう説明する？
→まだデータが少ないが，温度の違いがあるかもしれない．

[洞爺カルデラの大規模噴火事例の検討]

- ・ 洞爺と支笏の差は玄武岩質マグマの活動度との認識．なぜ違う？
→どういうテクトニクスと関係しているかはこれからの課題．
- ・ 洞爺と支笏で玄武岩の活動度は違うが，最終的な噴出量はほとんど同じ．どういう意義があると考えるか？
→支笏では活発な玄武岩質マグマの貫入でデイサイトができて，珪長質マグマの生成が加速したと考える．
- ・ U-Th 放射非平衡の図について，樽前が U-excess で沈み込み帯のマントル起源．反対側に位置する場合何を意味する？
→地殻溶融を意味する．
- ・ スライド 12 の洞爺の U-Th 放射非平衡はどう解釈した？
→同じソースからカルデラ期とポストカルデラ期の珪長質マグマができたと仮定．共通の地殻物質からできると考え，メルトと残存固相に分かれた後，データを説明するのにどのくらいの時間が必要かを考えた．
- ・ U-Th 放射非平衡分析から，支笏では巨大噴火を起したのと同じ量の珪長質メルトが 40 万年以上の間，地下に存在していたと示唆される．これをどう解釈するか？
→粒間メルトでもいい．その場合，メルトの集積は 40 万年より短い．地表で全く活動がない時期から，地下ではしずしずたまっていたと解釈できる．
- ・ 支笏の CR マグマは多様な組成である一方，洞爺の CR マグマは端成分に分かれているとの認識．苦鉄質インプットの差を反映しているのか？
→洞爺はマッシュの不均質が原因でクラスター生成．支笏ではクラスターがない．頻繁な玄武岩質マグマのインプットで混ざりあっているとの解釈．
- ・ 支笏の U-Th 放射非平衡について，「40 万年以上前に生成」以外の別の解釈はないか？非平衡状態の巨大な結晶の塊（マッシュ）に苦鉄質が入ったでは説明できないか？
→非平衡ができた後に閉じた系ができたと考えている．40 万年の滞留時間は不思議

議. ソースは一つと考える.

[活動的カルデラ火山の地下構造調査]

- 地下 2 km 以浅の低比抵抗は特徴的であるか？
→とくに特徴的ではない. 体積を求めると重力異常と合う.
- 地下 5-10 km に低比抵抗はないと考えてよい？
→仮にその深さに半径数 km の低比抵抗の円柱があっても見えない. 東北では, induction vector が北を向く傾向があり, 津軽海流など大きな構造の影響があると推定される.
- 東側の高比抵抗はなに？
→造山運動に伴う深成岩をみていると推定される.
- マグマがあった場合, どのような比抵抗値が推定される？図で何色になる？
→メルト分率によるが, 1-10 Ω で赤色になると想定される.
- 生データの解釈については？
→周波数成分に分けた. 長周期の成分に意味はないと考える.
- 熱水流動シミュレーションの入力パラメタの根拠は？
→一般的な値を採用. 箱根の熱水系の湧出量等を再現する値に相当. 現在の十和田に箱根のような湧水はないが, 過去には存在したかもしれない.
- じょうご型低比抵抗帯の充填体積を考慮すると, 外に出た噴出物体積の倍量のマグマが過去に地下にあったと考えていい？
→よくわからない. 他の火山で研究例はある. 陥没地形を充填する量が噴出量と同等かそれより多いという例がある.

[活動的カルデラ火山の地球化学的調査]

- スライド 8 について, 珪長質マグマの特徴は桜島で出ている？
→桜島南側の高齢者施設. 海岸近くのボーリングから採取した.
- 火山性成分の評価を期待している. 阿蘇において, マグマの直接の影響が期待される湯だまりを分析しないのはなぜ？
→湯だまりは別の研究でやっている.
- 火山ガス中の REE を検出して, 火山性成分のリファレンスにできないか？
→今後の課題.
- スライド 9. 始良の北側 (A9) に珪長質マグマのシグナル. 上昇経路は？
→いろんな経路があると考えている. 住吉池に近い. ただしここでは玄武岩が噴出している.
- 始良のクラスタリングにおける天水型とは？
→酸素水素同位体組成が天水線にのる一方, 溶存成分に富むクラスターである.

- ・始良にて、C/Cl と REE に基づくマグマ種別の判断が一致しない原因は？
→試料選定の問題．火山性でないものを判断してしまっている可能性あり．

【第2回検討委員会追加】

日時：令和5年12月21日（水）10：00～11：00

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）

説明者

山元 孝広（産業技術総合研究所）

松島 喜雄（産業技術総合研究所）

議事内容：令和5年度研究の成果について

委員コメントへの回答：

[岩石学的手法によるマグマプロセスに関する調査・研究]

- ・5年間の研究計画は達成出来たとの認識で良いか？
→岩石学的課題で設定した日本の代表的なカルデラ噴出物の温度圧力条件，斑晶ゾーニングを使った滞留時間見積もりは達成出来た．

[活動的カルデラ火山の地下構造調査]

- ・今年度電場を測定した御門島の抵抗値が高いのはなぜ？岩盤に直接電極を置いたことによるのか？そもそも湖中の岩礁はどのような場なのか？
→測定地点の岩礁は，後カルデラ期の溶岩ドームの頂部が湖面に露出したもので，大きな岩盤が伏在している．
- ・東西断面で比抵抗のコントラストが高く見えるのは？
→十和田カルデラの南東に伏在する高比抵抗体の地質構造が強く出ている．
- ・中海の南島にある低比抵抗は変質帯由来のモントモリナイトを見ているのか？
→この低比抵抗体は非常に浅い部分にしかないので，局所的な変質を見ていると考えている．
- ・マグマ溜まりの検出可能性の検討は重要である．断面図ではマグマ溜まりを推定している深度で，地震が群発しており，物性的に問題はないのか？
→断面図では，気象庁の震源を示しているが，深さの精度はない．例えば2000年の群発地震時の弘前大学の集中観測結果では，震源はもっと浅い場所に決まっている．震源震度については，今後の検討が必要である．
- ・熱水流動シミュレーションのコードは？

- STAR を用いた．下限深度は 5 km にしている．
- 十和田火山を対象とした地球物理探査の事例は？
 - 解析実績はほとんどない．東北地方の広域を対象とした Chen の解析では，十和田火山の下に反射面が確認されているが，最近の唯一の事例である．