繰り返し採水試料のCFCs（クロロフルオロカーボン類）による霧島火山群湧水の滞留時間推定 —Lumped parameter modelによる年代解析—

井手 淨^{1*}・利部 慎²・細野 高啓³・嶋田 純⁴

Estimation of spring water residence time based on CFCs measurement of repeated sampling in the volcanoes of Kirishima —Age dating with lumped parameter model—

Kiyoshi IDE^{1*}, Makoto KAGABU², Takahiro HOSONO³ and Jun SHIMADA⁴

Abstract

To determine the mean residence time of spring water in the Kirishima volcanic area, repeated samplings and measurements of CFCs were conducted during the years 2007 to 2013. The observed relationship between CFC-11 and CFC-12 concentrations (tracer plot) and the time series data of the CFC-12 concentration results suggest that most of the springs were recharged through the mixing of groundwater of various ages. Groundwater flow model, which is an essential to estimate the mean residence time, was assumed based on CFCs results and the geological setting of the study site. Through these assumptions, it was determined that the most suitable groundwater flow model to apply in the study area was a combination of exponential mixing flow and piston flow (EMM+PFM). The mean residence time was estimated using a lumped parameter model, taking the above flow model (EMM+PFM) into account. Consequently, the mean residence time was estimated to range from 1 to 58 years. In the areas around the tops of the mountains, most of the springs showed a relatively shorter residence time of less than 10 years. In contrast, relatively longer residence times of 10 to 40 years were distributed around the foot areas of the mountains. Springs located at the foot of the southern mountain of the Kirishima volcanic area showed the longest residence time (50 to 60 years) among all springs studied in the area, and for those with the longest residence time, their dominant groundwater flux type was piston flow. These springs are distributed at the end of the Takachihonome lava, which is the youngest volcano in the Kirishima area. The longest residence time may have occurred due to a preferential groundwater flow system, which developed from piston flow in the bottom of the youngest volcanic lava.

Key words: Mean residence time, CFCs, Kirishima volcanic area, Repeated sampling, Lumped parameter model

1 熊本大学大学院 自然科学研究科 Graduate School of Science and Technology, Kumamoto University

2 長崎大学 環境科学部 Faculty of Environmental Science, Nagasaki University

3 熊本大学 大学院先進機構 Priority Organization for Innovation and Excellence, Kumamoto University

4 熊本大学 名誉教授 Emeritus Professor of Kumamoto University

* 責任著者

I. はじめに

一般に第四紀火山体は、巨大な地下水貯留体を形成し、水利用の面で優れている（萩原ほか，2002）。これは第四紀の火山噴出物が、亀裂や空隙に富むためであるが、一方で、地下水の保水力（地下水貯留能力）が火山によって異なることが渇水期の河川比流量の差異より判明している（虫明ほか，1981）。例えば、富士山麓の溶岩流末端部を通過し流出する地下水と、ハヶ岳山麓の扇状地堆積物から流出する地下水とでは流出量が異なる（安形，2000）。これは、地下水の保水力の違いとして、火山体の規模や構造、火山噴出物の水理地質特性が関与していることを示唆している。

そのため、火山地域で水資源を持続的かつ有効に利用するには、火山体毎や斜面毎の地下水資源量を明らかにし、その分布状況を把握する必要がある。山体内の地下水資源量を評価する上で、滞留時間の情報は非常に重要である。

滞留時間の推定には、水理学的手法と化学的手法の2つが良く利用される。前者は帯水層の体積量・透水係数・動水勾配・間隙率といった水理データが必要となるが、火山体は内部構造が不均一であり、地下水深度が深いため、これらを詳細に得ることが難しい場合が多い。一方、地球化学的手法は、地下水中に含まれている時間情報を有する化学物質（CFCs, SF₆, ⁸⁵Kr, ³⁶Cl, ³H, ³Heなど）を年代トレーサーに用いて滞留時間を推定するものである。この手法は水を採取できれば適用が可能であるので、地下水流動系の出口が湧水となっている火山地域では非常に利用しやすい。年代トレーサーの中でも、CFCs（クロロフルオロカーボン類）は、1990年代以降、欧米を中心に適用例が多い（Busenberg and Plummer, 1992; Plummer et al., 1998, 2000）。CFCs年代測定法は、1950年代から1990年代前半にかけて、大気中のCFCs濃度が単調に増加してきた特性を利用して、地下水の滞留時間を推定する手法である。本手法の利点は、分析が比較的容易である点や、時間変動特性の異なる3種類のCFC（CFC-11,

CFC-12, CFC-113）を同時にトレーサーとして利用できる点である。日本国内でも研究事例が蓄積されつつあり、中部地方の第四紀火山（浅井・辻村，2010）や北海道の森林流域（浅野ほか，2011）、阿蘇カルデラ内（利部ほか，2011）など、酸化的環境下にある自然流域の地下水では年代情報が得られている。

しかしながら、大気中CFCs濃度の変動は、1990年代以降は減少傾向にあり、滞留時間25年未満の地下水について、1回の測定値に基づいて信頼性の高い滞留時間を得ることは難しい状況になっている。そのため近年では、25年未満の地下水に対しては六フッ化硫黄（SF₆）やトリチウムヘリウム法（³H/³He）などの若い年代レンジに強い年代トレーサーが使われるようになりつつある。しかしながら、活動的火山周辺では、SF₆や³Heは地殻由来物質からの濃度付加の可能性があるため、どのような条件下でも利用できる万能な年代トレーサーはないのが現状である。

滞留時間の推定手法の一つに、lumped parameter model（LPM：集中定数モデル）を用いる方法がある。このモデルでは、特定の混合様式を持つ地下水系を通過した流出水中のトレーサー濃度の時系列変動を求めることができる。得られたモデル値を流出時の実測トレーサー濃度と比較することにより、滞留時間の推定が可能となる。流出時のトレーサー濃度の実測を繰り返し、モデルによる出力値と比較することで、CFCsによる詳細な滞留時間の推定が難しい25年未満の地下水についても、信頼性の高い滞留時間の推定が可能になると考えられる。

LPM解析を用いた滞留時間の推定は、火山地域やカルスト地域の湧水、沿岸域の地下水を対象として実施されている（例えばMaloszewski and Zuber, 1982; Kashiwaya et al., 2014など）。使用可能な年代トレーサーが制限される状況下では、LPMを用いた滞留時間の推定は有効であると思われる。しかしながら、年代トレーサーの時系列データの入手には、通常、数年以上の調査が必要であるため、研究事例は少ない。

九州南部の霧島火山群は、日本を代表する複合火山の一つである。新燃岳や御鉢をはじめとする一部の火山は過去1万年前以降、複数回の噴火活動が認められる活動的火山である。山麓部には流出量の大きい湧水が数多く分布し、その水は上水道以外にも、観光資源、水田・畑地灌漑、養魚、工業用途として幅広く利用され、地域の生活・産業の礎となっている。

霧島火山群では、塚田 (1987, 1988) によって、約200地点の湧水が確認されており、その湧出形態や流出量・水温・電気伝導度などが報告されている。また、地域北東部の小林盆地では、周辺の水文地質状況や湧水の水質が明らかになっている (佐々木, 1998)。しかしながら、地下水の流動経路や貯留量については検討がなされていない。

以上より、本研究では霧島火山群において、複数年にわたる CFCs 濃度の繰り返し測定値を基に、lumped parameter model を用いた湧水の滞留時間推定を試みた。

II. 研究地域の概要

研究地域の霧島火山群は、九州南部の宮崎県と鹿児島県境付近に位置する第四紀火山である (Fig. 1)。最高峰の韓国岳 (標高1,700 m) を筆頭に、高千穂峰 (標高1,570 m)、新燃岳 (標高1,420 m)、夷守岳 (標高1,340 m) など、20以上の独立した火山体と火口群を有し、それらを総称して霧島火山群とされている。これらの火山体は、北西から南東方向を長辺とする楕円形の地域 (長径30 km, 短径20 km) に分布する。地域内には大浪池・御池といった、爆発的な噴火によって形成された火口湖が多くみられる。2011年の新燃岳の噴火活動に代表されるような活発な火山活動は、硫黄山などの多くの地域で噴気をもたらし、地熱地帯を形成している。

本地域の基盤は、四万十帯に属する堆積岩類と更新世前期から中期の火山岩類である (井村, 1994)。えびの岳・栗野岳・高千穂峰の山麓や御

池の南東部では、基盤が表層に分布している (Fig. 1)。

火山体の大部分は、過去30万年間の噴火に由来する安山岩溶岩と火砕岩によって形成されている (Fig. 1)。火山の噴火順序は、西部の火山群 (栗野岳・白鳥岳・えびの岳・大浪池など) の噴火から始まり、入戸火砕流の堆積イベント (2.5万年前) を挟み、東部の火山群 (丸岡山・甕岳・韓国岳・新燃岳・高千穂峰・御池・御鉢) の噴火が続いた (井村・小林, 2001)。

初期に噴火した西部の火山群は、山体を構成する溶岩の風化が進んでいる。また栗野岳の噴火後に、火山灰質基質を持つ砂礫の堆積イベントが発生している。この砂礫層は高原砂礫層と呼ばれ、堆積直後に噴火した白鳥岳とえびの岳に由来する安山岩類と、その下位にあたる栗野岳由来の安山岩との間にしばしば存在する (沢村・松井, 1957)。一方、最後に噴火した東部の御鉢は、新鮮な溶岩で構成され、高千穂峰の一部を覆っている (沢村・松井, 1957)。

山麓部では、広域にわたって入戸火砕流が堆積しており、部分的に谷底や火山麓扇状地が露出する (岩橋ほか, 1999)。火山麓扇状地の多くは淘汰の悪い巨礫からなる礫層で構成され、砂・泥・粘土を挟んでおり (沢村・松井, 1957)、その発達状況は南西から西部で悪く、北から北東で良い。これは入戸火砕流によって南西から西部の扇状地が覆われたためと考えられている。

霧島火山中腹のアメダスえびの観測所 (標高1,150 m) における年降水量の平年値は4,390 mmであり (気象庁, 2014)、霧島火山群周辺のアメダス観測所 (小林・都城・加久藤・溝辺) の値と比較すると1,800 mm程度多い。月別の降水量は、6~8月にかけて多く (2,250 mm)、この3ヵ月間で年間の降水量の約半分を占める。

えびの高原の年平均気温は9.7°Cで、最暖月 (8月) の月平均気温は20°Cに達する。また最寒月 (1月) の月平均気温は-0.9°Cになる (河野, 1998)。

本地域では、約200地点の湧水が確認されてお

Fig. 1 Geological map of the Kirishima volcanic area with sampling locations. The volcanic geology is after Imura and Kobayashi (2001). Note that the topographical contour is shown in Fig. 7.

り (塚田, 1988), 中には昭和の名水百選に選ばれた著名な湧水 (霧島山麓九池湧水, 出の山湧水) も存在する。北部から北東部の山麓には、日

湧出量が8,000 m³を超える大規模な湧水が多く分布している (塚田, 1987, 1988)。これらの湧水は、溶岩流や深部の高原砂礫層中の粗粒堆積物

を帯水層として流出している（佐々木，1998）。一方で，南西部の斜面には山体上部から山麓にかけて，小規模な湧水が分布している（塚田，1988）。

湧水の水温は，大部分が15～18℃を示すが，地熱の影響を受けていると思われる水温20℃以上の湧水や温泉も存在する（塚田，1987）。また南部から南西部の斜面には，硫黄谷温泉や関平温泉，野々湯温泉などの火山性の温泉が複数分布している。

Ⅲ. 湧水の採取と分析

2007年8月から2013年11月まで，合計7回にわたり，湧水の採取を実施した。各採取時期の地点数を Table 1 に示す。採水を実施した湧水の総数は49地点，調査期間内でのCFCs濃度の分析数は101試料，酸素・水素安定同位体比の総分析数は197試料である。また採水の繰り返し回数は，最も多い湧水で6回である。調査期間内における水試料の採取総数は197試料である。

湧水の採取時には，電気伝導度，pH，水温，酸化還元電位，溶存酸素濃度を測定した。湧水の流出量については，塚田（1987）にならい目視で判定した。なお流出量は90 L/sおよび1 L/sを境界値として，3つの規模に区分した。水試料は実験室へ持ち帰り，CFCs濃度と酸素・水素安定同位体比を測定した。なおCFCs分析用の試料は，大気混入や採水機材からのCFCs汚染を防ぐ手順（IAEA，2006）に準拠して採取した。

Table 1 Sampling period and number of samples.

Period		Number of samples	
Year	Month	Stable isotopes	CFCs
2007	August	17	11
2008	September	18	8
2008	December	20	8
2009	March	49	25
2009	August	48	22
2013	May	38	20
2013	November	7	7

CFCs濃度は，Purge and Trap 法によって水試料中のCFCsを分離・精製した後に，ECD検出器付きのガスクロマトグラフ（島津製作所製，GC-8A）に導入して測定した。分析誤差は±2%である。酸素・水素安定同位体比（ $\delta^{18}\text{O}$ ・ δD ）は，それぞれ平衡法および還元法による前処理後，質量分析（Thermo Fisher Scientific社製，Delta-S，Delta-V）により測定した。同位体比は，標準海水（V-SMOW）に対する千分率差（‰）として表示した。分析誤差は， $\delta^{18}\text{O}$ ：±0.1‰， δD ：±1‰以下である。

Ⅳ. 結果および考察

1. 湧水の見掛けCFCs涵養年代の算出

CFCsを利用した地下水年代推定法は，地下水中のCFCsが大気に由来し，涵養時の濃度を保存したまま流動・流出していることを前提としている。湧水のCFCs濃度と大気の濃度を比較（見掛け涵養年代の算出）し，本地域でCFCsを用いた滞留時間推定が可能かどうかを検証した。

地下水中の溶存CFCs濃度は，地下水涵養時の大気CFCs濃度と溶解度を反映する。そのため，地下水涵養時の大気CFCs濃度は，ヘンリーの溶解平衡式を用いて求めることができる（IAEA，2006）。

$$EAC = CFCs_{gw} \times S \quad (1)$$

(1) 式において， EAC (equivalent air concentration) は涵養時の地下水と濃度溶解平衡にある大気のCFCs濃度 (pptv)， $CFCs_{gw}$ は地下水のCFCs濃度 ($\text{pmol} \cdot \text{kg}^{-1}$)， S は溶解度 ($\text{mol} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{atm}^{-1}$) である。水に対する気体の溶解度は，温度と圧力の関数である。湧水毎に涵養時の温度（涵養温度）と圧力（涵養標高）の状況は異なるため，水試料ごとにそれらを設定する必要がある。そこで，以下に示す方法で平均涵養標高と涵養温度を推定した。

1-1. 平均涵養標高の推定

湧水の涵養標高は同位体の高度効果を利用して

Table 2 Sampling location, temperature, and stable isotope data ($\delta^{18}\text{O}$ and δD) for the spring water samples obtained from the Kirishima area.

Sampling point	Number of samples	Location (°)		Altitude (m)	Temperature (°C)			$\delta^{18}\text{O}$ (‰)			δD (‰)		
		Latitude	Longitude		Average	Min	Max	Average	Min	Max	Average	Min	Max
S-01	5	31.9978	130.7551	235	17.2	16.8	17.8	-7.4	-7.5	-7.3	-47	-48	-46
S-02	4	31.9946	130.7525	213	16.6	16.5	16.6	-7.7	-7.7	-7.6	-48	-49	-48
S-03	4	31.9040	130.7860	454	15.3	10.4	19.6	-7.5	-7.6	-7.3	-47	-48	-47
S-04	3	31.8885	130.7996	391	17.4	17.0	17.7	-7.4	-7.4	-7.3	-47	-47	-46
S-05	4	31.9228	130.7948	720	14.7	10.5	17.0	-7.6	-7.8	-7.3	-48	-49	-47
S-06	3	31.9363	130.7960	749	14.8	14.4	15.1	-7.8	-7.9	-7.7	-49	-50	-49
S-07	4	31.9387	130.8128	917	27.7	27.4	27.9	-8.0	-8.0	-7.9	-49	-50	-49
S-08	3	31.9144	130.8237	877	14.7	14.7	14.7	-7.9	-7.9	-7.9	-49	-50	-49
S-09	4	31.9349	130.8437	1203	11.8	11.7	11.8	-8.1	-8.2	-8.1	-50	-50	-50
S-10	5	31.9142	130.8408	1063	12.8	11.6	13.9	-7.6	-7.6	-7.5	-46	-46	-45
S-11	5	31.8849	130.7400	179	17.4	17.3	17.6	-7.0	-7.1	-6.9	-43	-44	-43
S-12	4	31.9493	130.7219	188	18.1	17.8	18.3	-7.3	-7.3	-7.2	-46	-46	-46
S-13	4	31.9222	130.7349	190	18.6	18.2	19.4	-7.5	-7.5	-7.5	-48	-49	-47
S-14	5	31.9091	130.7616	249	19.0	18.8	19.2	-7.5	-7.5	-7.4	-47	-48	-47
S-15	4	31.8686	130.7808	232	19.2	19.1	19.4	-7.2	-7.2	-7.1	-45	-46	-45
S-17	3	31.9352	130.8160	965	19.9	19.6	20.1	-8.1	-8.1	-8.0	-50	-50	-50
S-18	4	31.9288	130.8193	989	13.4	12.8	13.8	-8.1	-8.2	-8.0	-51	-51	-50
SA-1	4	32.0183	130.8644	287	16.6	16.5	16.8	-7.9	-8.0	-7.8	-50	-50	-49
SA-2	3	32.0144	130.8596	308	15.8	15.7	15.8	-7.9	-8.0	-7.9	-49	-50	-49
SA-3	3	32.0078	130.8482	339	17.3	16.2	19.5	-7.8	-7.9	-7.8	-49	-50	-49
SD-1	4	31.8823	130.8713	726	16.4	15.5	18.9	-7.6	-7.8	-7.4	-48	-48	-46
SD-3	3	31.9089	130.8621	978	11.2	9.5	13.0	-8.0	-8.1	-7.9	-49	-49	-49
SE-2	4	31.8554	130.8700	401	17.0	16.8	17.1	-7.6	-7.8	-7.5	-48	-48	-47
SE-4	3	31.8567	130.8696	435	18.1	18.0	18.1	-7.5	-7.5	-7.4	-47	-48	-46
SF-1	3	32.0190	130.8830	293	16.3	16.0	16.5	-8.0	-8.1	-7.9	-50	-50	-50
SG-1	4	31.9947	130.9291	313	16.8	16.7	16.8	-7.7	-7.8	-7.6	-48	-49	-48
SG-2	5	32.0002	130.9141	309	17.1	13.0	20.3	-7.7	-7.8	-7.6	-48	-49	-48
SG-3	5	31.9963	130.9014	350	14.9	14.4	15.1	-7.9	-8.0	-7.8	-49	-50	-48
SG-4	4	31.9708	130.9000	549	14.1	13.8	14.4	-8.0	-8.2	-7.9	-50	-50	-49
SG-5	3	32.0056	130.9112	305	16.7	16.6	16.7	-7.8	-8.0	-7.7	-49	-49	-48
SJ-1	4	31.8471	130.8999	426	17.6	16.7	19.6	-7.5	-7.6	-7.4	-46	-47	-46
SJ-2	5	31.8587	130.8902	597	12.8	12.0	13.1	-7.3	-7.7	-6.8	-46	-48	-44
SJ-3	4	31.8468	130.9049	431	17.7	15.4	19.7	-7.3	-7.6	-6.9	-45	-47	-42
SJ-4	3	31.8492	130.9030	449	18.2	17.9	18.6	-7.6	-7.8	-7.4	-47	-47	-47
SL-1	5	31.9819	130.9436	268	16.9	15.7	17.6	-7.4	-7.6	-7.2	-47	-48	-46
SL-2	4	31.9722	130.9466	270	16.4	16.0	16.6	-7.4	-7.5	-7.2	-46	-46	-45
SL-3	5	31.9834	130.9352	310	16.8	16.5	17.0	-7.7	-7.9	-7.6	-48	-48	-47
SL-4	3	31.9700	130.9717	202	17.7	17.6	17.7	-7.5	-7.6	-7.4	-46	-46	-46
SL-5	3	31.9904	130.9755	196	19.1	18.8	19.5	-7.4	-7.6	-7.3	-47	-47	-47
SM-1	4	31.9293	130.9575	356	15.1	15.0	15.2	-7.4	-7.5	-7.3	-45	-46	-45
SM-2	4	31.9587	130.9516	288	16.4	16.4	16.4	-7.0	-7.1	-6.9	-44	-44	-43
SM-5	3	31.9493	130.9717	221	16.6	16.4	16.7	-7.2	-7.4	-7.0	-44	-45	-43
SM-6	3	31.9390	131.0018	159	22.4	22.0	22.7	-7.2	-7.3	-7.2	-45	-45	-45
SN-2	5	31.9055	130.9552	391	15.8	15.6	16.1	-7.8	-8.1	-7.6	-48	-49	-46
SN-3	3	31.8942	130.9679	276	15.6	15.6	15.7	-7.3	-7.4	-7.2	-44	-45	-44
SN-4	3	31.8842	130.9646	315	15.8	15.4	16.0	-7.2	-7.3	-7.2	-44	-44	-44
SO-1	5	31.8383	130.9686	267	19.0	18.4	19.2	-7.3	-7.6	-7.2	-45	-47	-45
SO-2	5	31.8623	130.9737	299	16.7	16.1	17.1	-7.1	-7.3	-6.9	-43	-44	-43
SO-3	6	31.8744	130.9511	543	15.5	15.3	15.8	-7.3	-7.5	-7.1	-44	-46	-43
SO-4	5	31.8731	130.9694	347	17.5	16.7	18.1	-7.1	-7.4	-6.9	-44	-45	-42

推定を行うことが可能である。本研究では利部ほか (2011) で適用された方法にならい, 地形的にみて集水域が限定される湧水を標高別に複数選

定し, それらの湧水の δD と集水域の平均標高の関係から対象地域の地下水の同位体標高効果 (地下水涵養線) を求めた。3地点 (S-09, SD-3,

Fig. 2 Plot of the δD values versus the discharge elevations of springs in the study area. The dotted line indicates the recharge-water line.

SO-3) の湧水のデータから得られた霧島火山群の地下水涵養線を Fig. 2 に示す。

$$H = 135.5 \times \delta D_r - 5300 \quad (2)$$

地下水涵養線を表す (2) 式において、 H は涵養標高 (m)、 δD_r は地下水の δD 値 (‰) を示す。各湧水の δD 値の平均値を式 (2) に代入し平均涵養標高を求めた。本研究地域における湧水の平均涵養標高は 500～1,500 m の標高の範囲を示した。

湧出地点 S-10 については、湧出標高 (1,063 m) よりも涵養標高 (1,240 m) が低い結果となった。S-10 は火口湖の大浪池 (標高: 1,240 m) 南西に位置していることから、蒸発による同位体濃縮を受けた湖水が漏水し、その下流側に高標高にも関わらず高い同位体比を有する湧水を生み出していると考えられる。

1-2. 涵養温度の推定

地下水の涵養温度には、湧水の水温や年平均気温がしばしば利用される (IAEA, 2006)。湧水の水温は涵養域の温度を保持していることを前提として涵養温度に採用される。しかし霧島火山群では、地域内に存在する地熱地帯の影響で、温度が上昇していると思われる湧水も存在 (Table 2; S-07 および S-17) するため、湧水の水温を直接

利用することは難しい。

そこで、気温と降水量のデータに基づき各湧水の涵養温度を推定した。一般に地下温度は、地表面温度などに基づく熱伝導効果と、地下水浸透に起因する鉛直下向きの水の流れにともなう熱移流効果によって形成される (谷口ほか, 1984; 谷口, 1985)。そのため、月別の気温を降水量で重み付けすることで、降雨浸透 (涵養) 時の降水量の効果を加味した。なお 1 月の気温は氷点下になるが、地温は 0°C 以下にならないと考えられるため、1 月の温度は 0°C として計算した。研究地域周辺のアメダス観測所 (都城・小林・加久藤・溝辺・えびの) の気温と降水量の月別平年値に対し、前述の算術処理を行い、各観測所における地下温度を推定した。ただし、えびの観測所における気温情報は、河野 (1998) より補間した。霧島火山群における標高と地下温度の関係を以下に示す。

$$T_m = -0.0063 \times H + 21.0 \quad (3)$$

T_m は涵養温度 ($^{\circ}\text{C}$)、 H は標高 (m) を示す。(2) 式に各湧水の δD 値を代入して求められた平均涵養標高の値を (3) 式に代入することで、涵養温度を得た。なお、安定同位体比から平均涵養標高が推定できなかった湧出地点 S-10 については、近傍の火口湖である大浪池からの涵養を想定し、湖面標高を平均涵養標高とした。

1-3. 見掛けの涵養年代

湧水の CFCs 濃度 (大気換算濃度: EAC) を Table 3 に、またその濃度を大気濃度曲線と比較した結果を Fig. 3 に示した。大気の CFCs 濃度は広域的に均一なことが知られている (IAEA, 2006) ので、北半球平均値 (USGS, 2014) を利用した。

湧水中の CFCs 濃度は、一部の湧水を除けば大気の濃度変動の範囲内にある。これは、霧島火山群の湧水に溶存する CFCs の起源が大気であり、CFCs を用いた滞留時間の推定が可能なことを示している。霧島火山群の湧水全体の見掛け CFCs 涵養年代は、CFC-11 と CFC-12 では 1970 年代後

Table 3 EAC values of CFC-11 and CFC-12 in pptv and the estimated recharge altitude and temperature for the spring water samples.

Sampling point	EAC value of CFC-11 (pptv)										EAC value of CFC-12 (pptv)					Recharge altitude (m)		Recharge temperature (°C)	
	August 2007										August 2007					average		November 2013	
	August 2008	August 2009	March 2009	December 2008	August 2008	August 2009	May 2013	November 2013	average	August 2007	August 2008	December 2008	March 2009	August 2009	May 2013	November 2013	average	November 2013	Recharge temperature (°C)
S-01	275	—	254	—	254	250	237	239	254	645	—	—	557	561	424	464	547	1040	14.5
S-02	182	—	176	—	177	170	181	—	177	402	—	—	356	371	344	—	368	1204	13.4
S-05	207	—	276	—	222	185	—	—	222	448	—	—	608	410	—	—	489	1189	13.5
S-08	239	—	226	—	229	221	—	—	229	492	—	—	499	482	—	—	491	1289	12.9
S-09	247	—	239	—	237	225	—	—	237	544	—	—	530	533	—	—	536	1352	12.5
S-10	256	—	263	—	246	227	237	238	246	526	—	—	548	516	403	493	498	1240	13.2
S-11	634	—	264	—	496	748	337	376	496	1408	—	—	1006	1003	603	646	1005	523	17.7
S-13	215	—	211	—	210	203	—	—	210	338	—	—	378	349	—	—	355	1100	14.1
S-14	238	—	228	—	225	223	210	212	225	522	—	—	494	483	352	452	463	1032	14.5
S-17	193	—	174	—	184	—	—	—	184	495	—	—	451	—	—	—	473	1391	12.3
S-18	232	—	214	—	217	—	204	—	217	490	—	—	481	—	393	—	455	1459	11.8
SA-1	—	—	215	—	200	182	205	206	200	—	—	—	483	406	388	439	426	1423	12.1
SA-2	—	—	246	—	218	198	210	—	218	—	—	—	522	430	400	—	451	1397	12.2
SA-3	—	—	220	—	202	188	198	—	202	—	—	—	474	409	420	—	435	1391	12.3
SD-1	—	—	220	—	201	—	183	—	201	—	—	—	482	—	356	—	419	1147	13.8
SE-2	—	—	199	199	189	164	195	—	189	—	—	455	460	385	391	—	423	1168	13.7
SG-3	—	239	230	227	226	—	207	—	226	—	513	514	511	—	458	—	499	1431	12.0
SG-4	—	217	220	—	212	192	220	—	212	—	515	—	469	427	431	—	461	1441	12.0
SG-5	—	—	236	—	224	—	213	—	224	—	—	—	505	—	436	—	470	1335	12.6
SJ-1	—	188	202	202	184	162	—	—	184	—	418	448	—	378	—	—	415	979	14.9
SJ-3	—	—	160	160	148	134	—	—	148	—	—	426	448	377	—	—	417	852	15.7
SJ-4	—	—	154	—	143	130	146	—	143	—	—	—	335	278	258	—	290	1080	14.2
SM-1	—	244	254	254	252	—	—	—	252	—	535	573	548	—	—	—	552	859	15.6
SN-2	—	209	—	—	197	189	193	198	197	—	470	—	—	421	361	460	418	1216	13.4
SN-4	—	—	—	—	207	202	209	—	207	—	—	—	500	457	389	—	449	739	16.4
SO-2	—	220	235	235	222	190	225	—	222	—	484	533	537	422	474	—	490	563	17.5
SO-3	—	223	239	239	225	201	224	200	225	—	515	551	545	456	428	496	499	697	16.6
SO-4	—	178	199	199	189	187	193	—	189	—	1242	1155	—	638	485	—	880	632	17.0

*Grayed numbers mean out of range for CFC conc. from Northern Hemisphere atmosphere.

Fig. 3 Historical changes in CFCs concentrations in the atmosphere (USGS, 2014; broken and dotted lines), and CFCs concentrations in the water samples (this study; plotted circles).

半から現在までの約40年間、CFC-113では1980年代半ばから1990年までとなった。これにより、本地域における湧水は、主に過去40年以内の降水によって涵養されていると判断される。

一方、大気濃度を頻繁に超過する湧水（S-01, S-11, SO-4）も確認された。これらの高濃度のCFCsは大気からの溶解では説明がつかない。CFCsは工業活動を始めとする種々の産業分野で使用されてきた歴史があり、使用量の多かった工業地域や市街地では、人為活動由来のCFCsが直接的に地下水に付加し、年代測定を阻害する事例が報告されている（IAEA, 2006）。S-01とS-11は市街地近傍に位置し、SO-4は市街地近傍ではないが、付近に宿泊施設が存在することから、人為活動由来のCFCsが直接的に付加した可能性が考えられる。

2. 研究地域の地下水流動モデルの検討

湧水の平均滞留時間推定には、地下水の混合の有無を判断し、適切な地下水流動モデルを適用することが必要となる。内部構造の不均質な火山体では、涵養年代の異なる地下水が混合し、流出する場合がある（Solomon et al., 2010など）。特に、第四紀火山の場合、流域表層は透水性に富む火山噴出物で覆われるため（下津, 1983）、広範囲で

Fig. 4 Tracer plot comparing CFC-11 and CFC-12 concentrations in pptv. The data plots are spring water samples taken in 2009. The solid and dotted lines show the groundwater flow models for piston flow and exponential mixing, respectively.

浸透した地下水が湧出域に集中し、地下水が混合すると考えられる。流域内で涵養された地下水が混合してから流出することを表現した指数関数モデルは、第四紀火山やカルスト地域など、透水性の高い水理地質構造を持つ地域の滞留時間推定に採用されてきた（Manga, 1999; Kattan, 1997）。

地下水流動モデルは通常、地下水の流動状況や水文地質に基づいて設定されるが、年代トレーサーの濃度分布から判断することも可能である（Plummer et al., 2001）。本節では地下水の混合・流動様式について検討し、地下水流動モデルの設定を行った。

2-1. Tracer plot (CFC-11 vs CFC-12)

大気CFCs濃度の変動パターンは、CFCの種類によって違いがあるため、涵養年代の異なる地下水が混合した場合、各トレーサー濃度の分布に差異が生じる。その特性を利用した解析がTracer plotによる地下水流動様式の判別である（IAEA, 2006）。

Fig. 4は2009年に採取した湧水のCFC-11とCFC-12の関係を示したものである。図中の2本

Fig. 5 CFC-11 concentrations of selected spring water samples (S-02, S-10, S-14, and SJ-4) from the study area. The atmospheric and modeled concentration profiles are also shown for comparison (USGS, 2014).

の曲線は、指数混合モデルとピストン流モデルの場合の濃度の分布範囲を示したものである。指数関数モデルとピストン流モデルは、非混合と完全混合の両極端な地下水流動を想定しており、湧水のプロットされる位置から地下水中での混合の程度を知ることが出来る。

CFC-12濃度が低い（400 pptv以下）湧水の一部で、ピストン流モデルを想定した分布曲線付近にプロットされたものの、ほとんどの湧水は、指数関数モデルの分布曲線付近にプロットされている。この分布傾向は、他の年に採取された湧水でも同様であった。

これらの結果は、霧島火山群の湧水の大部分が異なる年代に涵養された地下水の混合により形成されていることを示している。一方、詳しくみると、湧水のプロットは指数関数モデルの分布曲線に完全には一致していない。さらにCFC-12濃度の低い湧水の一部は、ピストン流的な地下水流動を経て湧出している可能性もある。

2-2. CFCs測定値の時系列変化

繰り返し採水で得られた各湧水の平均CFCs濃度は、CFC-11で143–252 pptv、CFC-12で290–552 pptvを示し、湧水間で100 pptv以上の差がある（Table 3）。一方、各湧水のCFCs濃度の5年間の時間変動をみると、大部分の湧水において横ばいもしくは低下の傾向がみとめられた。

Fig. 5は、代表的な4つの湧水について、CFC-11の濃度変動を指数関数モデルとピストン流モデルから想定される流出CFC濃度の出力曲線（滞留時間10・20・40年の場合の3つのケース）と比較したものである。各湧水のプロットに着目すると、CFC-11濃度は横ばいないし、減少傾向が確認できる（Fig. 5）。2つの地下水流動モデルの出力線と比較すると、明らかな上昇傾向のピストン流モデルよりも、指数関数モデルの方が湧水の変動傾向と整合的である。しかしながら、指数関数モデルも緩やかな上昇傾向を持つため、完全には一致していない。また、S-10では現在の大気濃度の傾向に類似していることから、数年以内の滞留時間の可能性も示唆される。

2-3. 地下水流動モデルの選定

Tracer plot とCFCsの時系列変動の結果から、霧島火山群の湧水は、地下水の混合を考慮する必要性が示唆された。えびの岳および夷守台では、ボーリング掘削作業が難航する程、地盤透水性が高いことも報告されている（長井ほか、2013）。このような透水性の高い火山噴出物が山頂から山麓まで分布するとすれば、広範囲で浸透した地下水が湧出域に集中することで、異なる年代の地下水が混合すると考えるのは妥当である。しかしながら、一部の試料はピストン流モデルに近い位置にプロットされており、指数関数モデルのみでは説明がつかない。

火山体は一般的に噴火にともなう複雑な形成過程を反映し、極めて不均一な内部構造を持つ。中でも火山岩の形成過程では、溶岩の冷却時、亀裂が発生しやすい箇所は溶岩上部と下部にあたる。そのため厚い溶岩の場合、固結した溶岩内部により地下水の流れが分断され、選択的な地下水流れが発生しうる。中でも、溶岩下部側を流れる地下水は、ピストン流的に横方向に流動することが報告されている（Geyh, 2000）。霧島火山群地域の斜面は、噴出時期の異なる複数の火山噴出物に由来するため、斜面によっては溶岩下部の相対的に深い部分を通過する地下水が寄与する可能性が考えられる。

指数関数+ピストン流モデルは、2種類の地下水流れを組み合わせた地下水流動モデルである。このモデルは、lumped parameter model 解析において一般的に使用される流動モデルであり (McGuire and McDonnell, 2006)、複数の適用例がある (McGlynn et al., 2003; Vitvar et al., 2002)。

以上より、本研究では涵養後に表層付近を混合しながら流動する地下水（指数関数モデルで表現）と、深部を選択的に流動する地下水（ピストン流モデルで表現）の両者を組み合わせた地下水流動モデルを選択した。

3. 平均滞留時間の算出方法

3-1. Lumped parameter model を用いた平均滞留時間推定法の概要

平均滞留時間の推定に用いる lumped parameter model では、帯水層情報と、化学トレーサー濃度の時系列情報（時間変化関数）が必要となる (Maloszewski, 2000)。

$$C_{output}(t) = \int_0^{\infty} C_{input}(t-t') \exp(-\lambda t') g(t') dt' \quad (4)$$

(4) 式は Maloszewski and Zuber (1982) で示された流出水のトレーサー濃度の時間変化関数 ($C_{output}(t)$) と涵養水のトレーサー濃度の時間変化関数 ($C_{input}(t)$) の関係式である。 t は流出時の時刻、 t' はトレーサーの地下水体の通過時間、 λ は放射壊変する化学トレーサーの場合の崩壊定数を示す。関数 $g(t')$ は weighting function と呼ばれる、帯水層情報を反映した地下水流動モデルごとに固有の関数である (Maloszewski, 2000; 久保田, 2000)。Weighting function に含まれる各パラメータを変化させて得られる複数の $C_{output}(t)$ のうち、最も実測の流出水トレーサー濃度を再現する $C_{output}(t)$ の場合から平均滞留時間を求める。

3-2. 解析条件の設定

平均滞留時間の推定には Hacettepe University Hydrogeological Engineering Section 作成の VBA ソフト、「LUMPED」(Ozyurt and Bayari, 2003) を使用した。流動モデルの検討が必要な

weighting function を除く、平均滞留時間推定に用いた設定は以下の通りである。 $C_{input}(t)$ には、(1) 式を基に涵養時の地下水の CFC-12 濃度に変換した大気濃度履歴を用いた。流出時の実測トレーサー濃度には、繰り返し測定した湧水の CFC-12 濃度を用いた。また、各年に1つの実測値しか入力できないため、1年間に複数回測定を実施している場合には算術平均し、その年の代表値とした。 $C_{output}(t)$ の再現度の評価には、採水年における実測 CFC-12 濃度との差の二乗平均平方根 (difference value) を用いる。

本研究で適用した指数関数+ピストン流モデルの weighting function ($g(t)$) は以下の式で示される。

$$g(t) = (q_m / (q_m + q_p))^2 \times ((V_m + V_p) / V_m) \times \exp(-(q_m / V_m) \times t) \quad (5)$$

(5) 式において、 q_m は混合流の地下水フラックス ($\text{m}^3 \cdot \text{year}^{-1}$)、 q_p はピストン流の地下水フラックス ($\text{m}^3 \cdot \text{year}^{-1}$)、 V_m は混合流の地下水体積量 (m^3)、 V_p はピストン流の地下水体積量 (m^3) を表す (Ozyurt and Bayari, 2003)。これら4つのパラメータ (q_m , q_p , V_m , V_p) を変化させ解析を行うが、各パラメータの境界条件を以下のように設定した。地下水フラックス ($q_m + q_p$) の範囲は、湧出規模の判定結果に基づいて 28×10^5 , 30×10^3 , $300 (\text{m}^3 \cdot \text{year}^{-1})$ を境界値とした。体積量 ($V_m + V_p$) の上限値として、平均涵養標高を参考に湧水を末端とする集水域を設定し、集水域の体積量に対して、最大の有効間隙率を 20% と仮定して乗じた値を設定した (Table 4)。

$$T = (V_m + V_p) / (q_m + q_p) \quad (6)$$

平均滞留時間 (T ; year) は、解析で得られた各パラメータ (q_m , q_p , V_m , V_p) の最適な組み合わせを (6) 式に代入して求める。指数関数+ピストン流による解析に加え、透水性の高い地域で一般的に利用される指数関数モデルによる解析も実施した。

Table 4 Input data for lumped parameter model analysis and output results, CFC-12 residence times and difference value. Difference value shows root mean squares between modeled and observed CFC-12 concentrations.

Sampling point	Watershed area (km ²)	Watershed volume (km ³)	Roughly-estimated flow rate (L/s)	Input volume V_m+V_p (10 ³ m ³)		Input flow scale q_m+q_p (10 ³ m ³ /year)		Mean residence time (year)		Difference value	
				Min	Max	Min	Max	EMM	EMM+PFM	EMM	EMM+PFM
S-02	0.51	0.050	1-90	99	9900	30	2800	28	38	0.15	0.11
S-05	0.23	0.025	<1	49	4900	0.3	30	14	10	0.00	0.00
S-08	0.16	0.011	1-90	22	2200	30	2800	13	9	0.01	0.00
S-09	0.14	0.017	1-90	33	3300	30	2800	7	5	0.01	0.00
S-10	0.69	0.009	<1	17	1700	0.3	30	11	9	0.14	0.01
S-13	0.34	0.008	1-90	15	1500	30	2800	29	36	0.01	0.00
S-14	0.24	0.018	1-90	35	3500	30	2800	15	15	0.24	0.22
S-17	0.31	0.031	1-90	62	6200	30	2800	14	31	0.02	0.00
S-18	0.26	0.021	1-90	41	4100	30	2800	17	15	0.23	0.20
SA-1	0.27	0.024	>90	49	4900	2800	280000	21	32	0.00	0.01
SA-2	1.19	0.137	>90	274	27400	2800	280000	20	10	0.01	0.20
SA-3	1.92	0.393	1-90	786	78600	30	2800	21	20	0.01	0.00
SD-1	1.57	0.510	1-90	1020	102000	30	2800	22	38	0.01	0.00
SE-2	0.17	0.009	1-90	19	1900	30	2800	21	21	0.15	0.11
SG-3	0.50	0.038	1-90	76	7600	30	2800	13	9	0.14	0.11
SG-4	0.59	0.075	1-90	150	15000	30	2800	16	13	0.18	0.15
SG-5	0.40	0.009	1-90	18	1800	30	2800	16	21	0.01	0.00
SJ-1	0.26	0.038	1-90	76	7600	30	2800	23	42	0.01	0.00
SJ-3	0.50	0.041	1-90	82	8200	30	2800	21	49	0.01	0.01
SJ-4	0.61	0.902	1-90	1805	180500	30	2800	46	58	0.01	0.00
SM-1	0.38	0.033	>90	66	6600	2800	280000	6	1	0.00	0.01
SN-2	0.34	0.053	1-90	106	10600	30	2800	19	16	0.18	0.16
SN-4	1.60	0.530	1-90	1060	106000	30	2800	20	34	0.00	0.00
SO-2	0.14	0.005	1-90	10	1000	30	2800	14	10	0.08	0.06
SO-3	0.30	0.015	1-90	82	8200	30	2800	12	30	0.13	0.09

*Samples with grayed column have longer EMM residence time than EMM+PFM.

4. 霧島火山群湧水の平均滞留時間

4-1. 平均滞留時間の解析結果

指数関数+ピストン流モデル (EMM+PFM) で解析を行った結果, 1~58年の平均滞留時間が得られた (Table 4)。

透水性の高い地域でよく用いられる指数関数モデル (EMM) を適用した場合の平均滞留時間解析結果を, EMM+PFMで得られた平均滞留時間と比較した (Table 4)。両方のモデルで同一の平均滞留時間を示したのは, 1地点 (SA-14) のみであった。11地点の湧水では, EMM+PFMがEMMに比べ短い平均滞留時間を示し (以下Group A; Table 4灰色欄), 残り13地点の湧水ではEMM+PFMの方が長い平均滞留時間を示した (以下Group B)。Group AとGroup Bそれぞれの湧水

のうち, 実測データが長期的に存在する2地点 (S-10: Group AおよびS-02: Group B) について, 各モデルでの解析結果と実測濃度を比較した (Fig. 6)。両者の実測CFC-12濃度でみられた長期的な低下傾向を再現したのは, いずれもEMM+PFMであり, S-10, S-02以外の湧水についても概ね同様であった。また, 採水年における実測濃度とモデル解析値の差 (difference value) も, 1地点の湧水 (SA-2) を除き, EMM+PFMの方が小さい (Table 4)。SA-2の湧水は, 設定できた体積量に対し流出量が多く, 実際の地下水集水域が想定よりも広い可能性がある。つまり, LUMPED計算時の体積量が小さいために, 実測濃度の再現度が悪い可能性が考えられる。

Group Aの湧水は全て, 平均滞留時間が20年以

Fig. 6 Comparison between the modeled CFC-12 concentration (solid line: EMM; dashed line: EMM+PFM) and the observed CFC-12 concentration.

下で、ピストン流を考慮することで平均滞留時間が短くなっている。また、湧出標高が高く湧出規模の小さい湧水 (S-05, S-08, S-09, S-10, S-18) のほとんどが Group A に属している。一方、Group B はピストン流を考慮することで平均滞留時間が長くなっており、EMM の結果に対して 10 年以上長い湧水 (S-02, S-17, SA-1, SD-1, SJ-1, SJ-3, SJ-4, SN-4, SO-3) も見られる。この中には流動過程で水温が上昇した可能性のある湧水 (S-17) も含まれる。S-17 以外の湧水の湧出標高は約 200～700 m と幅広く、流出量はいずれも中規模 (1～90 L/s) もしくは大規模 (90 L/s 以上) であった。そのため、Group A に対して相対的に流出量が多く、平均滞留時間が長い Group B の湧水は、地下水貯留量も大きいことが考えられる。よって、地下水の流動する深度は Group B の方が相対的に深く、火山体内部の水理地質構造の影響を受けやすいと考えられる。

4-2. 平均滞留時間の分布状況

EMM+PFM によって見積もられた湧水の平均滞留時間の空間分布を Fig. 7 に示した。これを見ると、湧出標高 1,000 m 以上の湧水は、平均滞

留時間 10 年未満 (S-10: 9 年, S-09: 5 年) の短い値となった。一方で、標高 600 m 以下に位置する湧水の大部分は 10 年以上の平均滞留時間を示している。例外的に、標高 600 m 以下の位置でも 10 年未満の平均滞留時間を示した湧水は 2 地点 (SM-1, SG-3) である。これらの湧水はともに上部斜面の火山性堆積物と、下部斜面の扇状地性堆積物の境界付近に位置していた。そのため、表層を構成する淘汰の悪い巨礫から成る礫層を通じて、滞留時間の短い地下水が混合している可能性が示唆される。

一方、42～58 年と長い平均滞留時間を示した湧水は、高千穂峰南麓斜面に集中している (SJ-1, SJ-3, SJ-4)。この斜面付近を除く湧水の平均滞留時間 (1～38 年) は、浅井・辻村 (2010) で得られた八ヶ岳および御嶽山の湧水の結果 (30 年以内) と同程度である。このことより、高千穂峰周辺の山体斜面は他の火山とは異なる、特殊な地下水流動特性を持つ可能性が示唆される。

LPM 解析で得られた入力値の組み合わせより、指数関数モデルで表される混合流出成分 ((6) 式中 q_m に相当) とピストン流モデルで表される非混合流出成分 ((6) 式中 q_p に相当) の各地下水フラックスの総和を円の大ききで示した (Fig. 7)。また、各フラックスの割合も円グラフ内で色分けして示した。

各フラックスの割合に着目すると、山頂に近い湧水 (S-09) と隣接する湧水 (S-08, S-10) の間では、EMM のフラックスが占める割合が大きく異なる結果となった。一方で、高千穂峰および隣接する御鉢周辺の特地域域には、ピストン流のフラックスの寄与率が 7 割以上と極めて高い湧水 (SJ-1, SJ-3, SJ-4) が集中している。これらの湧水はいずれも、EMM+PFM で解析した平均滞留時間が 40 年以上で、EMM で解析した結果に比べ 10 年以上長い (Group B)。これは、ピストン流的な非混合で流動する地下水部分の通過時間が長いために、平均滞留時間が長くなったことを意味する。高千穂峰周辺に分布する湧水 (SD-1, SN-4, SO-3) でも同様に、EMM+PFM で解析した平

Fig. 7 Distribution of the mean residence time from the lumped parameter model analysis and the total flow rate (the model adopted is the EMM+PFM). The broken line represents the cross-section line shown in Fig. 8.

均滞留時間の方が長い結果を示した (Group B)。これらの湧水は、高千穂峰やその西に隣接する御鉢を筆頭に、形成時期が新しい火山の山麓部に位置する (Fig. 1)。そのため山体の形成時期や地質特性が地下水の流動形態に影響を及ぼし、その結果、平均滞留時間の違いが生まれているものと推察される。

Fig. 8は山体の形成年代が異なる代表的な3斜面 (Fig. 7: A-A', B-B', C-C') における地下水流動模式図である。

A-A'断面は韓国岳からえびの岳を通る西側の斜面で、火山体の形成年代は3斜面の中で最も古い (7万年以前)。この断面では、地下水流動距離が長くなるにしたがって、平均滞留時間が長くなる傾向を読み取ることができる。また斜面中腹域 (標高700~1,000 m付近) では、流出量が小さく、平均滞留時間の短い湧水が偏在している。これらの湧水は、局所的に分布する高原砂礫層を通じて湧出している可能性が考えられる。また韓国岳・えびの岳における他の湧水も、後述する夷

守岳 (B-B'断面) や高千穂峰 (C-C'断面) の湧水と比べ、流出量が小さい。山体斜面の規模が3つの斜面で最も大きいにも関わらず流出量が小さい湧水が分布している原因としては、火山体の形成時期が古いため、山体斜面が長期にわたり開析作用を受け、地下水流動が分断されているものと思われる。

B-B'断面は夷守岳北側の斜面にあたり、火山体の形成年代はA-A'断面よりは新しく (6,300~7万年前)、火山体の規模は小さい。また、B-B'断面の湧水はA-A'断面の湧水と比べ、湧出標高は低く湧出量は大きい (Fig. 7)。これらを考慮すると、B-B'断面では山体斜面の開析作用が進んでおらず、斜面内部の地下水流動が分断されずに山麓まで伸びているものと思われる。B-B'断面における湧水の平均滞留時間は、斜面上部側で13年 (SG-4)、斜面下部側で21年 (SG-5) と、地下水流動距離に応じ湧水の平均滞留時間が長くなる傾向はA-A'断面と共通している。しかしながら、斜面下部湧水の平均滞留時間はB-B'断面

Fig. 8 Schematic representation of the groundwater flow paths along a 2-D profile with surface geology (geological legend is the same as in Fig. 1). The selected lines of three cross-sections are shown in Fig. 7. The numbers indicate the mean residence times of the springs.

の湧水が短い。そのため、両斜面の水理地質構造は似ているものの、火山体の規模の違いが平均滞留時間に反映されているものと考えられる。

C-C'断面は高千穂峰山頂より南麓に向かう斜面であり、霧島火山群では最も新しい時期（6,300年前以降）に噴火した、高千穂峰と御鉢火山の火山噴出物から形成されている。その火山噴出中には緻密な溶岩や、厚い溶岩流も含まれる（井ノ上, 1988）。噴出物の末端部にあたる湧水（SJ-3, SJ-4）の平均滞留時間（49～58年）は、A-A'断面やB-B'断面下部における湧水の平均滞留時間（21～36年）に比べて明らかに長い。さらにC-C'断面の湧水の流出量は、地域の大規模な湧水（SA-1, SA-2, SM-1, SN-2, SN-4）と比べると小さく、ピストン流成分の割合が極めて高い（Fig. 7）。これらより、斜面を形成する緻密で固結度の高い溶岩流下部のクリンカー部分を地下水がピストン流的に通過しているために、平均滞留時間が長い可能性が考えられる。

V. まとめ

本研究では、霧島火山群を対象として、2007年から2013年にわたって湧水のCFCs濃度を繰り返し測定を実施し、山体内の地下水の滞留時間について検討した。その結果、以下の成果が得られた。

- ・霧島火山群地域におけるほとんどの湧水中CFCsは大気を起源とし、見掛けの涵養年代より、地域の湧水が主に過去40年以内の降水によって涵養されている。
- ・Tracer plotや時系列のCFCs測定値の結果より、霧島火山群地域では涵養年代の異なる地下水が混合して湧出していると判断された。
- ・CFCsの結果および、火山体の一般的な形成過程より霧島火山群地域における地下水流動モデルを検討した。その結果、指数関数的な地下水の混合流れに加え、ピストン流的な非混合の地下水流れの影響を加味した流動モデルの選択が

妥当であると判断された。

- ・選択した流動モデルを基に、lumped parameter modelによる平均滞留時間解析を実施した結果、得られた湧水の平均滞留時間はCFC-12で1～58年を示した。平均滞留時間の分布状況は、湧出標高1,000 m以上では平均滞留時間10年未満、標高600 m以下では10年以上40年未満の湧水が主に分布している。
- ・地域内で最も火山の形成時期が新しい火山麓（高千穂峰、御鉢）では、特異的に長い平均滞留時間（49～58年）を持つ湧水が分布していた。これは、斜面を形成する緻密で固結度の高い新鮮な溶岩の下部と、それらとは風化状況や固結度が異なる古い火山堆積物との間の閉鎖的な間隙中を、地下水がピストン流的に通過しているために、平均滞留時間が長い可能性が考えられる。

以上より、本研究で実施した繰り返し採水によるCFCs濃度を平均滞留時間推定に用いることで、適用可能な年代トレーサーが限定される状況下でも、平均滞留時間の推定が可能であると考えられる。

謝 辞

NPO法人エコワールドきりしま理事長の藤元隆氏をはじめとする、霧島山周辺の地域住民の皆様には、湧水情報の提供および調査への同行など多大なご助力をいただいた。本論文の執筆にあたっては、産業技術総合研究所の井川怜欧氏・小野昌彦氏より、助言をいただいた。また投稿に際し、2名の匿名査読者より、非常に多くの有益なコメントをいただき、論文の内容を大きく向上させることができた。ここに記し、厚く御礼を申し上げます。

参考文献

安形 康（2000）成層火山体の地形発達と湧水湧出プロセスの変化過程。東京大学大学院理学

系研究科，博士課程学位論文，101p.

- 浅井和由・辻村真貴（2010）トレーサーを用いた若い地下水の年代推定法—火山地域の湧水へのCFCs年代推定法の適用—。日本水文科学会誌，**39**(3)，67–78。
- 浅野友子・芝野博文・田中延亮・大川あゆ子・浅井和由（2011）フロン類をトレーサーに用いた西達布川源流湧水の平均滞留時間推定。演習林，**50**，41–48。
- 井ノ上幸造（1988）霧島火山群高千穂複合火山の噴火活動史。岩鉱，**83**，26–41。
- 井村隆介（1994）霧島火山の地質。地震研究所彙報，**69**，189–209。
- 井村隆介・小林哲夫（2001）独立行政法人産業技術総合研究所 活火山データベース 火山地質図集 11 霧島火山地質図。https://gbank.gsj.jp/volcano-AV/volcmap/11/index.html。（2014.10.16閲覧）。
- 岩橋純子・久松文男・石川弘美（1999）火山土地条件調査報告書（霧島山地区）。国土地理院技術資料D2，**47**，58p。
- 利部 慎・嶋田 純・島野安雄・樋口 寛・野田尚子（2011）阿蘇カルデラ内における地下水の流動機構。日本水文科学会誌，**41**(1)，1–17。
- 久保田多余子（2000）地中水の平均滞留時間を表す公式について。水文・水資源学会誌，**13**(6)，472–475。
- 河野耕三（1998）みやぎきの自然15号 霧島山系の植生—えびの高原～韓国岳—'98-2。http://miyazaki.4zen.jp/020/21/index.html。（2014.10.16閲覧）
- 気象庁（2014）気象統計情報。http://www.data.jma.go.jp/gmd/risk/obsdl/index。（2014.10.16閲覧）
- 佐々木崇二（1998）名水を訪ねて（43）宮崎県小林・都城の名水。地下水学会誌，**40**(4)，521–537。
- 沢村孝之助・松井和典（1957）5万分の1地質図幅説明書 霧島山，地質調査所。
- 下津昌司（1983）火山地帯の水文—阿蘇火山を

- 例として. 水工学に関する夏期研修会講義集, 19, A.2.1–A.2.14.
- 谷口真人 (1985) 長岡市周辺における地中温度形成に及ぼす積雪および融雪浸透水の影響. 地理学評論, **58**(6), 370–384.
- 谷口真人・三条和博・梶根 勇 (1984) 地下水調査における地下水温の重要性. ハイドロロジー (日本水文学会誌), **14**, 50–60.
- 塚田公彦 (1987) 霧島の水文誌 (第 I 報). 鹿児島大学教育学部研究紀要 自然科学, **39**, 1–9.
- 塚田公彦 (1988) 霧島の水文誌 (第 II 報). 鹿児島大学教育学部研究紀要 自然科学, **40**, 1–8.
- 長井雅史・小園誠史・中田節世・小林哲夫・金子隆之・藤田英輔・武尾 実 (2013) 霧島山万膳および夷守台火山観測井コア試料の岩相記載. 防災科学技術研究所研究資料, **374**, 51p.
- 萩原茂牢・坂本義昭・小川弘道・中山真一 (2002) 日本列島の第四紀地質特性. JAERI-Review, 2002-024, 1–203.
- 虫明功臣・高橋 裕・安藤義久 (1981) 日本の山地河川の流況に及ぼす流域の地質の効果. 土木学会論文報告集, **309**, 51–62.
- Busenberg, E. and Plummer, L. N. (1992) Use of chlorofluorocarbons (CCl_3F and CCl_2F_2) as hydrologic tracers and age-dating tools: The alluvium and terrace system of central Oklahoma. *Water Resources Research*, **28**(9), 2257–2283.
- Geyh, M. (2000) Hydrogeology and aquifer characteristics. In *Environmental Isotopes in the Hydrological Cycle: Principles and Applications*, Mook, W.G. (Ed.), IAEA Publish, 1–14.
- IAEA (2006) IAEA Guidebook on the use of chlorofluorocarbons in hydrology. *Technical Report Series*, No. 438, 247p.
- Kashiwaya, K., Hasegawa, T., Nakata, K., Tomioka, Y. and Mizuno, T. (2014) Multiple tracer study in Horonobe, northern Hokkaido, Japan: 1. Residence time estimation based on multiple environmental tracers and lumped parameter models. *Journal of Hydrology*, **519**, 532–548.
- Kattan, Z. (1997) Environmental isotope study of the major karst springs in Damascus limestone aquifer systems: case of the Figeih and Barada springs. *Journal of Hydrology*, **193**, 161–182.
- Maloszewski, P. (2000) Lumped-parameter models as a tool for determining the hydrological parameters of some groundwater systems based on isotope data. *Tracers and Modelling in Hydrogeology*, **262**, 271–236.
- Maloszewski, P. and Zuber, A. (1982) Determining the turnover time of groundwater systems with the aid of environmental tracers 1. Models and their applicability. *Journal of Hydrology*, **57**, 207–231.
- Manga, M. (1999) On the timescales characterizing groundwater discharge at springs. *Journal of Hydrology*, **219**, 56–69.
- McGlynn, B., McDonnell, J., Stewart, M. and Seibert, J. (2003) On the relationships between catchment scale and streamwater mean residence time. *Hydrological Processes*, **17**, 175–181.
- McGuire, K. J. and McDonnell, J. J. (2006) A review and evaluation of catchment transit time modeling. *Journal of Hydrology*, **330**, 543–563.
- Ozyurt, N. N. and Bayari, C. S. (2003) LUMPED: a Visual Basic code of lumped-parameter models for mean residence time analyses of groundwater systems. *Computers & Geosciences*, **29**(1), 79–90.
- Plummer, L. N., Busenberg, E., Drenkard, S., Schlosser, P., Ekwurzel, B., Weppernig, R., McDonnell, J. B. and Michel, R. L. (1998) Flow of river water into a karstic limestone aquifer-2. Dating the young fraction in

- groundwater mixtures in the Upper Floridan aquifer near Valdosta, Georgia. *Applied Geochemistry*, **13**(8), 1017–1043.
- Plummer, L. N., Rupert, M. G., Busenberg, E. and Schlosser, P. (2000) Age of irrigation water in ground water from the Eastern Snake River plain aquifer, south-central Idaho. *Ground Water*, **38**(2), 264–283.
- Plummer, L. N., Busenberg, E., Bohlke, J. K., Nelms, D. L., Michel, R. L. and Schlosser P. (2001) Groundwater residence times in Shenandoah National Park, Blue Ridge Mountains, Virginia, USA: a multi-tracer approach. *Chemical Geology*, **179**, 93–111.
- Solomon, D. K., Genereux, D. P., Plummer, L. N., and Busenberg, E. (2010) Testing mixing models of old and young groundwater in a tropical lowland rain forest with environmental tracers. *Water Resources Research*, **46**(4), doi: 10.1029/2009WR008341
- USGS (2014) USGS Chrolofluorocarbon Laboratory. <http://water.usgs.gov/lab/chlorofluorocarbons/>. (2014.10.16 閲覧)
- Vitvar, T., Burns, D. A., Lawrence, G. B., McDonnell, J. J. and Wolock, D. M. (2002) Estimation of baseflow residence times in watersheds from the runoff hydrograph recession: method and application in the Neversink watershed, Catskill Mountains, New York. *Hydrological Processes*, **16**(9), 1871–1877.
- 原稿受付：2014年11月 6日
原稿受理：2016年10月31日
-
- この論文に対する「討論」を2017年6月30日まで受け付けます。

繰り返し採水試料のCFCs（クロロフルオロカーボン類）による霧島火山群湧水の滞留時間推定 —Lumped parameter modelによる年代解析—

井手 淨^{1*}・利部 慎²・細野 高啓³・嶋田 純⁴

要 旨

霧島火山群湧水の滞留時間を見積もるため、2007年から2013年の7年間に渡って繰り返し採水を実施し、CFCsを測定した。湧水のCFC-11とCFC-12の濃度関係（Tracer plot）とCFC-11濃度の年変動より、湧水の大部分は異なる涵養年代の地下水が混合して流出していると判断された。平均滞留時間推定に必要な地下水流動モデルには、CFC-12濃度の変動と各種地下水流動モデルの出力値の関係および水文地質特性に基づき、指数関数+ピストン流を選択した。Lumped parameter modelを用い、指数関数+ピストン流モデルの条件で見積もられた湧水の滞留時間は、1～58年であった。また、山体上部の湧水の滞留時間は10年未満だが、山麓の主要な湧水は概ね10年以上40年未満の滞留時間であった。また、地域南部の火山麓において、ピストン流成分の卓越した長い滞留時間（50～60年）をもつ湧水が認められた。この湧水は新規の溶岩流末端部から湧出しており、溶岩流の基部を選択的に流れる地下水流動系の存在が示唆される。

キーワード：平均滞留時間，クロロフルオロカーボン類，霧島火山群，繰り返し採水，集中定数モデル