
原 著

霧島火山硫黄谷・林田周辺地区熱水系の形成機構の 地球化学的研究

鹿児島大学大学院理工学研究科

藤田俊一・坂元隼雄

(平成13年3月21日受付, 平成14年5月13日受理)

Geochemical Interpretation on Hydrothermal Formation Mechanism of the Thermal Water in the Iwodani Region and the Vicinity of the Hayashida Region of the Kirishima Volcanic Area

Shun-ichi FUJITA and Hayao SAKAMOTO

Graduate School of Science and Engineering, Kagoshima University

Abstract

The Kirishima volcanic region, lying on the northern extension of the Ryukyu arc, is located in Kagoshima Prefecture, south Kyushu, Japan. There are many thermal manifestations related to volcanic activity in this area. We define chemical features of hydrothermal system of the Iwodani region and the vicinity of the Hayashida region in the Kirishima volcanic area on the basis of Giggenbach's chemical geothermometry, mineral equilibrium calculation, etc. The water samples for chemical analysis were collected from some hot spring in the vicinity of the Hayashida region and mud pool in the Iwodani fumarolic area. Almost all the collected water samples were acid-SO₄ type water, generated by steam heating, and the Giggenbach's Na-K-Mg and K/Mg-K/Ca diagram indicated immaturity of the water. It was considered that water samples were secondary thermal water formed by mixture of shallow groundwater and the steam, which separated from two-phase geothermal fluid formed underground. Therefore it is believed that there is hardly any mixture of the thermal water in the Iwodani region that derives from deep underground, but it is believed that there is a little mixture of the thermal water in the vicinity of the Hayashida region that derives from deep underground. The reservoir temperature of the fluid was roughly estimated to be about 53–77°C (the Iwodani region), 83–97°C (the vicinity of the Hayashida region) by K/Mg geothermometry. These acid-SO₄ type waters lie on the Giggenbach's rock-dissolution line. The result showed that thermal water has been formed by water-rock interaction.

Key words : Kirishima volcano, Hydrothermal system, Chemical geothermometry,

Water-Rock interaction

キーワード: 霧島火山, 熱水系, 地化学温度計, 岩石-水相互作用

1. 緒 言

霧島火山地域は、加久藤カルデラ (有田, 1957) を含む鹿児島地溝 (露木, 1969) 内に位置する。霧島火山地域の地質については沢村・松井 (1957), 井村 (1994) などの報告がある。霧島火山の活動は、加久藤火砕流の噴出 (約 30 万年前) に引き続いて起こったと考えられており、休止期をはさんで古期と新期に区別されている (井村, 1994)。また、新期の火山活動は、古期の活動後数万年の休止期をはさんで、約 10 万年前に始まり、現在に至っていると考えられている。したがって、現在見られる霧島火山の土台は、古期の活動の基盤上に多くの火山が形成され完成したものである。また、鍵山ら (1996) の比抵抗構造の研究によると、霧島火山体の地下 10 km 付近にマグマ溜りが存在すると推定されている。

霧島火山丸尾地区には、深部熱水の特徴を持った熱水が分布する (Ohba et al. 1997; 藤田・坂元, 2001)。また、その上部・北東部に位置する硫黄谷地区 (硫黄谷噴気災害対策事業が施されている所)、さらに上部・北東部に位置する林田・明礬・栄之尾地区 (以下、林田周辺地区とする) には酸性熱水が広く分布する (露木ら, 1990; Ohba et al. 1997; 藤田ら, 2000)。硫黄谷地区の熱水の湧出口付近においては岩石や土壌が酸性熱水や噴気ガスによって著しく変質を受けており、黒色の熱水変質鉱物を伴った泥湯 (Mud Pool) が存在する。一方、林田周辺地区では岩石や土壌が酸性熱水や噴気ガスによって著しい変質を受けていないので、硫黄谷地区のような泥湯から得られる熱水はない。

本研究では、硫黄谷・林田周辺地区から得られる熱水の化学組成に基づいた化学平衡計算 (Giggenbach, 1988) を行い、その結果から両熱水の形成機構について考察した。

2. 試料採取と分析法

硫黄谷・林田周辺地区から得られる熱水の採取地点及び採取方法は既報 (藤田ら, 2000) に示したので省略する。硫黄谷地区から採取した噴気ガス凝縮水は、二口シリンジを用いて吸引した噴気ガスを氷水で冷却したコンデンサーで凝縮させた。

分析方法は、 Na^+ , K^+ は炎光光度法、 Ca^{2+} , Mg^{2+} は原子吸光分光分析法、 SiO_2 はモリブデン黄法、 Cl^- はイオンクロマトグラフ (IC) 法またはチオシアン酸水銀 (II) 法による吸光光度法、 SO_4^{2-} はイオンクロマトグラフ (IC) 法または比濁法を用いた。

3. 結果と考察

3.1 塩化物イオンと硫酸イオン

硫黄谷・林田周辺地区から得られる熱水と硫黄谷地区から得られる噴気ガス凝縮水の分析結果を Table 1 に示す。また、塩化物イオンと硫酸イオンの関係を Fig. 1 に示す。硫黄谷地区から得られる熱水の塩化物イオン濃度は深部熱水の特徴を持った丸尾地区から得られる熱水よりもはるかに低い。したがって、これらの熱水には、塩化物イオン濃度の極めて高い深部熱水の直接的な混入はない。Ingebritsen and Sorey (1988), Yano and Ishido (1995) は、深部熱水の上部に形成される塩化物イオン濃度の低い熱水の生成について、不透水層 (Cap rock) の発達が生じた深部熱水の直接的な混

Table 1 Chemical data of thermal waters collected from the Iwodani area and around the Hayashida area, and of condensate collected from the Iwodani area of the Kirishima volcanic region. The data of thermal water were cited from Fujita et al. (2000).

Location	Date	pH	Temp. °C	Na ⁺ mg l ⁻¹	K ⁺ mg l ⁻¹	Ca ²⁺ mg l ⁻¹	Mg ²⁺ mg l ⁻¹	Cl ⁻ mg l ⁻¹	SO ₄ ²⁻ mg l ⁻¹	SiO ₂ mg l ⁻¹	K-Mg** °C	
Iwodani	1	98/10/25	2.9	46.2	8.75	5.47	6.19	3.79	4.06	241	144	63.6
	2	98/10/25	3.0	58.2	8.17	5.09	7.11	3.67	3.83	229	168	62.3
	3	98/10/25	3.1	78.2	14.0	11.0	8.00	4.56	2.62	346	236	77.7
	4	98/10/25	3.2	56.1	14.9	11.7	10.1	5.93	2.43	325	222	76.0
	5	98/10/25	3.0	61.2	12.6	7.17	15.8	11.5	3.75	414	224	57.3
	6	98/10/25	2.8	85.3	9.01	3.92	2.92	5.02	2.11	661	250	53.3
	7	98/10/25	2.7	66.1	12.8	10.2	6.26	7.90	2.12	561	259	69.4
	8*	98/12/10	—	98.6	0.26	0.01	—	—	0.51	60.2	—	—
Hayashida	1	98/10/25	3.2	60.9	31.2	21.8	12.8	6.91	15.8	216	136	89.6
	2	98/10/25	3.2	57.5	30.2	20.6	13.0	6.71	15.2	211	133	88.5
	3	98/10/25	3.1	57.6	30.8	22.0	12.1	6.99	20.9	248	140	89.7
	4	98/10/25	3.2	65.8	35.1	17.4	13.2	7.53	15.9	253	146	82.8
	5	98/10/25	3.2	58.8	40.7	20.6	16.0	8.28	23.6	291	173	85.8
	6	98/10/25	3.2	48.8	22.7	17.7	9.64	4.85	11.0	175	109	88.8
	7	98/10/25	3.2	48.2	23.8	16.9	10.2	5.04	11.0	164	110	87.1
	8	98/10/25	3.3	61.8	39.7	21.1	13.8	7.27	20.6	234	191	88.1
	9	98/10/25	3.4	58.8	37.4	20.3	12.3	6.51	18.2	209	174	88.5
	10	98/10/25	3.0	53.7	27.6	18.3	10.8	5.94	12.6	237	128	87.0
	11	98/10/25	3.1	51.1	25.4	18.1	10.0	5.42	13.8	220	133	87.9
Myoban	1	98/10/25	3.2	67.1	35.1	22.2	10.2	7.23	23.6	217	167	89.5
	2	98/10/25	3.2	63.0	29.8	25.1	9.58	6.72	25.6	208	150	93.6
	3	98/10/25	3.1	57.2	30.2	30.1	12.1	7.77	18.5	239	167	96.6
	4	98/10/25	3.2	68.7	32.1	27.0	10.0	6.94	19.9	232	167	95.2
	5	98/10/25	3.4	35.5	19.8	14.0	11.8	4.54	11.4	152	120	83.7
Enoo	1	98/10/25	3.3	53.2	25.3	17.1	10.5	5.40	17.1	180	117	86.5
	2	98/10/25	3.2	50.8	24.4	22.2	9.84	5.04	16.6	170	115	94.2
	3	98/10/25	3.3	47.8	26.1	20.7	10.8	5.65	17.7	194	119	90.9

Note : *condensate of fumarolic gas, **geothermometric temperature

入を妨げていると指摘している。硫黄谷地区でも熱水変質鉱物の生成により発達した不透水層によって深部熱水の混入が妨げられているものと考えられる。さらに、硫黄谷地区から得られる熱水の硫酸イオン濃度は229~661 mg l⁻¹と、丸尾地区から得られる深部熱水の硫酸イオン濃度より高い。硫黄谷地区から得られる熱水の湧出量は非常に少なく、周辺河川水・浅層地下水などの影響は少ないものと考えられる。また、不透水層の発達により、熱水の流動性は低く地表面付近での滞在時間が比較的長いと考えられる。さらに、硫黄谷地区から得られる噴気ガス凝縮水の塩化物イオン濃度は0.51 mg l⁻¹と非常に低い。これは高温貯留層内の深部熱水から分離した蒸気であると考えられる。このように、熱水から分離した蒸気中の成分は硫化水素がほとんどで硫酸イオンはもたらされないが、硫化水素は地表面あるいは地表面付近で酸化されると次第に硫酸イオンに変化すると考えられる。硫黄谷地区から得られる噴気ガス凝縮水の硫酸イオン濃度は60.2 mg l⁻¹と塩化物イオン濃度よりも圧倒的に大きくなっており、硫黄谷地区から得られる熱水でも同様の傾向にある。した

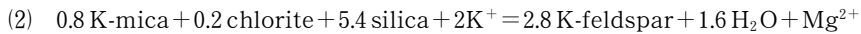
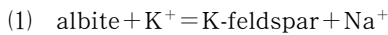
がって、硫黄谷地区から得られる熱水で硫酸イオン濃度が高く、また幅が見られるのは、熱水の流動性が低く地表面付近での滞留時間が長いことなどから、硫化水素の空気酸化が十分に行えることや、また水分蒸発による硫酸イオンの濃縮が起こったことが原因と考えられる。

一方、林田周辺地区から得られる熱水は硫黄谷地区から得られる熱水よりも湧出量が極めて多いので、周辺河川水・浅層地下水の影響が大きいと考えられる。したがって、周辺河川水・浅層地下水による希釈により、塩化物イオン濃度は硫黄谷地区から得られる熱水に比べて低濃度となる。しかし、林田周辺地区から得られる熱水の塩化物イオン濃度は $11.0 \sim 26.5 \text{ mg l}^{-1}$ であり、硫黄谷地区の熱水に比べて高い。これは、不透水層の有無に起因し、林田周辺地区では深部熱水の直接混入の影響が考えられる。

3.2 Na-K-Mg 組成

Giggenbach (1988) は、熱水中の Na^+ , K^+ , Mg^{2+} の 3 成分から、岩石-水相互作用を仮定した化学平衡により、地下に潜在する熱水系の貯留状態及び貯留層温度を推定する方法として、Na/K 地化学温度計と K/Mg 地化学温度計を組み合わせた Na-K-Mg 組成図を提案している。この相互作用に関与する鉱物には、地熱系に普遍的に存在する曹長石、カリ長石、緑泥石、カリ雲母、シリカである。

これらは、次の反応の平衡関係に基づく。



想定される鉱物と熱水の間で (1), (2) 式の平衡関係が成り立てば完全平衡 (Full equilibrium) を示す線上にプロットされる。しかし、蒸気加熱型の酸性熱水のように、岩石から熱水への一方的な溶解を示すものについては未熟成水 (Immature water) の領域にプロットされる (Giggenbach, 1988)。硫黄谷・林田周辺地区及び丸尾地区から得られる熱水の組成を Na-K-Mg 組成図にプロットした (Fig. 2)。硫黄谷・林田周辺地区から得られる熱水は蒸気加熱型の酸性熱水がプロットされる

ことの多い未熟成水領域にプロットされる。一方、丸尾地区から得られる熱水のほとんどは完全平衡を示す線上にプロットされ、Na/K 地化学温度計、K/Mg 地化学温度計からは、高貯留層温度が示される。このような高温貯留層の熱水は地中を上昇し減圧すると液相と気相の両方が混在する気液二相状態となる。したがって、Fig. 1 で示した噴気ガス凝縮水の塩化物イオン、硫酸イオン濃度からも明らかなように、硫黄谷・林田周辺地区から得られる熱水は、気液二相状態から分離した蒸気が浅層地下水・地表水に吹き込まれ生成した二次的な熱水であると考えられる。よって、このような浅部で形成される蒸気加熱型の酸性熱水は高い貯留層温度を示さないと考えられる。Na/K 地化学温度計からは、丸尾

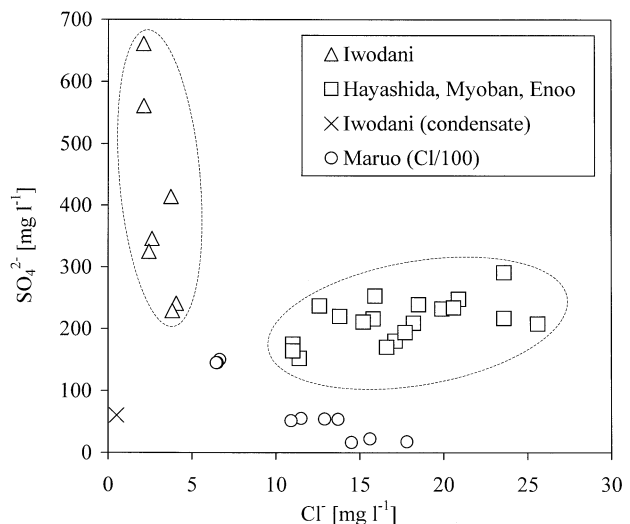


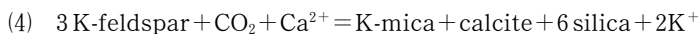
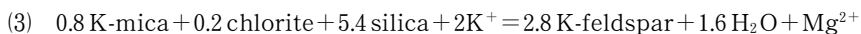
Fig. 1 Relationships between Cl^- and SO_4^{2-} concentrations of thermal waters and condensate collected from the Iwodani region and the vicinity of the Hayashida region of the Kirishima volcanic area. Maruo data were cited from Fujita and Sakamoto (2001).

地区の高貯留層温度 (Na/K 地化学温度から 270~300°C) を示す熱水よりも高い温度を示している。したがって, Giggenbach (1988) が指摘しているように, 蒸気加熱型の酸性熱水には Na/K 地化学温度計は適用できない。一方, 化学平衡式 (2) は (1) よりも早く再平衡に達するので, K/Mg 地化学温度計は低温の熱水にも適用可能である (Giggenbach, 1988)。この K/Mg 地化学温度計を両熱水に適用したところ, 硫黄谷地区から得られる熱水の貯留層温度は 53~77°C, 林田周辺地区から得られる熱水の貯留層温度は 83~97°C と推定される。林田周辺地区から得られる熱水が硫黄谷地区から得られる熱水に比べて高い貯留層温度を示すのは深部熱水の影響があるためと考えられる。

3.3 K/Mg-K/Ca 組成

Giggenbach (1988) は, 岩石-水相互作用を仮定した化学平衡により, K^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} の 3 成分から地下に潜在する熱水系の物理, 化学的な状態を推測する方法として, K/Mg-K/Ca 組成図を提案した。この相互作用に関与する鉱物には, 地熱系に普遍的に存在する, カリ雲母, 緑泥石, カリ長石, 方解石, シリカである。

Giggenbach (1988) は次式を用い, 鉱物と熱水との間の平衡関係を導いた。



これらの鉱物と熱水の間で (3), (4) 式の平衡関係が成り立っていれば, K/Mg-K/Ca 組成図とで完全平衡 (Full equilibrium) を示す線の上にプロットされる。また, 熱水の K/Ca 組成比から地下に存在する流体の CO_2 分圧, K/Mg 組成比から貯留層温度をそれぞれ知ることができる。

硫黄谷・林田周辺地区及び丸尾地区から得られる熱水の K-Ca-Mg 組成の関係を Fig. 3 に示す。Giggenbach (1988) は, 酸性熱水は完全平衡の CO_2 分圧よりも高いところ (つまり, 完全平衡線よ

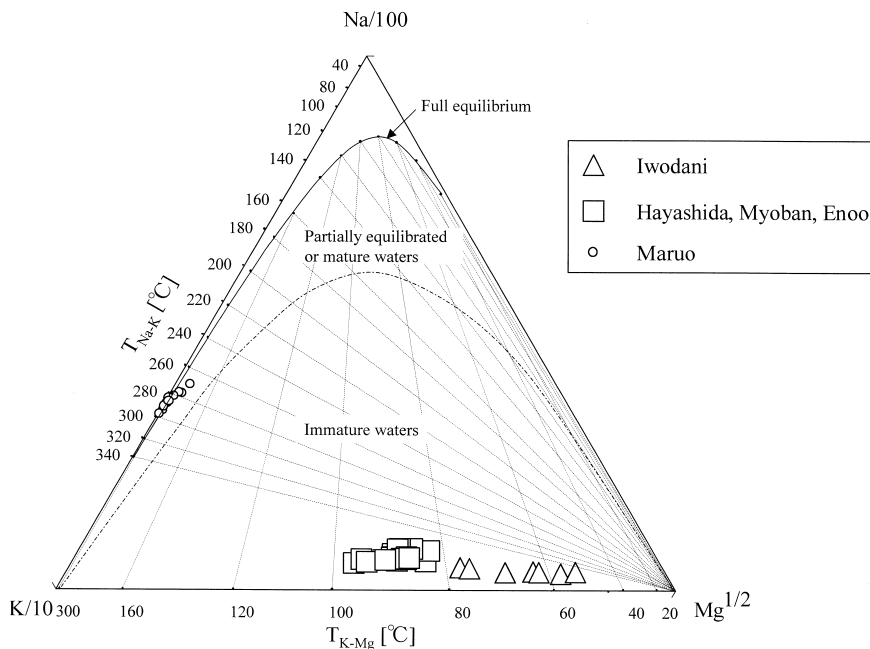


Fig. 2 Na-K-Mg diagram (after Giggenbach, 1988) of thermal waters from the Iwodani region and the vicinity of the Hayashida region. Full equilibrium line is derived from chemical equilibria between thermal water and the assemblage of minerals; albite, K-feldspar, K-mica, chlorite, silica. Maruo data were cited from Fujita and Sakamoto (2001).

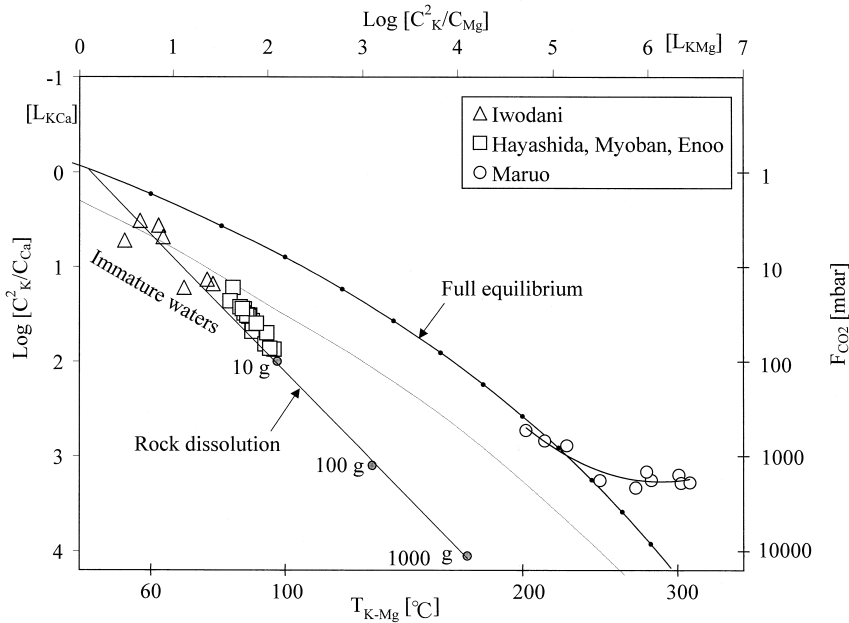


Fig. 3 K/Mg-K/Ca diagram (after Giggenbach, 1988) of thermal waters from Iwodani region and the vicinity of the Hayashida region. Full equilibrium line is derived from chemical equilibria between thermal water and the assemblages of minerals ; K-feldspar, chlorite, K-mica, calcite, silica. The rock dissolution line refers to solutions of 10, 100, 1,000 g of an average crustal rock in 1 kg of water (after Giggenbach, 1988). Maruo data were cited from Fujita and Sakamoto (2001).

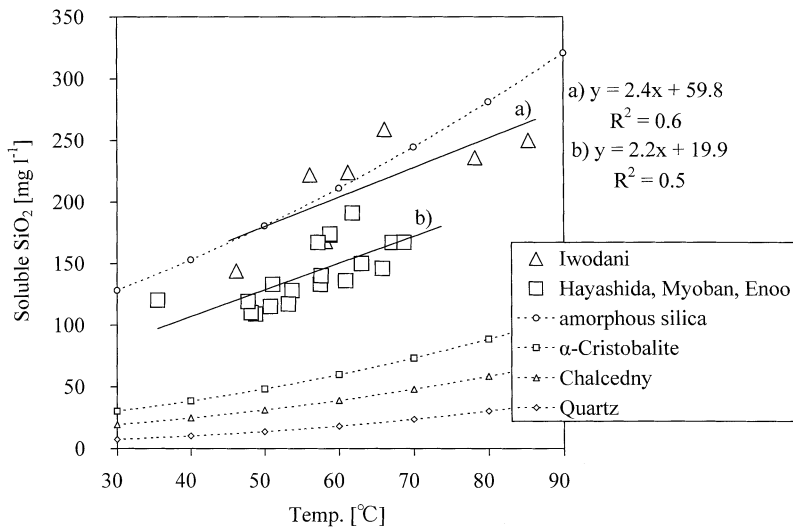


Fig. 4 Relationships between temperatures and SiO₂ concentrations of thermal waters and condensate water collected from the Iwodani region and the vicinity of the Hayashida region.

りも低いところ)に位置するが、これは鉱物の交代作用によるものと説明している。硫黄谷・林田周辺地区から得られる熱水も完全平衡のCO₂分圧よりも高いところの未熟成水 (Immature water) 領域にプロットされる。また、林田周辺地区から得られる熱水は硫黄谷地区から得られる熱

水よりも高い CO_2 分圧を示している。これは、3.1, 3.2 で示したように、深部熱水の影響もしくは深部から放出される気体 CO_2 の影響によると推定される。また、両熱水は単なる岩石（平均火成岩）の溶解による組成比を結んだ直線上付近にプロットされている。よって、両熱水の K/Mg-K/Ca 組成は深部熱水の影響ではない可能性もあり、単なる岩石の溶解によって形成された熱水であるとも考えられる。また、硫酸酸性の熱水では化学平衡式 (3), (4) に示された鉱物以外の二次鉱物や粘土鉱物の生成が考えられるため、これらの点については、今後さらに詳しく調べる必要がある。

3.4 ケイ酸

ケイ酸の溶解度は、岩石中のケイ酸塩が非晶質シリカ、 α -クリストバライト、カルセドニー、石英のいずれかによって異なるが、ケイ酸濃度と温度には正の相関関係が認められ、 SiO_2 濃度は地化学温度計として用いられている。このような、各ケイ酸化学種の SiO_2 地化学温度計については Nicholson (1993) によりまとめられている。したがって、各温度における熱水中のケイ酸平衡濃度を SiO_2 地化学温度計によって推定することができる。

硫黄谷・林田周辺地区の熱水の実測温度と溶解性ケイ酸濃度の関係を Fig. 4 に示す。硫黄谷・林田周辺地区から得られる熱水の溶解性ケイ酸濃度は相関係数 (R^2) が 0.5~0.6 とそれほど高くないが、温度に対しては +2.2~2.4 の正の傾きが得られ、両熱水の溶解性ケイ酸濃度も温度が高くなるほど増加する傾向にある。また、林田周辺地区の熱水には深部熱水（一般的にケイ酸濃度が高い）の影響が考えられたが、硫黄谷地区から得られる熱水の溶解性ケイ酸濃度が高い。岩石及び土壌の酸性変質の過程ではケイ酸塩構造が破壊されるが、変質が激しい場合には非晶質シリカや非晶質粘土の生成が考えられる。硫黄谷地区では林田周辺地区に比べて岩石・土壌の変質が激しいので非晶質シリカの影響を受けて溶解性ケイ酸の濃度が高く、また溶解平衡に達しているものもあると考え

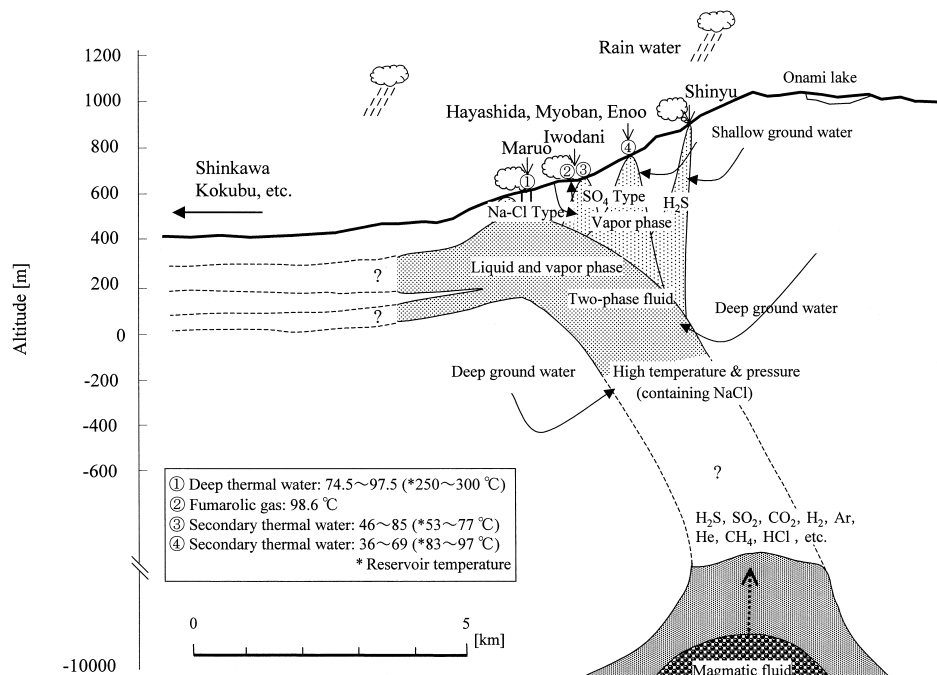


Fig. 5 A schematic presentation of a genetic model of thermal water in the Iwodani region and the vicinity of the Hayashida region of the Kirishima volcanic area (modified from Fujita et al., 2000).

られる。

4. 硫黄谷・林田周辺地区熱水系の形成機構

今回得られた知見を総括すると、岩石-熱水相互作用に基づいた考察により Fig. 5 に示す熱水系の形成機構モデルが想定された。また、得られた分析データの地球化学的解析から、以下の事が示唆された。

(1) Na-K-Mg 組成の解析から、硫黄谷・林田周辺地区から得られる熱水は、蒸気加熱型の酸性熱水がプロットされる未熟成水の領域にプロットされた。また、K/Mg 地化学温度計から、硫黄谷地区から得られる熱水の貯留層温度は 53~77°C、林田周辺地区から得られる熱水の貯留層温度は 83~97°C と推定された。

(2) 硫黄谷地区から得られる熱水は高温貯留層の気液二相状態から分離した気相に由来する蒸気が地表面で雨水などの地表水に吹き込まれ生成した二次的な熱水であると推定された。林田周辺地区から得られる熱水は高温貯留層の気液二相状態から分離した気相に由来する蒸気が周辺河川水・浅層地下水に吹き込まれ生成した二次的な熱水であると推定された。また深部熱水の影響が示唆された。

(3) K/Mg-K/Ca 組成の解析から、硫黄谷・林田周辺地区の熱水は、単なる岩石の溶解により形成された熱水である可能性が推定された。

(4) 硫黄谷・林田周辺地区から得られる熱水の溶解性ケイ酸濃度は、非晶質シリカの影響が考えられた。

謝 辞

本研究を行うにあたり、鹿児島大学理学部の富田克利教授、富安卓滋助教授、穴澤活郎博士には有益な助言をいただいた。また、査読者の方には適切な助言をいただいた。以上の方々に深く感謝申し上げます。

(日本温泉科学会第 54 回大会で発表、平成 13 年 8 月 23 日)

文 献

- 有田忠雄 (1957) : 加久藤カルデラの提唱 (演旨). 地質学雑誌, **63**, 433-444.
- 藤田俊一・坂元隼雄・桐山哲也 (2000) : 霧島火山地域及びその南西部地域の温泉の生成機構. 温泉科学, **50**, 1-11.
- 藤田俊一・坂元隼雄 (2001) : 霧島火山丸尾地区の熱水系形成機構の地球化学的解釈, 温泉科学, **50**, 221-229.
- Giggenbach, W. F. (1988) : Geothermal solute equilibria. Derivation of Na-K-Mg-Ca geothermometers. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **52**, 2749-2765.
- 井村隆介 (1994) : 霧島火山の地質. 地震研究所彙報, **69**, 189-209.
- Ingebritsen, S.E. and Sorey, M.L. (1988) : Vapor-dominated zones within hydrothermal systems: evolution and natural state. *J. Geophys. Res.*, **93**, 13635-13655.
- 鍵山恒臣・歌田久司・上嶋 誠・増谷文雄・神田 径・田中良和・増田秀晴・村上英記・塩崎一郎・市来雅啓・行武 毅・茂木 透・網田和宏・大志万直人・三品正明 (1996) : 霧島火山群中南東部の比抵抗構造. 火山, **41**, 215-225.
- Nicholson, K (1993) : *Geothermal Fluids*. Springer Verlag Berlin Heidelberg, 69-71.
- Ohba, T., Nogami, K. and Hirabayashi, J. (1997) : Hydrothermal System of the Kirishima

Volcanic Area Inferred from the Chemical and Isotopic Composition of Spring Waters and Fumarolic Gases. *Bull. Volcanol. Soc. Japan*, **42**, 1-15.

沢村孝之助・松井和典（1975）：5万分の1地質図幅「霧島山」。地質調査所。

露木貞利（1969）：九州地方における温泉の地質学的研究（第5報），特に温泉貯留体について。鹿児島大学理学部紀要（地学・生物学），**2**，85-101.

露木利貞・黒川達爾雄・坂元隼雄（1990）：鹿児島県の温泉，霧島火山地域の温泉（その1）。鹿児島県，1-89.

Yano, Y. and Ishido, T. (1995) : Numerical Modeling of the Evolution of Two-phase Zone under a Fractured Caprock. *Geothermics*, **24**, 507-521.