

### 3 活動的カルデラ火山の地球化学的調査

巨大噴火を起こしたカルデラ火山において地球物理探査で検出された火山深部の異常がマグマであるか否か、マグマの場合はその種別を推定する為に、採取された地下水の地球化学的検討を実施している。今年度は、これまでに阿蘇カルデラをモデル事例として提案された判別手法を確立するため、他のカルデラ火山を対象に活動的カルデラ火山における地下水の水質、ヘリウムなどの軽元素同位体、希土類元素、重元素同位体の化学組成や同位体分析を実施した。

#### 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】

昨年度までの本委託研究により、阿蘇カルデラ火山噴出物の希土類元素組成が、玄武岩は Eu 異常を示さず、デイサイトや流紋岩には Eu 負異常が現れているのに対し、阿蘇カルデラの地下水には、顕著な Eu 負異常は見られなかった。この希土類元素組成の結果からも阿蘇カルデラ下の大規模な流紋岩質マグマの存在は支持されず、これまでの C/Cl 比や  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  の判別結果とも整合的な結果となった。

今年度は、海底カルデラである始良カルデラで採取された地下水の定量分析を行い、希土類元素組成を用いたマグマの種別判定を試みた。解析に際しては、高次元データ AI 統計解析を用いて試料群を形成する成分を見だし、温泉水中の希土類元素存在度を決定づける過程について考察した。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。統計解析の結果、カルデラ火山活動に関係すると思われるクラスタが得られたが、試料数を増やすなどを行い、更に検討する必要がある。また、十和田カルデラ周辺の温泉についても本手法の適用を試みるために分析を進めた。

##### 【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、平成 31・令和 2 年度本委託研究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。

昨年度本委託研究では、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, 172 試料について希土類元素組成を確定した。

これら分析を行った試料の採水地点は図 3.1-1 に示す。特記すべきは、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である。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。前弧域であり、付加体が露出しているため、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は考えられるが、温泉水、河川水、湧水のいずれの試料も産出していない、というのではないだろう。試料の偏りは、統計解析に大きな影響を与えるため、検討結果は予察的にならざるを得ない。希土類元素組成は枯渇マンテル濃度 (Workman and Hart, 2005) で規格化し、図 3.1-2～図 3.1-5 に示す。希土類元素濃度は表 3.1-1 と表 3.1-2 に示す。始良カルデラ及び周辺は計 149 試料で、その内訳は、温泉水 114 試料、湧水・河川 31 試料、海水 4 試料である。十和田カルデラ周辺は計 23 試料で、その内訳は、温泉水 1 試料、湧水・河川 22 試料である。但し、同一地点の繰り返し測定試料を含む。

沈み込み帯のマンテルは、沈み込むプレートに由来する流体が枯渇しているマンテ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、枯渇マンテ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、マンテ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、枯渇マンテルよりも低く、それらの規格化した濃度は、 $10^{-7}$ ～ $10^{-1}$  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 3.1-4 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、海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。

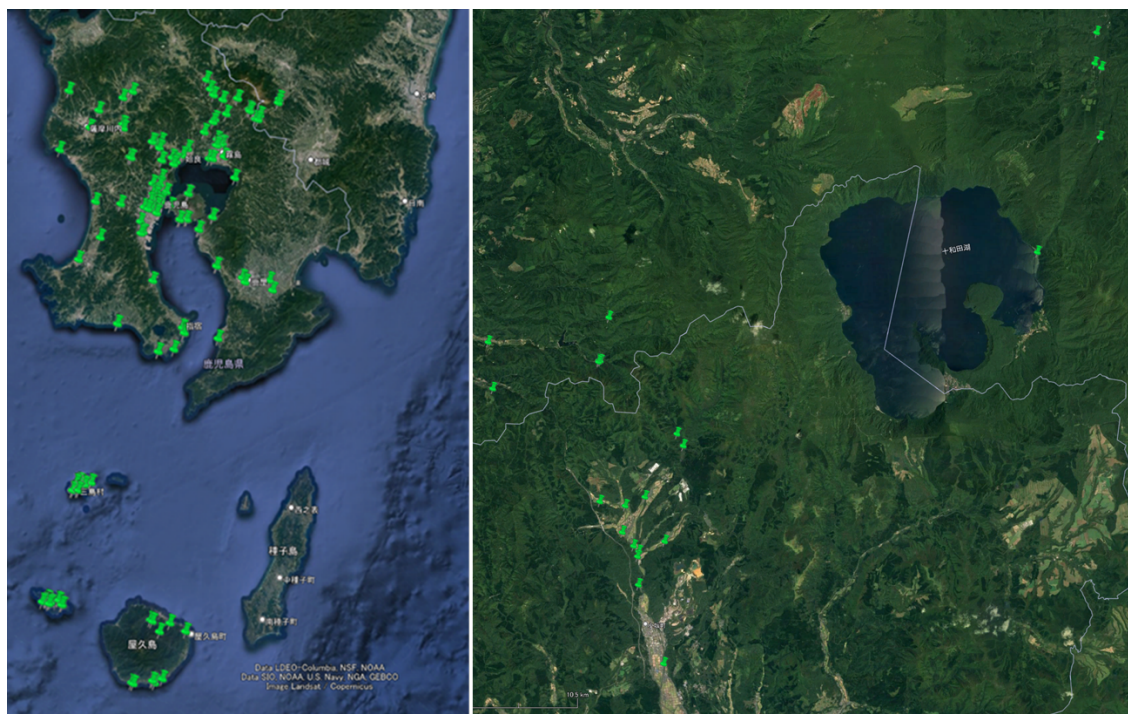


図 3.1-1 希土類元素組成を得た試料の採取地点

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 (総数 149 試料)。右図の十和田カルデラ及び周辺の試料については、既存試料を選定し分析を行った地点を示す (23 試料)。Google Earth Pro (7.3.4.8248 (64-bit)) を使用。

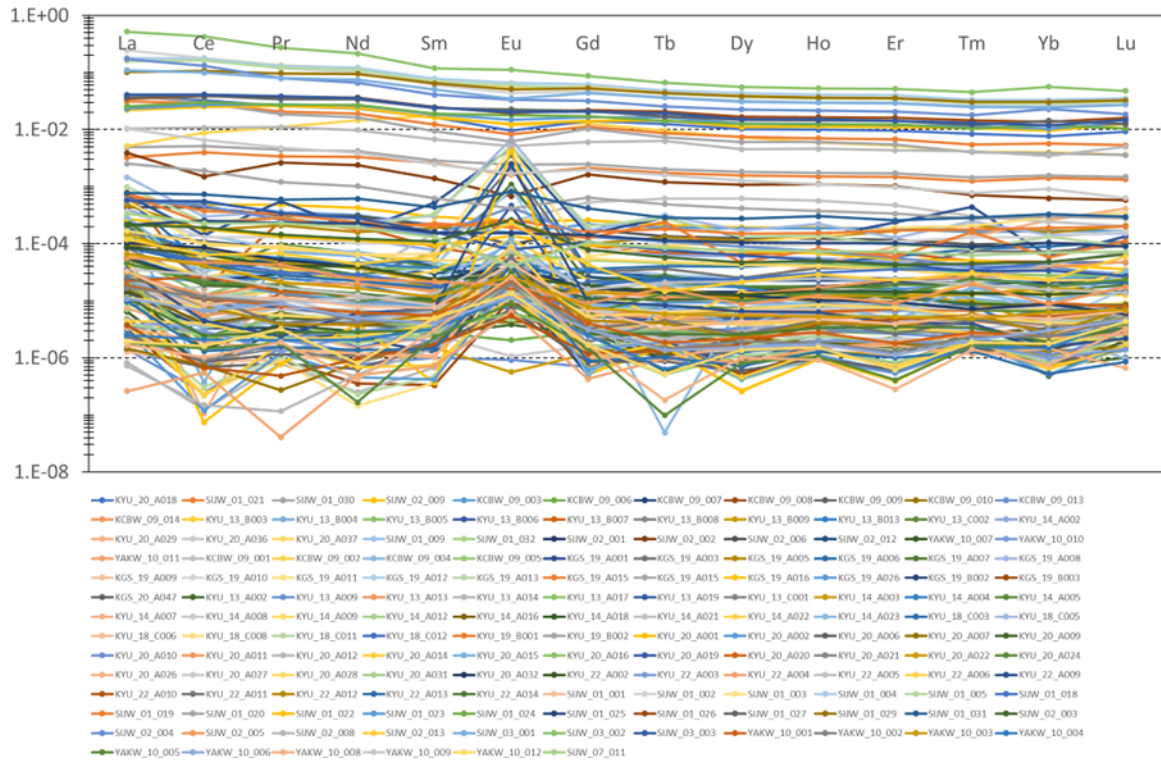


図 3. 1-2 枯渇マンテルで規格化した流体中の希土類元素組成

始良カルデラ及び周辺の 149 流体試料中の希土類元素組成を、枯渇したマンテル組成 (Workman and Hart, 2005) で規格化した。シンボルと色は自動表示である。

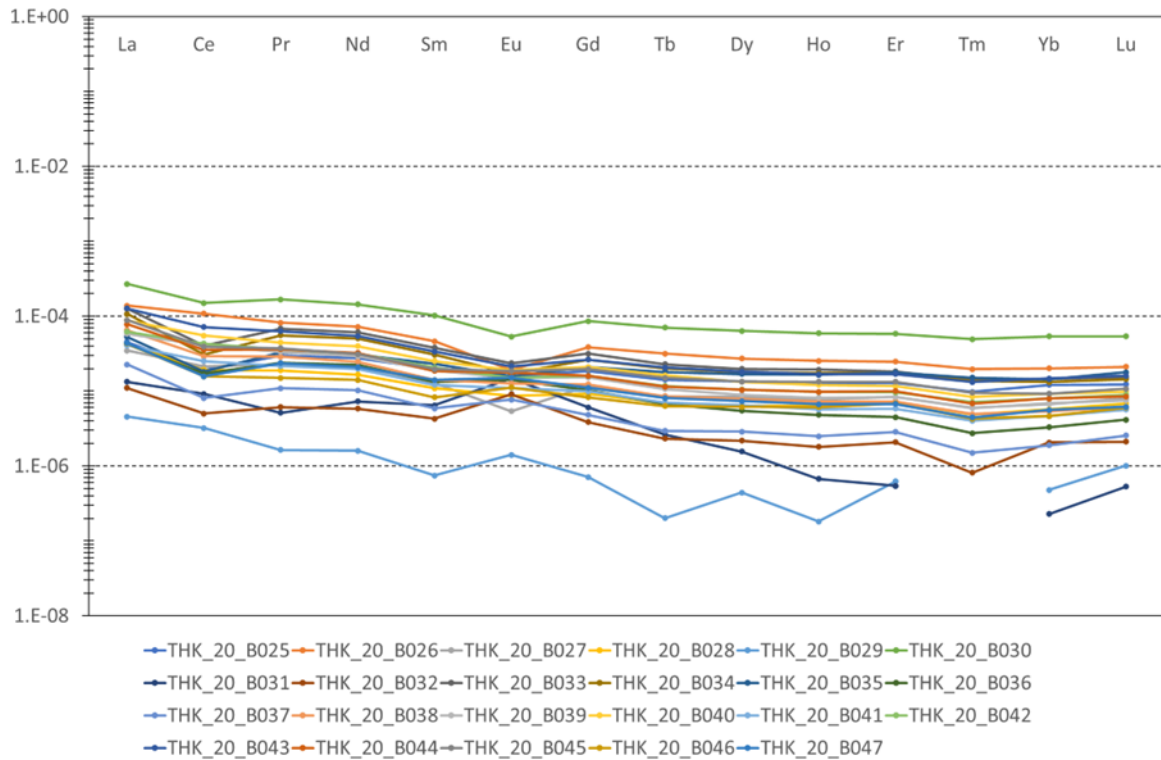


図 3. 1-3 枯渇マンテルで規格化した流体中の希土類元素組成

十和田カルデラ及び周辺の 23 流体試料中の希土類元素組成を、枯渇したマンテル組成 (Workman and Hart, 2005) で規格化した。シンボルと色は自動表示である。

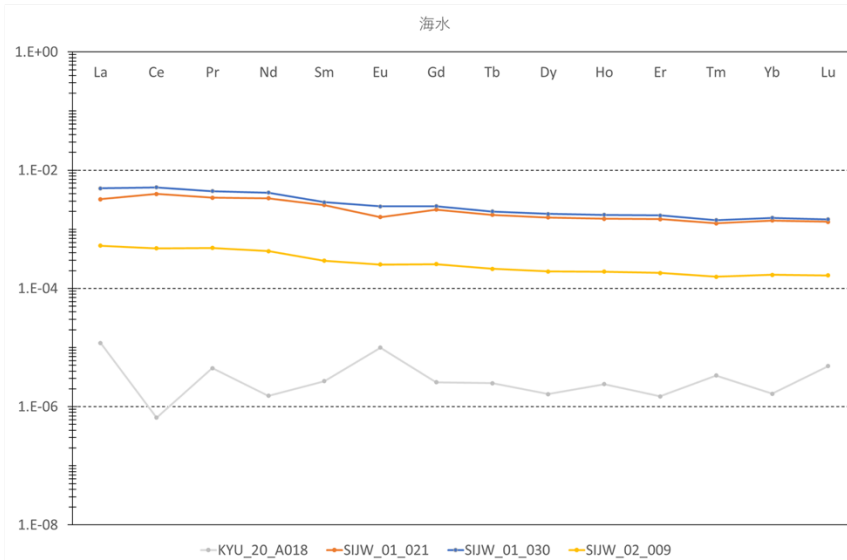
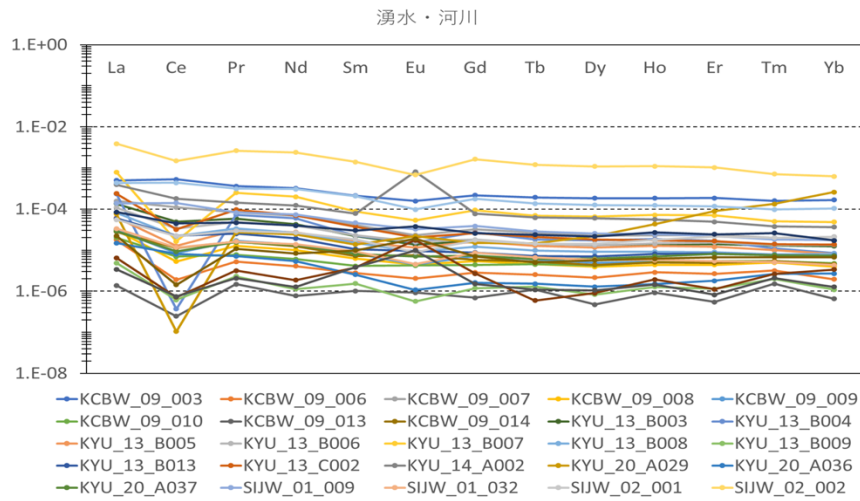
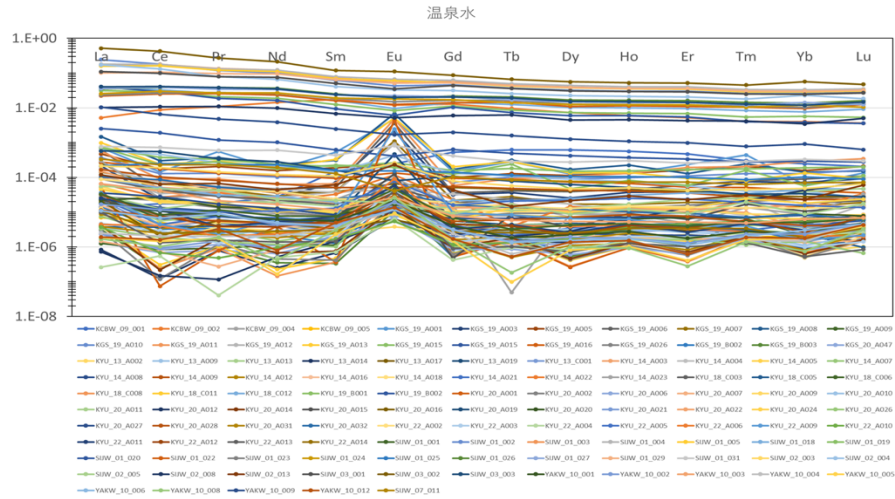


図 3.1-4 始良カルデラ及び周辺試料のカテゴリ毎の希土類元素組成

測定で得られた始良カルデラ及び周辺の全 149 流体試料中の希土類元素組成 (図 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 114 試料、湧水・河川 31 試料、海水 4 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。

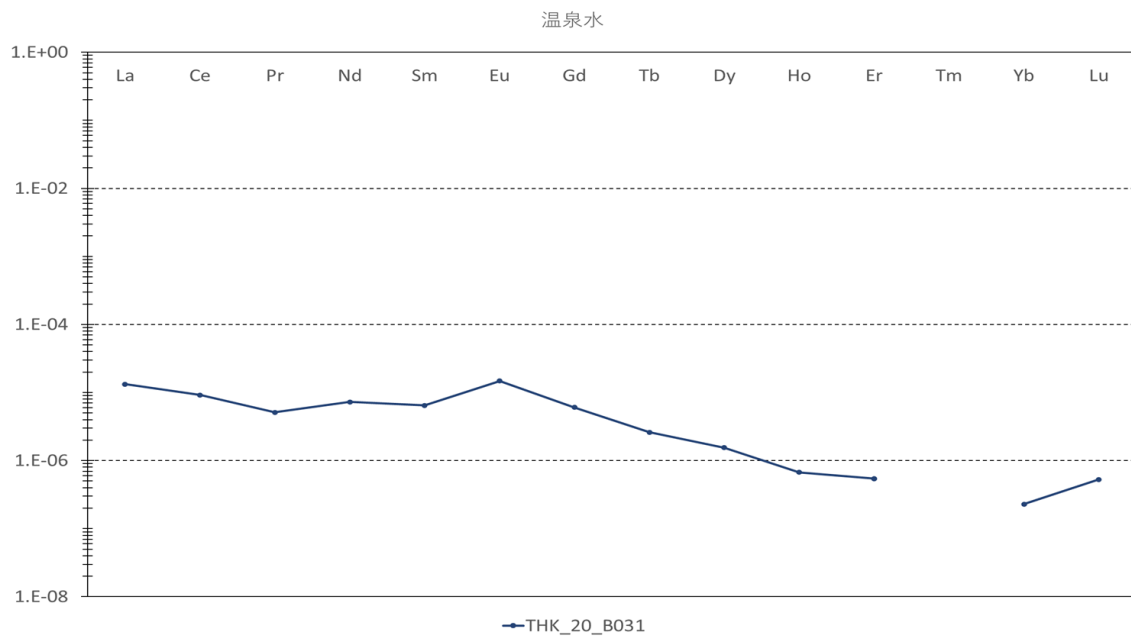
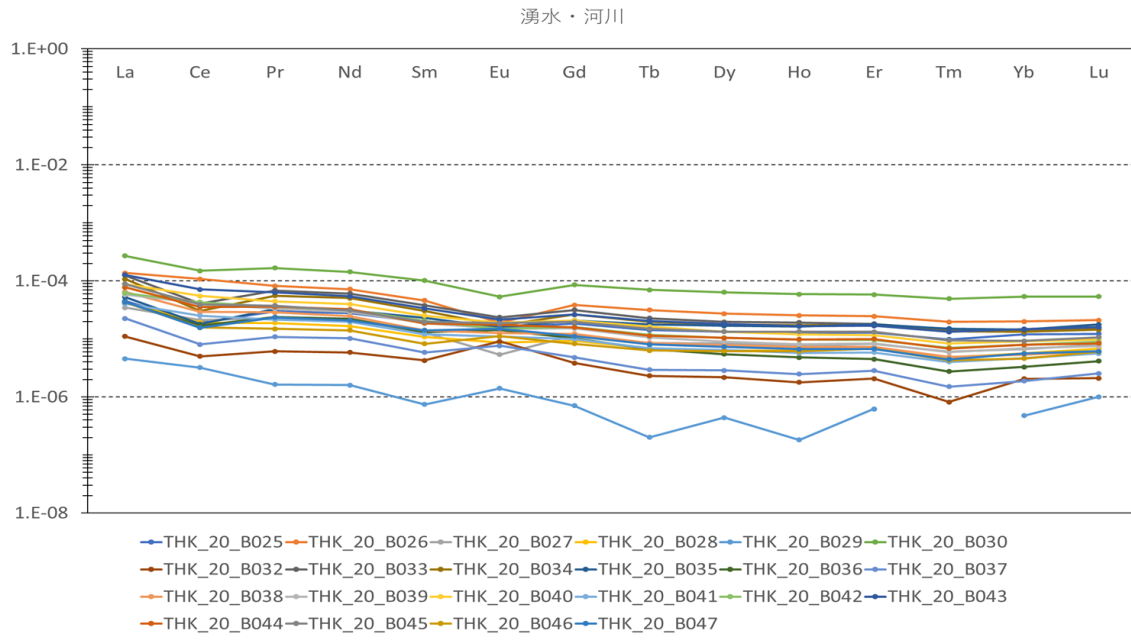


図 3.1-5 十和田カルデラ及び周辺試料のカテゴリ毎の希土類元素組成

測定で得られた十和田カルデラ及び周辺の全 23 流体試料中の希土類元素組成（図 3.1-3）をカテゴリ毎に示す。カテゴリ毎の試料数は、温泉水 1 試料，湧水・河川 22 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中の希土類元素濃度

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
KYU_18_C011	0.00073	0.00017	0.00011	0.00013	0.00011	0.00205	0.00023	0.00012	0.00021	0.00012	0.00021	0.00012	0.00019	-
KYU_18_C012	0.01759	0.02760	0.00335	0.01663	0.00468	0.00067	0.00785	0.00148	0.01227	0.00355	0.01241	0.00207	0.01702	0.00270
KYU_19_B001	0.13895	0.12580	0.03038	0.10294	0.05393	0.01855	0.04454	0.01709	0.02370	0.00944	0.02052	0.00963	0.02118	0.00649
KYU_19_B002	0.48666	1.04846	0.12848	0.59645	0.14933	0.03986	0.22872	0.03448	0.21140	0.04286	0.11704	0.01641	0.10811	0.01617
KYU_20_A001	0.01004	-	-	0.00225	-	0.42702	0.00019	0.00011	0.00013	0.00011	0.00014	0.00011	0.00025	-
KYU_20_A002	0.00057	-	0.00013	0.00026	0.00010	0.00209	0.00022	0.00012	0.00022	0.00013	0.00020	0.00012	0.00019	-
KYU_20_A006	0.00049	0.00046	0.00013	0.00064	0.00042	0.00067	0.00030	-	0.00030	0.00011	0.00021	-	0.00029	-
KYU_20_A007	0.00028	0.00041	-	0.00048	0.00042	0.00290	0.00047	0.00010	0.00077	0.00024	0.00056	0.00012	0.00048	-
KYU_20_A009	0.01048	0.01038	0.00177	0.00775	0.00252	0.00268	0.00395	0.00073	0.00554	0.00139	0.00393	0.00054	0.00302	0.00049
KYU_20_A010	0.00068	0.00149	0.00024	0.00174	0.00086	0.00378	0.00108	0.00020	0.00164	0.00038	0.00090	0.00014	0.00040	0.00013
KYU_20_A011	0.00607	0.00687	0.00216	0.01137	0.00357	0.00113	0.00513	0.00079	0.00648	0.00197	0.00817	0.00153	0.01441	0.00276
KYU_20_A012	0.00014	-	-	0.00030	0.00035	0.00059	0.00087	0.00014	0.00143	0.00073	0.00478	0.00130	0.01565	0.00424
KYU_20_A014	0.00080	0.00012	0.00019	0.00039	0.00018	0.00119	0.00034	0.00013	0.00023	0.00015	0.00025	0.00012	0.00023	-
KYU_20_A015	0.00430	0.00472	0.00093	0.00289	0.00171	0.01206	0.00017	0.00059	0.00182	0.00104	0.00217	0.00101	0.00388	0.00085
KYU_20_A016	0.00401	0.00113	0.00062	0.00280	0.00078	0.00058	0.00099	0.00022	0.00116	0.00042	0.00103	0.00028	0.00147	0.00025
KYU_20_A018	0.00230	0.00036	0.00048	0.00089	0.00065	0.00096	0.00092	0.00017	0.00082	0.00028	0.00052	0.00020	0.00060	0.00028
KYU_20_A019	0.11009	0.30421	0.03690	0.16364	0.03827	0.00764	0.03848	0.00547	0.03147	0.00592	0.01522	0.00198	0.01238	0.00157
KYU_20_A020	0.00431	0.01464	0.00154	0.00726	0.00204	0.00161	0.00246	0.00043	0.00344	0.00073	0.00249	0.00041	0.00335	0.00046
KYU_20_A021	0.00045	0.00051	0.00016	0.00049	0.00049	0.00187	0.00068	0.00030	0.00195	0.00052	0.00137	0.00030	0.00139	0.00023
KYU_20_A022	0.01874	0.04561	0.00508	0.02172	0.00525	0.00368	0.00480	0.00095	0.00559	0.00143	0.00423	0.00078	0.00616	0.00080
KYU_20_A024	0.00891	0.01115	0.00206	0.00587	0.00294	0.00388	0.00211	0.00094	0.00502	0.00165	0.00443	0.00148	0.00663	0.00137
KYU_20_A026	0.00065	0.00104	0.00015	0.00068	0.00024	0.00484	0.00037	-	0.00087	0.00018	0.00058	-	0.00053	-
KYU_20_A027	0.00689	0.01553	0.00182	0.00743	0.00199	0.00096	0.00240	0.00047	0.00358	0.00083	0.00270	0.00042	0.00296	0.00038
KYU_20_A028	0.00220	0.00411	0.00059	0.00278	0.00117	0.00297	0.00193	0.00042	0.00363	0.00098	0.00262	0.00032	0.00150	0.00023
KYU_20_A029	0.01465	-	0.00291	0.01403	0.00328	0.00210	0.00540	0.00102	0.01097	0.00494	0.03099	0.00797	0.09472	0.02388
KYU_20_A031	0.00074	0.00137	0.00024	0.00107	0.00060	0.00206	0.00058	0.00013	0.00084	0.00028	0.00065	0.00012	0.00029	0.00014
KYU_20_A032	0.01982	0.04754	0.00557	0.02329	0.00566	0.00368	0.00589	0.00098	0.00623	0.00117	0.00327	0.00043	0.00320	0.00034
KYU_20_A036	0.00288	0.00440	0.00076	0.00311	0.00061	0.00010	0.00058	0.00011	0.00065	0.00017	0.00062	0.00016	0.00098	0.00025
KYU_20_A037	0.00556	0.00512	0.00167	0.00766	0.00192	0.00068	0.00262	0.00043	0.00311	0.00082	0.00281	0.00045	0.00266	0.00054
KYU_22_A002	0.01696	0.03559	0.00444	0.02321	0.00575	0.00246	0.00654	0.00102	0.00640	0.00173	0.00498	0.00080	0.00471	0.00083
KYU_22_A003	0.00091	0.00164	0.00014	0.00140	0.00047	0.00456	0.00051	0.00013	0.00076	0.00023	0.00067	0.00011	0.00036	-
KYU_22_A004	-	0.00030	-	0.00029	0.00017	0.00062	0.00015	-	0.00042	0.00017	0.00065	0.00015	0.00081	0.00015
KYU_22_A005	0.00338	0.00671	0.00110	0.00635	0.00311	0.00748	0.00576	0.00146	0.01108	0.00286	0.00828	0.00116	0.00572	0.00079
KYU_22_A006	0.00086	0.00223	0.00022	0.00136	0.00092	0.00874	0.00115	0.00029	0.00196	0.00050	0.00116	0.00017	0.00079	0.00012
KYU_22_A009	0.00674	0.00245	0.00025	0.00356	0.00172	0.23892	0.00343	0.00059	0.00332	0.00072	0.00141	0.00024	0.00058	0.00013
KYU_22_A010	0.00072	0.00037	-	0.00056	0.00041	0.00052	0.00042	-	0.00085	0.00045	0.00167	0.00033	0.00193	0.00038
KYU_22_A011	0.00482	0.00636	0.00042	0.00305	0.00178	0.00556	0.00117	0.00031	0.00132	0.00052	0.00091	0.00028	0.00113	0.00028
KYU_22_A012	0.00615	0.00439	0.00042	0.00219	0.00140	0.00357	0.00160	0.00028	0.00113	0.00048	0.00124	0.00035	0.00097	0.00042
KYU_22_A013	0.00188	0.00072	0.00017	0.00080	0.00034	0.00390	0.00032	-	0.00037	0.00015	0.00035	-	0.00019	-
KYU_22_A014	0.00213	0.00135	0.00030	0.00166	0.00073	0.00286	0.00098	0.00018	0.00129	0.00039	0.00121	0.00021	0.00069	0.00020
SLW_01_001	0.00638	0.00463	0.00124	0.00456	0.00181	0.00436	0.00246	0.00023	0.00216	0.00055	0.00138	0.00032	0.00180	0.00039
SLW_01_002	46.91502	98.93645	12.60445	58.59450	14.60034	4.17076	16.63215	2.60546	16.39881	3.48634	10.36610	1.54924	9.41205	1.61473
SLW_01_003	32.08039	98.11238	14.49097	70.40788	17.74033	5.08673	20.45039	3.12389	19.72066	4.16962	12.25887	1.76450	10.56773	1.77063
SLW_01_004	34.51584	97.13771	14.12640	70.81712	18.82466	6.34950	22.16946	3.42420	22.07444	4.68648	13.95605	2.00430	12.12448	2.04038
SLW_01_005	30.61183	89.78891	13.00651	64.16997	16.65587	5.78750	19.06578	2.97804	19.08810	4.02929	11.99557	1.73158	10.44799	1.77057
SLW_01_009	0.02649	0.07776	0.00887	0.04252	0.01102	0.00309	0.01375	0.00198	0.01283	0.00281	0.00761	0.00110	0.00642	0.00099
SLW_01_018	7.36746	18.10557	2.79490	13.73086	3.93802	0.91651	5.08758	0.88299	5.15880	1.14473	3.34086	0.50294	2.80877	0.53624
SLW_01_019	6.00761	15.80752	2.22540	11.03719	2.97010	0.80066	4.04154	0.60063	3.73642	0.81156	2.35887	0.32682	2.06989	0.31004
SLW_01_020	7.77851	16.08530	2.00923	9.48504	2.25775	0.58998	3.71733	0.51567	3.04042	0.69469	1.91737	0.24045	1.40454	0.20904
SLW_01_021	0.61986	2.18264	0.36635	1.94546	0.61327	0.15477	0.77461	0.12270	0.80075	0.17346	0.51612	0.07563	0.51335	0.07753
SLW_01_022	4.22865	13.77307	2.75343	13.79419	3.85739	1.20096	5.04934	1.02200	5.59861	1.30574	3.82113	0.63481	3.52416	0.72941
SLW_01_023	4.47955	14.75082	2.94742	15.26038	4.49079	1.43013	5.93668	1.15371	6.42861	1.45586	4.22773	0.67567	3.78202	0.75870
SLW_01_024	4.89888	16.53086	2.88873	15.65442	4.55638	1.73208	6.19658	0.98828	6.35485	1.42221	4.29353	0.62868	4.37096	0.61033
SLW_01_025	0.04129	0.13937	0.02495	0.13300	0.03768	0.01468	0.05065	0.00809	0.05315	0.01197	0.03530	0.00520	0.03781	0.00519
SLW_01_026	6.71614	21.17732	4.08233	21.20189	5.95289	1.87455	7.83415	1.43584	8.42774	1.90393	5.61212	0.86903	4.96966	0.94227
SLW_01_027	6.89035	21.63620	3.66484	19.74748	5.77213	2.15863	7.56334	1.19154	7.56191	1.66496	4.99037	0.72940	5.20664	0.72130
SLW_01_029	19.46751	58.76481	10.37098	55.16628	15.44827	4.90136	18.94262	3.08627	19.33875	4.18586	12.47452	1.83480	11.10246	1.87873
SLW_01_030	0.94541	2.82009	0.47289	2.43247	0.68631	0.23384	0.88034	0.14012	0.92372	0.20235	0.59819	0.08612	0.57046	0.08578
SLW_01_031	0.14822	0.40282	0.06365	0.35588	0.10382	0.07926	0.14951	0.02009	0.13935	0.03501	0.08929	0.01725	0.12027	0.01714
SLW_01_032	0.00646	0.00637	0.00173	0.00805	0.00224	0.00043	0.00310	0.00047	0.00293	0.00066	0.00188	0.00031	0.00158	0.00030
SLW_02_001	0.01065	0.01218	0.00315	0.01556	0.00437	0.00085	0.00626	0.00101	0.00720	0.00203	0.00750	0.00120	0.00760	0.00162
SLW_02_002	0.75312	0.82330	0.28178	1.38781	0.33498	0.06538	0.58372	0.08455	0.54978	0.12737	0.35627	0.04268	0.22867	0.03392
SLW_02_003	0.04065	0.10616	0.01549	0.07026	0.02631	0.02496	0.02815	0.00401	0.02357	0.00578	0.01478	0.00268	0.01764	0.00381
SLW_02_004	33.14556	72.52669	8.48735	38.31961	9.78119	3.18398	11.36007	1.78386	11.43217	2.47253	7.19274	1.08109	8.36524	1.07628

表 3.1-1 (続き) 始良カルデラ及び周辺の流体中の希土類元素濃度

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_001	0.00265	0.00964	0.00190	0.01586	0.03641	0.02380	0.18958	0.04364	0.31216	0.06477	0.16407	0.01823	0.08921	0.01202
KCBW_09_002	0.99520	4.82006	1.18129	8.43641	4.15875	1.15132	4.55152	0.67468	3.71411	0.68237	1.83567	0.24700	1.46969	0.21052
KCBW_09_003	0.09548	0.29221	0.03875	0.18615	0.05081	0.01511	0.07762	0.01350	0.09312	0.02115	0.06435	0.00950	0.06054	0.00959
KCBW_09_004	0.00574	0.00417	0.00106	0.00526	0.00169	0.00387	0.00302	0.00055	0.00362	0.00084	0.00237	0.00033	0.00152	0.00034
KCBW_09_005	0.00134	0.00280	0.00033	0.00152	0.00057	0.00082	0.00062	-	0.00080	0.00022	0.00051	0.00012	0.00075	0.00018
KCBW_09_006	0.00341	0.00104	0.00056	0.00236	0.00067	0.00020	0.00103	0.00018	0.00109	0.00033	0.00092	0.00019	0.00071	0.00017
KCBW_09_007	0.03020	0.06022	0.00897	0.03969	0.00979	0.00221	0.01148	0.00184	0.01138	0.00262	0.00800	0.00121	0.00771	0.00120
KCBW_09_008	0.00591	0.00291	0.00137	0.00585	0.00149	0.00043	0.00194	0.00032	0.00200	0.00051	0.00153	0.00030	0.00145	0.00026
KCBW_09_009	0.00606	0.00462	0.00182	0.00787	0.00198	0.00043	0.00258	0.00042	0.00249	0.00061	0.00185	0.00032	0.00169	0.00030
KCBW_09_010	0.00387	0.00382	0.00083	0.00352	0.00099	0.00040	0.00156	0.00032	0.00215	0.00059	0.00186	0.00032	0.00174	0.00036
KCBW_09_013	0.00027	0.00014	0.00016	0.00045	0.00024	-	0.00025	-	0.00024	0.00011	0.00019	-	0.00024	-
KCBW_09_014	0.00539	0.00617	0.00172	0.00729	0.00173	0.00072	0.00210	0.00037	0.00222	0.00058	0.00172	0.00033	0.00166	0.00029
KGS_19_A001	0.13478	0.07838	0.05938	0.09987	0.12581	0.45401	0.05260	0.01997	0.06379	0.01506	0.08293	0.02641	0.00220	0.00778
KGS_19_A003	0.04039	0.01262	0.00438	0.01504	0.01691	0.21037	0.01138	0.00255	0.01281	0.00433	0.01320	0.00447	0.02644	0.00537
KGS_19_A005	0.09019	0.09614	0.02226	0.09241	0.04485	0.02322	0.03547	0.00910	0.05746	0.01523	0.05754	0.01248	0.05713	0.01198
KGS_19_A006	0.11772	0.02413	0.00569	0.02697	0.01218	0.34730	0.01287	0.00287	0.01994	0.00513	0.02084	0.00480	0.03248	0.00644
KGS_19_A007	0.04995	0.02094	0.00495	0.01670	0.00930	0.10576	0.00776	0.00195	0.00854	0.00192	0.00669	0.00115	0.00537	0.00112
KGS_19_A008	0.28346	0.16466	0.03946	0.13868	0.07448	0.65137	0.06100	0.02204	0.08529	0.02591	0.04433	0.01497	0.05199	0.00888
KGS_19_A009	0.00504	0.00376	0.00094	0.00302	0.00163	0.00595	0.00168	0.00028	0.00091	0.00020	0.00038	0.00038	0.00083	0.00041
KGS_19_A010	0.07076	0.07104	0.01399	0.05933	0.02412	0.02424	0.02560	0.00718	0.04519	0.01123	0.03811	0.00772	0.04747	0.00960
KGS_19_A011	0.10840	0.04974	0.00973	0.03687	0.01587	0.45688	0.02114	0.00639	0.05314	0.01518	0.06765	0.01231	0.10648	0.01984
KGS_19_A012	0.02265	0.01873	0.00425	0.01527	0.00921	0.08757	0.00330	0.00126	0.00369	0.00121	0.00262	0.00129	0.00154	0.00094
KGS_19_A013	0.18973	0.13210	0.03134	0.11331	0.07915	0.48844	0.07299	0.01967	0.06734	0.01587	0.03288	0.00482	0.04862	0.00531
KGS_19_A015	0.14076	0.20622	0.03557	0.13762	0.04891	0.02516	0.05682	0.01269	0.07587	0.01777	0.05866	0.01064	0.06952	0.01161
KGS_19_A015	0.00183	0.00357	0.00052	0.00229	0.00060	0.00060	0.00070	0.00024	0.00119	0.00043	0.00120	0.00031	0.00156	0.00033
KGS_19_A016	0.05246	0.10022	0.01430	0.06729	0.02263	0.01300	0.03350	0.00610	0.03738	0.00780	0.01840	0.00306	0.01529	0.00208
KGS_19_A026	0.00535	0.01184	0.00146	0.00595	0.00186	0.00816	0.00260	0.00065	0.00470	0.00152	0.00559	0.00121	0.00869	0.00170
KGS_19_B002	0.00277	0.00179	0.00036	0.00127	0.00030	0.00201	0.00018	0.00014	0.00035	0.00020	0.00044	0.00020	0.00051	0.00016
KGS_19_B003	0.00060	0.00013	-	0.00021	-	0.00106	0.00024	0.00013	0.00026	0.00015	0.00029	0.00013	0.00031	-
KGS_20_A047	0.00025	0.00038	-	0.00037	0.00039	0.00292	0.00047	-	0.00062	0.00021	0.00058	0.00013	0.00023	0.00011
KYU_13_A002	0.00381	0.00130	0.00054	0.00252	0.00063	0.00037	0.00094	0.00017	0.00096	0.00022	0.00078	-	0.00026	-
KYU_13_A009	0.11441	0.25454	0.02819	0.12623	0.03371	0.04159	0.04758	0.00770	0.04541	0.00858	0.01983	0.00243	0.01453	0.00148
KYU_13_A013	0.00472	0.00306	0.00085	0.00353	0.00094	0.00112	0.00140	0.00022	0.00147	0.00035	0.00135	0.00020	0.00087	0.00018
KYU_13_A014	0.00016	-	-	0.00015	0.00016	0.00062	0.00035	0.00010	0.00069	0.00019	0.00078	0.00011	0.00066	-
KYU_13_A017	0.02753	0.03509	0.00586	0.02082	0.00912	0.00628	0.01855	0.00324	0.02114	0.00496	0.01393	0.00183	0.01021	0.00163
KYU_13_A019	0.00348	0.00586	0.00080	0.00334	0.00168	0.04464	0.00201	0.00030	0.00239	0.00052	0.00094	0.00027	0.00248	0.00043
KYU_13_B003	0.02593	0.02699	0.00629	0.02476	0.00522	0.00130	0.00610	0.00099	0.00669	0.00157	0.00489	0.00078	0.00454	0.00073
KYU_13_B004	0.04535	0.00020	0.00772	0.03464	0.00542	0.00148	0.00970	0.00128	0.00883	0.00212	0.00581	0.00065	0.00307	0.00045
KYU_13_B005	0.01192	0.00696	0.00324	0.01588	0.00386	0.00110	0.00583	0.00089	0.00587	0.00146	0.00417	0.00059	0.00293	0.00052
KYU_13_B006	0.02075	0.01859	0.00514	0.02303	0.00548	0.00153	0.00649	0.00101	0.00659	0.00168	0.00536	0.00080	0.00491	0.00085
KYU_13_B007	0.15275	0.00897	0.02670	0.11588	0.02106	0.00510	0.03364	0.00482	0.03273	0.00822	0.02439	0.00302	0.01757	0.00273
KYU_13_B008	0.01572	0.01206	0.00360	0.01527	0.00356	0.00088	0.00434	0.00069	0.00457	0.00106	0.00313	0.00048	0.00297	0.00046
KYU_13_B009	0.00093	0.00034	0.00025	0.00065	0.00037	-	0.00042	-	0.00042	0.00015	0.00040	0.00012	0.00040	0.00010
KYU_13_B013	0.01135	0.01226	0.00268	0.01120	0.00252	0.00093	0.00313	0.00050	0.00356	0.00094	0.00288	0.00045	0.00271	0.00052
KYU_13_C001	0.00422	0.00187	0.00067	0.00234	0.00084	0.00135	0.00104	0.00017	0.00126	0.00032	0.00107	0.00015	0.00092	0.00017
KYU_13_C002	0.04569	0.01754	0.01034	0.04064	0.00895	0.00194	0.00930	0.00147	0.00910	0.00201	0.00576	0.00084	0.00501	0.00078
KYU_14_A002	0.07552	0.09807	0.01524	0.07134	0.01852	0.07760	0.02752	0.00438	0.03017	0.00642	0.01702	0.00228	0.01332	0.00172
KYU_14_A003	0.02866	0.02845	0.00438	0.01471	0.00451	0.00170	0.00513	0.00118	0.00575	0.00115	0.00430	0.00059	0.00131	0.00050
KYU_14_A004	0.03407	0.04010	0.00606	0.02636	0.00886	0.00430	0.01205	0.00163	0.00865	0.00124	0.00465	0.00048	0.00083	0.00021
KYU_14_A005	0.00853	0.01218	0.00163	0.00729	0.00233	0.00136	0.00362	0.00058	0.00370	0.00094	0.00272	0.00041	0.00239	0.00040
KYU_14_A007	0.00146	0.00131	0.00033	0.00085	0.00058	0.00178	0.00130	0.00032	0.00220	0.00051	0.00154	0.00026	0.00136	0.00021
KYU_14_A008	0.00457	0.00745	0.00114	0.00320	0.00111	0.00203	0.00128	0.00021	0.00123	0.00026	0.00076	0.00011	0.00033	-
KYU_14_A009	0.03207	0.05636	0.00872	0.03825	0.01228	0.00490	0.01947	0.00337	0.02172	0.00470	0.01238	0.00160	0.00829	0.00137
KYU_14_A012	0.00168	0.00188	0.00045	0.00131	0.00071	0.00139	0.00058	-	0.00056	0.00014	0.00029	0.00012	0.00063	0.00015
KYU_14_A016	0.00302	0.00224	0.00066	0.00206	0.00119	0.00082	0.00111	-	0.00113	0.00021	0.00059	0.00012	0.00055	0.00013
KYU_14_A018	0.00249	0.00078	0.00041	0.00168	0.00085	0.00059	0.00099	-	0.00094	0.00021	0.00054	0.00013	0.00018	0.00012
KYU_14_A021	0.00478	0.00246	0.00079	0.00401	0.00126	0.00141	0.00153	0.00015	0.00177	0.00042	0.00123	0.00018	0.00168	0.00025
KYU_14_A022	0.01250	0.01468	0.00391	0.01248	0.00791	0.01140	0.00827	0.00028	0.00732	0.00129	0.00339	0.00126	0.00469	0.00198
KYU_14_A023	0.05675	0.01394	0.00339	0.01066	0.00559	0.00925	0.00582	-	0.00448	0.00101	0.00167	0.00081	0.00309	0.00191
KYU_18_C003	0.01739	0.02348	0.00304	0.01293	0.00398	0.00486	0.00661	0.00172	0.01112	0.00290	0.00805	0.00150	0.00668	0.00123
KYU_18_C005	0.00073	0.00205	0.00043	0.00274	0.00147	0.00350	0.00232	0.00046	0.00349	0.00066	0.00174	0.00018	0.00086	-
KYU_18_C006	0.00024	0.00047	-	0.00066	0.00027	0.00130	0.00038	-	0.00124	0.00036	0.00147	0.00026	0.00216	0.00036
KYU_18_C008	0.00083	0.00013	-	-	-	0.00524	0.00020	0.00011	0.00014	0.00011	0.00013	0.00011	0.00019	-

表 3.1-1 (続き) 始良カルデラ及び周辺の流体中の希土類元素濃度

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
SLW_02_005	0.01076	0.02570	0.00458	0.01370	0.00521	0.00180	0.00326	0.00116	0.00437	0.00140	0.00318	0.00118	0.00320	0.00102
SLW_02_006	0.08303	0.23996	0.03357	0.17757	0.04925	0.00937	0.06308	0.00952	0.06312	0.01407	0.04083	0.00586	0.03771	0.00551
SLW_02_008	1.98194	5.94007	1.18018	5.73984	1.62251	0.49859	2.15804	0.44213	2.27980	0.53023	1.50353	0.24915	1.27319	0.29061
SLW_02_009	0.10139	0.26283	0.05178	0.24803	0.07056	0.02433	0.09251	0.01500	0.09774	0.02209	0.06367	0.00950	0.06204	0.00964
SLW_02_012	0.01632	0.02437	0.00501	0.02308	0.00720	0.00361	0.00920	0.00167	0.01094	0.00309	0.00842	0.00157	0.00632	0.00193
SLW_02_013	0.02283	0.03531	0.00726	0.02546	0.01465	0.02232	0.01555	0.00102	0.01075	0.00333	0.00793	0.00187	0.00858	0.00349
SLW_03_001	21.13135	54.87045	8.51298	43.56600	12.19451	3.35321	15.72589	2.54460	15.62425	3.40005	10.05024	1.49341	8.89311	1.57874
SLW_03_002	99.79571	236.21793	29.37588	124.74954	28.38007	10.71042	31.19988	4.63783	28.22012	6.06550	18.13839	2.71471	20.67951	2.75778
SLW_03_003	7.82414	22.63052	4.09612	20.64169	5.81191	1.94042	7.38899	1.35254	7.72397	1.73049	4.99272	0.77796	4.33480	0.85546
SLW_07_011	0.06479	0.12564	0.02460	0.11285	0.03105	0.00391	0.03743	0.00589	0.03866	0.00848	0.02530	0.00376	0.02554	0.00417
YAKW_10_001	0.00353	0.00613	0.00087	0.00360	0.00133	0.00207	0.00146	0.00013	0.00111	0.00032	0.00062	0.00017	0.00086	0.00029
YAKW_10_002	0.00325	0.00635	0.00097	0.00260	0.00097	0.00190	0.00114	0.00010	0.00098	0.00021	0.00045	0.00014	0.00086	0.00027
YAKW_10_003	0.01270	0.02277	0.00230	0.00973	0.00278	0.00257	0.00276	0.00041	0.00276	0.00061	0.00181	0.00029	0.00229	0.00040
YAKW_10_004	0.00048	0.00115	0.00022	0.00121	0.00077	0.00115	0.00088	-	0.00065	0.00018	0.00022	-	0.00054	0.00027
YAKW_10_005	0.00035	0.00080	0.00019	-	0.00056	0.00088	0.00053	-	0.00041	0.00012	0.00014	-	0.00065	0.00023
YAKW_10_006	0.00210	0.00377	0.00096	0.00291	0.00096	0.00115	0.00112	-	0.00078	0.00020	0.00039	0.00012	0.00111	0.00027
YAKW_10_007	0.00124	0.00040	0.00034	0.00108	0.00090	0.00169	0.00096	-	0.00045	0.00022	0.00039	0.00016	0.00123	0.00033
YAKW_10_008	0.00032	0.00057	0.00020	0.00025	0.00073	0.00251	0.00060	-	0.00050	0.00011	-	-	0.00027	0.00019
YAKW_10_009	1.99324	3.62391	0.51309	2.26646	0.59264	0.16290	0.71211	0.11217	0.64151	0.12602	0.34256	0.04664	0.33374	0.03667
YAKW_10_010	0.00066	0.00041	0.00022	0.00074	0.00092	0.00094	0.00054	-	0.00053	0.00017	0.00028	0.00013	0.00046	0.00027
YAKW_10_011	0.00429	0.00079	0.00116	0.00485	0.00234	0.00181	0.00252	0.00035	0.00289	0.00071	0.00232	0.00040	0.00245	0.00050
YAKW_10_012	0.00037	0.00089	0.00035	0.00047	0.00120	0.00130	0.00061	-	0.00069	0.00018	0.00022	0.00011	0.00065	0.00025

表 3.1-2 十和田カルデラ及び周辺の流体中の希土類元素濃度

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
THK_20_B025	0.0087	0.010483	0.003208	0.016066	0.004671	0.001503	0.006648	0.000993	0.006772	0.001445	0.004453	0.000588	0.004396	0.000713
THK_20_B026	0.026465	0.059497	0.008791	0.041839	0.011057	0.001819	0.01382	0.002208	0.013754	0.002917	0.008589	0.001176	0.007335	0.001225
THK_20_B027	0.006669	0.011639	0.002416	0.011991	0.003058	0.000517	0.004159	0.000598	0.004194	0.000883	0.002886	0.000362	0.002461	0.000462
THK_20_B028	0.008049	0.010517	0.002011	0.009641	0.002604	0.00083	0.00331	0.000484	0.003222	0.000723	0.002464	0.000291	0.002075	0.000396
THK_20_B029	0.000876	0.001772	0.000175	0.000928	0.000178	0.000135	0.000254	-	0.000223	-	0.000217	-	0.000174	-
THK_20_B030	0.051769	0.082292	0.017888	0.083433	0.024373	0.005117	0.030642	0.004926	0.032153	0.006787	0.020307	0.002951	0.019584	0.003127
THK_20_B031	0.002544	0.005048	0.000549	0.004224	0.001545	0.001424	0.002169	0.000183	0.000786	-	0.000189	-	-	-
THK_20_B032	0.002118	0.002755	0.000654	0.003389	0.00102	0.000874	0.001381	0.000163	0.001102	0.000206	0.000721	-	0.00075	0.000122
THK_20_B033	0.02405	0.022286	0.007292	0.035373	0.009061	0.002259	0.011302	0.001593	0.009955	0.002213	0.006365	0.000849	0.005281	0.000882
THK_20_B034	0.020657	0.016816	0.00595	0.029314	0.007308	0.001628	0.009417	0.001395	0.009021	0.001981	0.006019	0.000814	0.004821	0.000838
THK_20_B035	0.010122	0.009934	0.003508	0.01782	0.00552	0.001521	0.007498	0.001257	0.008545	0.001897	0.006154	0.000904	0.005252	0.001031
THK_20_B036	0.008155	0.009372	0.002546	0.012957	0.003147	0.001364	0.003651	0.000466	0.002751	0.000552	0.001558	0.000164	0.001205	0.000241
THK_20_B037	0.004338	0.004443	0.001165	0.005929	0.001403	0.000736	0.001727	0.000207	0.001446	0.000286	0.000993	-	0.000686	0.000148
THK_20_B038	0.012513	0.016049	0.003065	0.014399	0.003372	0.001221	0.004386	0.000599	0.003953	0.000839	0.002536	0.000296	0.001959	0.000357
THK_20_B039	0.011141	0.022593	0.00357	0.016977	0.004506	0.001444	0.005447	0.000743	0.004532	0.000932	0.002902	0.000354	0.00252	0.000435
THK_20_B040	0.016875	0.030299	0.004767	0.023069	0.006018	0.001838	0.007477	0.001138	0.006734	0.001389	0.004043	0.000503	0.003329	0.000569
THK_20_B041	0.007809	0.013849	0.002315	0.011464	0.002887	0.001054	0.003562	0.000488	0.003248	0.000655	0.002035	0.00024	0.001689	0.000326
THK_20_B042	0.011901	0.023615	0.00386	0.01845	0.004907	0.00145	0.005736	0.00082	0.005309	0.00112	0.003352	0.000425	0.002894	0.000518
THK_20_B043	0.024365	0.039256	0.006751	0.03149	0.00802	0.00206	0.009442	0.001437	0.009168	0.001923	0.005849	0.000794	0.005394	0.000926
THK_20_B044	0.015001	0.019616	0.003856	0.018853	0.004433	0.001682	0.005691	0.000797	0.005268	0.001125	0.003481	0.000411	0.002901	0.000489
THK_20_B045	0.017008	0.02145	0.003998	0.018064	0.004705	0.001787	0.007048	0.001046	0.006768	0.001532	0.004612	0.00057	0.003373	0.000623
THK_20_B046	0.008292	0.008658	0.001597	0.008144	0.001981	0.001068	0.002958	0.000442	0.003111	0.000705	0.002368	0.000257	0.001682	0.000348
THK_20_B047	0.008366	0.00861	0.002525	0.012166	0.003361	0.00145	0.003979	0.000563	0.003699	0.000767	0.002333	0.000267	0.002048	0.000356

始良カルデラ及び周辺の試料について、阿蘇カルデラと及び周辺の試料（昨年度委託研究）との明瞭な違いは、希土類元素濃度が高い試料が多いことである。例えば、中希土（mid-REE）である Gd を基準として比較すると、阿蘇カルデラと及び周辺試料で最も高い Gd 濃度を示した KYU\_19\_A022 は 3.12ppb であり、規格化した値は約 0.0087 であるが、これを上回る濃度を示す試料が始良カルデラ及び周辺（図 3.1-2）には 18 試料ある。これら高濃度の試料は、いずれ



も温泉水に分類され、主に、薩摩硫黄島や屋久島に分布している傾向にある。また、これら高濃度の試料は、いずれも LREE に向かって左上がりのフラットなパターンを示し、元素異常は見られない。一方、規格化値で  $10^{-4}$ ~ $10^{-6}$  の試料は多く、これは阿蘇と同じ傾向と言える。有馬温泉などの非火山域でも同様の組成を示す試料が多く、火山域に関わらず、日本列島で一般的に見られる濃度と考えて良いだろう。

阿蘇カルデラ及び周辺の試料において、高い Gd 濃度を示す 3 試料は、先述の温泉水 (KYU\_19\_A022) のほか、湧水と河川水 (KYU\_19\_A011; KYU\_19\_A016) であったが (昨年度本委託研究)、始良カルデラ及び周辺の湧水でもっとも高濃度の試料 (SIJW\_02\_002, 図 3.1-4 中の黄色線) は、薩摩硫黄島で湧出しており、やや元素異常が見られるが、高濃度な海水 (図 3.1-4) の影響を受けているように思われる。昨年度本委託研究で希土類元素組成を分析した湧水の試料は、阿蘇カルデラ内に限っていることもあり試料数が少ないが、La/Lu 比が高く (29.89)、概ね一様に左上がりのパターンを示す。一方、始良カルデラ及び周辺の湧水試料は、カルデラ内に限定して居らず、試料数が多いが、温泉水の低い方のパターンと類似している。実際、La/Lu 比は、湧水 22.33 で、温泉水 18.61 と近い値を示す。一方、阿蘇カルデラ及び周辺の La/Lu 比は、湧水 29.89 で、温泉水 17.26 である。すなわち、阿蘇カルデラでは温泉水と湧水は異なるパターンを示す傾向にあり、強く分別した流体が多く存在しているが、始良カルデラ及び周辺の湧水は、温泉水と類似したパターンを示す傾向にあり、温泉水と湧水とで同じ生成プロセスを経ていると考えられる。阿蘇カルデラのように、カルデラ構造に制約された中央火口丘と外輪山で別の流路ができていたのではなく、カルデラの開析が進んで水循環が局所化・小規模化している可能性も考えられる。

十和田カルデラについては、分析を開始し始めた段階であり予察的なデータではあるが、阿蘇カルデラよりも始良カルデラに傾向が似ていると考えられる。

## (2) 始良カルデラのマグマの種別

ここでは、昨年度本委託研究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 3.1-6) に従って、地域毎の希土類元素組成 (図 3.1-7) を比較する。

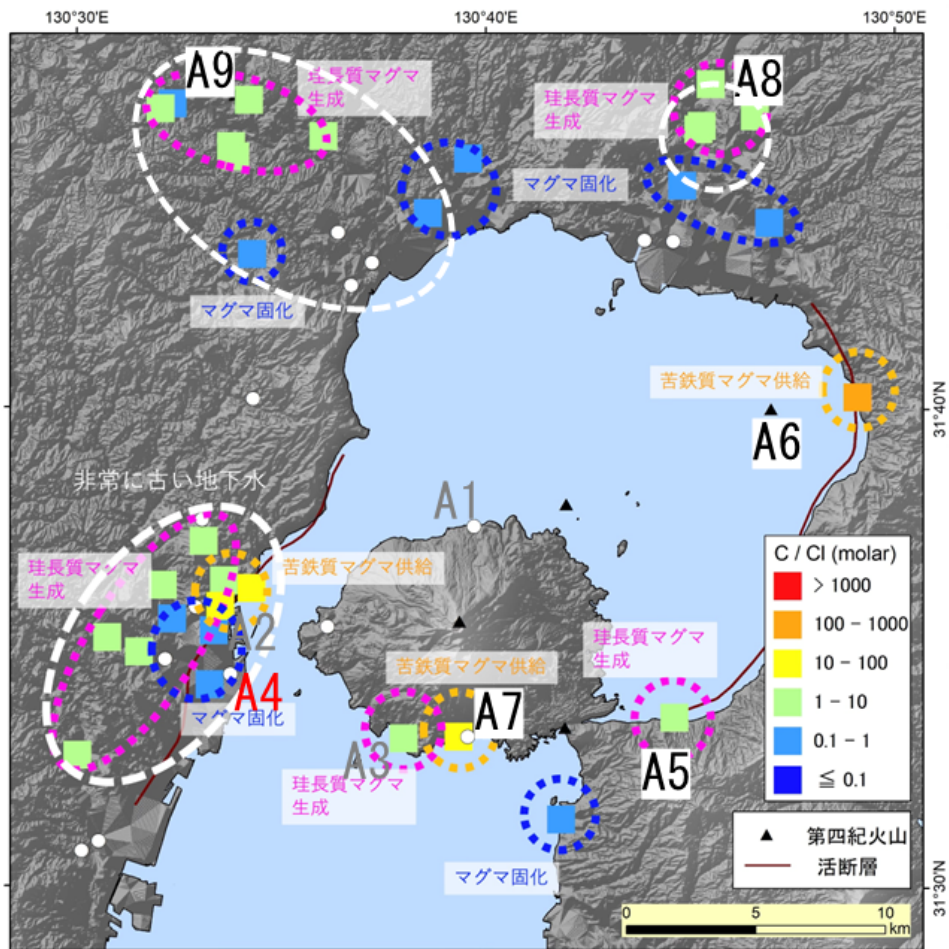


図 3.1-6 始良カルデラ及び周辺試料の C/Cl 比に基づいた地域分け

昨年度本委託研究に従い地域を A1~A9 に区分した。想定されるマグマ溜まりの状態は色 (苦鉄質マグマ供給 (黄色); 珩長質マグマ生成 (ピンク); マグマ固化 (青)) で示し、破線円でその範囲を示している。

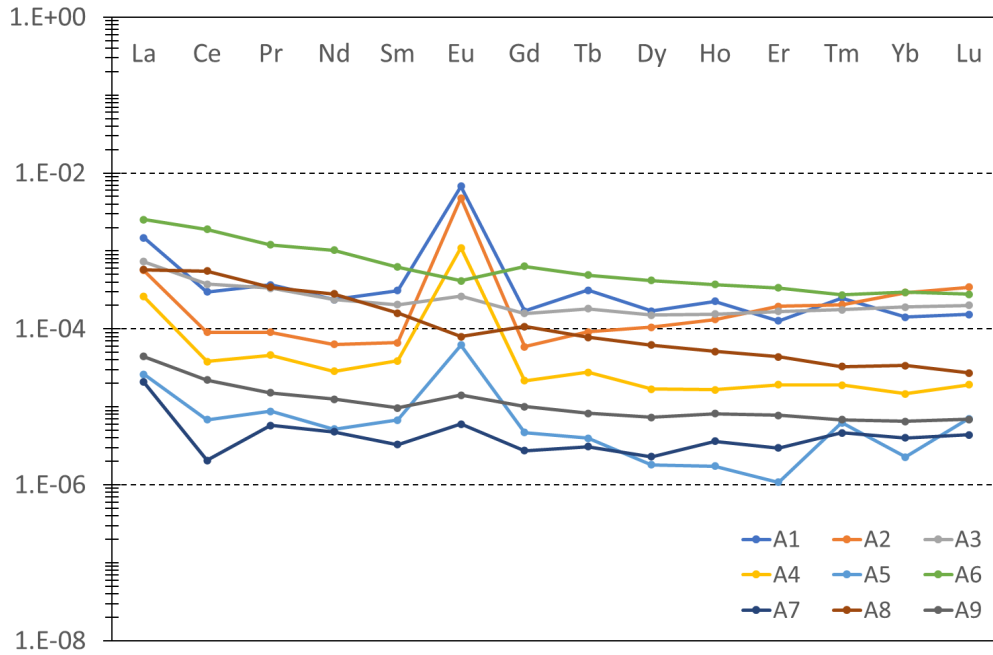


図 3.1-7 C/Cl 比に基づいた地域分けと代表的な試料の希土類元素組成

C/Cl に基づく地域分けに従い、代表として選定した試料は以下の通りである。A1: KGS\_19\_A008; A2: KGS\_19\_A011; A3: KGS\_19\_A015; A4: KGS\_19\_A007; A5: KGS\_19\_A009; A6: KYU\_19\_B002; A7: KYU\_20\_A016; A8: KYU\_20\_A019; A9: KYU\_14\_A005。希土類元素組成は、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。

選定された温泉水が、マグマの種別と状態を反映しているならば、希土類元素組成にも何らかの違いが表れると考えられる。図 3.1-7 に示した A1~A9 の希土類元素パターンは、濃度の違いはあるものの、元素異常の有無や傾きに類似したものが見られ、数パターンに集約することが可能と思われる。そこで、C/Cl 比から推定されているマグマの状態毎に分けて、希土類元素パターンを比較する (図 3.1-8)。図 3.1-6 では、C/Cl 比と空間分布を考慮し、A1~A9 の 9 つに分けているが、C/Cl 比の違いはマグマの状態を反映しているとの解釈に基づき、3 つの段階 (マグマ固化、珪長質マグマ生成、玄武岩質マグマ供給) に分けられている (昨年度本委託研究)。その結果、A2 と A4 がマグマの固化の状態にあり、A3, A5, A8 及び A9 は珪長質マグマ生成の状態、A6 と A7 は玄武岩質マグマが供給されている状態と推定されている (昨年度本委託研究)。なお、A1 は判定不能との結果になっている。そこで、マグマの状態 (固化、珪長質マグマ生成、玄武岩質マグマ供給) に従い、3 つに分けた希土類元素パターンを図 3.1-8 に示す。

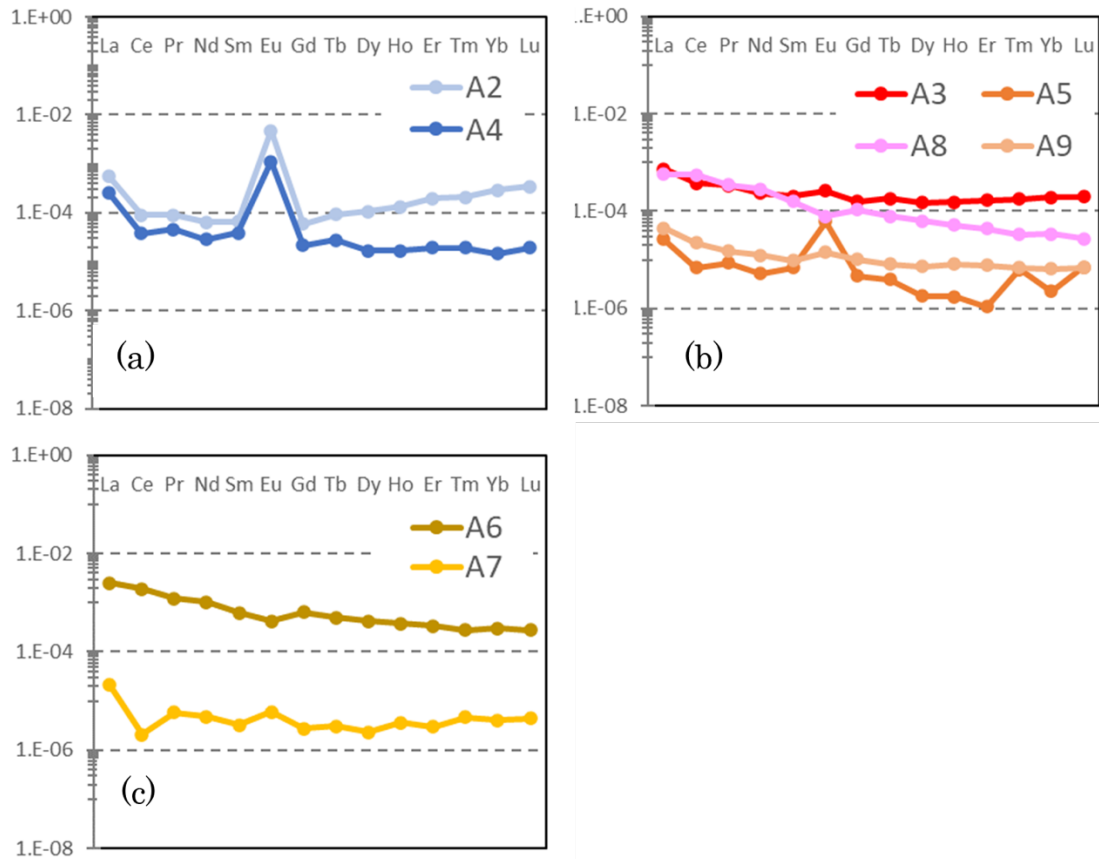


図 3.1-8 マグマの状態毎に分けた代表的な試料の希土類元素組成

図 3.1-6 に従い、図 3.1-7 をマグマの状態に分けて示す。C/Cl 比によって、(a) マグマ固化、(b) 珪長質マグマ生成、(c) 玄武岩質マグマ供給、と判断された地域の代表的な試料の希土類元素組成を、枯渇したマントル組成 (Workman and Hart, 2005) で規格化している。色は、図 3.1-6 のマグマ状態の表記に近い色を使用した。

マグマ固化 (図 3.1-9(a)) と判断された A2 と A4 は、重希土類元素 (HREE) の傾きに違いがあるものの、いずれも Eu 正異常を持ち、W 型のパターンを示す。Eu の正異常を伴う 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 (令和 2 年度本委託研究)。これは先行研究から、沈殿物を生成する帯水層が発達していると考えられている。従って、この試料がマグマの状態を反映しているならば、活発なマグマ活動とは対局にあるという意味で、固化と言い換えることはできるだろう。一方、珪長質マグマ生成 (図 3.1-9(b)) と判断された A3, A5, A8, A9 は、一様に類似性があるとは言い難い。A3 と A9 に類似性は見られるが、A5 と A8 はいずれも特異的である。A5 は、マグマ固化 (図 3.1-9(a)) と近いパターンのように見えるが、特に HREE の傾きは顕著に異なり、加えて Tm 異常も見られる。また、A8 は傾きが急峻で、かつ若干ではあるが Eu 負異常を示すことから、珪長質な物質が関与した可能性はあるが、少なくとも、珪長質マグマ生成では、一様なパターンを示していないと言える。また、玄武岩質マグマ供給 (図 3.1-9(c)) と判断された A6 と A7 は、類似性があるとは言えない。特に、A7 には海水の影響と思われる Ce 負異常があるため、A7 グループに共通のパターンであるのか、代表とした試料が海水の影響を受けてい

るのか、今後検討していく必要がある。代表的な試料では、C/Cl 比から推定されたマグマの状態と希土類元素組成が示すパターンに相関があるとは言い難い。今後、C/Cl 比からマグマの状態判定ができていない全試料について、検討をしていく必要がある。

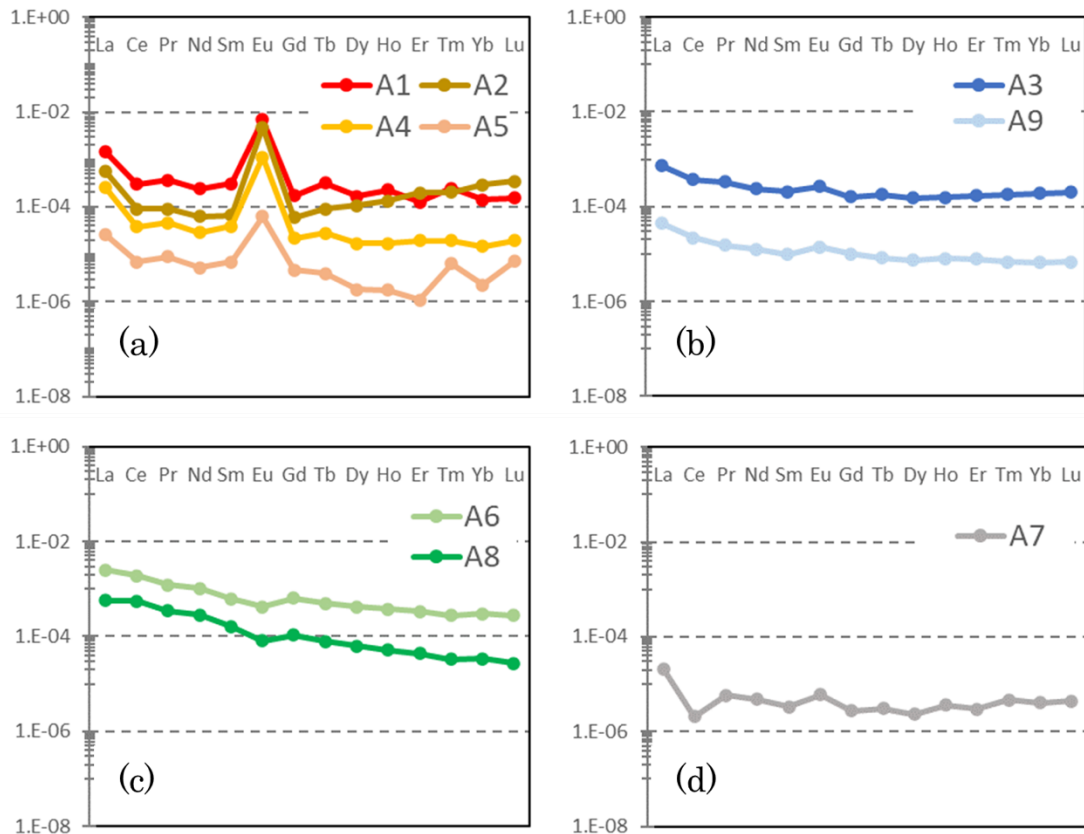


図 3.1-9 希土類元素パターンで分けた代表的な試料

図 3.1-7 を希土類元素組成のパターンの違いに従い、4 つに分けた。希土類元素組成は、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。

そこで、希土類元素パターンの違いだけから分かることを考察する (図 3.1-9)。昨年度本委託研究で述べたように、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)。Cl 濃度にも依るが、流体と花崗岩質メルト間の Eu の分配係数は、他の希土類元素と比べ極端に低い (メルト側に残りやすい) 為である。図 3.1-9(c)に、弱い Eu 負異常が見られ、珪長質マグマが関わっている可能性がある。これら A6 と A8 は、錦江湾東部と霧島火山帯に位置する試料である。マグマの Cl 濃度が低い場合は、希土類元素間の分別が生じにくい為、今後検討する必要がある。

図 3.1-10 に、ストロンチウム同位体比測定を行った 11 試料の分布と結果を示す。Sr 同位体比の組成幅が広く、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., Fig.8, Nakamura et al., 2014)。また、1 点を除き、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。テクトニクス及び地質情報と、Sr 同位体比の情報を基に、珪長質マグマの関与について検討を進める。

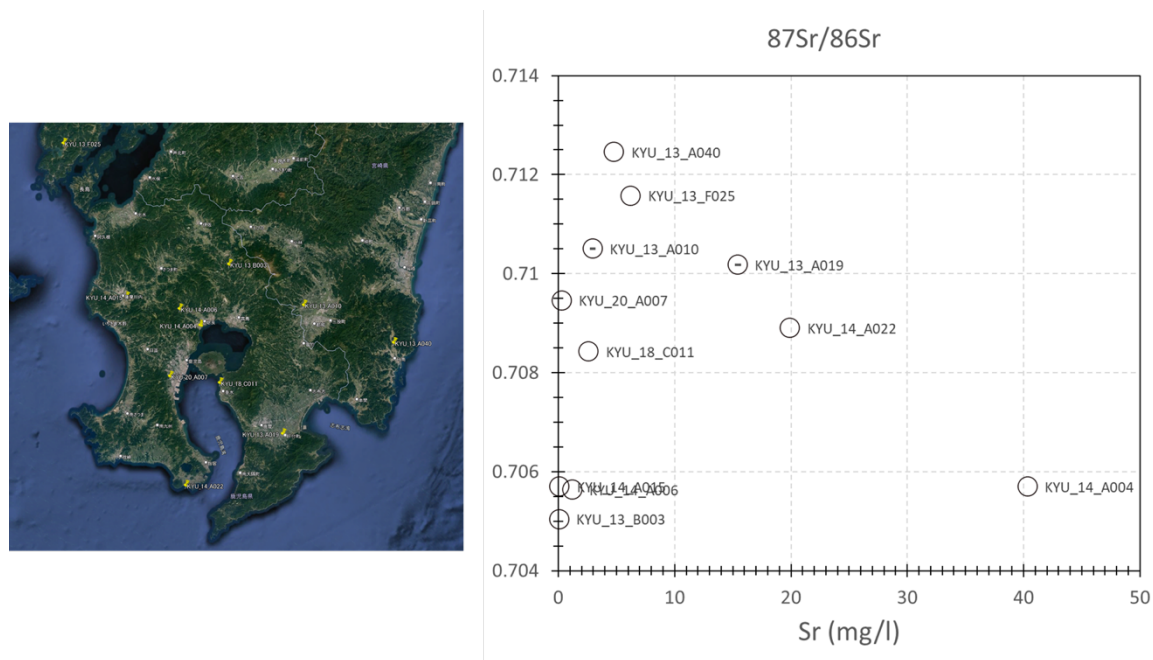


図 3.1-10 ストロンチウム同位体比と分析試料の分布

広域を網羅するように選定した試料のストロンチウム同位体比測定の結果と、試料分布を示す。分析誤差はいずれもシンボルの中に収まる。

### (3) 始良カルデラの統計解析

昨年度本委託研究では、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)。その試料について、珪長質マグマの関与があるかを検討した。一方、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) の領域で用いることのできるデータは、195 試料 (図 3.1-1) 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。阿蘇カルデラの事例に比べ、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。阿蘇の解析結果を考えると、始良カルデラも、広域 (例えば、同じテクトニクス場) で、温泉水だけでなく、河川や湧水、湖水、海水なども含め、可能な限り多くの試料を解析に用いる必要がある。

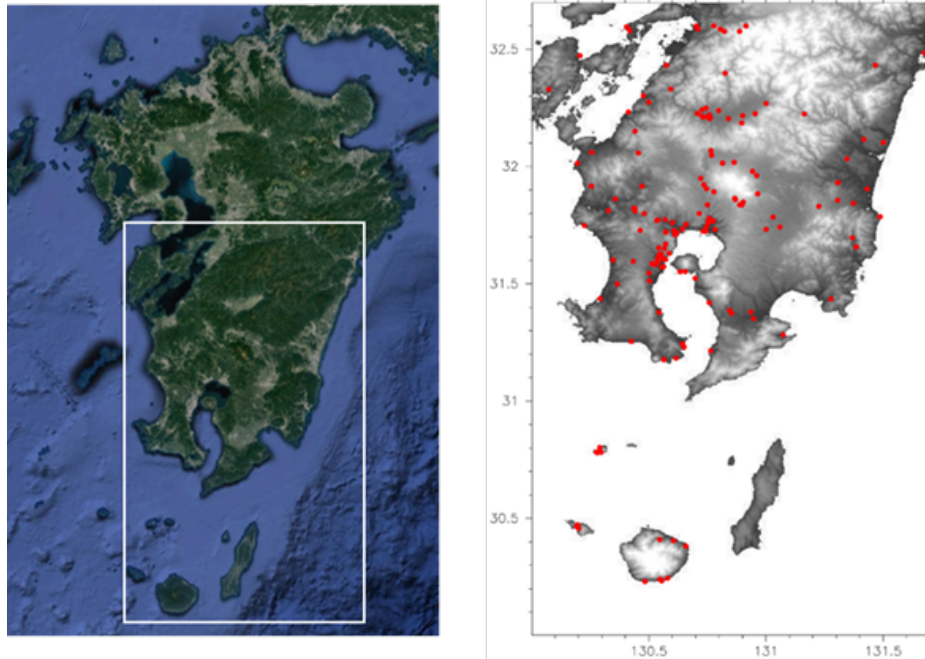


図 3.1-11 統計解析で用いた 195 試料の採取地点

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。本項で用いた 195 試料は、図 3.1.1-1 と完全に一致するものではない。

そこで、データの構造を検討すると、非正規分布（non-Gaussian distribution）を示すことが分かった（図 3.1-11）。データ選定の条件は、Na, K, Mg, Ca, Li, Cl, SO<sub>4</sub>, HCO<sub>3</sub>, F, NO<sub>3</sub>, Br, Total C の 12 項目が揃っていることとした。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・情報が減少するため、両者のバランスから今回は 12 項目・195 試料とした。12 項目 195 試料のデータの非正規性は明らかであり、線形濃度頻度図（図 3.1-12 左）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。対数濃度頻度図（図 3.1-12 右）は線形濃度よりも正規分布になっているように見えるが、バイモーダル分布などの非正規性がみられる。

そこで、昨年度と同様に、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）の検出を予察的に行った。

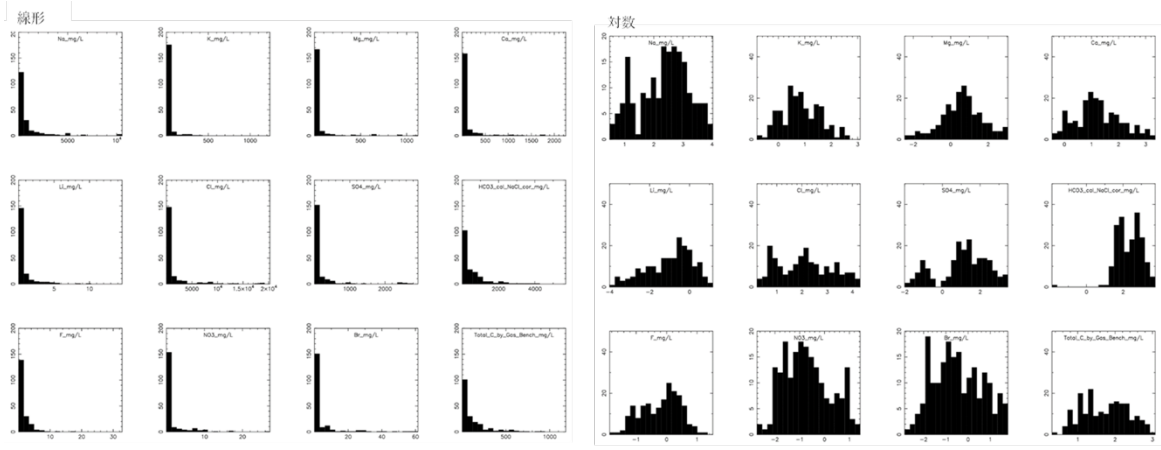


図 3.1-12 12 項目の濃度データの頻度図

解析に用いた 195 試料の項目毎のデータ頻度分布を示す。線形プロット（左）と対数プロット（右）は、いずれも明瞭に非正規性を示している。

まず、固有値解析に基づき最適なクラスタ数を検討した。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たが、総試料数 195 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うと同時に、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 8×180 通りの解析結果を得たが、比較的地域性が良くみられるクラスタ数=7 で縮約次元=7 の場合の結果を、図 3.1-13 と図 3.1-14 に示す。

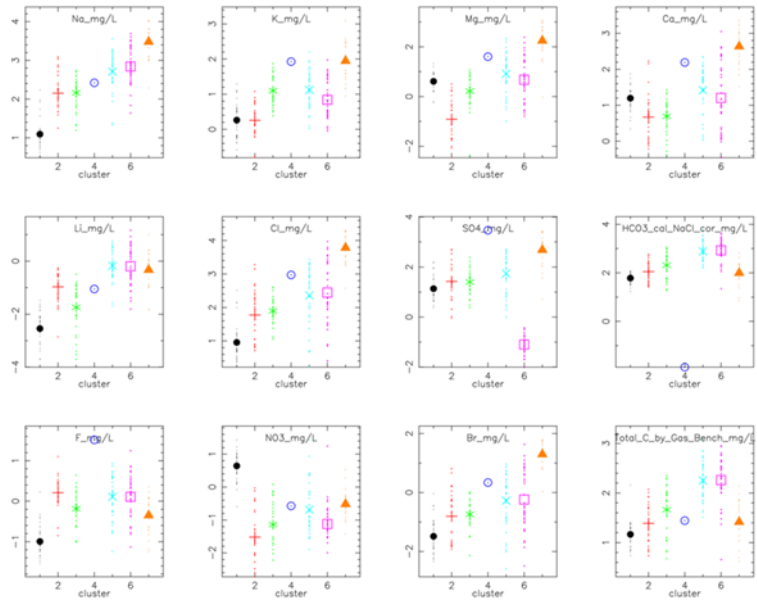


図 3.1-13 7つのクラスタの濃度分布と平均値

項目毎の7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 濃度と対比しながら傾向をみることができる。



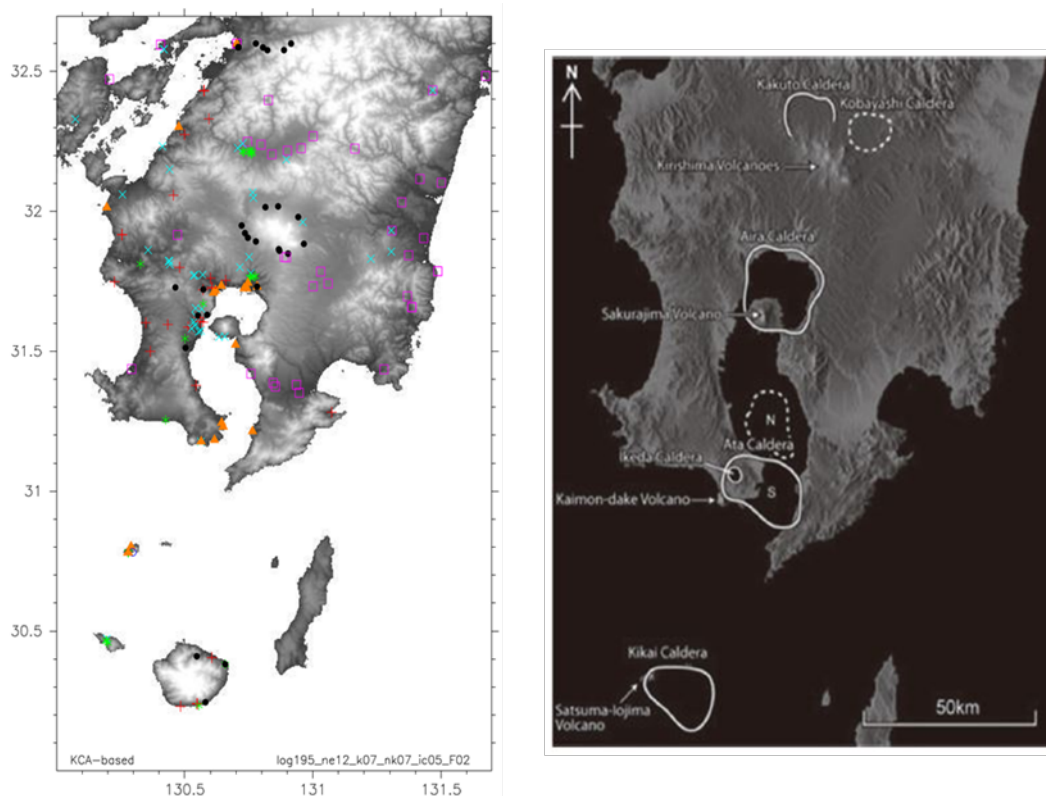


図 3.1-14 7つのクラスタの広域分布

クラスタ数7かつ縮約次元数7の場合に得られた結果の広域地理分布を示す(左図)。クラスタシンボルは図3と共通である。右図は代表的なカルデラの分布(小林・佐々木, 2014)を示す。

各クラスタの特徴を以下に記すが、予察的な解析結果であり、今後更に検討が必要であることを強調しておく。クラスタ1(●)は、最も低い平均NaやCl濃度と最も高いNO<sub>3</sub>濃度で特徴づけられる。霧島火山をとりまくように分布し、一部は九州中部の九州山地北縁(緯度~32.6度)に沿って分布する。高いNO<sub>3</sub>濃度は、何らかの人為的要因が関係する可能性も示唆しており、この点でもさらなる検討が必要である。クラスタ2(+ )および3(\* )は、本地域の西半分(および屋久島)に多くみられる。クラスタ4(○)は、鬼界カルデラの縁に位置する薩摩硫黄島に、1試料みられるのみであり、群を抜いて高いSO<sub>4</sub>とF濃度で特徴づけられる。クラスタ5(×)は本地域全体に散在するようみられ、多くの元素において中間的濃度レベルを示すが、Li, HCO<sub>3</sub>, F, Total\_Cは高い濃度レベルを示す。クラスタ6(□)は、SO<sub>4</sub>が7つのクラスタ中で最も低い点において、クラスタ5と区別されている。クラスタ6の分布範囲は、本地域の東半分および霧島火山群の北側の地域に集中する傾向がある。クラスタ7(▲)は主要な陽イオンとCl<sup>-</sup>やSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>イオン濃度が最も高く、F, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>とHCO<sub>3</sub><sup>-</sup>イオンにやや乏しい特徴を持つ。分布は偏っており、始良カルデラの縁や阿多カルデラ南部の縁、鬼界カルデラに見られ、カルデラのリムに分布する傾向にあるように見える。このことから、火山活動に関連した流体の可能性があると考えられる。そこで、例として、阿多カルデラ南部の試料に着目し、クラスタ7に分類された試料の希土類元素組成を図3.1-15に示す。

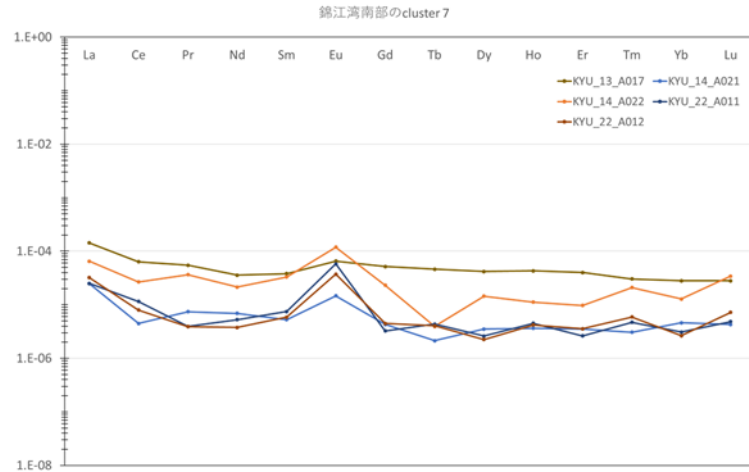


図 3.1-15 錦江湾南部のクラスタ 7 が示す希土類元素組成

クラスタ 7 に分類された錦江湾南部の試料について、希土類元素組成を比較する。希土類元素組成は、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。

これらの試料には大凡 2 つのパターンが見られる。4 試料は Eu 正異常を持ち、W 型のパターンを示すが、1 試料はやや左上がりのフラットなパターンを示す。先述の通り、Eu の正異常を伴う 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いるため (Nakamura et al., 2015, 2016), 1 試料がクラスタ 7 の起源に最も近いのではないかと考えられる。しかし、この解析結果は次元縮約数を変えると、図 3.1-16 に示すように、試料が分類されるクラスタ番号が変わることが分かる。データ数を増やし、データ密度の地域差を解消させるなど行った上で、更なる検討が必要である。

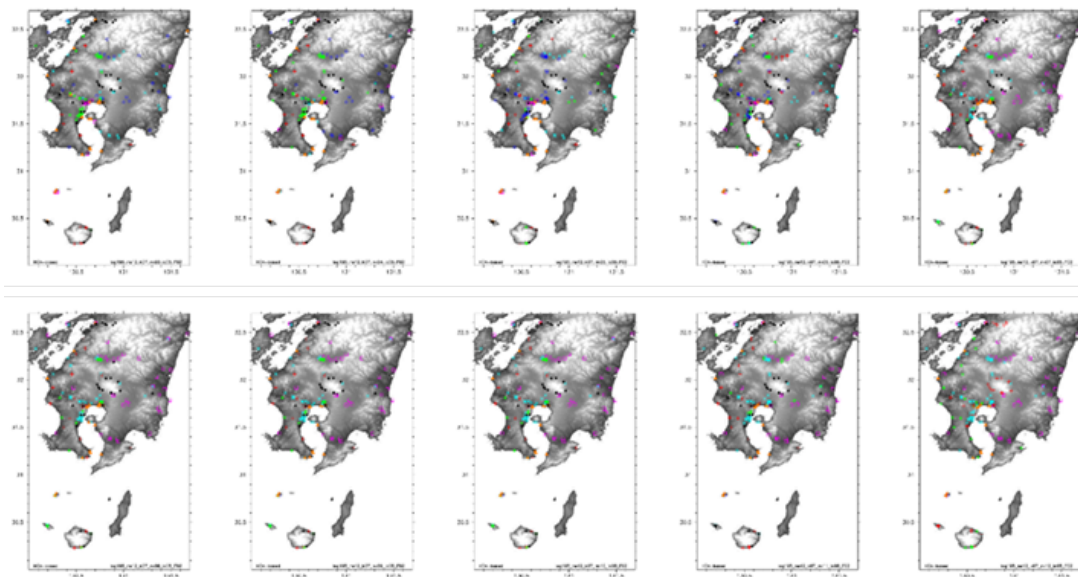


図 3.1-16 縮約次元数を変えた場合に得られる結果の違い

図 3.1-14 と図 3.1-15 で示した結果は、縮約次元数 7 (上段右端) の場合である。縮約次元数を変えるだけで、シンボルが変わる (=クラスタ番号が変わる) ことが分かる。

#### (4) まとめと課題

始良カルデラ及び周辺で採取された試料について、希土類元素を測定し、試料の定量値を得た。統計解析については、カルデラに関係すると思われるクラスタが得られたが、試料数を増やすなどを行い、更に検討する必要がある。また、十和田カルデラにおいても、カルデラ及び周辺を含む広域について、温泉水、湧水を満遍なく採取するという現行の方法を継続するのがよいと考える。

#### 引用文献

- 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. *Geochemical Journal*, 54(4), 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. *JOURNAL OF VOLCANOLOGY AND GEOTHERMAL RESEARCH*. 433, doi: 10.1016/j.jvolgeores.2022.107739
- 小林哲夫・佐々木 寿 (2014) 桜島火山. *地質学雑誌*, 120, 63-78.
- 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. *Journal Geology & Geosciences*, 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. *Journal of Geology & Geophysics*, 04, 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.* 5, 1000240, doi:10.4172/2381-8719.1000240.
- 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

### 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】

阿蘇カルデラおよび九重火山の地下マグマ種別の判別に提案した C/Cl 法について、平成 31～令和 2 年度本委託研究では海底カルデラへの適用性評価のために始良カルデラおよび鬼界カルデラを対象に検討を実施した。海底カルデラに対しては、主要な Cl の起源が海水であるため、C/Cl に加えて Cl/H<sub>2</sub>O 法の検討、海底湧水も加えた解析、定期観測による微小な組成の違いより加わったマグマ起源成分の特徴を明らかにする手法も必要となる。今年度は、C/Cl-C/H<sub>2</sub>O 法の適用の元となるマグマ溜まり進化モデルを 150～400MPa の範囲に拡張し、生成する熱水流体の組成の計算手法もより厳密化した。また、カルデラ湖を持つ火山を対象にした評価手法の構築を図るため、十和田カルデラ周辺の温泉について調査・検討を行った。その結果、<sup>36</sup>Cl/Cl 比と <sup>3</sup>He/<sup>4</sup>He 比を用いた手法で、十和田カルデラで一部の地下水に混入しているマグマ起源流体が溶融した珪長質マグマ由来であることが示唆された。また、始良カルデラ周辺観測地点の温泉水試料の繰り返し調査をひきつづき行い、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を行なった。観測点の地下水はマグマ起源熱水の混合による変化を示している。

#### 【調査・研究成果】

##### (1) C/Cl-Cl/H<sub>2</sub>O 法

昨年度本委託研究で提案した C/Cl 法及び Cl/H<sub>2</sub>O 法の両方を用いた手法(C/Cl-Cl/H<sub>2</sub>O 法)について、これまで 200MPa までの圧力で評価していたが、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可能性があることを考慮し、より高い圧力下で本手法を適用できるようにした結果を示す。また、これまで苦鉄質マグマの重量 4 に対して珪長質マグマが 1 生成するとしていたが、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、今回新たに  $r = \text{メルト生成量/結晶量(重量比)}$  (Tegner et al., 2005) を導入し、 $r$  値が C/Cl 比等に与える影響を評価する。さらに、C/Cl-Cl/H<sub>2</sub>O 法の適用上の問題及び適用に関する注意点をまとめる。十和田カルデラについて、地下水・温泉水に含まれるマグマ起源成分の C/Cl 比に影響する炭酸塩沈殿の影響と地下水の発泡による影響を新たに評価し、今回調査した十和田湖水による結果を加えて、十和田カルデラのマグマの状態等を推定する。また、外輪山斜面の河川水の Br/Cl 比が降水起源の海塩の値よりも低くばらついている原因について調査を行い検討した結果も示す。

##### 1) マグマ溜まり進化モデルと C/Cl-Cl/H<sub>2</sub>O 法の改訂

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、昨年度までの本委託研究で扱っていたマグマ溜まりの圧力 200MPa 以下 (<8 km) から 150～400MPa(深さ 6～15km)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 ( $r = \text{珪長質メルト生成量/結晶量(重量比)}$ ) 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 50～52wt%SiO<sub>2</sub> の苦鉄質マグマから 76～77wt%SiO<sub>2</sub> の珪長質マグマが生成されるとき  $r$  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。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仮定し、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。従って、結晶分化と地殻同化の区別は必要ない。 $r=0.25$  は苦鉄質メルトのガスを除く重量 1 について、0.8 が結晶化し、0.2 の重量の珪長質メルト（ガス種を除く）が生成される場合に相当する。この場合では、当初苦鉄質マグマに含まれていたガス種はメルト重量あたりで 5 倍に濃縮される。

今回用いる概念モデルを図 3.2-1 に示す。昨年度までの本委託研究と基本的に変わらないが、1.1 章でレビューした Bouvet de Maisonneuve et al. (2021) によるカルデラ噴火サイクルのモデルを元に簡略化したものである。(I) 最初期に苦鉄質マグマがマグマ溜まりを形成し、発泡・脱ガスする。その際放出される熱水流体を MD (Mafic degassing) 流体とする。(II) 苦鉄質マグマは AFC (地殻同化・結晶分化) 作用により、珪長質マグマ溜まりを形成する。珪長質マグマが発泡・脱ガスして放出した熱水流体を FD (Felsic degassing) 流体とする。珪長質マグマが生成する際に、気泡を失った苦鉄質マグマから生成する場合 (IIa: open system) と気泡を含有したまま生成する場合 (IIb: closed system) の 2 つの極端な場合を考慮する。前者の (IIa) は、大規模な苦鉄質マグマが形成され気泡を失い、その後気泡のない苦鉄質マグマ溜まりが AFC 作用により珪長質マグマ溜まりを形成する場合に相当する。(IIb) は気泡を含んだ苦鉄質マグマから珪長質マグマを生成するが、その際存在する気泡は珪長質マグマと平衡状態にあるとするモデルである。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。実際のシステムはこの両極のモデルの間にあると考えられる。珪長質マグマ溜まりは、(III) 固化して花こう岩を形成するか、あるいは、(IV) カルデラ噴火に移行する。(III) では、気泡を失った珪長質マグマの固化に伴い、メルトに溶解していた揮発性成分が放出される。このときに放出された熱水流体を FS (Mafic solidification) 流体とする。FS 流体もそれぞれ (IIa) と (IIb) の 2 つの珪長質マグマが固化する場合に対応する (IIIa) と (IIIb) を考慮する。

マグマ溜まりの進化モデル (図 3.2-1) に沿って、マグマ溜まりの各状態において放出される熱水流体の C/Cl 比と Cl/H<sub>2</sub>O 比の関係を計算する手法は、平成 31~令和 2 年度本委託研究に準ずる。変更点は H<sub>2</sub>O<sup>m</sup> (メルト中の OH を除く H<sub>2</sub>O 分子) および CO<sub>2</sub> の溶解度は VolatileCalc (Newman and Lowenstern, 2002) を用い、H<sub>2</sub>O<sup>m</sup> および CO<sub>2</sub> はヘンリーの法則に従い (Dixon et al., 1995)、メルト中の H<sub>2</sub>O<sup>m</sup> と OH の分配は Silver & Stolper (1989) のモデルによるとした。熱水に移行する H<sub>2</sub>O は初期のバルク H<sub>2</sub>O 濃度からメルト中の H<sub>2</sub>O<sup>m</sup> と OH を除いたものになる。メルト-熱水間の H<sub>2</sub>O と CO<sub>2</sub> の分配について、様々な条件で計算を行ない熱水の CO<sub>2</sub>/H<sub>2</sub>O 比を求めた。計算結果は Newman and Lowenstern (2002) によるものと完全に一致する。なお、VolatileCalc により求められる熱水の CO<sub>2</sub>/H<sub>2</sub>O 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 CO<sub>2</sub>/H<sub>2</sub>O > 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質マグマの実験結果とはよく一致する (Lesne et al., 2011)。この結果は苦鉄質メルトから分離される MD 熱水の C/Cl 比にそのまま反映される点に注意を要する。

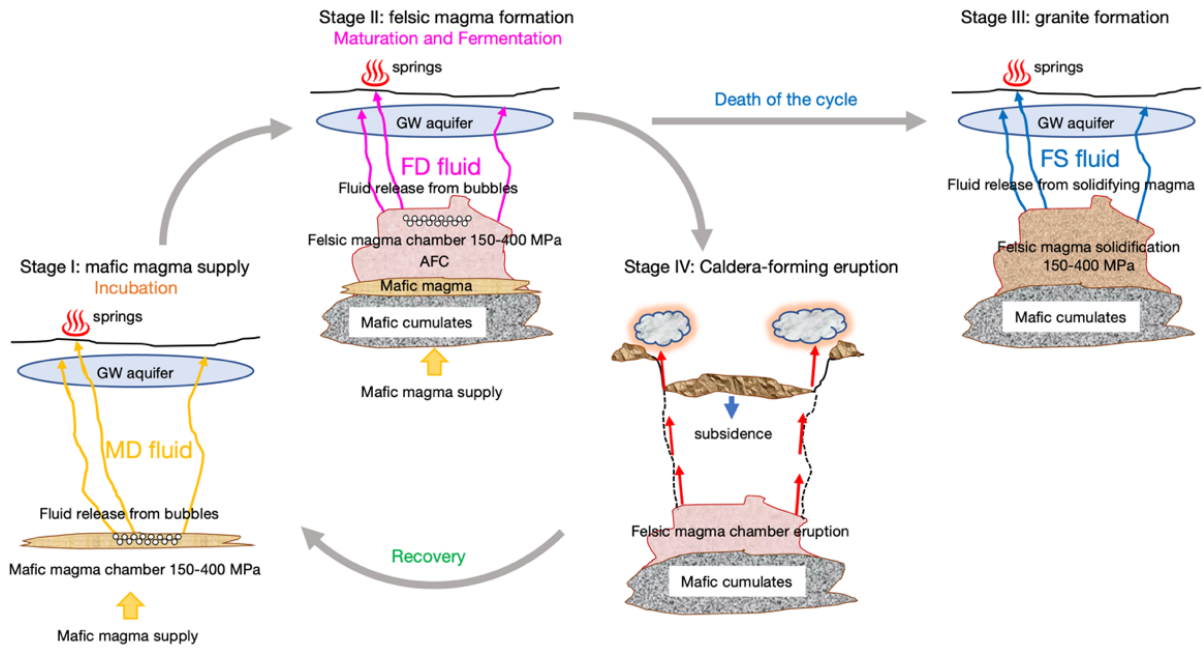


図 3.2-1 改訂したマグマ溜まりの進化モデル

Bouvet de Maisonneuve et al. (2021) のモデルを元に簡略化した。(I)~(III)期に対応する MD, FD, FS は各マグマプロセスによって放出される熱水流体を表す。それぞれの期に対応するマグマ溜まりプロセスの詳細は本文を参照。

メルト-熱水間の Cl の分配係数( $D^{f_{mCl}}$ )については、圧力依存性は 200MPa 以上ではほぼ一定であるが、熱水の NaCl 濃度とメルトの SiO<sub>2</sub> 濃度や組成により大きく変化する(Tattitch et al., 2021)。珪長質メルトについては熱水の NaCl 濃度、メルトの SiO<sub>2</sub> 濃度および圧力の関係を定式化した Tattitch et al. (2021)による分配係数式を用いた。ここで用いる珪長質メルトの SiO<sub>2</sub> 濃度は 75wt%とした。苦鉄質メルトについては、たとえば、エトナ火山の玄武岩マグマの場合で  $D^{f_{mCl}}$  (wt%)値が~10 とする実験結果(Alletti et al.,2009)と~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  $D^{f_{mCl}}$  (wt%)値を 1.5 とし、圧力に依存しないものとする。苦鉄質メルトの  $D^{f_{mCl}}$  (wt%)値が計算結果に実際に影響を与えるのは、MD 熱水の組成のみであり、たとえ  $D^{f_{mCl}}$  (wt%)値が 10 であっても、苦鉄質メルトに溶解している Cl 濃度はほとんど変化しないため、FD および FS 熱水の計算結果には影響しない。先に求めた H<sub>2</sub>O と CO<sub>2</sub> の分配結果に基づいてメルト-熱水間の Cl の分配係数( $D^{f_{mCl}}$ )を用いて、メルトの Cl 濃度と Cl/H<sub>2</sub>O 比を計算した。熱水の Cl のモル分率は 400MPa 時の FD 熱水で 0.05 を超えることがあるが、他の全ての場合で 0.04 以下であった。なお、今回は Tattitch et al. (2021)による  $D^{f_{mCl}}$  (wt%)を用いたため、メルト及び熱水相の組成も計算上は wt%値を用い、Cl/H<sub>2</sub>O(モル比)に変換している。

図 3.2-2 に最初期の苦鉄質マグマの揮発性物質の濃度をそれぞれ H<sub>2</sub>O=2~4wt%, CO<sub>2</sub>=0.2~0.4wt%, Cl=0.05~0.10wt%として計算した結果を示す。マグマ溜まりの圧力は、苦鉄質マグマも珪長質マグマも 150, 200, 300, 400MPa の 4 つの場合について計算した。CO<sub>2</sub> 濃度の C/Cl およ

び Cl/H<sub>2</sub>O 比への影響は、珪長質マグマ生成(closed system)に伴い共存する FD(IIb)熱水とその珪長質マグマが固化する際に放出される FS(IIIb)熱水に小さな変化が見られる。C/Cl 比において、Open system では CO<sub>2</sub>の初期濃度の違いによる図で表されるほどの変化はみられない。苦鉄質マグマから発泡した気泡が取り除かれるので、高压化で CO<sub>2</sub>が選択的に脱ガスするため CO<sub>2</sub>の影響が非常に小さいためと考えられる。

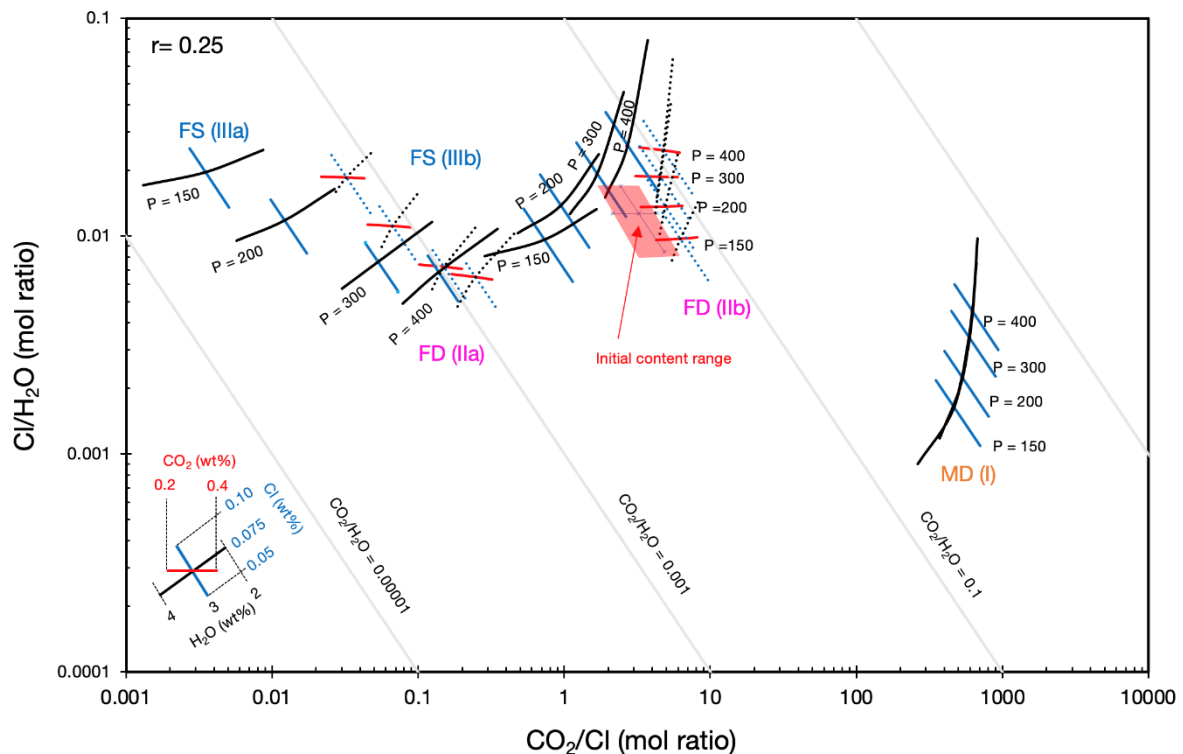


図 3. 2-2 マグマ溜まりの進化に伴い放出される熱水流体の C/Cl 比及び Cl/H<sub>2</sub>O 比の関係

図 3. 2-1 の進化モデル(I)～(III)に基づいて MD, FD, FS の各熱水流体の C/Cl 比及び Cl/H<sub>2</sub>O 比を計算した。基準の苦鉄質供給マグマは、H<sub>2</sub>O=2～4wt%, CO<sub>2</sub>=0.2～0.4 wt%, Cl=0.05～0.10 wt%とし、各成分の初期濃度の変化に伴う C/Cl 比および Cl/H<sub>2</sub>O 比の変化幅を示した。また、計算した圧力も図に示している。

次に、図 3.2-3 に最初期の苦鉄質マグマの揮発性物質のバルク濃度をそれぞれ H<sub>2</sub>O=2～4wt%, CO<sub>2</sub>=0.3wt%, Cl=0.05～0.10 wt%として計算した結果の範囲を示す。珪長質マグマ生成の AFC 率  $r=0.25$  と  $r=0.12$  の場合を重ね合わせて示した。熱水の C/Cl 比も Cl/H<sub>2</sub>O 比も  $r$  値による影響は、あまり大きくないことがわかる。ただし、最初の苦鉄質マグマの揮発性成分の濃縮率が約 2 倍違ってくるため、生成される珪長質マグマの揮発性成分のバルク組成は非常に高くなる。たとえば、150～400 MPa の圧力範囲において H<sub>2</sub>O=3wt%, CO<sub>2</sub>=0.3wt%, Cl=0.075 wt%の初期苦鉄質マグマから生成される珪長質マグマは、 $r=0.12$  の場合でバルクの揮発性成分濃度は H<sub>2</sub>O=22wt%, CO<sub>2</sub>=0.2～2.2wt%, Cl=0.55wt%となり、 $r=0.25$  の場合は、H<sub>2</sub>O=13wt%, CO<sub>2</sub>=0.14～1.3wt%, Cl=0.33 wt%となる。CO<sub>2</sub>濃度が大きく違うのは、open system の場合に気泡を失った苦鉄質マグマが供給され珪長質マグマを生成するというモデルによる。一方、メルトに溶解し



ている揮発性成分濃度は、 $r=0.12$  と  $r=0.25$  の両者の違いは小さい。150~400 MPa の圧力範囲において  $r=0.12$  の場合で  $H_2O=5\sim 11wt\%$ 、 $CO_2=0.007\sim 0.023wt\%$ 、 $Cl=0.10\sim 0.23wt\%$  となり、 $r=0.25$  の場合は、 $H_2O=5\sim 10wt\%$ 、 $CO_2=0.007\sim 0.022wt\%$ 、 $Cl=0.11\sim 0.20 wt\%$  となる。バルクの揮発性成分濃度とメルトの揮発性成分濃度の差が熱水組成となり、図 3.2-3 に表した結果に反映されている。珪長質マグマから放出される熱水の量は圧力により大きく異なるが、一番多くなる 150MPa で  $r=0.12$  の場合が  $H_2O=17wt\%$  に相当する量が、また  $r=0.25$  の場合は  $H_2O=8wt\%$  に相当する量が放出されることになる。このようなマグマは高圧で泡だらけであり、実際には AFC 過程の進行に伴い即座に熱水がマグマ溜まりから放出されることを意味している。前述したように本モデルの open system (IIa) と closed system (IIb) は両極端なモデルである。実際の AFC 過程による珪長質マグマの生成は、苦鉄質マグマが間欠的に上昇し、珪長質マグマ溜まりの底に注入される度に再平衡となり、生成した過剰な揮発性成分は即座にマグマ溜まりから放出されるのであろう。実は、 $H_2O$  と  $CO_2$  のメルトへの溶解がヘンリーの法則に従う (Dixon et al., 1995) ため苦鉄質マグマの注入の度に、言い換えれば珪長質マグマの成長に伴い、珪長質メルト全体の  $H_2O$  および  $CO_2$  濃度も気相中の  $CO_2/H_2O$  比もまったく変化しない。つまり、苦鉄質マグマ注入の度に AFC 過程で珪長質マグマが生成され、全体が混合し生成される過飽和分の気泡は常に一定の組成を持つ。以上より、open system (IIa) の場合は、マグマ溜まりの圧力下で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相当するので、初期マグマの全体組成の  $CO_2/H_2O$  比が非常に低くなった場合に相当する。このようなケースは、活発な火山ガス放出活動をする主に苦鉄質マグマの火山に見られるのではないかと考えている。噴火活動を伴わない期間も大量のガス放出活動を行なっている火山は多数あり、それらの火山では火道内マグマ対流により結果的にマグマ溜まりそのものが脱ガスしてゆく (e. g., Kazahaya et al., 1994)。火道上部で脱ガスしたマグマはそのガスをほぼすべて失いマグマ溜まりに沈降するため、マグマ溜まり内のガス量が減少する。マグマ供給もあるので脱ガスマグマの生産速度と供給速度のバランスによりマグマ溜まりの揮発性物質の濃度が決まると考えられる。したがって、活発なガス放出活動を伴う火山 (始良カルデラ, 阿蘇カルデラなど) は open system (IIa) の場合に近いであろう。一方、火山ガスによる放出が少ない火山 (たとえば、九重火山, 十和田火山など) は、マグマ溜まりからの熱水放出が卓越すると考えられる。そのような火山では closed system (IIb) に近いと考えられる。

さて、図 3.2-3 の結果から、放出される熱水流体は以下に示す特徴があることがわかる。最初期の (I) で放出される MD 熱水は比較的  $Cl/H_2O$  比が低く  $C/Cl$  比が高い。(II) の珪長質マグマの発泡・脱ガスによる FD 熱水は、珪長質マグマ溜まりの圧力により、 $Cl/H_2O$  が大きく変化し、高圧になると  $Cl/H_2O$  比が上昇する。さらに、 $Cl/H_2O$  比は MD 熱水と同様に初期マグマの  $Cl$  含有量を色濃く反映している。また、(III) の珪長質マグマ固化に伴う FS 熱水は  $Cl/H_2O$  比が高く  $C/Cl$  比が低い。さらに、同図よりマグマ溜まりの状態により放出される熱水の特徴が  $C/Cl$  比によりよく区分されることがわかる。 $C/Cl$  比が 0.2 より大きい場合は、マグマ生成あるいは供給時に発泡・脱ガスした熱水流体 (MD, FD) である、また、 $C/Cl$  比が 0.5 より小さい場合はマグマが固化する際に放出される熱水流体 (FS) である (図 3.2-2)。FD (IIa) の 150MPa と FS (IIb) 400MPa の  $C/Cl$  比が多少重なっているが、前述したように実際には IIa は活発な脱ガス火山に対応したものであ

ることから、脱ガス火山では C/Cl 比が 0.2 で珪長質マグマ生成と固化が区分され、低調な脱ガス活動を行う火山では、C/Cl 比が 1~2 で区分されると考えられる。

理論上の問題点としては、MD 流体のように非常に CO<sub>2</sub> 濃度が高い熱水流体では正確な Cl の分配データがない。CO<sub>2</sub> の存在が D<sup>f</sup><sub>mCl</sub> 値を約 1/2 に低下させるというエトナ火山の玄武岩マグマに関する報告(Alletti et al., 2009)がある。

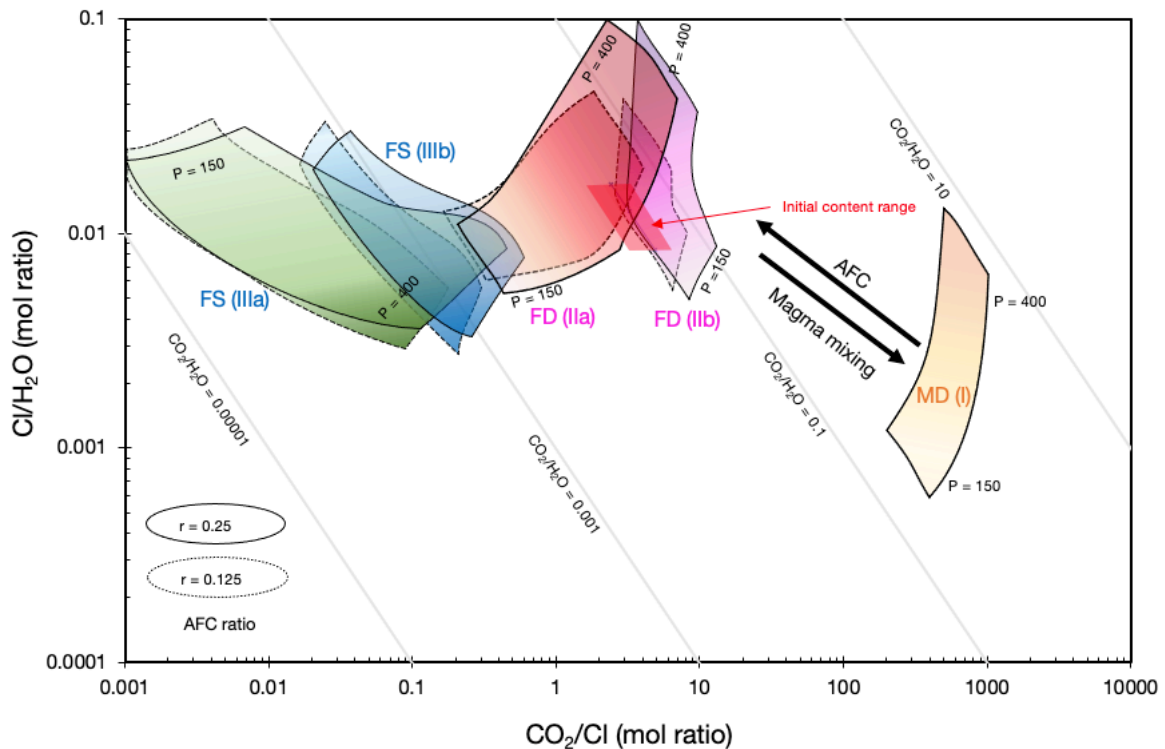


図 3.2-3 マグマ溜まりの進化に伴い放出される熱水流体の C/Cl 及び Cl/H<sub>2</sub>O の関係

図 3.2-1 の進化モデル(I)~(III)に基づいて MD, FD, FS の各熱水流体の C/Cl 及び Cl/H<sub>2</sub>O 比を計算した。基準の苦鉄質供給マグマは、H<sub>2</sub>O=2~4 wt%, CO<sub>2</sub>=0.3 wt%, Cl=0.05~0.10 wt%とした。マグマの H<sub>2</sub>O 及び Cl 含有量の変化に伴う範囲を図中に示した。また、計算した圧力も図に示している。

## 2) C/Cl-Cl/H<sub>2</sub>O 法の適用上の留意点

図 3.2-3 の結果を実際の地下水に適用する際は、以下に示すポイントを考慮する必要がある。考慮すべき事象とその C/Cl 比および Cl/H<sub>2</sub>O 比に与える影響について図 3.2-4 に示し、以下に補正法も含めて議論する。

① 地下水に HCl を含む酸性熱水の混入がある場合は、マグマ溜まりではなく火道系から放出された火山ガスに関連する熱水流体が関与している可能性が高い。本 C/Cl-Cl/H<sub>2</sub>O 法は、高压下のマグマ溜まりの状態を把握する目的で用いるため、低压環境の脱ガスシステムに関係する強酸性熱水は適用してはならない。地下水が pH<4 の場合は、マグマ火道系から放出される火山ガスの影響を受けていると考えられるので、そのような地下水は解析対象から外す必要がある。

② 高い  $\text{Cl}/\text{H}_2\text{O}$  比の熱水は上昇過程(特に高温低圧時)で  $\text{NaCl}$  brine と  $\text{CO}_2$ -rich な熱水の 2 相に分離する可能性がある。この場合は、 $\text{Cl}/\text{H}_2\text{O}$  比が大きく低下し、同時に  $\text{C}/\text{Cl}$  比が高くなる。珪長質マグマから放出された高压下の FD 熱水や低压下の FS 熱水は比較的  $\text{Cl}/\text{H}_2\text{O}$  比が高い。 $\text{NaCl}$  brine の生成はマグマシステムのような高温時は図 3.2-4 に示す相境界の等圧線 (Driesner and Heinrich, 2007) を境に図の上側が  $\text{NaCl}$  brine ができる領域になる。図に示される 150~400MPa で放出される熱水組成では、 $\text{NaCl}$  brine を生成しない。しかしながら、もし、120MPa の珪長質マグマ溜まりがあれば、その固化時に放出される熱水 FS は  $\text{NaCl}$  brine を形成することを示している。高い  $\text{Cl}/\text{H}_2\text{O}$  比を示す FD および FS 熱水は、120MPa まで温度を保ったまま上昇すると  $\text{NaCl}$  brine を生成することもわかる。つまり、マグマ溜まり放出直後は単一相の熱水でも上昇し圧力が低下すると 2 相領域にはいる。この場合、低密度の  $\text{CO}_2$ -rich な熱水が選択的に上昇しうる。図 3.2-4 に示すように等  $\text{CO}_2/\text{H}_2\text{O}$  線と平行に  $\text{Cl}/\text{H}_2\text{O}$  が減少する方向に変化すると予想される。

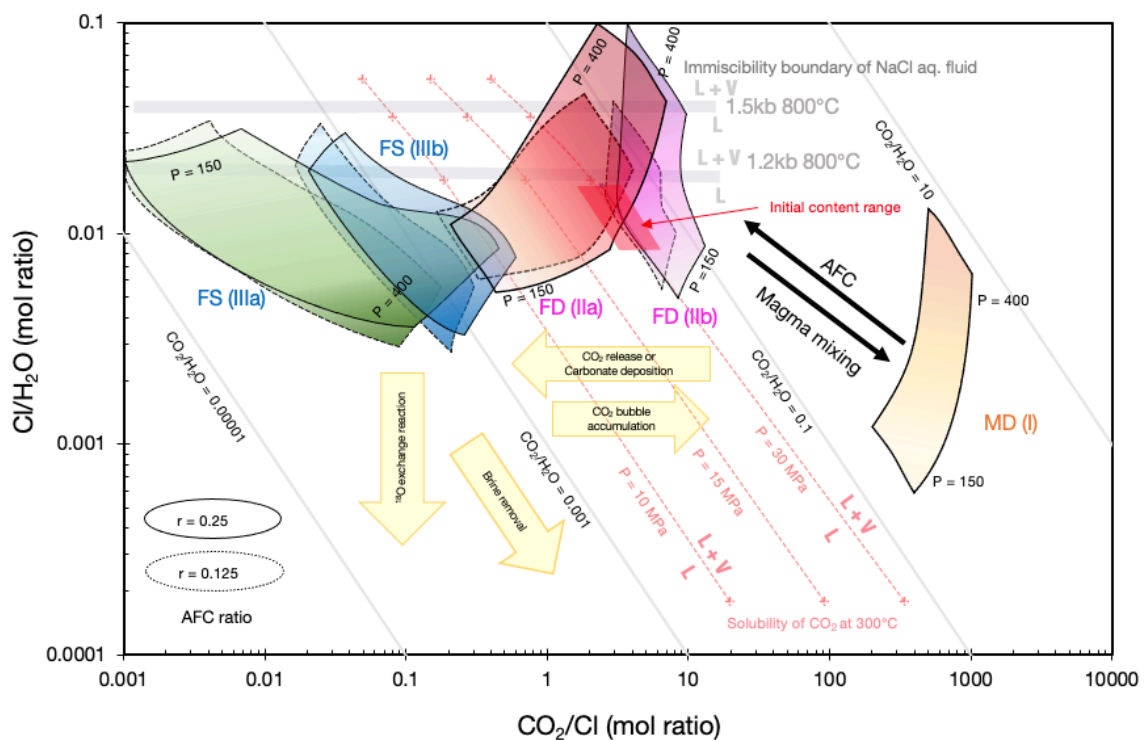


図 3.2-4 マグマ溜まりの進化に伴い放出される熱水流体の  $\text{C}/\text{Cl}$  及び  $\text{Cl}/\text{H}_2\text{O}$  の関係

図 3.2-3 の  $\text{C}/\text{Cl}$  及び  $\text{Cl}/\text{H}_2\text{O}$  比の結果に加えて、マグマから熱水流体が分離された後に組成が変化する可能性のあるプロセスと変化方向を示した。基準の苦鉄質供給マグマは、 $\text{H}_2\text{O}=2-4$  wt%,  $\text{CO}_2=0.3$  wt%,  $\text{Cl}=0.05-0.10$  wt% とした。

③ マグマ溜まりから熱水が放出・上昇し地下水系に混入過程において  $\text{CO}_2$  が発泡・分離する可能性がある。この過程により地下水で観測される  $\text{C}/\text{Cl}$  比が実際のマグマから放出されたときの熱水の  $\text{C}/\text{Cl}$  比よりも大きく減少する可能性がある。図 3.2-4 に 300°C における熱水への  $\text{CO}_2$  の溶解度を示した。図の溶解度線よりも右上にくる熱水が  $\text{CO}_2$  主体のガス相を作り発泡する。図

3.2-4 より MD および FD(IIb)熱水のすべてが 30MPa(深さ 3km)で発泡することを示し, 10MPa(深さ 1km)ではすべての MD,FD 熱水が発泡することを示している. 実際には熱水は地下水系に注入される,あるいは,地下水と混合してマグマ熱水系を形成すると考えられる.つまり,地下水との混合に生じる希釈の度合いと  $\text{CO}_2$  と鉱物の反応 ( $\text{CO}_2 + \text{H}_2\text{O} + \text{Mineral} \rightarrow \text{HCO}_3^- + \text{Cation}^+ + \text{Clay}$ ) による  $\text{CO}_2$  濃度の低下が  $\text{CO}_2$  による発泡をコントロールすると考えられる. まず,希釈の効果については,図より FD(IIb)熱水は,30MPa では約 10 倍の希釈で  $\text{CO}_2$  が溶解し,10MPa では約 100 倍の希釈により  $\text{CO}_2$  が溶解する.一方,MD 熱水の場合は 100 倍-数千倍の希釈が必要であり,希釈のみで  $\text{CO}_2$  の気泡は無くならないであろう.数十倍以上の希釈は地下水の水の安定同位体組成が変化しないので推定が可能である.一方で, $\text{CO}_2$  と鉱物の反応は一般にいう風化反応と同じであるが高温では多孔媒質の地下水系で pH がコントロールされるため非常に速やかに進行し  $\text{CO}_2$  濃度が低下すると考えられる.実際の温泉水では火山ガスの関与する強酸性温泉水を除けば溶存無機炭素( $\text{CO}_2 + \text{HCO}_3^- + \text{CO}_3^{2-}$ )は大部分が  $\text{HCO}_3^-$  として存在しており,この反応が  $\text{CO}_2$  の発泡を抑制し地下水にイオンとして固定する重要な役割を持っていると考えられる.地下水系に混入後  $\text{CO}_2$  が発泡により失われたかどうかは,希釈率や鉱物との反応を用いた評価は難しいが,地下水に含まれる希ガスの組成を用いることにより評価が可能である (Morikawa et al., 2016). 具体的には, Morikawa et al. (2016)を参照されたいが,地下水に本来含まれる希ガスの組成が溶解度の違いにより脱ガスにより変化することを利用するものである.希ガス利用の利点は,脱ガス率を決定できるだけでなく,ガスの地下水への付加についても定量的に決定できる点である.ガスの付加は,深層地下水から分離された  $\text{CO}_2$  がより上位の浅層地下水に付加される場合である (Morikawa et al., 2016).

④ 一方,地下水がアルカリ性(pH>8)にコントロールされた場合は,地下水に含まれる DIC は  $\text{CO}_3^{2-}$  が卓越し,炭酸塩の沈澱を生じる.この場合は DIC 濃度のみ減少するので,地下水に含まれるマグマ起源の C/Cl 比は元の値よりも減少すると考えられる.たとえば,Ohwada et al. (2007)によると海成グリーンタフ中の緑泥石が pH をアルカリ性にコントロールし,同じく多く存在する Gypsum が  $\text{CO}_2$  と反応 ( $\text{CaSO}_4 + \text{H}_2\text{O} + \text{CO}_2 \rightarrow \text{CaCO}_3 + 2\text{H}^+ + \text{SO}_4^{2-}$ ) し  $\text{CO}_2$  が失われる.こうして  $\text{SO}_4(\text{+Cl})$  型のグリーンタフ型温泉水ができるとしている.グリーンタフは日本列島の火山地域の地下に広く分布し厚さも数 km に及ぶため,この影響を評価することは大変重要である. Ohwada et al. (2007)は,温泉水中の  $\text{DIC}/^{13}\text{C}$  が MORB の値より低い値を持つことを示し,標準的な火山ガスの  $\text{DIC}/^{13}\text{C}$  値の 1/100 以下になる場合があることを示した.これは,  $\text{CO}_2$  のほとんどが沈澱で失われ 1/100 以下になったことを示している.地下水の  $\text{DIC}/^{13}\text{C}$  値の利用により,炭酸塩の沈澱により失われた  $\text{CO}_2$  の割合を推定できる可能性がある.

逆に  $\text{CO}_2$  の溶解により弱酸性化した地下水は,炭酸塩を溶解するため地下水中の DIC 濃度を上昇させる.しかし,その反応( $\text{CaCO}_3 + \text{H}_2\text{O} + \text{CO}_2 \rightarrow \text{Ca}^{2+} + 2\text{HCO}_3^-$ )は,反応に関与した  $\text{CO}_2$  を 2 倍量にするだけであり,地下水の C/Cl 比に大きな影響は与えない.地層に含まれる有機物が分解してできる  $\text{CO}_2$  が付加する場合は厄介である.比較的低温の場合は非常に高い(マグマ起源よりも高い)  $\delta^{13}\text{C}$  値を持つ  $\text{CO}_2$  が生成する.地下水に含まれる DIC の  $\delta^{13}\text{C}$  値がマグマ起源炭素 ( $\delta^{13}\text{C} \sim -4\text{‰}$ )よりも高い場合は,このような有機物起源の炭素が付加されている可能性があり,地下水により求められる C/Cl 比は高く見積もられることになる.

⑤ マグマから放出される熱水流体は、放出時にマグマの酸素同位体比を反映するので、その熱水の  $\delta^{18}\text{O}$  値は+6 以上である。この特徴を利用してマグマ起源水の混合割合を求めることができる。しかし、マグマ起源熱水流体が地下水と混合後に熱水溜まりなどを形成する場合は、マグマ起源熱水流体を混合した地下水が周囲の岩石と酸素同位体交換反応を起こすため、その  $\delta^{18}\text{O}$  値は高い値に変化することがある（いわゆる酸素同位体シフト）。昨年度本委託研究の C/Cl-Cl/H<sub>2</sub>O 法では、マグマ起源熱水流体の Cl/H<sub>2</sub>O 比を地下水の分析結果から求める際に、地下水の同位体組成( $\delta\text{D}$ ,  $\delta^{18}\text{O}$ )を用いるので、地下水の  $\delta^{18}\text{O}$  が酸素同位体交換反応により高い値に変化した場合はマグマ起源 H<sub>2</sub>O の割合を過大に見積る。そのため、このような反応があった場合は地下水に含まれるマグマ起源の Cl/H<sub>2</sub>O 比は低い値に計算される（図 3.2-4）。Cl/H<sub>2</sub>O 比がどの程度低く見積られるかは、マグマ起源水を酸素同位体から求める場合には評価不可能であるが、C/Cl 比に影響はない（図 3.2-4）。

特に地下深部に存在する深層地下水は平均滞留時間が長いと考えられるため、その滞留時間の期間に流入したマグマ起源成分の平均値として C/Cl 比、Cl/H<sub>2</sub>O 比が求まる。C/Cl-Cl/H<sub>2</sub>O 法によるマグマ溜まりの状態推定結果は調査対象とする地下水の平均滞留時間に対応した結果であることに留意しておく必要がある。

### 3) 十和田カルデラの地下水への適用

C/Cl-Cl/H<sub>2</sub>O 法を実際に適用するには、地下水の分析値からマグマ起源成分の Cl, C および H<sub>2</sub>O の寄与を求めなければならない。Cl の起源分離は Cl-Br-I のハロゲン元素を用いてマグマ起源 Cl の割合を求め、地下水中のマグマ起源 Cl 濃度を得る。また、地下水の無機炭素濃度のマグマ起源炭素の寄与を DIC 濃度と  $\delta^{13}\text{C}_{\text{DIC}}$  値を用いて求め、マグマ起源の DIC 濃度を得る。その比からマグマ起源の C/Cl 比を得る。Cl/H<sub>2</sub>O 比を求めるには、さらに H<sub>2</sub>O の起源分離が必要になる。地下水の水素・酸素同位体比( $\delta\text{D}$ ,  $\delta^{18}\text{O}$ )とそれに含まれる海水起源、変質海水等の組成を用いて、マグマ起源 H<sub>2</sub>O の割合を求める。詳細は昨年度本委託研究にまとめられている。

昨年度までの本委託研究では、上記の手法で起源分離し求めた C/Cl 比と Cl/H<sub>2</sub>O 比を用いていた。先に述べたように、基盤に海成のグリーンタフ相当層が存在する場合は地下水の DIC のほとんどが沈澱し失われてしまう可能性がある。東北日本孤では火山フロントから背孤側の地下にグリーンタフ相当層が広く分布しており、十和田カルデラとその周辺部も含まれる。十和田カルデラ周辺の地下水の C/Cl 比の妥当性を評価するため、以下、希ガスのデータを用い検証を行う。

Sano and Marty (1995)は、島弧マグマに由来する火山ガス中の炭素(CO<sub>2</sub>)は、マントル(MORB)と沈み込むスラブの堆積物中の有機物および海洋底の炭酸塩岩の混合でできていることを示した（図 3.2-5）。また、本図からマグマの種別に関わらず火山ガスの C/<sup>3</sup>He 比がほぼ同じ値を持つことも示されている。日本の火山の 9 箇所の C/<sup>3</sup>He の平均値は  $1.69 \pm 0.88 \times 10^{10}$  である。図 3.2-5 には、十和田カルデラ周辺の温泉水の DIC/<sup>3</sup>He 比のデータもプロットしている。十和田カルデラの温泉水は、Ohwada et al. (2007)が示したと同じく、MORB 値よりも低い DIC/<sup>3</sup>He 比を示すものが多い。これは、温泉水が多量の炭酸塩を沈澱し温泉水中の DIC 濃度を大きく下げたこ

とに起因すると考えられる。また、温泉水に含まれる DIC の  $\delta^{13}\text{C}$  値も一般的なマグマ(-4‰)より高い値を示すものもあり、有機物の分解により生成した  $\text{CO}_2$  の付加も疑われる。

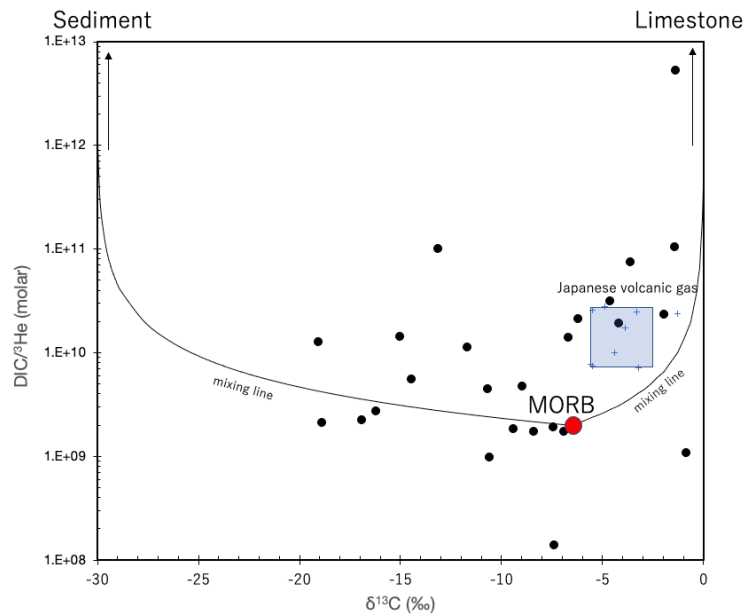


図 3.2-5 十和田カルデラ周辺の温泉水の DIC/ $^3\text{He}$  比と  $\delta^{13}\text{C}$  の関係。

Sano and Marty (1995) の日本の火山ガスの値を抽出し、図上にプロット (+印) した。

地下水の炭素種の濃度のみが変化し、マグマ起源の  $^3\text{He}$  濃度が影響しないプロセスである炭素種の沈澱や付加による影響は、地下水のマグマ起源の  $^3\text{He}$  濃度とマグマ起源の  $\text{C}/^3\text{He}$  値 ( $1.69 \pm 0.88$ )  $\times 10^{10}$  により DIC 濃度を推定できれば回避できると考えられる。地下水の  $^3\text{He}$  濃度は、マグマ起源熱水が混入する過程あるいは地下水の減圧などによって  $\text{CO}_2$  の気泡を生じれば、希ガスは気相に移動するため、残った地下水(液相)の  $^3\text{He}$  濃度は減少する。逆に地下水に気泡が付加した場合は希ガスを濃縮する。各希ガスの水への溶解度の違いを利用して、これらの影響を排除し元の  $^3\text{He}$  濃度を復元することができる (Morikawa et al., 2016)。その復元した  $^3\text{He}$  濃度をもとにして、マグマ起源 DIC 濃度を求めることができる。

まず、地下のグリーンタフ相当層の影響が低い (つまり、炭素の沈澱による影響が少ないと考えられる) 九重火山周辺の地下水について、DIC の  $\delta^{13}\text{C}$  を用いる従来法による  $\text{DIC}_{\text{ci}}$  (炭素同位体法) と Sano and Marty (1995) によるマグマ起源の  $\text{C}/^3\text{He}$  の値と地下水の補正  $^3\text{He}$  濃度(マグマ起源)を用いて求めた  $\text{DIC}_{\text{sm}}$  (希ガス法) の比較を行なった (図 3.2-6)。

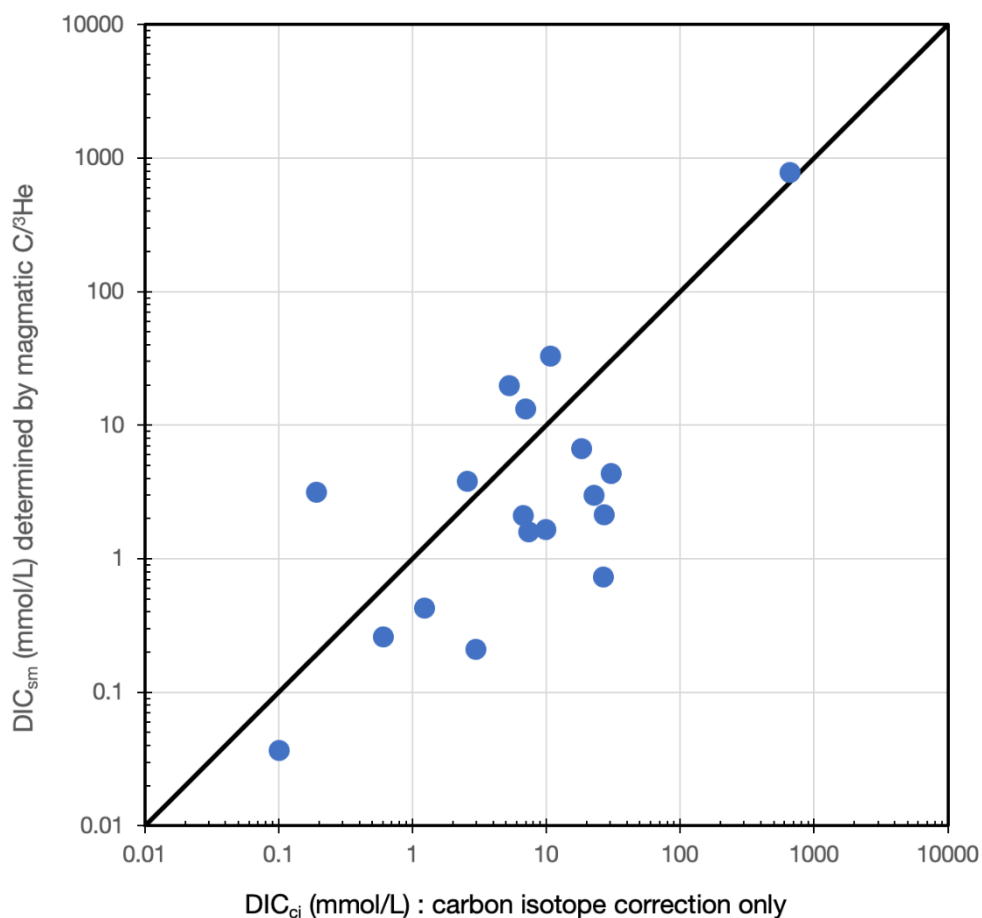


図 3.2-6 異なる手法による九重火山周辺の温泉水のマグマ起源 DIC 濃度の比較

$DIC_{ci}$  は DIC の炭素同位体比を用いて DIC 濃度を補正。  $DIC_{sm}$  は Sano and Marty (1995) による火山ガスの  $C/{}^3He$  比を用いて温泉水の  ${}^3He$  濃度から計算。

図 3.2-6 から、全く独立した手法でマグマ起源 DIC 濃度を求めた結果が約 1 桁以内の差に入っていることがわかる。九重火山周辺の温泉・地下水も炭素種の付加や沈澱がある程度生じているはずであり、ばらつきの原因になっている。  $DIC/{}^3He$  比を用いた手法は、これらの影響を補正可能であると考えられる。特に本州～南北海道火山に適用する際は、沈澱の影響を回避することが必須であると考えられるため、より信頼性の高いと考えられる  $DIC/{}^3He$  比による手法を用いるべきである。

図 3.2-7 に十和田カルデラ周辺の温泉水について、マグマの  $DIC/{}^3He$  比により求めた  $C/Cl$  比と従来法で求めた  $C/Cl$  比を比較した結果を示す。図中に炭酸塩の沈澱による影響と炭素種の付加による影響を示す。どちらも最大で 2 桁の違いを生じていることがわかる。

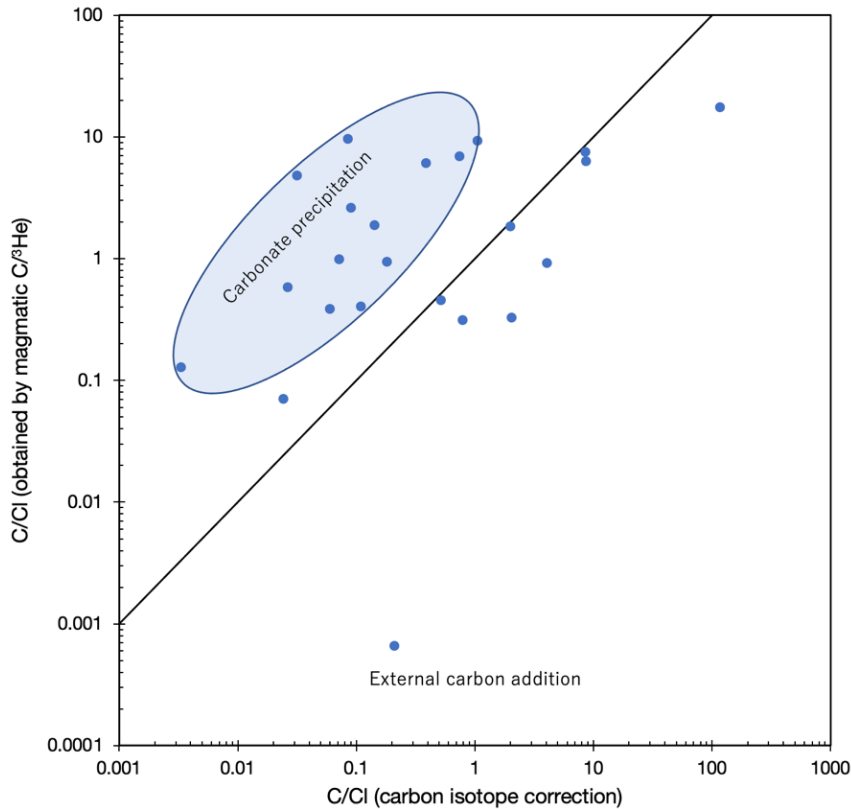


図 3.2-7 十和田カルデラ周辺の温泉水の異なる手法による C/Cl 比の比較  
横軸は炭素同位体比による補正。縦軸は  $^3\text{He}$  濃度から計算。

図 3.2-8 に十和田カルデラ周辺の地下水から得られた C/Cl および Cl/H<sub>2</sub>O 比の関係を示した。昨年度まで表示していた Cl/H<sub>2</sub>O のうち大部分は誤差が数桁に及び非常に大きかったため表示をやめ、図中の上段にならべて C/Cl 比のみ表示した。また、C/Cl 比はマグマの C/ $^3\text{He}$  比を用いて求めたため、希ガスデータのないものは表示していない。本年度委託研究の比抵抗観測の結果（本報告書 2.1 章）から十和田火山のマグマ溜まりの深さは決定されていないが、かなり深い可能性も考えられるため、今回は 400MPa のマグマ溜まりから放出される熱水流体の組成範囲を示し、地下水の C/Cl 値からマグマの種別を推定した。希ガスデータのあるもので Cl/H<sub>2</sub>O 比を比較的精度よく決定できたのは 3 地点のみであった。うち 1 点は少し低い Cl/H<sub>2</sub>O 比を示しており、温泉水が酸素同位体シフトを起こしたか、あるいは、熱水として上昇する際に brine を生成し NaCl の大部分が除去されたかのどちらかであると考えられる。しかし、それらの原因による変化方向から考えて、FS 熱水によるものであろうと考えられる。



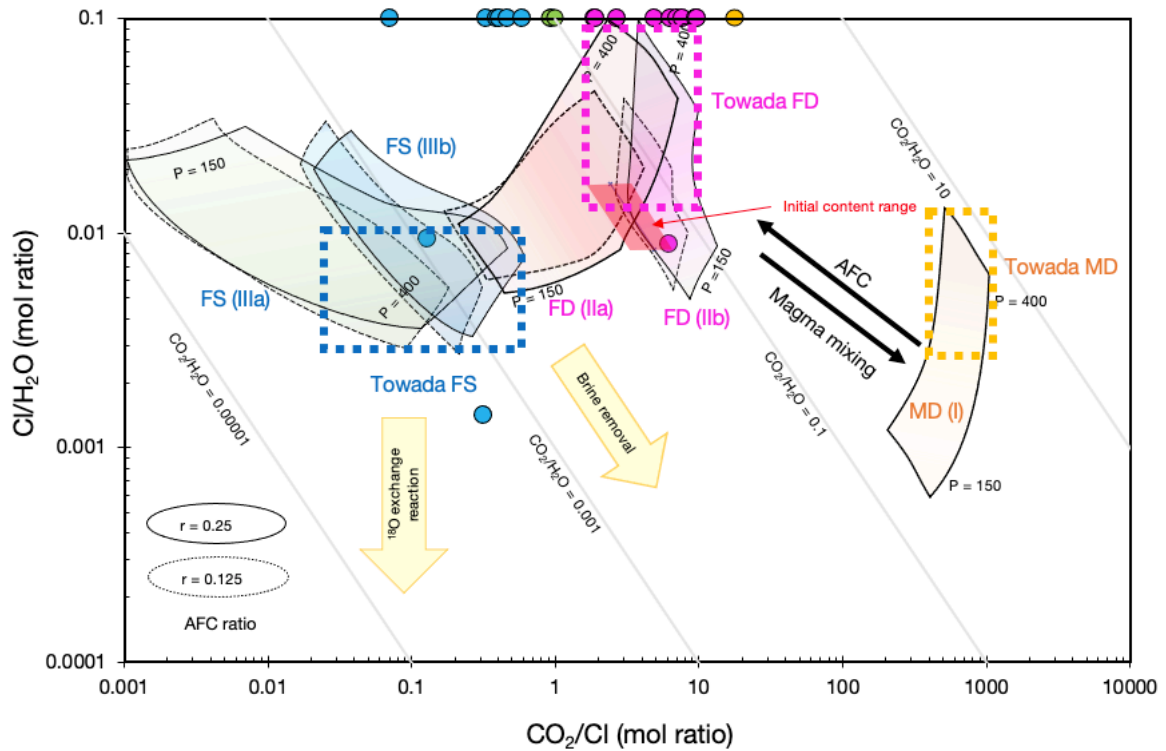


図 3.2-8 十和田カルデラ周辺の温泉、地下水、湖水の C/Cl 及び Cl/H<sub>2</sub>O 比

精度よく Cl/H<sub>2</sub>O 比が決定できなかった試料は図の一番上に C/Cl 比のみ示した。○の色は、それぞれ●：FS（マagma固化）、●：FD（珪長質マagma生成）、●：FD と FS の中間で判別困難、●：MD（苦鉄質マagma供給の関与）を表す。

次に、図 3.2-9 に十和田カルデラ周辺の温泉水、地下水、湖水の C/Cl 比により区分された熱水の種別についての空間分布を示す。今回、十和田湖水の調査を 6 地点で行った。DIC 濃度の決定は従来法によるものであるが非常に均一なデータを示した。C/Cl 比は  $2.91 \pm 0.09$  であり、珪長質マagmaから放出された熱水(FD)であると考えられる。また、これまで最も高い値を示した十和田湖西部の外輪山斜面の地域（図中の●）では、今回の手法でも高い C/Cl 比を示した。苦鉄質マagmaが関与している可能性もある。一方、昨年度までのデータでは、十和田湖の西部以外すべてマagma固化に伴う熱水(FS)によるものとされていたが、今回、炭酸塩の沈澱により C/Cl 比がかなり過小評価されていたことが判明した。今回の解析により、十和田火山から離れた西部に珪長質マagmaから放出された熱水(FD)が 2 箇所あることがわかった。十和田カルデラからかなりの距離(20~30 km)があり、地下水の流動の影響とは考えられないことから、これらの 2 つのエリアは、十和田火山とは別のマagmaの存在の可能性を指摘する。十和田カルデラ西方 10~20km の FD 熱水のエリアには小坂深部低周波地震のクラスター（高橋・宮村，2009）があり、地下にマagma活動があることが推定される。また、カルデラ北西の熱水(FD)の地域には、第四紀火山である碓ヶ関カルデラ（2.4~1.36Ma）および沖浦カルデラ(1.5Ma)がある（西来ほか，2012）。後述するが、この地域の <sup>3</sup>He/<sup>4</sup>He 比は 3-4Ra で低い値を示し、<sup>36</sup>Cl/Cl 比も高いので、平均滞留時間が非常に

長い地下水が存在している可能性がある。その場合、C/Cl 比は現在のマグマ溜まり活動を表さな  
いで過去の値を示している可能性があることを指摘しておく。

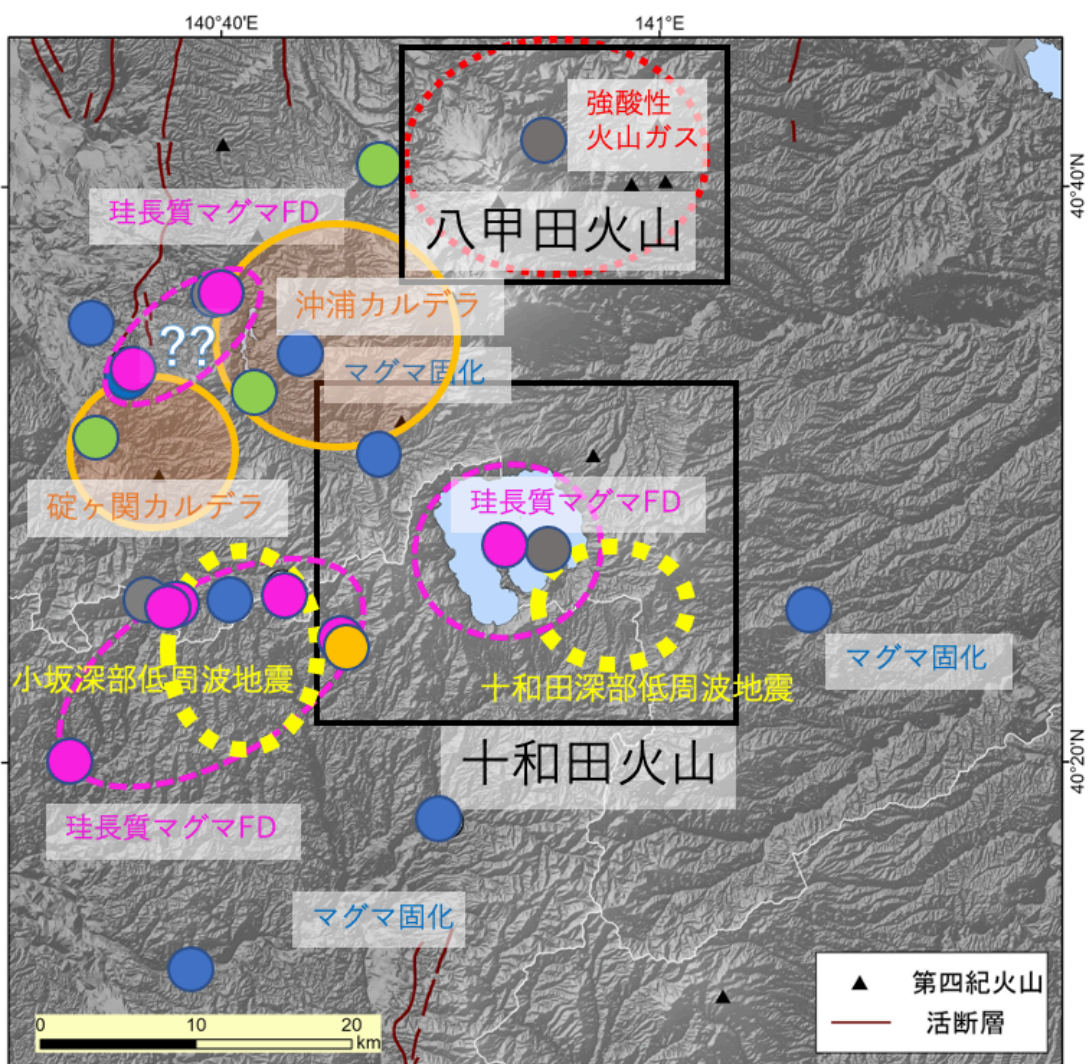


図 3.2-9 十和田カルデラ周辺の温泉水，地下水，湖水の C/Cl 比により区分された熱水の種別について  
の空間分布

○の色は、それぞれ ● : FS (マグマ固化) , ● : FD (珪長質マグマ生成) , ● : FD と FS の中間で判別困難,  
● : MD (苦鉄質マグマ供給の関与) , ● : 希ガスデータなしを表す。高橋・宮村(2009)による深部低周波地震が  
生じているエリアも示した。断層の情報は産総研地質調査総合センター(2015), 沖浦カルデラ, 碓ヶ関カルデラ  
および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。

#### 4) 河川水の調査結果

図 3.2-10 に今回の調査結果を含めてマグマ起源の Cl の混入指標になる Br/Cl 比の空間分布を  
示す。海水の値は  $1.5 \times 10^{-3}$  であり、その値より小さい値を持つ水(図中の暖色系の地点)はマ  
グマ起源の Cl を含んでいる可能性が考えられる。温泉水(大きな○)は、堆積岩の厚い北西部で

Br/Cl比は高い値を示すが概ね低いBr/Cl比であり、古海水が混入している可能性が示唆される。河川水などのCl濃度が10 mg/L以下のものを小さな○で示している。これらの非常に低いCl濃度の地点もカルデラの全周にわたりほとんどが暖色系であり、マグマ起源のClを含んでいる。この原因として、十和田カルデラは陸上のカルデラ湖を形成しているため、湖水が地下水系を通過して外輪山の外側斜面で湧出していることを示していると考えられた（昨年度本委託研究）。

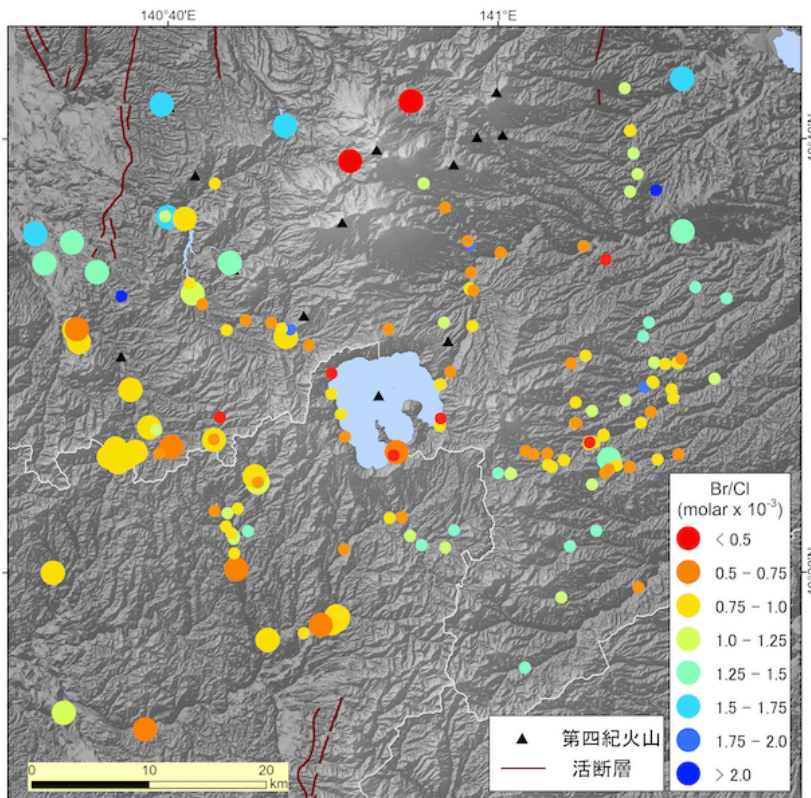


図 3.2-10 十和田カルデラ周辺の河川水・温泉水の Br/Cl 比

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

今年度、カルデラ南部～東部およびカルデラ内の主に支流を用いた河川水調査を行い、これらの河川水が十和田湖水の影響を受けているかどうかを調査した。図 3.2-11 に、河川水等の採取標高と Br/Cl 比の関係を示す。河川水は標高によらず非常に大きなバリエーションを示す。十和田湖の湖面よりも高い標高においても Br/Cl 比が大きく異なることも判明した。今回新たに調査を行なった結果に基づいて、この原因について以下に考察する。

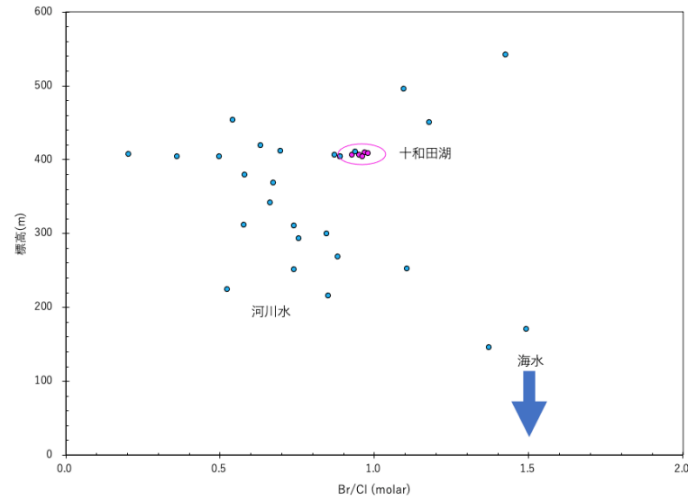


図 3.2-11 河川水等の採取標高と Br/Cl 比の関係  
矢印で海水の値を示す。また、十和田湖水のデータを●で表す。

河川水と十和田湖水の同位体比の関係を図 3.2-12 に示す。図 3.2-12 より、十和田湖水、十和田湖水が流出する奥入瀬川、十和田湖に流入する小河川、およびその他の外輪斜面の河川は水の同位体組成により明確に区別可能である。そして、十和田湖水は流入河川がすこし蒸発してできたものである。奥入瀬川は十和田湖水を起源とするが流下に伴い外輪斜面の小河川の流入を受けてゆくのがわかる。採取地点の標高と  $\delta^{18}\text{O}$  の関係を図 3.2-13 に示す。図 3.2-13 より、外輪山の斜面の河川水には、岩手山と同様の同位体標高効果（図中の実線）が見られる。図 3.2-12 で指摘した湖水、河川水の区分等と同様のことが言える。図 3.2-14 に採取地点の標高と Li/Cl（重量比）の関係を示す。十和田湖水の Li/Cl 比は非常に高いことがわかる。マグマ起源の Cl の割合が高いことによる。また、十和田湖に流入する河川も Li/Cl 比が高い傾向を示す。十和田湖の湖底以外にもカルデラ内側でマグマ起源水の上昇があることを示唆する。一方でカルデラ外の外輪山斜面の河川 3 地点で Li/Cl 比の高いものが 3 地点あった。これらは十和田湖水の漏水による影響かあるいはマグマ起源水の湧出があるのかもしれない。これらの 3 つの図から、外輪斜面の河川水の Br/Cl 比のバリエーションは十和田湖水と無関係であると考えられる。

通常、雨水に含まれるハロゲン塩は海塩起源であり、その Br/Cl 比は海水の値をもつ。しかしながら、天水起源である十和田カルデラ周辺の河川水の Br/Cl 比に非常に大きなバリエーションが存在するのは、十和田湖の漏水でもマグマ水が影響しているわけでもないことが明らかとなった。

雪は雨水に比較して大気中の滞留時間が長いことため微粒子等を取り込みやすいことがわかっている(田中・筒井, 2009)。田中・筒井(2009)によれば、積雪毎の雪に含まれる成分の分析を行い、基本的には Cl, Br は海塩起源であるが、Br/Cl 比が海水の 1/10~5 倍程度まで大きく変化する場面があることを示した。しかし、この原因についてはよくわかっていない。十和田地域は冬期降雪地域であるので、降雪により Br/Cl 比が大きなバリエーションをもった可能性がある。Br/Cl 比が大きく変動しているのは、Cl 濃度の低い河川水のみであるため、雪の影響を受けやすいので

はないかと考えられる。実際の Br 濃度は非常に低いため、Cl 濃度が高い温泉水等がこのような水の涵養により形成された場合でも化学組成にはほぼ影響しない。

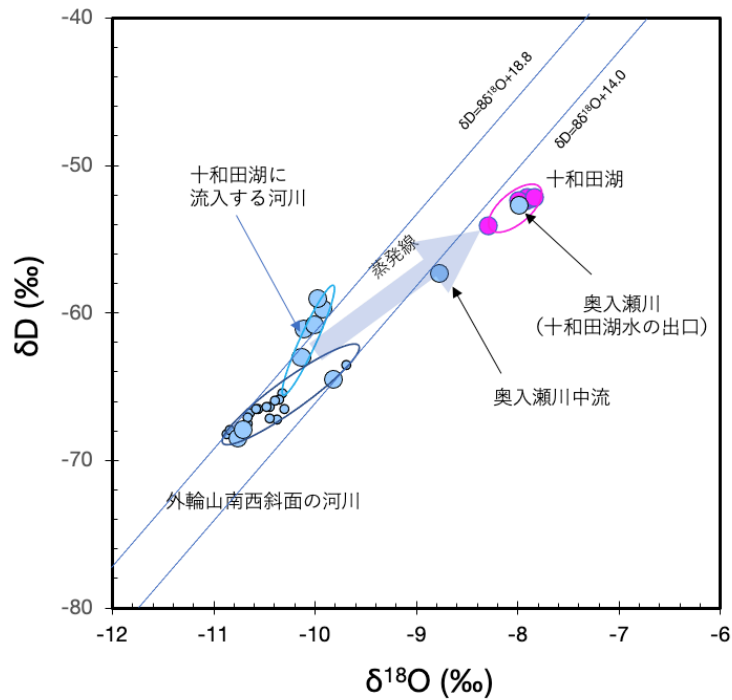


図 3.2-12 十和田湖水，河川水の水の  $\delta D$  および  $\delta^{18}O$  の関係  
○の大きな点は高い Li/Cl 比を示す。

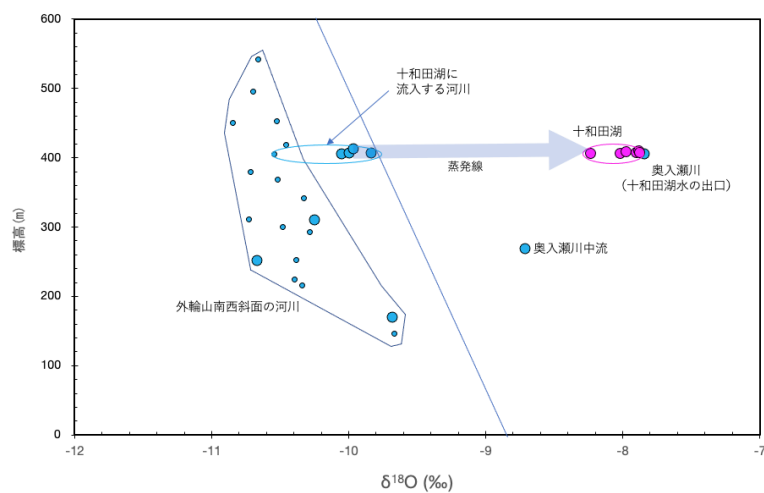


図 3.2-13 十和田湖水，河川水の採取地点の標高とその  $\delta^{18}O$  の関係  
実線は風早ほか(2000)による岩手山の酸素同位体標高効果 (0.23‰/100m) を表す。○の大きな点は高い Li/Cl 比を示す。

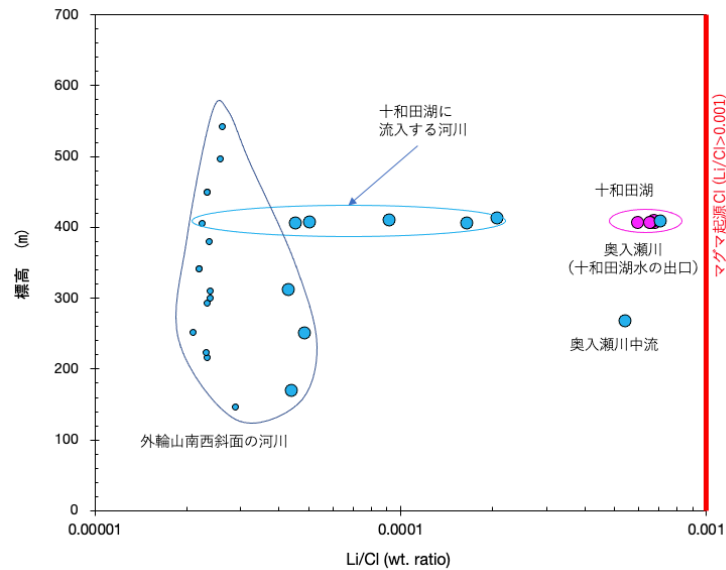


図 3.2-14 十和田湖水，河川水の採取地点の標高とその Li/Cl 比の関係

風早ほか (2014) によるスラブ流体起源の塩水の閾値 ( $\text{Li/Cl} > 0.001$ ) を示す。○の大きな点は高い Li/Cl 比を示す。

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

平成 29・30 年度本委託研究では、マグマ中の  $^{36}\text{Cl/Cl}$  比がマグマの組成とマグマの滞留時間の関数であらわされることを利用し、マグマから放出される流体中の  $^{36}\text{Cl/Cl}$  比からカルデラ火山深層にあるマグマが苦鉄質であるか珪長質であるかを推定する手法を提案した。阿蘇カルデラ内の湧水・深層地下水の  $^{36}\text{Cl/Cl}$  比の時間変化に関するモデル計算を行った結果、阿蘇カルデラにおいては大規模な珪長質マグマの存在を示す証拠はないことが示唆された。一方、平成 31～令和 3 年度本委託研究では、この手法の海底カルデラへの適用性を検討するために、始良カルデラ周辺の深層地下水の調査を行った。 $^{36}\text{Cl/Cl}$  比、 $^3\text{He/}^4\text{He}$  比および溶存化学組成より、始良カルデラ周辺においては、地下水およびその溶存成分の滞留時間が地域によって異なることが明らかになった。桜島、鹿児島市街地とも水素-酸素同位体比、Br/Cl 比などから Cl の起源は海水が主体である地点が多いが、桜島内の深層地下水は  $^3\text{He/}^4\text{He}$  比が高くマグマ起源ガスの供給が多かった。これに対し、鹿児島市街地では高  $^{36}\text{Cl/Cl}$  比、低  $^3\text{He/}^4\text{He}$  比を示し、海水起源地下水の滞留時間の長いことが示された。滞留時間の長い地下水については、溶存化学成分の特徴は、必ずしも現在加わっているマグマ起源流体の特徴を反映しているわけではないことになる。C/Cl 比、C/Cl-Cl/H<sub>2</sub>O 法など他の手法によりマグマの種別・状態などが得られた地点について、この滞留時間も考慮した現在の状態を評価するための解析を検討する必要があることが指摘された。

本年度は十和田カルデラ周辺を対象に、 $^{36}\text{Cl/Cl}$  比、 $^3\text{He/}^4\text{He}$  比によるマグマの状態に関する検討を行った。 $^{36}\text{Cl/Cl}$  比は  $0.7 \sim 18 \times 10^{-15}$  と比較的大きな変動幅を示した。 $^{36}\text{Cl/Cl}$  比の地域分布 (図 3.2-15) を見ると、十和田湖畔および八甲田火山山麓の深層地下水は比較的低い値 ( $1.5 \sim 2.5 \times 10^{-15}$ ) を示し、十和田カルデラより東側や北西側の津軽平野にいたるところなど十和田火山からある程度離れたところでは  $^{36}\text{Cl/Cl}$  比は高くなっている。一方で、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十和田湖畔よりもさらに低い値を示す地点がスポット的に存在する。

図 3.2-16 では  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比と  $\text{Cl}$  濃度の関係を示し、トリチウム濃度を図中に示した。産総研(2020)における九重火山のデータでは、大まかにみてトリチウム濃度の高い試料ほど  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比が高い傾向があった。半減期 12.3 年の放射性核種であるトリチウムが検出されることは、比較的最近の天水が混入していることを示し、天水は宇宙線起源  $^{36}\text{Cl}$  が含まれているため、 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比は見かけ上高くなる可能性がある。十和田カルデラ周辺では、若干  $\text{Cl}$  濃度が低く、トリチウム濃度が高いものは  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比が高いようにも見え(図 3.2-16)、天水による  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比上昇の影響が考えられる。ここでは、十和田カルデラ周辺の温泉に加わったマグマ水中の  $\text{Cl}$  濃度を 1,000~10,000 mg/L 程度の範囲で、当該地域周辺の天水中の  $\text{Cl}$  濃度と  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比をそれぞれ 5 mg/L,  $25 \pm 15 \times 10^{-15}$  (Tosaki et al., 2023)として、天水の影響を補正した。得られた  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  補正值( $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}^*$ )の地域分布を示したのが図 3.2-17 である。補正值の地域分布の傾向は、未補正の場合と基本的に変わらないように見えるが、十和田湖畔の2温泉がいずれも  $< 2 \times 10^{-15}$  となり、阿蘇カルデラ内の温泉で見られたような低い値となっている。また、十和田火山よりも東側あるいは北西側の津軽平野にいたるところなど十和田火山からある程度離れたところでは、補正後も高い値を示している。

$^{36}\text{Cl}$  は地下において  $^{35}\text{Cl}$  と熱中性子との反応によって生成され、その生成量は、 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  として表す場合、以下の時間の関数として表され、約 150 万年程度で放射平衡に達し一定の値になる。採取された深層地下水の  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  ( $R_{\text{sample}}$ ) 比は、以下の式で表される。

$$R_{\text{sample}} = (1 - e^{-\lambda t}) \cdot R_e + e^{-\lambda t} \cdot R_i$$

ここで、 $\lambda$  は  $^{36}\text{Cl}$  の壊変定数 ( $2.30 \times 10^{-6} \text{ yr}^{-1}$ )、 $R_e$  および  $R_i$  はそれぞれ  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  放射平衡値、マグマ起源  $\text{Cl}$  の  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比の初期値を示す。上式からわかるように、 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比は温泉水あるいはマグマ自体の形成からの経過時間とともに高くなる傾向がある。低い  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比を示す地点は比較的新しいマグマが供給されている地点、高い  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  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。

マグマが供給されてからの経過時間を示す他の指標としてヘリウム同位体比( $^3\text{He}/^4\text{He}$  比)が考えられる。上部マントルの  $^3\text{H}/^4\text{He}$  比が  $8 \pm 1 \text{ Ra}$  (Graham, 2002)であるのに対し、地殻内で生成される  $\text{He}$  は  $\text{U} \cdot \text{Th}$  の  $\alpha$  壊変の影響により  $^4\text{He}$  が卓越する( $^3\text{He}/^4\text{He}$  比は  $0.02 \text{ Ra}$  程度)。これにより、深層地下水中の  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比はマグマ起源  $\text{He}$  の供給量とマグマあるいは深層地下水の地殻内での滞留時間の関数となり、滞留時間が長いほど  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比は低下する(Morikawa et al., 2008 など)。

図 3.2-18 に  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比の地域分布を示した。大気補正後の  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比は  $0.3 \sim 7.5 \text{ Ra}$  ( $\text{Ra}$  は大気中の  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比で規格化した値を意味する)と地殻起源  $\text{He}$  が主成分である試料から上部マントル値に近い値を示す試料まで大きな変動を示している。十和田湖畔の深層地下水の  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比のデータは得られていないが、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  $7 \text{ Ra}$  以上とほぼマントル値に近い値を示している。八甲田北麓の深層地下水もそれほどではないが高い値を示している( $5.1 \sim 5.8 \text{ Ra}$ )。これらは  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比が低い地点でもある。また、 $\text{Br}/\text{Cl}$  mol 比はいずれも  $1 \times 10^{-3}$  以下と比較的低く(図 3.2-10)、 $\text{Cl}$  の起源はマグマが主体であると思われる。これらの地域は、深層地下水の滞留時間が短く、地下水に混入しているマグマ起源流体は現在の状態を示すとともに、マグマ自体の滞留時間も短く、固化段階というよりは比較的フレッシュな状態にあることを示していると思われる。この結果は  $\text{C}/\text{Cl}$  法による結果とも整合的である。一方、本年度の炭酸塩による溶存無機炭素の除去を考慮に入れた  $\text{C}/\text{Cl}$  比の見積もりによって、あらたに十和田火山から離れた(北)西部でも珪長質マグマ

の生成領域があることが推測された(図 3.2-9). この地域は、データ数は少ないが  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比がやや高く、ヘリウム同位体比も  $3\sim 4 \text{ Ra}$  とやや低い. また、 $\text{Br}/\text{Cl}$  比はいずれも  $1 \times 10^{-3}$  以上とやや高く(図 3.2-10), マグマ起源以外の  $\text{Cl}$  も多く含まれるものと思われる. 例えば、滞留時間の長い海水や堆積物間隙水などの  $\text{Cl}$  を多く含む深層地下水の場合、珪長質マグマ生成時に放出された流体が混入した場合でも、滞留時間の長い深層地下水の  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比が高く  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比が低下していることが考えられるため、この地域ではマグマの生成段階にあることを  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比や  $^3\text{He}/^4\text{He}$  からは観測できていない、あるいは、 $\text{Cl}/\text{Cl}$  比が非常に古い時代の値を保持している可能性が考えられる.

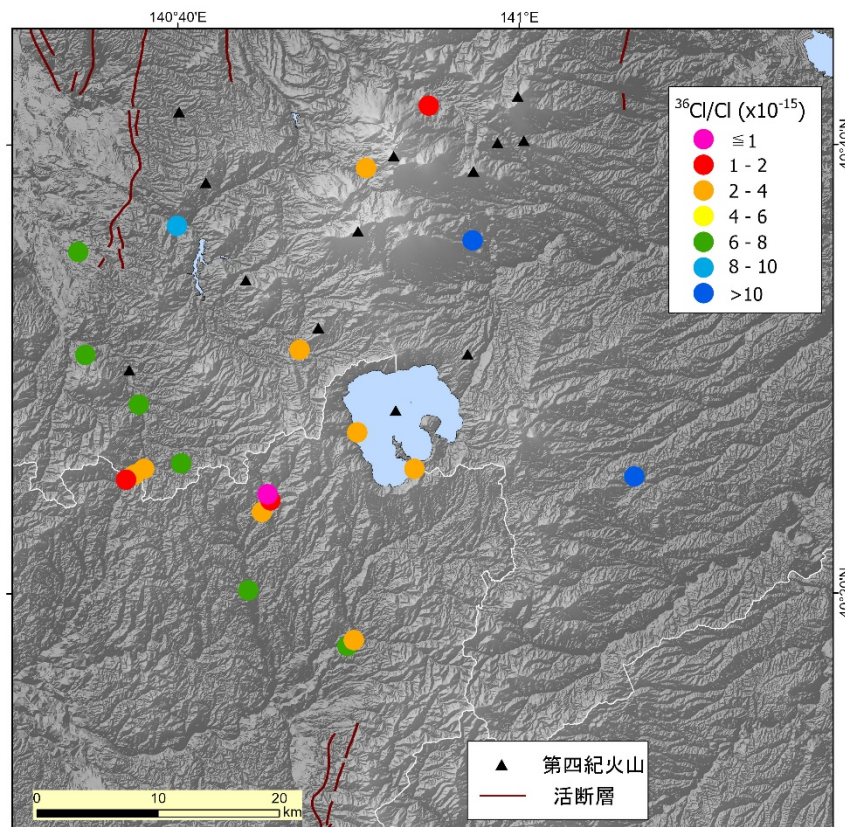


図 3.2-15 十和田カルデラ周辺における深層地下水の  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比の地域分布

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.



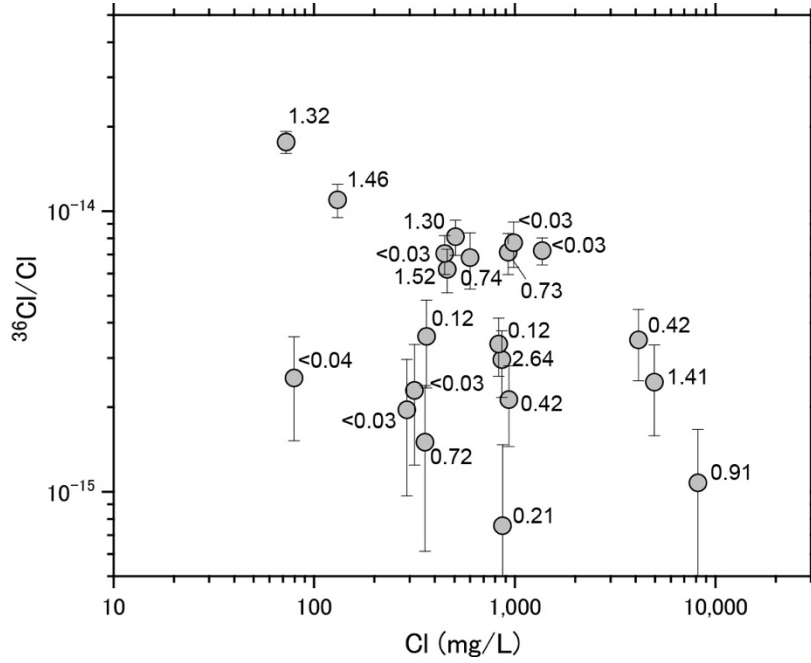


図 3.2-16 十和田カルデラ周辺における深層地下水の  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  と Cl 濃度の関係  
 図中の数字はトリチウム濃度(T. U.)を示す。

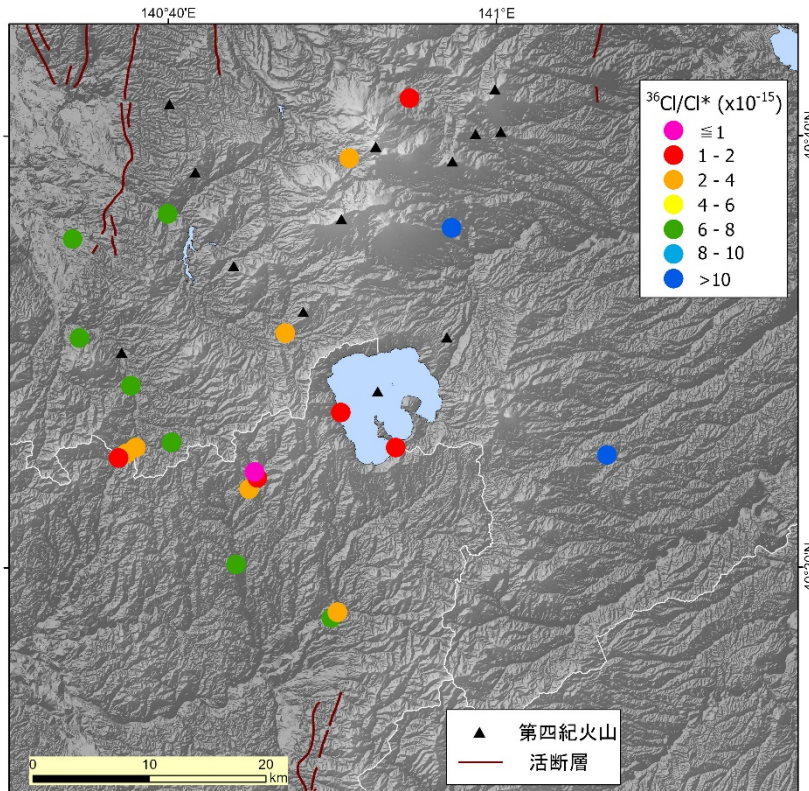


図 3.2-17 十和田カルデラ周辺における深層地下水の  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  補正值 ( $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}^*$ ) の地域分布  
 断層の情報は産総研地質調査総合センター(2015), 第四紀火山は西来ほか(2012)による. 地形データは基盤地図  
 情報(国土地理院)による.

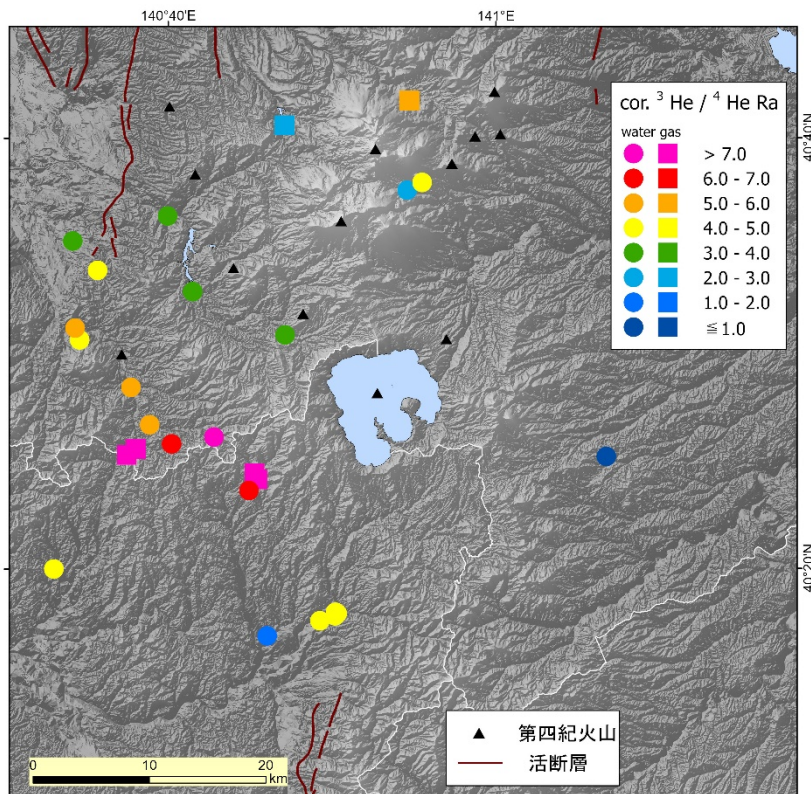


図 3.2-18 十和田カルデラ周辺における深層地下水の  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比の地域分布

凡例の色は  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比 (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、大気の影響が大きく 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。

## (2) 鬼界カルデラ (海底湧水)

### 1) 海底湧水の調査・解析手法

鬼界カルデラは海底カルデラであり、北縁に薩摩硫黄島と竹島、そして 1933~34 年に海底噴火により誕生した昭和硫黄島がある。薩摩硫黄島の硫黄岳からマグマ起源ガスを活発に放出している(Shinohara et al., 1993)。薩摩硫黄島には、淡水レンズから採取する飲用の浅井戸と自然湧出の温泉があるが、海底カルデラであるため地下水の採取は島内に限られることになり、マグマ溜まりの状態を把握するにはデータが少ないことが問題であった。このような海底カルデラ火山において、地下水を用いた C/Cl 法等の手法の適用性を評価するため、昨年度本委託研究では、薩摩硫黄島の東温泉沖海底湧水、昭和硫黄島の海底において湧出する温泉水・ガスに調査範囲を広げ調査を行った。海底湧出地下水からマグマ起源成分の検討を行うためには、採取・解析手法をまず構築する必要があった。

鬼界カルデラにおいては、今回、新たに薩摩硫黄島北部の坂本温泉沖の海底及びウタン浜海岸、昭和硫黄島南岸海底の 3カ所にて海底湧水の採取を行い(図 3.2-19)、湧出点において昨年度本

委託研究と同じ連続採取法を用いて調査した。採取した海底湧水について、起源等を検討した結果を報告する。

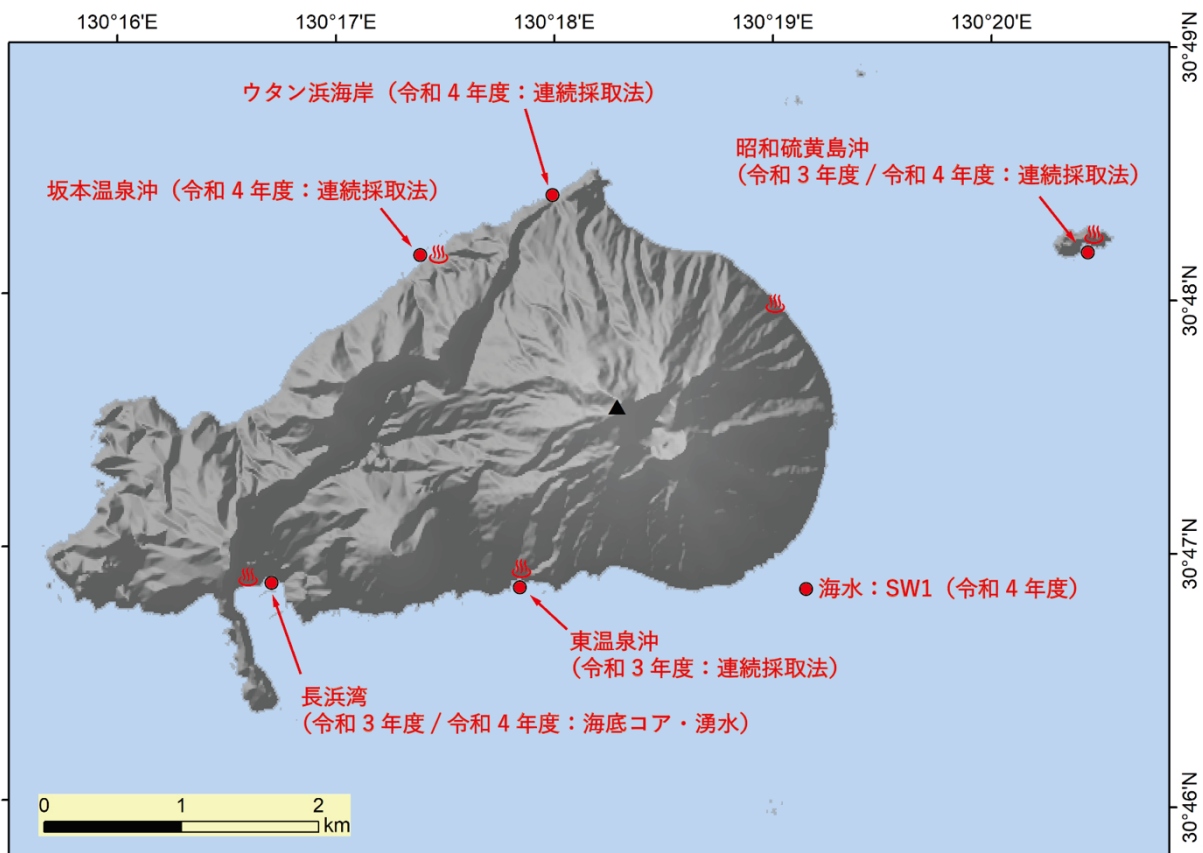


図 3.2-19 薩摩硫黄島周辺における水・ガス試料の採取位置

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

### 1-1) 海底湧出水の採取・分析

昨年度本委託研究において、海底湧水の採取ではロートを用いた連続採水とシリンジの外筒部を海底面に突き刺して、その内部の水を採取する2種類の手法を用いた。以後、それぞれ「連続採水」と「直接採水」と表記する。

#### ① 海底湧出ガスおよび水の採取(坂本温泉沖・ウタン浜海岸・昭和硫黄島沖)

坂本温泉沖、ウタン浜海岸、昭和硫黄島沖において、それぞれ潜水(ウタン浜では、シュノーケリング)による試料採取を実施した(図3.2-20)。どの地点においても、海底からのガス湧出が確認された。それぞれの地点で連続採水と直接採水による調査を2回ずつ実施した。坂本温泉沖の調査地点は海岸から50m程度沖合の水深が約4mのポイントであり、ガス湧出は本調査の実施地点のみで確認された。ウタン浜海岸では、海岸に点在する岩の間の砂地からの湧出が確認され、連続採取法の調査ができる程度の水深(約0.5m)があるポイントを選定して調査を行った。昭和硫黄島沖の調査地点は海岸から20m程度沖合の水深が約4mのポイントであり、比較的広範囲にわたって湧出が確認された。また、令和3年度のSite1から10m程度の範囲内である。

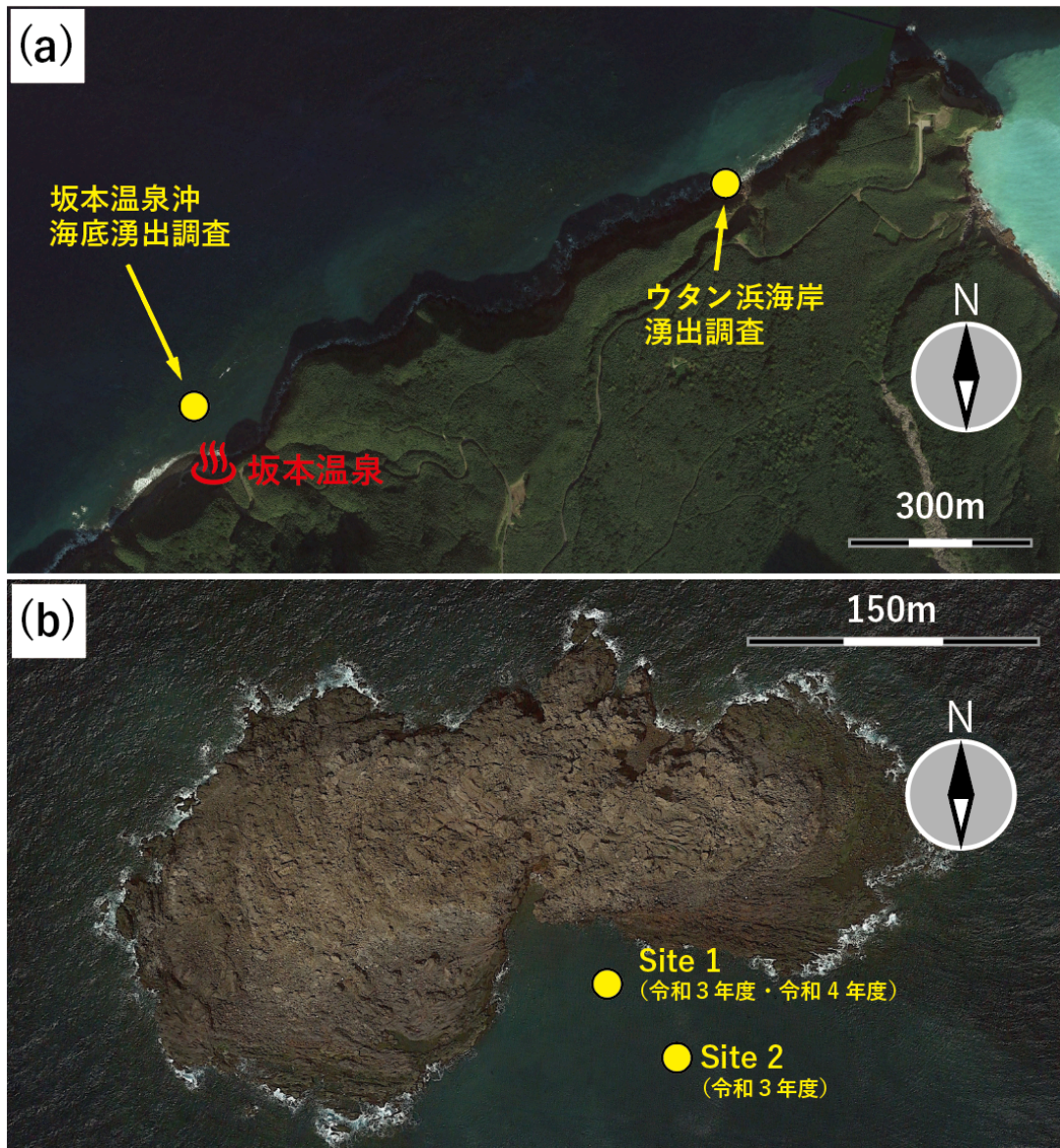


図 3.2-20 坂本温泉沖・ウタン浜海岸 (a) および昭和硫黄島沖 (b) における調査位置  
航空写真は Google Earth Pro を利用して取得した。

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する (図 3.2-21)。本年度の調査で使用し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。採取するロート内の水は、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 ずつとした。ロート内の水の採取は、ロート上部に接続したシリコン栓を貫通して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 (ルアーロックタイプ) を用いて実施した。三方活栓を利用して、採水のインターバルと採水時に流路を切り替え、採水直前には、チューブ内の水を排出用のシリンジで吸い上げてから、採取用のシリンジで試料水を採取した。採水後はシリンジに接続された三方活栓がキャップの役割を果たすようにした。連続採水では、ロート内の水の水質の時間変化が重要となるが、

ロートを設置した直後の採水は時間的に難しい。そこで、本年度の調査では、ロートを海底面に設置する直前に設置環境の水を採取しておき、連続採水の開始時の試料とした。

連続採水におけるガス湧出量は、あらかじめロートにつけた目盛りを用いて、数十秒から数分間隔で内部に溜まったガス量を読み取ることで求めた。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ガスバリア性能の高いPAN製テクノボトルに導入して採取した。ただし、ガス湧出量が多く、ロート内のガスが溜まりすぎるような場合には、ロート上部のガス採取口を開けて、溜まったガスを排出する操作を行った。採取したガス試料は、陸上にて水上置換によりガラス製の容器へ分取した。

直接採水では、シリンジ外筒部を海底面に突き刺して、しばらく待ってから、内部の水を採取する。地点によってばらつきがあるが、おおよそ 10 cm 程度の深さまで突き刺した。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  $\mu\text{m}$ ・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する操作を実施した後に、50 mL のディスプレイリンジに吸引して試料水を採取した。

各地点で採取した試料は陸上に持ち帰り、pH の測定を実施するとともに、測定成分ごとに異なる処理と容器に分取した。主要化学成分と酸素-水素同位体 ( $\delta^{18}\text{O}$ - $\delta\text{D}$ ) の分析用試料は、あらかじめ超純水で洗浄して乾燥してあったポリエチレン瓶に採取した。

また、薩摩硫黄島周辺で、海底湧出の影響を直接受けていないと想定される海域（図 3.2-19, SW1 地点）の表層海水の採取を行った。採取は船上からバケツを用いて実施し、ポリ瓶に入れて陸上まで運搬してから pH や電気伝導度の分析と各種分析用の試料としてそれぞれの容器に分取した。

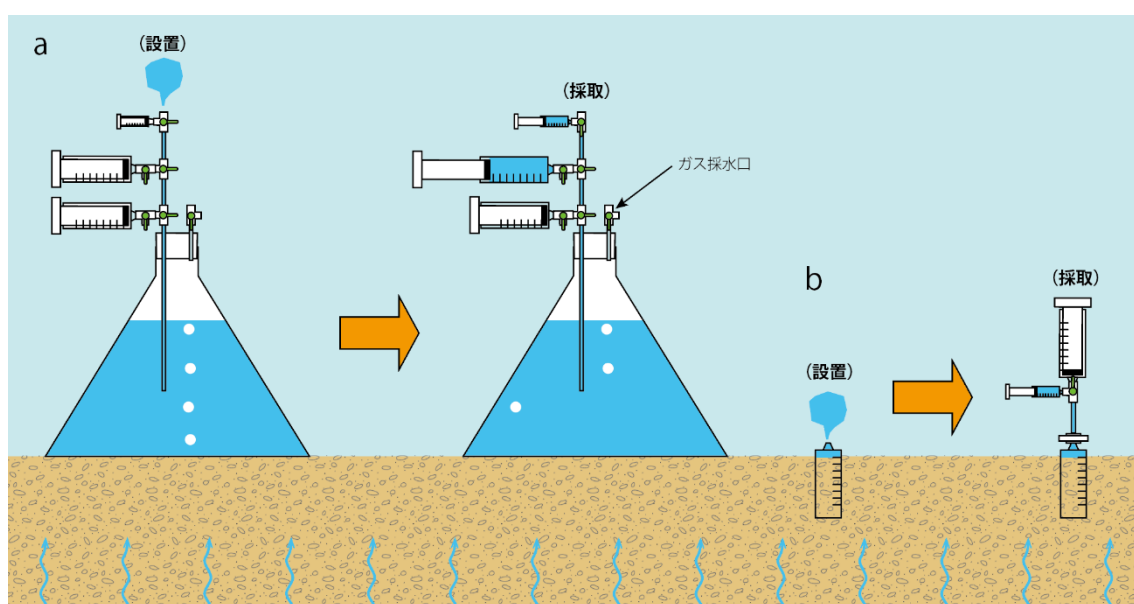


図 3.2-21 海底湧出ガス・水の試料採取方法模式図。

(a) ロートを用いた連続採水, (b) 海底にシリンジ外筒部を設置した直接採水

## ② 採取試料の化学分析

各方法で得られた水試料の主要化学成分をイオンクロマトグラフィー法により分析した。δ<sup>18</sup>O は、水-二酸化炭素平衡法を用いて、安定同位体比質量分析計 (Delta Plus, サーマフィッシャーサイエンティフィック株式会社) および波長スキャンキャビティリングダウン分光法 (L2120-i, Picarro 社) で測定した。δD は波長スキャンキャビティリングダウン分光法 (L2120-i, Picarro 社) で測定した。δD は δ<sup>18</sup>O と同時に分析されるため、δ<sup>18</sup>O について2つの測定手法の結果を比較することで、分析上の問題があれば検出することができる。薩摩硫黄島で採取した一連の試料の場合、分析値の差 (質量分析計の結果-分光法の結果) の平均値は 0.02 ± 0.14% となり (あきらかにずれているものを除く)、問題なく分析ができていることがわかる。ガス試料はガスクロマトグラフィー法を用いて、ドライガス成分の組成分析を行った。

## 2) 海底湧出水の起源の検討

### 2-1) 海底湧出水・ガスの流量推定

昨年度本委託研究と同様に、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 3.2-22) を用いて算出した。

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

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

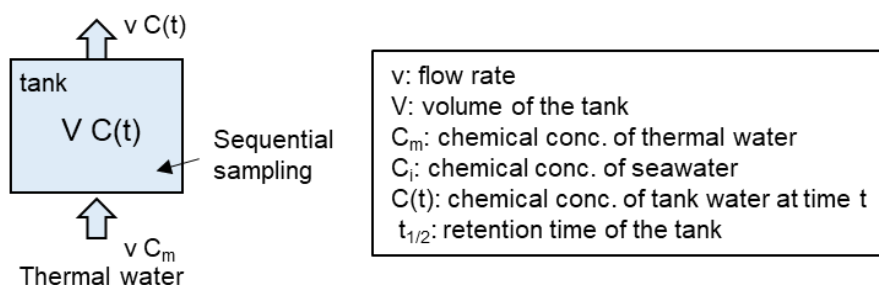


図 3.2 -22 完全混合タンクモデルの概念図

いずれのサイトでも、海底に直接シリンジを刺して採取した直接採水の Cl 濃度にはばらつきがあり、湧出水の水みちや流量に不均一があると考えられる。そのため、流量の計算で用いる熱水の Cl 濃度 ( $C_m$ ) は、各サイトから採取した海底間隙水の Cl 濃度の平均値を用いた。ガスの流量は、連続採水時にロートのメモリを読み取って求めた。以下に、それぞれのサイトごとに結果を示す。

### ① 坂本温泉沖

坂本温泉沖では、1 回目 (以降、坂本 1) は 1 L ロート、二回目 (以降、坂本 2) は 2 L ロートを用いた連続採水を行った。水試料の Cl 濃度について、連続採水試料の経時変化と、直接採

水試料の結果を図 3.2-23 に示した。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 濃度が同程度となり、飽和に達していると考えられる。一方、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。同様に、坂本 2 は熱水の流量は 0.065 L/min、現地観測したガスの流量は  $8.8 \times 10^{-5}$  L/min であり、ガス/水比は 0.0014 であった。坂本 1 と坂本 2 は流量が異なるものの、ガス/水比は同程度であることが分かった。また、坂本 1 のガスの組成は、N<sub>2</sub> 84.7%, CO<sub>2</sub> 8.6%, CH<sub>4</sub> 2.6%, O<sub>2</sub> 2.5%, Ar 1.4% であった。坂本 2 では、連続採水終了時にガスが 5 ml しか溜まっていなかったため、分析できなかった。

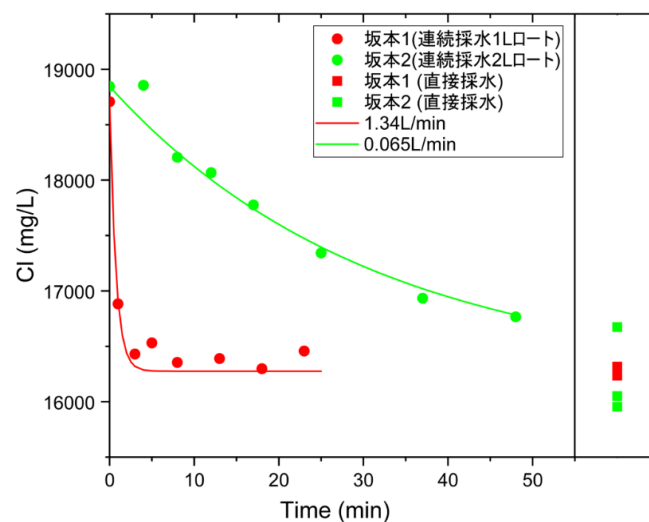


図 3.2-23 坂本温泉沖における連続採水試料（経時変化）および直接採水の Cl 濃度  
完全混合タンクモデルを用いて求めた湧出水の流量における理論曲線を示した。

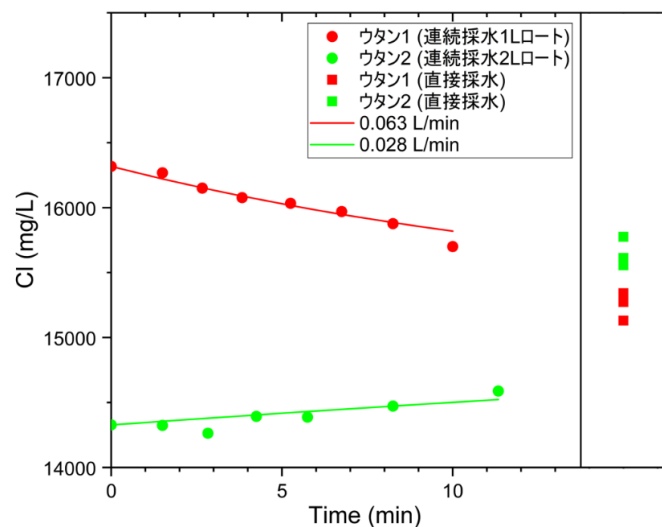


図 3.2-24 ウタン浜沖における連続採水試料（経時変化）および直接採水の Cl 濃度  
完全混合タンクモデルを用いて求めた湧出水の流量における理論曲線を示した。

## ② ウタン浜

ウタン浜沖では、1回目（以降、ウタン1）は1Lロート、二回目（以降、ウタン2）は2Lロートを用いた連続採水を行った。水試料のCl濃度について、連続採水試料の経時変化と、直接採水試料の結果を図3.2-24に示した。Cl濃度の経時変化を見ると、ウタン1は濃度が減少し、ウタン2は濃度が増加していることが分かる。ウタン2はウタン1より3m程度沖側で採取している。ウタン浜ではカルデラ壁の一部が欠損しており、多数の巨礫が浜に存在していることから、硫黄岳からの天水の影響は大きいと考えられる。ウタン浜では1時間程度ですべてのサンプリングを行っているが、ウタン1の開始時からウタン2の終了時までには潮位が20cm程度低下しており、ウタン2で天水の影響がより大きい可能性がある。ウタン1とウタン2は連続採水開始時のCl濃度は大きく異なるが、直接採水試料のCl濃度は比較的近い値をとっており、海底から湧出している水の組成は大きく変わらないと考えられる。

ウタン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0.063 L/min、現地観測したガスの流量は0.062 L/minであり、ガス/水比は0.99と求まった。一方、ウタン2は熱水の流量は0.028 L/min、現地観測したガスの流量は0.071 L/minであり、ガス/水比は2.5であった。ウタン1とウタン2でガス/水比がやや異なるのは、設置場所の違いや潮位の変化の影響が考えられる。採取したガス組成は、ウタン1でCO<sub>2</sub> 98.8%、N<sub>2</sub> 0.9%、O<sub>2</sub> 0.3%、ウタン2でCO<sub>2</sub> 98.7%、N<sub>2</sub> 1.2%であった。

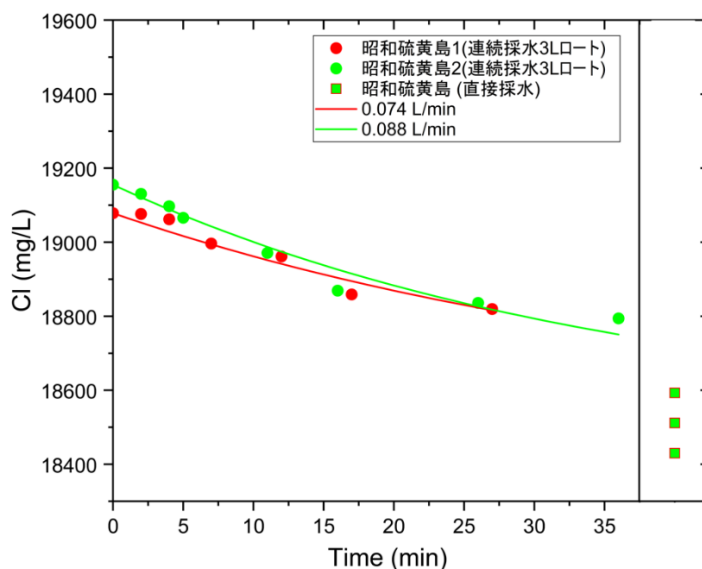


図 3.2-25 昭和硫黄島沖における連続採水試料（経時変化）および直接採水のCl濃度  
完全混合タンクモデルを用いて求めた湧出水の流量における理論曲線を示した。

## ③ 昭和硫黄島沖

昭和硫黄島では、全く同じサイトで2回の連続採水を行ったため（以降、昭和硫黄島1、昭和硫黄島2）、直接採水試料は共通で3試料採取した。昨年度本委託研究の結果と比較すると、初期海水や直接採水のCl濃度が低くなっていた（図3.2-25）。昭和硫黄島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0.074 L/min、現地観測したガスの流量は0.053 L/minで



あり、ガス/水比は 0.71 と求めた。昭和硫黄島 2 は熱水の流量は 0.088 L/min、現地観測したガスの流量は 0.11 L/min であり、ガス/水比は 1.2 であった。採取したガス組成は、昭和硫黄島 1 で CO<sub>2</sub> 97.8%, N<sub>2</sub> 1.6%, O<sub>2</sub> 0.4%, 昭和硫黄島 2 で CO<sub>2</sub> 98.3%, N<sub>2</sub> 1.3%, O<sub>2</sub> 0.3% であった。2 回の連続採水の結果は比較的良好に一致している。

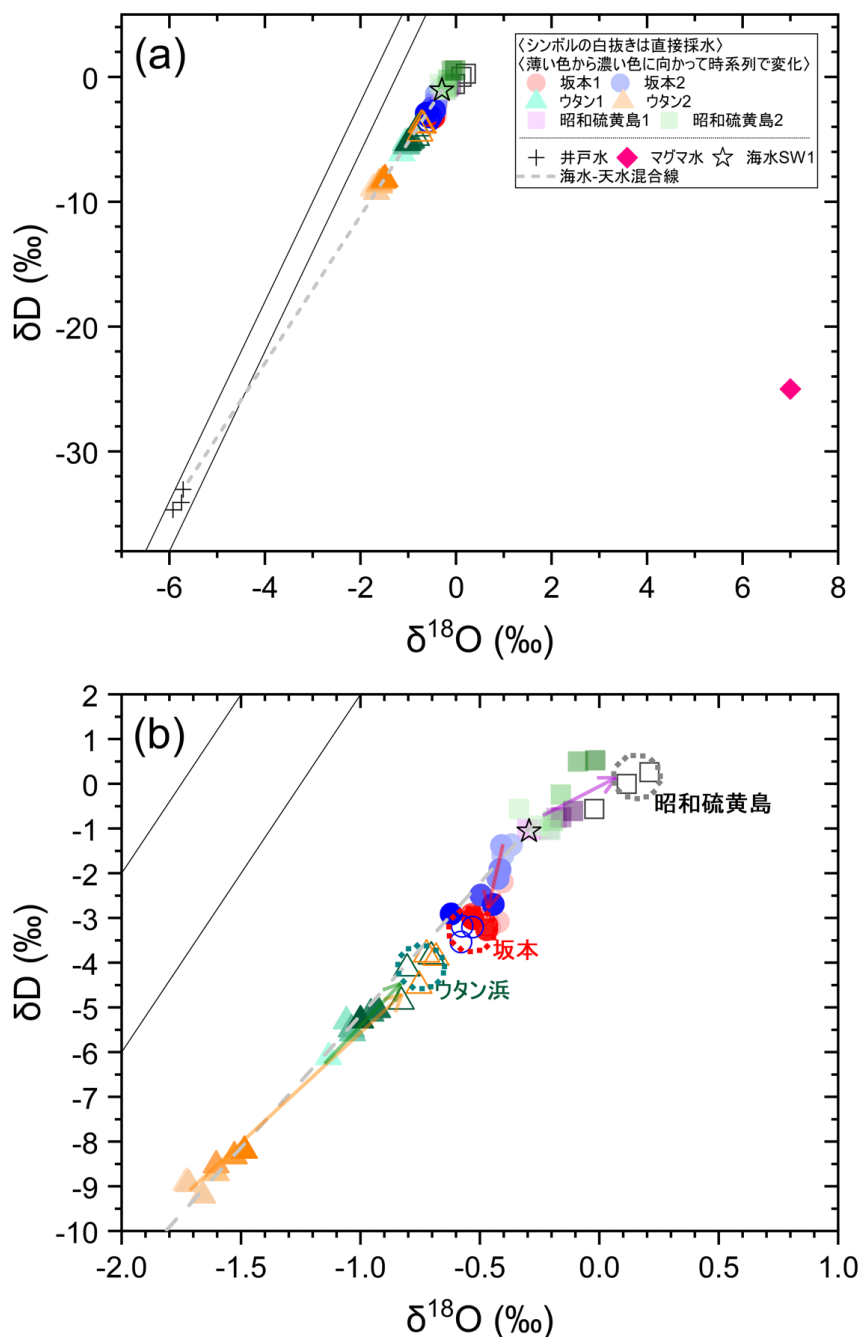


図 3.2-26 薩摩硫黄島で採取した連続採水試料および直接採水試料の酸素・水素同位体比  
 (b)は連続採水試料の変化方向が分かるように矢印で示した拡大図である。連続採水試料は、シリーズごとに異なるシンボルを用い、色の濃さは時系列に対応している（薄い色から濃い色に向かって変化）。各調査地点の白抜きのシンボルは直接採水の値である。各調査地点の湧水の端成分と考えられる値を点線丸で示した。マグマ水は Shinohara et al. (1993) による。2 本の実線は天水線 (d=10, 14) である。

## 2-2) 海底湧出水の起源

採取した水試料の  $\delta^{18}\text{O}$ — $\delta\text{D}$  の関係を図 3.2-26(a)に示した。図中において、海水—天水混合線は、各サンプリング地点から離れた場所で採取した海水 (SW1, 図 3.2-19) および最も Cl 濃度の低かった薩摩硫黄島内の井戸水 (令和 3 年度本委託研究で採取) を用いている。海水試料は、Cl 濃度が 18870mg/L と低かったことから、天水による希釈を受けていたと考えられるが、海水—天水混合線を示すことに影響しないため、ここでは SW1 の分析値を用いる。坂本温泉・ウタン浜海岸・昭和硫黄島のどの地点であっても、連続採水と直接採水ともに天水—海水混合線の近傍にプロットされ、いずれも海水の寄与が高いことがわかる。図 3.2-26 (b)は、3 地点の試料を拡大したものである。各調査地点のシンボルの白抜きは直接採水試料を表しており、連続採水試料の時間経過とともに変化する方向にプロットされる。拡大して見ると、直接採水試料は海水—天水混合線よりもわずかに下側にプロットされており、坂本温泉とウタン浜の試料よりも昭和硫黄島の試料の方が、海水—天水混合線から離れている。

$\delta^{18}\text{O}$  と Cl 濃度の関係を図 3.2-27 に、 $\delta\text{D}$  と Cl 濃度の関係を図 3.2-10 に示した。これらの図には、昨年度の解析で求めた長浜湾のマグマ水、東温泉のマグマ水もプロットした (◆印)。連続採水で採取開始時の試料 (図中でシンボルの色が最も薄い点) はサンプリング地点や採取の実施ごとに様々な Cl 濃度を示しており、島の周辺における海水・天水・海底湧水の混入の違いによって不均一であることが分かる。 $\delta^{18}\text{O}$ — $\delta\text{D}$  の関係 (図 3.2-26) からは、3 地点の試料は天水と海水の混合として扱うことができそうであったが、 $\delta^{18}\text{O}$  や  $\delta\text{D}$  と Cl 濃度の関係 (図 3.2-27・図 3.2-28) からは、ほとんどの試料が海水—天水混合線上か混合線よりも上側にプロットされている。 $\delta^{18}\text{O}$  の上昇は、高い  $\delta^{18}\text{O}$  値を持つマグマ水の混入で説明できるが、 $\delta\text{D}$  については、低い  $\delta\text{D}$  値を持つマグマ水の混入では説明ができず、マグマ水の混入以外のプロセスが関与していることがうかがえる。また、 $\delta^{18}\text{O}$ — $\delta\text{D}$  の関係でも見られたように、 $\delta^{18}\text{O}$  や  $\delta\text{D}$  と Cl 濃度の関係でも連続採水試料の時間経過とともに変化する方向に直接採取の試料 (白抜きシンボル) がプロットされており、それぞれの連続採取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。図 3.2-27 や図 3.2-28 に矢印で示した先に海底湧出水があると考えられるが、ウタン浜の 2 回の採取では、組成の異なる始点からの連続採水が実施できており、これらの矢印が交差する領域にウタン浜での海底湧出水の組成があると推定できる。海底湧出水には天水成分が混入していると考えられることから、天水からウタン浜の海底湧出水の組成領域を結んだ (図 3.2-27・図 3.2-28 の赤点線) 先に、天水の混入がある前の深部からの湧出水の組成を示す領域があると推定される。坂本温泉における直接採取の試料もこの赤点線の近傍にあり、連続採水試料からの変化を延長するとウタン浜の海底湧出水の組成領域となる。このことは、坂本温泉とウタン浜の海底湧出水が非常に似たものであることを示唆している。一方、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。つまり、天水の影響のない海底湧出水の組成は、ウタン浜や坂本温泉で採取した試料による赤点線と、昭和硫黄島で採取した試料による矢印が交差する領域にあることを示しており、およそその組成として、Cl 濃度は 18200~18400mg/L、 $\delta^{18}\text{O}$  は 0.2‰、 $\delta\text{D}$  は 1‰と推定される。

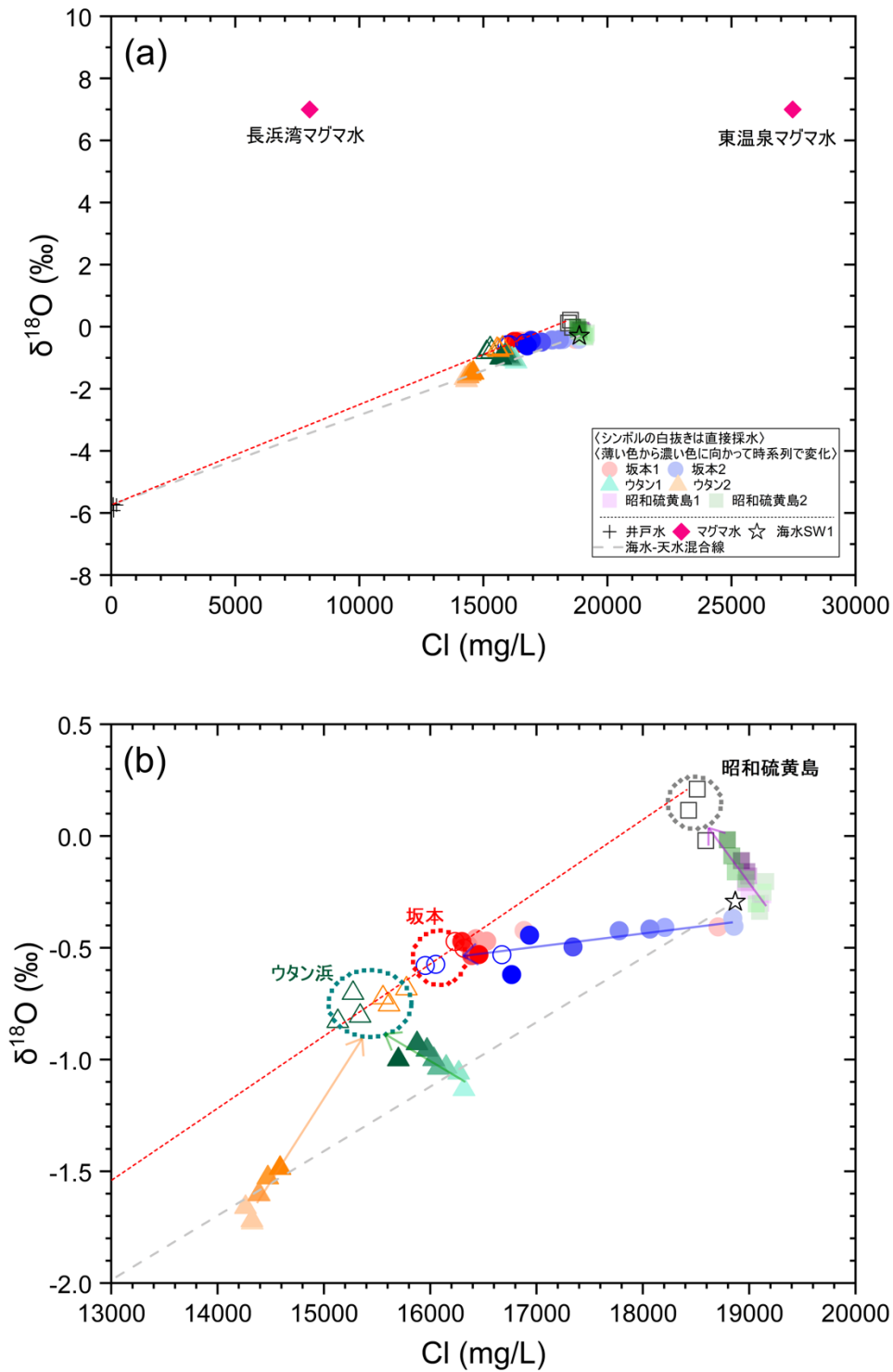


図 3.2-27 薩摩硫黄島で採取した連続採水試料および直接採水試料の酸素同位体比と塩素濃度の関係

(b)は連続採水試料の変化方向が分かるように矢印で示した拡大図である。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している（薄い色から濃い色に向かって変化）。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示した。マグマ水について、酸素同位体比はShinohara et al. (1993)、Cl濃度は昨年度本委託研究の解析結果による。また、天水とウタン浜の直接採水試料の組成領域の混合線（赤点線）を示した。

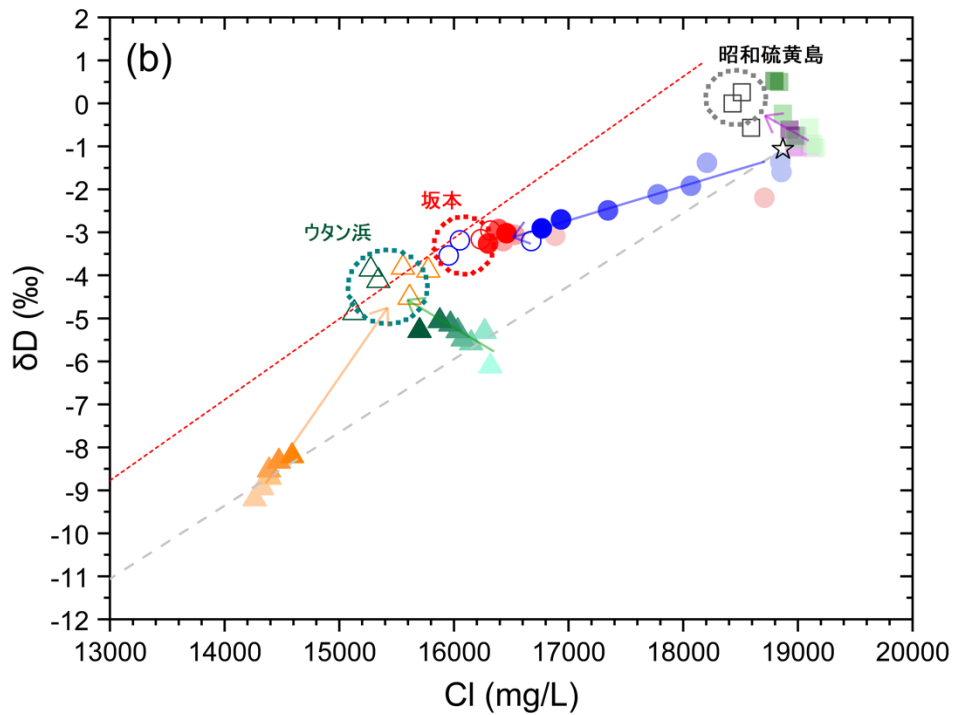
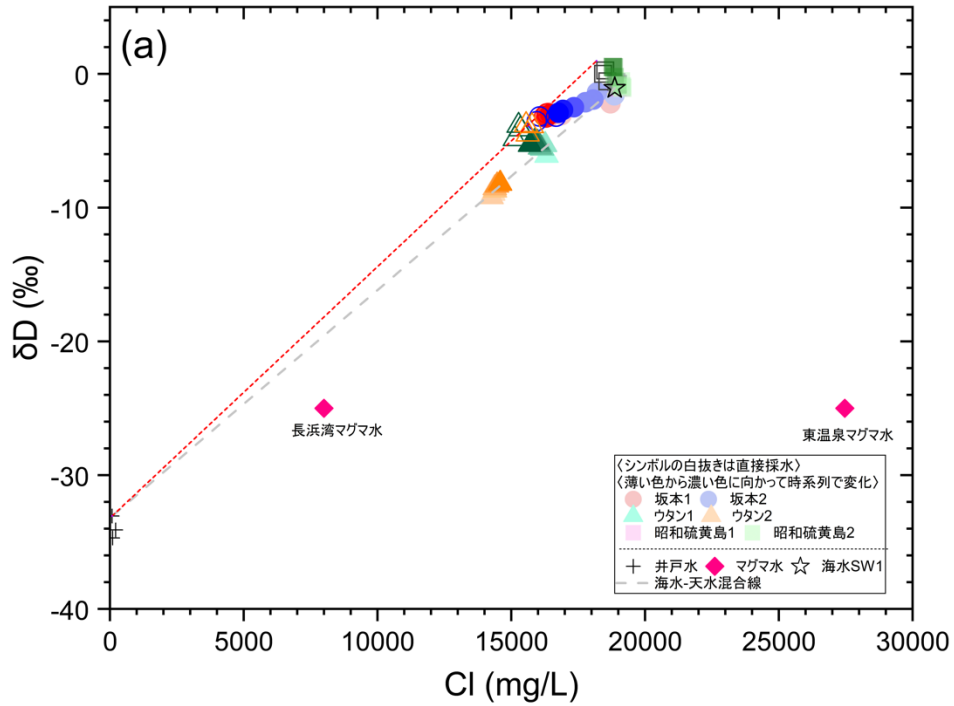


図 3.2-28 薩摩硫黄島で採取した連続採水試料および直接採水試料の水素同位体比と塩素濃度の関係

(b)は連続採水試料の変化方向が分かるように矢印で示した拡大図である。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している（薄い色から濃い色に向かって変化）。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示した。また、天水とウタン浜の直接採水試料の組成領域の混合線（赤点線）を示した。

海底湧出水は、火山体の内部へ浸透した海水がマグマ水や天水の混入をうけて、火山活動による熱によって循環して湧出すると考えられる。天水の影響を除去した組成は上述の通りであるが、既に述べたように  $\delta^{18}\text{O}$  や  $\delta\text{D}$  と Cl 濃度の関係から、海水とマグマ水の混合だけでは説明できず、火山体内部で海水が循環する間に組成変化をもたらすプロセスが必要となる。火山体内部は高温高压であることから、循環する海水はボイリングして気液分離が起こると考えられる。一般に水が蒸発する際に起こる同位体分別では、気体側は  $\delta^{18}\text{O}$  や  $\delta\text{D}$  が低くなり、液体側は高くなるが、 $\delta\text{D}$  では約  $230^\circ\text{C}$  より高温になると気体側が高くなる逆転現象（クロスオーバー現象, Horita & Wesolowski, 1994）が起こる。そのような環境で気液分離が生じると、 $\delta\text{D}$  値が高い気相が生成される。その気相がより上方へ移動し、別に循環する海水成分に混入すると、 $\delta\text{D}$  値を高くすることになる。また、分離した気相には Cl 成分が含まれにくいと考えられることから、気相の混入を受けた海水の Cl 濃度は低下する。海水の Cl 濃度が  $19350\text{mg/L}$ （野崎, 1997）とすると本節で推定した海底湧出水の Cl 濃度である  $18200\text{mg/L}$  となるには、およそ 6%の希釈となる。このときの  $\delta\text{D}$  の変化を、海水レベルの NaCl 濃度での同位体分別係数を用いて計算すると、分別が最大となる  $300^\circ\text{C}$  前後の条件で  $0.2\sim 0.3\%$  の変化となり、このプロセスのみで海底湧出水の Cl 濃度と  $\delta\text{D}$  を説明することはできない。一方、 $\delta^{18}\text{O}$  ではクロスオーバー現象は起こらず、 $\delta^{18}\text{O}$  の上昇を気液分離では説明できない。ただし、気液分離を起こす流体に含まれる  $\text{CO}_2$  が同位体分別に影響すると考えられることから、その影響の評価が必要である。さらに、地層の鉱物との反応にともなう同位体比の変化（Yeh and Epstein, 1978; Sheppard and Gilg, 1996; Caballero and Jiménez de Cisneros, 2018）についても検討が必要となる。海底湧出水に含まれる海水成分は、海水そのものではなく火山体内部で循環する間に変質作用を受けていることは確実だと考えられるが、海底湧出水の Cl 濃度の低下や  $\delta^{18}\text{O}$  や  $\delta\text{D}$  の上昇を定量的に説明することができないため、 $\delta^{18}\text{O}$  や  $\delta\text{D}$  を用いて、海底湧出水に含まれるマグマ水の寄与の推定は困難であり、前節で推定した海底からの Cl 湧出のうち、マグマ起源 Cl の割合の算出ができない。したがって、連続採取による調査でマグマ起源の  $\text{CO}_2$  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。このような同位体的特徴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がある。

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

昨年度本委託研究では、東温泉沖の海底湧水は、硫黄岳山頂から放出される火山ガスが関与したものと考えられるため、マグマ溜まりの情報は持っていないとしている。ただし、求められた C/Cl 比 (=2.7) と Cl/H<sub>2</sub>O 比 (=0.014) は、火山ガスが関与した場合の値の例として有益な情報といえる。Shinohara et al.(1993)による硫黄岳火口の高温火山ガスは、C/Cl=0.5~2.9 及び Cl/H<sub>2</sub>O=0.002~0.007 である。長浜湾における海底湧水は、C/Cl 比が 0.56, Cl/H<sub>2</sub>O 比は 0.004 と求められている。一方、前節で検討したように、昭和硫黄島沖、ウタン浜沖の湧水、坂本温泉沖の海底湧水はそれらのすべてが変質した海水であった。マグマ由来の  $\text{CO}_2$  を含むため、マグマ水もふくまれているはずであるが検出不可能であった。これら 3 箇所は、マグマ火道の熱源による海水の循環システムができていていることによると考えられる。

Kazahaya et al.(2002)によれば、火山ガスと火山岩のメルトインクルージョンの研究により、鬼界カルデラのマグマ溜まりは下位に稲村岳と同等の玄武岩質マグマが供給され、上位にある高温の流紋岩質マグマ（昭和硫黄島を形成）にガス成分を供給している。そのガス成分は硫黄岳から大量放出されている。その結果マグマ溜まりでは大量の玄武岩マグマが脱ガスし、結晶分化していると考えられている。

火山ガスや東温泉沖・長浜湾の海底湧水に含まれるマグマ起源熱水の生成環境を求めるため 3.2.1 章で検討したマグマ溜まりのマグマから放出される熱水計算手法を低圧域に拡張を試み、以下に検討した。具体的には、Alletti et al. (2014)による 10~100MPa における Phonolite の Cl の分配係数  $D_{Cl}^{f-m}(wt)$  を薩摩硫黄島の流紋岩マグマにも適用できると仮定した。玄武岩マグマについては、 $D_{Cl}^{f-m}(wt)$  は 1.5 で一定とした。1933~34 年に昭和硫黄島を生成した流紋岩質マグマと後カルデラ期に噴出した硫黄島内の稲村岳玄武岩マグマについて、マグマの初期含有量は Saito et al.(2003)によるメルトインクルージョンの分析結果のうち最もガス含有量の高い値を用いる。Saito et al. (2003)によれば、この流紋岩質マグマはマグマ溜まり内でガスに不飽和であり、ガスの供給元の玄武岩マグマもマグマ溜まり内では気泡を失うと考えられる。不飽和なマグマ溜まりからは気泡起源の熱水(MD や FD)は生成されない。図 3.2-29 に流紋岩質マグマ ( $H_2O=1.4wt\%$ ,  $CO_2=0.014 wt\%$ ,  $Cl=0.15wt\%$ )と玄武岩質マグマ( $H_2O=2.1wt\%$ ,  $CO_2=0.03 wt\%$ ,  $Cl=0.07wt\%$ )が低圧環境で脱ガスした場合に放出する熱水の C/Cl, Cl/ $H_2O$  比の理論的結果を示した。火山ガス、東温泉沖・長浜湾の海底湧水の C/Cl, Cl/ $H_2O$  比も同図に示す。この図から、火山ガス、海底湧水のマグマ起源成分はマグマ溜まりの上部に位置すると考えられる流紋岩質マグマが火道上部の低圧環境下で脱ガスし、大部分は山頂ガスとして、また、一部は山体内の地下水系を通じて東温泉および長浜湾に湧出しているものと考えられる。

### (3) 始良カルデラ周辺の定期地下水観測

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 6 箇所 (A-1 から A-6) を選定し、月一回の定期観測を 2019 年 8 月から開始した(昨年度本委託研究)。今年度から A-7,8,9 の 3 地点の温泉水を新たに設定し、2022 年 5 月から定期観測を開始した。定期観測地点を図 3.2-30 に示す。A5,A6 地点は引き続き観測を続ける一方で、A1-A4 の 4 地点では観測を終了した。A1-A4 地点では、海水あるいは変質海水との混合系でマグマ種の同定が困難、および地下水年代が古いため現在の状況を反映しない恐れがあるなどの理由による。新規に設定した A-7 は、桜島内にあること、もっとも C/Cl 比が高いことから選定している。また、A-8 および A-9 地点はカルデラ北部の少し離れた場所であるが、周辺の温泉水も含めて非常に高い  $^3He/^4He$  比を示すこと、また、C/Cl 比は珪長質マグマの生成を示していることから定期観測点に設定した。観測を続けることにより、火山活動に関連する水質要素の変化を検出することが期待され、その変化からマグマの種別、活動に関する情報や意義を検討することができると考えられる。

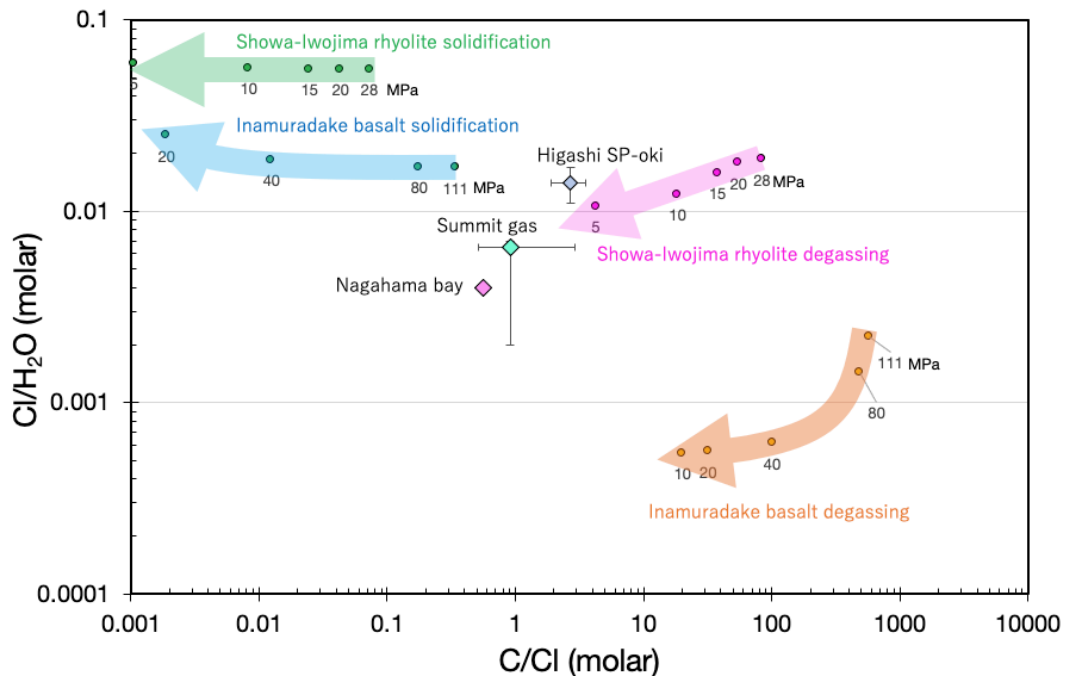


図 3.2-29 薩摩硫黄島における山頂火山ガス，長浜湾海底湧水，東温泉沖湧水の C/Cl と Cl/H<sub>2</sub>O 比とマグマから放出される熱水・ガスの C/Cl，Cl/H<sub>2</sub>O 比の圧力変化

昭和硫黄島の流紋岩質マグマおよび稲村岳玄武岩質マグマが気泡脱ガスあるいは固化に伴う脱ガスをした場合の熱水組成をその圧力とともに示した。MPa の表示をした圧力値は，それぞれのマグマに含まれる H<sub>2</sub>O+CO<sub>2</sub> の成分の飽和圧力を示す。

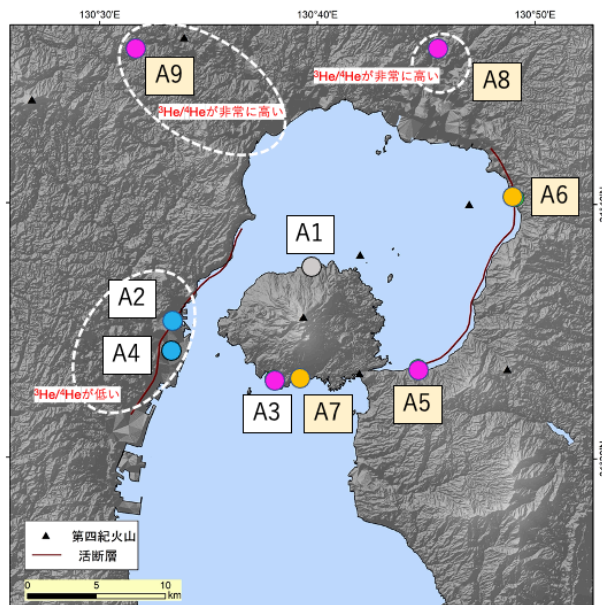


図 3.2-30 始良カルデラの火山活動モニタリング項目の検討のための定期観測井 (A1～A9) A1-A4 は 2021 年度まで観測。A5, A6 は継続。A7-A9 は今年度から新規に観測を開始。断層の情報は産総研地質調査総合センター (2015)，第四紀火山は西来ほか (2012)，地形データは基盤地図情報 (国土地理院) による。

各観測地点では、採水を行うとともに、水温、導電率、pHを現地で測定し、実験室で水質組成、水の水素・酸素同位体比( $\delta D$ ,  $\delta^{18}O$ )、溶存無機炭素同位体比( $\delta^{13}C_{DIC}$ )を分析した。選定した地点の温泉水の特徴を示すため、水試料の $\delta D$ 、 $\delta^{18}O$ 及びCl濃度の関係を図3.2-31及び図3.2-32に示す。図3.2-30に示した新規のA7-9は、図3.2-31からいずれも若干のマグマ水の混入があると思われる。Cl濃度はA7およびA9が約1000 mg/L、A8は低濃度である。

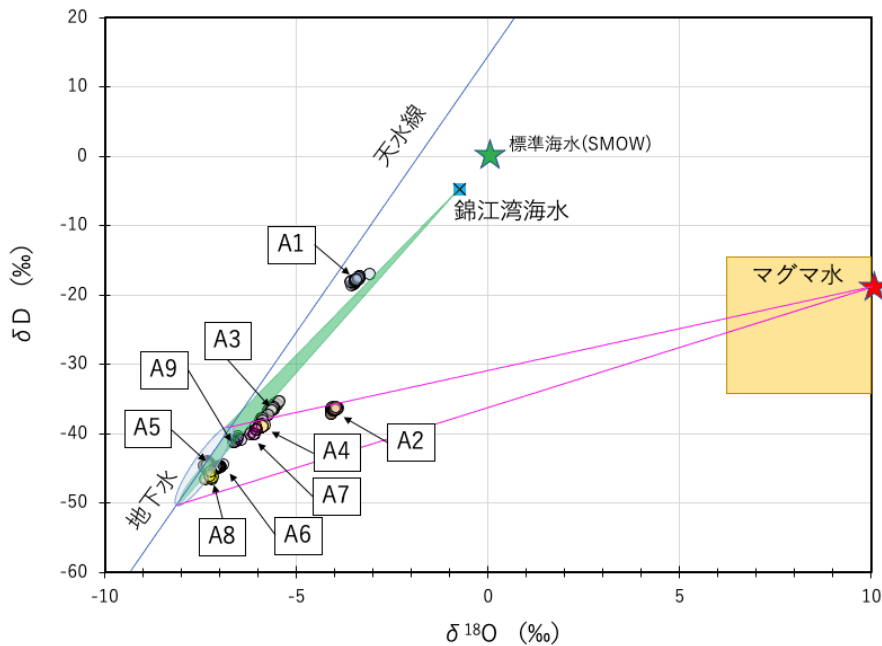


図 3. 2-31 定期観測井における地下水の同位体組成 ( $\delta D$ - $\delta^{18}O$ )

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

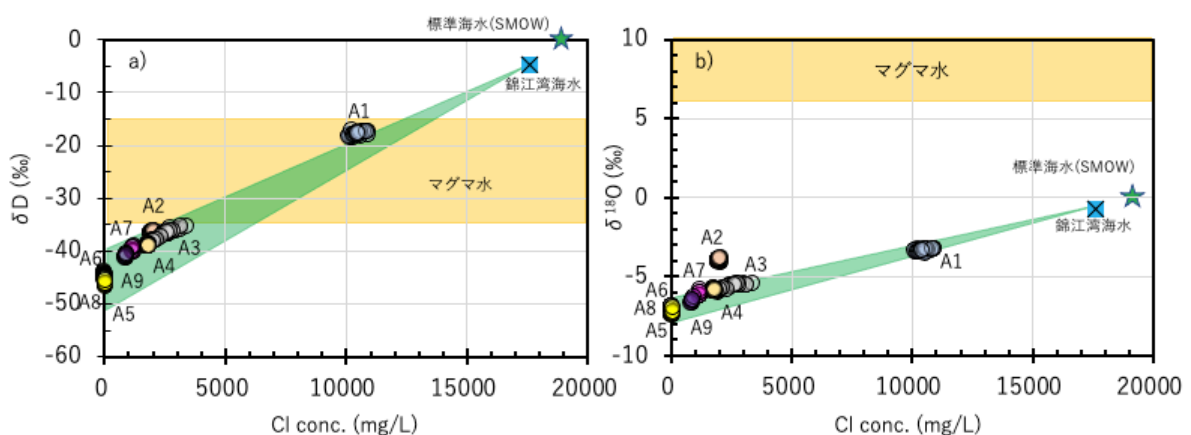


図 3. 2-32 定期観測井における地下水の a)  $\delta D$ -Cl 濃度と b)  $\delta^{18}O$ -Cl 濃度の関係

天水と海水との混合領域及びマグマ水の範囲を合わせて示した。



昨年度本委託研究で、A1-A4 地点において Br および I 濃度が Cl 濃度に関係なく増減する現象が確認された。井戸の状態によるものと考えられるが原因は不明のままである。A5, A6 にはそのような特徴はみられなかった。今年度は Br, I を用いた解析は行わず、データが集積してから検討することにする。

まず、今年度から開始した A7-A9 について A7-A9 の  $\delta D$  と  $\delta^{18}O$  のトレンドとそれぞれの地点の Cl 濃度と  $\delta^{18}O$  値のトレンドを示す(図 3.2-33)。なお、MD, FD, FS のベクトルは図 3.2.1-3 における 200MPa 時の Cl/H<sub>2</sub>O 比を用いている。また FD, FS に関しては、桜島火山が活発なガス放出活動を行なっているため図 3.2.1-3 の IIa の open system の結果を用いた。図 3.2-33 から、データ数が少ないが変動トレンドは確認できる。 $\delta D$  と  $\delta^{18}O$  の関係図から A7-A9 の全ての地点でマグマ水の混入変化によるトレンドが見える。Cl 濃度と  $\delta^{18}O$  の関係図から A7, A9 地点では MD によるマグマ起源成分の混入トレンドがあるように見える。A8 は Cl 濃度に関係せず  $\delta^{18}O$  が変化している。次に、図 3.2-34 に Cl 濃度と  $\delta D$  の関係、また、図 3.2.3-6 に Cl 濃度と C<sub>mag</sub> (マグマ起源炭素) 濃度の関係を示す。図 3.2-35 では、A7, A8 の地点において  $\delta D$  および Cl 濃度の変化幅が小さいため現時点では判別がむずかしい。A9 については、Cl 濃度が有意に変化し MD の関与が示唆される。図 3.2-35 では、A7, A9 地点でマグマ起源炭素(C<sub>mag</sub>)濃度が変化している。現時点では、データ数が少ないこと、および、測定精度に近い範囲での変動であることから、さらにデータ数が増えてから考察したい。

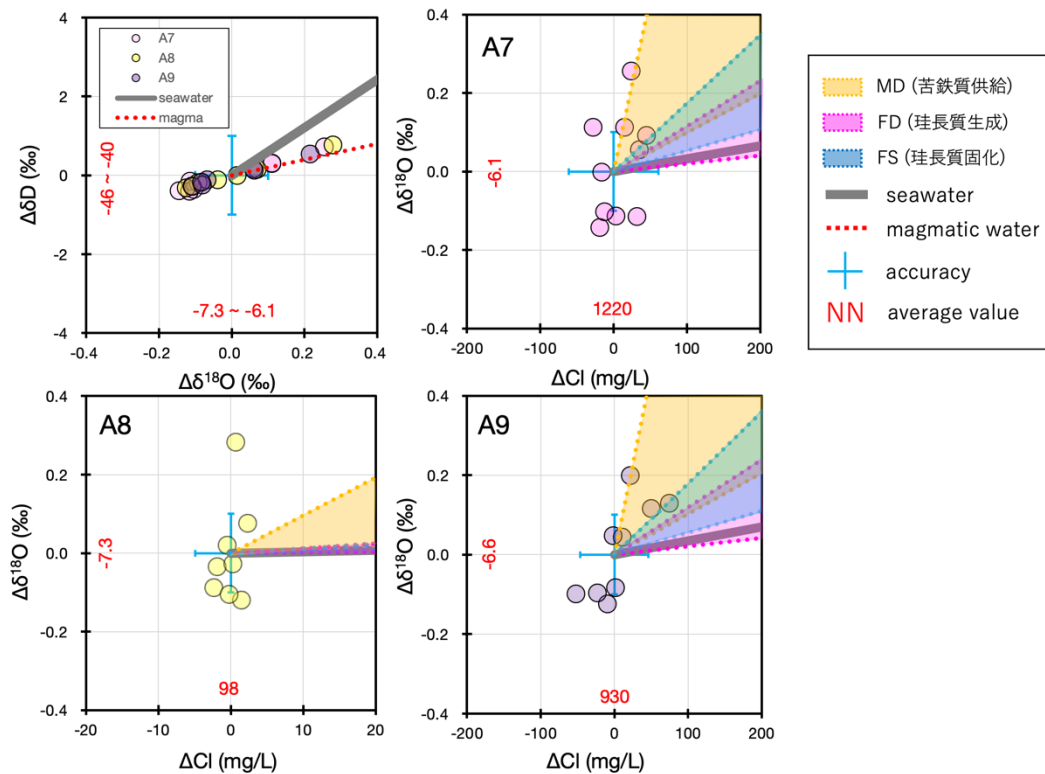


図 3.2-33 新規観測井 A7-A9 における地下水の水の  $\delta D$ ,  $\delta^{18}O$  および  $\delta^{18}O$  と Cl 濃度の変化 (2022 年 5 月～2023 年 2 月)

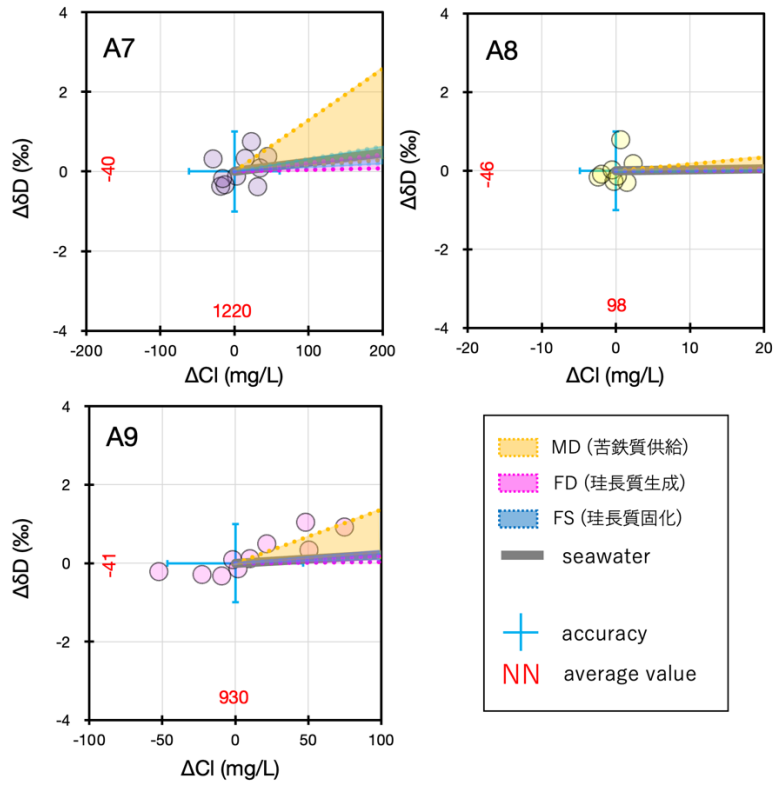


図 3. 2-34 新規観測井 A7-A9 における地下水の水の  $\delta D$  と Cl 濃度の変化  
(2022 年 5 月～2023 年 2 月)

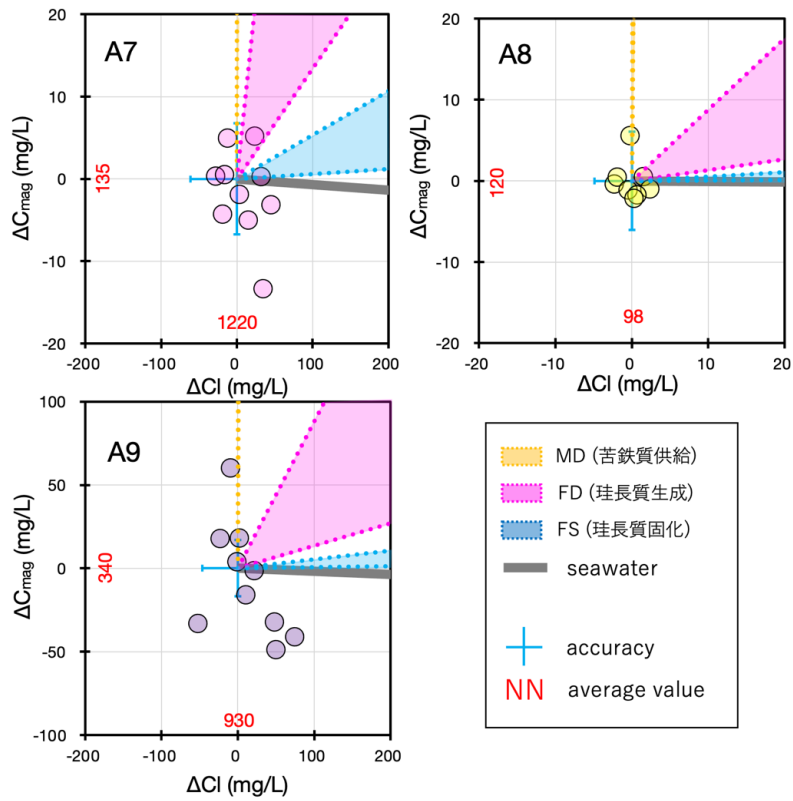


図 3. 2-35 新規観測井 A7-A9 における地下水の水の  $C_{mag}$  (マグマ起源炭素) 濃度と Cl 濃度の変化  
(2022 年 5 月～2023 年 2 月)

#### (4) まとめと課題

##### 1) C/Cl-C/H<sub>2</sub>O 法の改訂と十和田カルデラへの適用

本手法の適用の元となるマグマ溜まり進化モデルを 150~400MPa の範囲に拡張した。生成する熱水流体の組成の計算手法もより厳密化した。また、苦鉄質マグマから珪長質マグマを生成する条件として、AFC 比( $r$ =珪長質メルトの生成量/結晶量)を用い、一般的に想定される範囲の  $r=0.12$  と  $0.25$  の場合で計算を行なった。生成する熱水の組成について  $r$  値による違いはほとんどないことがわかったが、 $r=0.12$  の場合、珪長質マグマによる熱水の生産量は約 2 倍になる。珪長質マグマの生成について open および closed system の場合の 2 つの両極端なモデルを検討した。Open system は、一度気泡を失った苦鉄質マグマから珪長質マグマが生成する場合に対応し、Closed system は、気泡を含んだままの苦鉄質マグマから生成する場合に対応する。今回の対象である十和田火山は、大規模な火山ガスによる脱ガス活動がみられないことから、closed system に相当するとした。熱水組成は苦鉄質マグマの揮発性成分の初期濃度の違いにより特徴的に変化することがわかった。高圧下(300-400MPa)で珪長質マグマを生成する時に苦鉄質マグマの初期 Cl/H<sub>2</sub>O 比が高いと非常に高い Cl 濃度の熱水が形成される。これらの結果を元に、熱水がマグマから分離した後、気液二相分離を引き起こす条件を示し、熱水上昇により地下水系へ混合する過程において起こりうる状況を留意すべき点としてまとめた。

新たに希ガスデータ等を用いて、十和田カルデラ周辺の温泉水中の無機溶存炭素(DIC)がその濃度を保持しているかどうかについて検討を行なった。その結果、希ガスデータがある温泉水のうち約半数が炭酸塩として温泉水から DIC が沈澱し取り除かれていることがわかった。これらの影響を排除するため、島弧マグマではマグマ起源の C/<sup>3</sup>He 比が一定値を持つことを利用して、マントル起源の <sup>3</sup>He 濃度を用いてマグマ起源の DIC 濃度を求めた。この手法により、温泉水からの DIC の沈澱除去や、有機物の分解による CO<sub>2</sub> の付加などの影響を同時に排除することができると考えられる。以上示した手法を用いて、十和田カルデラ周辺の温泉水について C/Cl 値を再決定した。ただし、希ガスデータのある温泉水に限られるため、解析できた温泉数は減少した。

今年度新たに十和田湖水を採取し、マグマ起源の C/Cl 値を求めた結果、珪長質マグマの生成に関連する熱水の関与が確認された。昨年度確認されていた十和田カルデラ西部の珪長質マグマ生成による熱水の領域は昨年度よりも西側に拡大された。このエリアでは深部低周波地震が生じていることがわかっており、深部マグマの存在が推定される。また、同じ特徴をもつ温泉水がカルデラから北西に約 30 km 離れた地域にも新たに確認された。昨年度、十和田カルデラ全周にわたる外輪山山麓から発する河川水に Br/Cl 比がマグマ起源と同等の値を持つ河川水が確認され、湖水の漏水の可能性を指摘していたが、今年度の調査により、降雪による天水が非常に大きな Br/Cl 比のバリエーションを持つためと示唆された。

<sup>36</sup>Cl/Cl 比と <sup>3</sup>He/<sup>4</sup>He 比を用いた手法では、十和田カルデラ内および十和田カルデラ西部において、地下水に混入しているマグマ起源流体の現在の状態を示し、固化段階というよりは比較的フレッシュな状態にあることを示している結果が得られた。この結果は C/Cl 法による結果とも整合的である。一方、本年度の C/Cl 比の解析によってあらたに珪長質マグマの生成領域では、その兆候は <sup>36</sup>Cl/Cl 比と <sup>3</sup>He/<sup>4</sup>He 比からは不明瞭であった。滞留時間の長い海水や堆積物間隙水などの Cl を多く含む深層地下水の場合、珪長質マグマ生成時に放出された流体が混入した場合でも、

滞留時間の長い深層地下水の  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比が高く、 $^3\text{He}/^4\text{He}$  比が低下していることが考えられるため、この地域ではマグマの生成段階にあることを観測できていないのかもしれない。

課題としては、マグマ起源の DIC 濃度を求めるにあたり、希ガスの利用が有効であるとわかったため、今後、希ガスデータを充実させ、より密度の高い空間情報を得ることにより、本手法の総合的な精度向上を図ることができると考えられる。また、理論面では 400MPa に達する高圧下で高温の熱水が放出され上昇する過程で起こりうる様々な相変化による影響をさらにくわしく評価する必要があると考えられる。

## 2) 鬼界カルデラ（海底湧水）

鬼界カルデラ（薩摩硫黄島，昭和硫黄島）では、海底カルデラの評価手法を構築するため、海底湧水の調査を新たに 3 地点で行った。3 地点ともに海底から温泉水と気泡の両方が湧出しており、ロートを用いた連続採水法が有効であった。湧水、ガスから得られたデータを適切に解析した結果、マグマ起源の  $\text{CO}_2$  が確認されたが、湧出水は変質した海水を主成分としており、マグマ起源の水および塩素の同定ができなかった。同様の同位体的特徴を持つ変質海水は始良カルデラでもみつかっているため、海没カルデラの特徴かもしれない。変質海水の存在はマグマ火道の熱源により地下で大規模な海水循環系ができていることを示唆している。昨年度、海底湧水の調査で  $\text{C}/\text{Cl}$  及び  $\text{Cl}/\text{H}_2\text{O}$  比を決定することができた東温泉沖と長浜湾の湧水に含まれるマグマ成分について  $\text{C}/\text{Cl}-\text{Cl}/\text{H}_2\text{O}$  法を低圧域に拡張し検討を行なった。その結果、どちらも非常に低圧な環境 (<10MPa) で流紋岩質マグマが火道系において脱ガスしたものであると結論された。今回、鬼界カルデラにおいて、観測可能なすべての陸上および海底の温泉水について調査を行なったが、大規模な海水循環系による変質海水やマグマ火道系から非常に低圧で漏れ出した熱水がその主たる起源となっていることが判明し、マグマ溜まりの情報を得ることができなかった。今後は、今回明らかになったマグマ火道系の情報を加え、火山ガスやメルトインクルージョンを用い明らかになっている鬼界カルデラのマグマ溜まりの状態 (Kazahaya et al., 2002; Saito et al., 2003) に関する取りまとめを行いたい。

## 3) 始良カルデラ周辺の定期地下水観測

火山活動に関連する水質要素の変化を検出し、 $\text{C}/\text{Cl}-\text{Cl}/\text{H}_2\text{O}$  法を利用することを目的とした始良カルデラ周辺の定期観測では、新たに 3 箇所の観測点を追加（4 観測点を中止）した。中止した 4 観測点は、地下水年代が古い、変質海水との混合および海水混合の単純系であった等が理由である。新設の観測点はすべてマグマ起源熱水の混合による変化を示しており、今後データが集積すればマグマ種の解明に有用な情報を得ることができると考えられる。

## 引用文献

- Alletti, M., Baker, D.R., Scaillet, B. Aiuppa, A., Moretti, R., Ottolini L. (2009) Chlorine partitioning between a basaltic melt and  $\text{H}_2\text{O}-\text{CO}_2$  fluids at Mount Etna. *Chem. Geol.*, 263, 37–50, doi:10.1016/j.chemgeo.2009.04.003.

- Alletti, M., Burgisser, A., Scaillet, B., Oppenheimer, C. (2014) Chloride partitioning and solubility in hydrous phonolites from Erebus volcano: A contribution towards a multi-component degassing model *GeoResJ*, 3-4, 27–45. <http://dx.doi.org/10.1016/j.grj.2014.09.003>.
- 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, <http://dx.doi.org/10.1016/j.chemgeo.2015.08.008>
- Bouvet de Maisonneuve, C., Forni, F., Bachmann, O. (2021) Magma reservoir evolution during the build up to and recovery from caldera-forming eruptions – A generalizable model? *Earth-Science Reviews*, 218, 103684, <https://doi.org/10.1016/j.earscirev.2021.103684>
- Caballero, E. and Jiménez de Cisneros, C. (2018). Oxygen Isotopic Fractionation in the Kaolinite-Water System during the Synthetic Process. *Journal of Minerals and Materials Characterization and Engineering*, 6, 507-516.
- 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 H<sub>2</sub>O–NaCl. Part I: Correlation formulae for phase relations in temperature–pressure–composition space from 0 to 1000°C, 0 to 5000 bar, and 0 to 1 X<sub>NaCl</sub>. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 71, 4880–4901.
- Giggenbach W. F. (1992) Isotopic shifts in waters from geothermal and volcanic systems along convergent plate boundaries and their origin. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 113, 495-510.
- Graham D. W. (2002) Noble gas isotope geochemistry of mid-ocean ridge and ocean island basalts: characterization of mantle source reservoirs. *Rev. Mineral. Geochem.* 47, 247–318.
- Horita, J. and Wesolowski, D. J. (1994) Liquid-vapor fractionation of oxygen and hydrogen isotopes of water from the freezing to the critical temperature. *Geochim. Cosmochim. Acta* 58, 3425-3437.
- Kazahaya, K., Shinohara, H., Saito, G. (1994) Excessive degassing of Izu-Oshima volcano: magma convection in a conduit. *Bull. Volcanol.*, 56, 207-216, <https://doi.org/10.1007/BF00279605>
- 風早康平, 安原正也, 佐藤努, 高橋正明, 丸井敦尚(2000)岩手山-葛根田地域の地下水同位体標高効果, 地質調査所報告, No.284, 57-67.
- Kazahaya, K., Shinohara, H. and Saito, G. (2002) Degassing process of Satsuma-Iwojima volcano, Japan: Supply of volatile components from a deep magma chamber. *Earth Planets Space*, 54, 327-335.
- 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, 3-16, <https://doi.org/10.4145/jahs.44.3>
- 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–H<sub>2</sub>O–CO<sub>2</sub>–S–Cl, *J. Petrol.*, 52, 1737–1762, <https://doi.org/10.1093/petrology/egr027>.

- Morikawa, N., Kazahaya, K., Fourre, E., Takahashi, H. A., Jean-Baptiste, P., Ohwada, M., LeGuern, F. and Nakama, A. (2008) Magmatic He distribution around Unzen volcano inferred from intensive investigation of helium isotopes in groundwater, *J. Volcan. Geotherm. Res.*, 175, 218-230
- 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, <https://doi.org/10.1016/j.gca.2016.03.017>.
- Newman, S., Lowenstern, J. B. (2002) VolatileCalc: a silicate melt-H<sub>2</sub>O-CO<sub>2</sub> solution model written in Visual Basic for excel. *Comput. Geosci.* 28 (5), 597-604. [https://doi.org/10.1016/S0098-3004\(01\)00081-4](https://doi.org/10.1016/S0098-3004(01)00081-4).
- 西来邦章・伊藤順一・上野龍之 (2012) 第四紀火山岩体・貫入岩体データベース. 地質調査総合センター速報, 60, 産業技術総合研究所地質調査総合センター.
- 野崎義行 (1997) 5. 最新の海水の元素組成表 (1995 年版) とその解説. *日本海水学会誌*, 51, 302-308.
- 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 *Journal of Volcanol. Geotherm. Res.*, 168, 55-67, <https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2007.07.009>
- Saito, G., Kazahaya, K., Shinohara, H. (2003) Volatile evolution of satsuma-iwojima volcano: Degassing process and mafic-felsic magma interaction. *Develop. Volcanol.* 5, 129-146, [https://doi.org/10.1016/S1871-644X\(03\)80027-X](https://doi.org/10.1016/S1871-644X(03)80027-X).
- 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.
- Sano, Y., Marty, B. (1995) Origin of carbon in fumarolic gas from island arcs. *Chem. Geol.*, 119, 265-274, [https://doi.org/10.1016/0009-2541\(94\)00097-R](https://doi.org/10.1016/0009-2541(94)00097-R).
- Sheppard, S. M. F., Gilg, H. A. (1996). Stable isotope geochemistry of clay minerals: “The story of sloppy, sticky, lumpy and tough” Cairns-Smith (1971). *Clay minerals*, 31(1), 1-24.
- Shinohara, H., Giggenbach, W. F., Kazahaya, K., Hedenquist J. W. (1993) Geochemistry of volcanic gases and hot springs of Satsuma-Iwojima, Japan: Following Matsuo, *Geochem. J.*, 27, 271-285.
- Silver, L. A. and Stolper, E. (1989) Water in albitic glasses. *J. Petrol.*, 30, 667-710.
- Stelling, J., Botcharnikov, R. E., Beermann, O., Nowak, M. (2008) Solubility of H<sub>2</sub>O- and chlorine-bearing fluids in basaltic melt of Mount Etna at T = 1050-1250 °C and P = 200 MPa *Chem. Geol.*, 256, 3-4, 102-110, <https://doi.org/10.1016/j.chemgeo.2008.04.009>.
- 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.
- 田中 明・筒井麻美 (2009) 九州北西部における雪の成分について (I). *Coastal Bioenvironment*, 13, 45-50.

- 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. *Nature Comm.* 12, 1774. <https://doi.org/10.1038/s41467-021-21887-w>.
- Tegner, C., Wilson, J. R., Robins, B. (2005) Crustal assimilation in basalt and jotunite: Constraints from layered intrusions. *Lithos*, 83, 299–316. doi:10.1016/j.lithos.2005.03.007
- Tosaki, Y., Morikawa, N., Kazahaya, K., Tsukamoto, H., Sato, T., Takahashi, H. A., Takahashi, M. and Akihiko Inamura (2023) Deep groundwater flow in the Kamikita Plain, Japan, inferred from geochemical tracers including  $^{36}\text{Cl}$ , *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B*, 535, 205-214.
- Yeh, H.-W. and Epstein, S. (1978) Hydrogen isotope exchange between clay minerals and sea water. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 42, 140-143.





付録：令和4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4年6月27日（月）15：00～17：00

場所：Microsoft Teams によるリモート会議

出席者：

検討委員

小川 康雄 委員（東京工業大学）  
大場 武 委員（東海大学）  
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4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]

・ 高圧実験の酸化還元状態をコントロールするというが、どれくらい（固体バッファか、 $\text{NNO}+1$  など可変なのか）、どの程度の精度で行うのか。

→カプセル構成の工夫で克服する。基本的には  $\text{NNO}$  など固定だと思う。

→先行研究で始良が  $\text{FMQ-NNO}$  程度なので、今回は  $\text{NNO}$  条件のみ。まず  $\text{NNO}$  条件での実験達成を目的とする。精度を評価する方法は検討。

・ 鬼界カルデラの研究で、大規模噴火ごとの推定圧力にバリエーションがみられる。手法は同じか。

→メルトインクルージョンの  $\text{H}_2\text{O}$  と  $\text{CO}_2$  から推定。

・ 結晶化包有物も含めてバリエーションが出ているのか。

→わからない。FT-IR と SIMS を使っているので相対的に結晶化の効果が少ないと思うが、要検討。特に小アビと溶岩流はかなりのメルトインクルージョンが再結晶化している可能性。ラマンでは結晶化有無の判断が可能のため、ラマンで結晶化の補正ができ含水量が求められれば、結晶化の問題も含めて深度評価が可能になる

と考える.

- 小アビは規模の評価に疑義があると認識している. 規模の検討はするか.  
→現地調査も検討しているが, 露出面積も小さく, これまでの成果に比べ劇的にかわるかという点と難しいと考える.

#### [洞爺カルデラの大規模噴火事例の検討]

- 同位体の非平衡について教えてほしい. 分配係数でどちらかに偏り時間とともに変化?  
→通常, 一つの火山では, U か Th に過剰かは共通の性質を持つ. どちらかに偏り, ラインへの接近時間がマグマ組成や活動時期で違うなら解釈しやすい. 洞爺ではそうではない. 解釈を考えている.
- 大規模珪長質カルデラ噴火が世界的にある時代に起きる傾向はあるか.  
→ある. 東北地方ではもう少し古い時期に集中し, 十和田を例外に現在は起こっていない. 南九州は 30-40 万年前に活発. カルデラクラスターのような時期があると考えられている.
- 氷河の発達と関係あるか.  
→あるという話もある. 北半球では, 完新世以降の大規模噴火が頻繁という話も. 今回の場合, より長期間の活動なので氷河期とは違ったことを考える必要.
- 支笏と洞爺は噴火規模は同じか.  
→VEI で同じ. 洞爺が少し大きい, カルデラ形成噴火で約 100km<sup>3</sup>.
- 支笏では結晶リッチマグマが最後に出ているが, それが出きっていないと考えるのがよいのか.  
→支笏はカルデラ噴火の後, 時間をおいてかなりの規模 (10km<sup>3</sup>以上) の噴火が発生. 噴出物がクリスタルリッチ. 支笏ではカルデラ形成噴火の後に, マグマ溜まり外側 (クリスタルリッチ部分) を出したと考えている.

#### [活動的カルデラ火山の地下構造調査]

- 十和田カルデラのターゲットはマグマ溜まりの有無. 地学的な深度・位置の情報は? 固結していれば高比抵抗として表れると思うが, その情報は?  
→5-10km 深に長周期地震が分布し, 弘前大の結果では高比抵抗領域に該当. 気象庁の一元化震源の分布が密集しており, マグマ溜まりに関連していると考えた. 今回の結果では, 高比抵抗と低比抵抗の間にこの震源が分布. Nakatani et al. (2022)では 1-3 万年のカルデラ形成深度は数 km で, その程度の位置と予想.
- このあたりの地震波トモグラフィーなど高精度な震源決定は?

→東北地方を対象にしたトモグラフィーで八甲田下数キロメートルに低速度領域がある。レーザ観測で振幅の異常がある。しかし空間分解能から今回とは比較できない。

・海面下 4-5km 断面図の東側に常にある低比抵抗構造は何か？火山とは関係ないと思うが。

→考えていない。たしかに指摘の構造は存在している。

・十和田湖中央の浅い低比抵抗は粘土鉱物・変質帯の可能性は？地熱活動は？

→ちゃんと調べていないが、十和田湖の西側には鉱山がある。熱水活動はあったはず。しかしそれとアノマリーとの関係は現在不明。

・湖底の観測とはどんなものか？

→基本的に他と同じで、周波数は異なるが MT 装置を湖底に沈めて埋めて測る。予算規模が大きくなるため実現可能かは不明。

#### [活動的カルデラ火山の地球化学的調査]

・既存研究で十和田カルデラ周辺の河川水への湖水リークの指摘はあるか。

→十和田湖からは奥入瀬川のみ流出。湖底からの水との報告はない。しかし、カルデラ湖からの流出は摩周湖などでもある。Br-Cl 比が低いマグマ起源物質があるかもしれない調査を検討。

・6 番群の水の特徴とマグマとの関連は？

→阿蘇カルデラの中では 3 か所でみられた。基盤岩との接触でできた水の組成を示す。本研究のメインターゲットではないのでそれ以上は見えていないが、広域図ではカルデラ外で見られ、おそらく花崗岩が関与した岩体にみられると考える。

・マグマそのものに関係していない水ということか？

→阿蘇では関係していない。始良は時代がもっと古いのでおそらく何かの関与があると考えている。

・マグマ同位体比は阿蘇と始良はだいぶ異なる。Sr 同位体比は阿蘇が低く始良は高い。Sr 同位体が出るのは興味深い。

#### 【第 2 回検討委員会】

日時：令和 5 年 1 月 11 日（水）13：30～16：00

場所：Microsoft Teams によるリモート会議

出席者：

検討委員

小川 康雄 委員（東京工業大学）

大場 武 委員（東海大学）

前野 深 委員（東京大学地震研究所）

## 説明者

山元 孝広 (産業技術総合研究所)

下司 信夫 (産業技術総合研究所)

中川 光弘 (北海道大学)

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4年度研究の成果について

委員コメントへの回答：

[巨大噴火の噴火準備・進展過程に関する調査・研究]

[岩石学的手法によるマグマプロセスに関する調査・研究]

- ・拡散速度が元素によって違うのは、温度以外のプロセスがあるのか。  
→一つ目は元素ごとの拡散係数が決まっていないため誤差が発生した。二つ目は、濃度勾配が拡散だけではなく結晶成長との両方の影響があり、元素ごとに違いがある。課題としては拡散係数の実験的決定が重要。
- ・経験上、輝石中のアルミはセクターゾーニングの影響が大きい。カインेटイクス影響があり、拡散速度を求めるのはチャレンジングだと思う。  
→指摘の通り。セクターゾーニング等の問題があり難しい。ゾーニングのプロセスを検討する必要がある。成長や結晶方位による濃度の違いがある。成長速度の違いによりゾーニング境界の評価が難しくなっている。確かにチャレンジングなので個人的にはやらない方がいいと思うくらいだが、使えるかを含め検討必要。アルミ、チタン、Opx中のCaに同様の問題がある。
- ・FTIRで水の評価をしないのは分析の負担が減るから？  
→ラマンのメリットは空間分解能。ラマンは数ミクロン領域でピークが取れ、FTIRより一桁以上体積で小さい領域で包有物を測れる。
- ・ラマン分析のガラス組成について、SiO<sub>2</sub>以外の元素の影響は？  
→阿蘇では、アルカリが入るとスペクトルが違ってくる。アルカリ岩・非アルカリ岩でも検量線を作り分ける必要。
- ・スタンダードを作るのが大変な作業になる？  
→そうだ。どこまで許容できるかは分析誤差とのトレードオフ。実用化にあたりどれぐらいまで耐えられるか検証する。
- ・アカホヤ噴火のCpxについて、温度依存性は？  
→あると思うので、その見積もりが必要。見積もりの曖昧さが時間の誤差になっているので、実効的な温度を見積もる必要がある。
- ・時間スケールで10万年だと噴火サイクルより長い。噴火ごとのマグマ溜まり条件

の違いが影響する時間スケールなので、気にした次第。

→10万年は考えにくく、拡散プロファイルでないものを拡散として計算するためと考える。それをどう排除するか等、方法について検討する必要がある。

#### [洞爺カルデラの大規模噴火事例の検討]

・洞爺湖 Unit5 は巨大噴火とみてよいか。3ヶ月前マフィックマグマが貫入したとあるが、この段階で地震活動などが期待されるか？

→十分に期待される。それ以前のマグマ混合についてはマグマ溜まり内での動きなので難しいかもしれないが、マフィックマグマ貫入は地震活動で捉えられると期待する。

・MELTS で CP マグマの結晶モード 58%では合わないのに、マッシュのメルトが出たと考える、というのはどういう意味か？

→ライオライトは斑晶量 5%でほぼ無斑晶なのに、計算では平衡共存する結晶量が 50%を超える。これが可能なのは、マッシュから分離したメルトと、メルトを分離したマッシュが温度・組成ともに平衡状態だったためではと考えられる。

・全岩の計算だとすると矛盾する気がする。MELTS の結果は全岩が平衡状態に置かれた場合 58%のモードをもつということ。マッシュ関係なくそうなっているはずで、なっていないなら、温度や水の問題では？

→その可能性はある。MELTS を計算すると斑晶量と合わないことがよくあるので苦労している。結晶量 58%が正しいかは別に、計算に用いた無斑晶質メルトと平衡共存する結晶の量が 58%という結果。

・58%だとメルト組成自体が相当分化しているのでは？

→それとは違う。そのメルトと共存する結晶の量ということになる。

・レイヤードマグマチャンバを考えている？

→違う。シンプルなマッシュのマグマ溜まりを想定。噴出したマグマのほとんどの部分がメルトリッチな CP で、その周辺に結晶の多いマッシュがあり、深さや温度により Cum や Hb を含むなど多様になっていると考えている。

・密度の見積もりによってその安定性を評価できないか？

→CPは無斑晶なので軽く上方にあるのはいいが、それ以外は斑晶量が 20-50%、斜長石・石英が多くそれほど重さが変わらないと考えている。

・CP に対し CP マッシュは相当なボリュームが必要。CP マッシュそのものは最後の段階では噴出していないということか。

→そう断定はできない。CRには普遍的に CP の鉱物が入っているので混合とみなさざるを得ない。

・つまり CR とは CP のマッシュ中にポケットがあり、それをつかまえているというイメージ？

→はい。ただ温度・圧力は違うので CP のマッシュとは違うところがないと困る。  
Stage2 のクライマックスには全噴出物が出るので、そこで取り込まれていると考える。

#### [活動的カルデラ火山の地下構造調査]

・浅部の十和田湖南の低比抵抗は深度 1 km? その下に地震がある? 活火山にあるク  
レイキャップで流体が止まるというものだと思ってよい?

→はい。粘土化した層が数百 m~1km 下に分布しキャップロックとなり熱水がたま  
った領域があるのではないか。

・深部マグマ溜まりがあるかを見つけるのが当初の問題。地震が深部で起きていて、  
高温の物は想定しにくいと思うが、地震震源はどれくらい正しいのか? 気象庁カタロ  
グは深すぎないか? 地震の人が臨時観測したデータもあるはずで、比較が気になる。  
マグマ溜まりがあっても低比抵抗層が見えないこともあると思うが、これくらいあれ  
ば出るなど、マグマ溜まりの大きさや存在しそうな深度・大きさに見当がつけばやる  
価値があるのでは。

→そのとおり。震源分布については、弘前大学の観測データは気象庁より精度高く、  
5-10km に分布している。低周波地震も分布し、阿蘇に比べるとかなり浅い。Chen  
らのレシーバ観測のデータはこれよりも下になる。MT では強烈な低比抵抗が上に  
あるのでその下は見えないと思うが、どの程度見えないかは検討したい。

・大規模なマグマがあった場合、この断面図で色は黄色くらいになるのか?

→難しい質問。マグマ溜まりがどのくらいの比抵抗かは、1~10 オームの想定が一  
般的。赤~黄色くらい。

・現在はなさそう?

→はい。

#### [活動的カルデラ火山の地球化学的調査]

・固化に伴う脱ガスとは具体的にどんなプロセス?

→マグマが固まる時 C や Cl, H<sub>2</sub>O は流体に移動する。脱ガスというより放出さ  
れた流体という意味。

・残っているメルトにいったん分配して、それが外に出てくるというイメージ?

→そうだ。

・希土類パターンで A6 と A8 を重視しているのは Eu 負異常がマグマ由来の水と解  
釈されるから?

→マグマ由来かは不明だが珪長質な物質関与は確か。Eu 負異常だけでなく傾きも重  
要と考える。

・なぜ珪長質と判断できる?

→岩石の希土類パターンを見ると、Eu 負異常が顕著なのは花崗岩なので、珪長質とまとめて書いている。

・花崗岩内部をパーコレーションしてもこのパターンなるのか？正異常になるのでは？

→そこはこれから。現在は珪長質物質が関与としかいえない。

・海水の希土類パターンでひとつ濃度が低い物があるが。

→よく測定できていないため。検出限界に近く、定量的ではないが、分析 A9 に相当するので載せた。

・変質しているということ？

→検出できるレベルだが、安定して測定できていないのは、おっしゃるとおりの理由があるかも。

