

原 著

## Rb および Cs 含量からみた 別府温泉における地熱流体の移動過程

東邦大学医学部化学研究室\*1, 東邦大学理学部化学科\*2,

京都大学理学部地球物理学研究施設\*3

加藤 尚之\*1, 高松 信樹\*2, 北岡 豪一\*3,

大沢 信二\*3, 由佐 悠紀\*3

(平成6年7月30日受付, 平成6年9月8日受理)

### Migration Processes of Geothermal Fluids Inferred from Rb and Cs Contents in the Beppu Geothermal System, Japan

Naoyuki KATO\*1, Nobuki TAKAMATSU\*2, Koichi KITAOKA\*3,  
Shinji OHSAWA\*3 and Yuki YUSA\*3

\*1Department of Chemistry, Toho University School of Medicine

\*2Department of Chemistry, Faculty of Science, Toho University

\*3Beppu Geophysical Research Laboratory, Faculty of Science, Kyoto University

#### Abstract

Rb and Cs contents in various waters such as boiling waters, non-boiling thermal waters, cold groundwaters and steam condensates in the Beppu geothermal field have been determined to study the migration processes of geothermal fluids. The highest Rb and Cs contents were found in the boiling waters both in the northern and in the southern areas and the values were 1750 (Rb) and 942 ppb (Cs) for the former and 1140 (Rb) and 782 ppb (Cs) for the latter. The next highest values were found in the non-boiling thermal waters, SB and SC types, containing bicarbonate. To the contrary, the groundwaters and the steam condensates had trace amount of these elements.

The Rb and Cs contents of the northern area showed a different pH dependence from that in the southern area; the acidic waters of pH 2.5-5.5 showed the highest amount of these elements in the northern area, in contrast to the weak alkaline waters of pH 8.5-9.3 in the southern area. The acidic waters in the northern area contain sulfuric acid which is formed near the surface by the oxydation of hydrogen sulfide originally dissolved in the deep thermal water. These waters are considered to increase the contents of Rb and Cs during the upflow process, since they can leach the elements from the wall rock.

In both the northern and the southern areas of the Beppu geothermal field, we found that the non-boiling thermal waters are classified into three groups based on the relationship between the Rb/Cs ratios and the Cl content. In the northern area, they are i) a group with high Rb/Cs ratios and a small Cl content, ii) a group with Rb/Cs ratios close to those in the boiling water

(1.9) regardless of the Cl content, and iii) a group with Rb/Cs ratios proportionally increased with the Cl content. In the southern area, they are i) a group consisting of the non-boiling thermal waters (Cl > 1500 ppm) with Rb/Cs ratios close to those of the boiling waters, ii) a group consisting of the steam-heated waters (Cl < 1500 ppm) with Rb/Cs ratios of ca. 2, and iii) a group consisting of the bicarbonate-rich waters (Cl < 1500 ppm) in relatively deep underground area with Rb/Cs higher than those of the steam-heated waters. These findings suggest that the study on the relationship between Rb/Cs ratios and the Cl content is an useful method to elucidate the migration processes of geothermal fluids.

## 1. 緒言

別府温泉には数多くの温泉が知られている。この温泉地帯には、その西方に位置する鶴見岳および伽藍岳の地下深部にあるNa-Cl型の熱水<sup>1)</sup>が、移動過程で蒸気や沸騰泉の地熱流体を形成し、さらにその熱水が天水と混合して生成された様々なタイプの温泉水が存在している。これまで別府温泉では主要化学成分<sup>2, 3)</sup>、微量成分<sup>4~6)</sup>、水素および酸素安定同位体比<sup>7)</sup>等から地熱流体の移動過程が追跡されてきた。

一方、熱水と岩石の相互作用から、温泉水中の希アルカリ元素は温泉水の持つ温度および泉質により岩石からの溶出率が異なることが知られている<sup>8~10)</sup>。Rb, CsはLiよりイオン半径がかなり大きく、それらの挙動は異なることが予想される。一般にRbはKと行動を共にし、高温な熱水程溶存量が多くなることが知られている。また、Csは炭酸物質が関与する場合はRbに比べて溶出されにくいことも報告されている<sup>11)</sup>。従って、Rb, Csの挙動を追跡することは温泉水の生成機構や移動過程を明らかにするための重要な手掛かりを与えてくれるものと考えられる。

本研究では、別府温泉地帯に存在する温泉が様々なタイプの温泉水を持つことから、別府温泉全域のRbおよびCs含量を測定し、その挙動から地熱流体の移動過程について考察した。

## 2. 試料採水地点の概要

別府温泉の地熱温泉活動は、標高1000mを超える鶴見火山群から海岸までの東西約6 km、南北約8 kmの範囲で行われ、北と南は、ほぼ東西に走る断層によって分かれている。掘削された温泉のほとんどは標高約300m以下の低地部に分布している(図1)。試料採水地点を図2-a, bに示した。今回は特に、沸騰泉、一般温泉(沸点以下)の他に、これまでRb, Cs含量の測定が不可能であった冷地下水および蒸気(自然噴気孔と噴気井からの蒸気の凝縮水)も含め、別府温泉全域の170の試料について測定を行った。なお、北岡らは、一般温泉を水素安定同位体比に基づき、 $\delta D$ 値が $-55.5\%$ よりも重い熱水混入型および蒸気加熱型のSB型と軽い重炭酸タイプのSC型に分けて地熱流体の移動過程を考察した<sup>7)</sup>。この中で両者の同位体比の違いは、水の供給域の違いを反映し、SB型の温泉は扇状地浅層を流れる地下水を主な供給源とし、SC型の水は標高の高い山体に由来し、比較的深部を経由したものであり、この区別は特に南部地域で明瞭に示され、北部地域では扇状地の中央よりと海岸域に南部地域に類似した分布傾向が見られることを報告した。著者らも便宜的に一般温泉をSB型とSC型に分けて検討を行った。

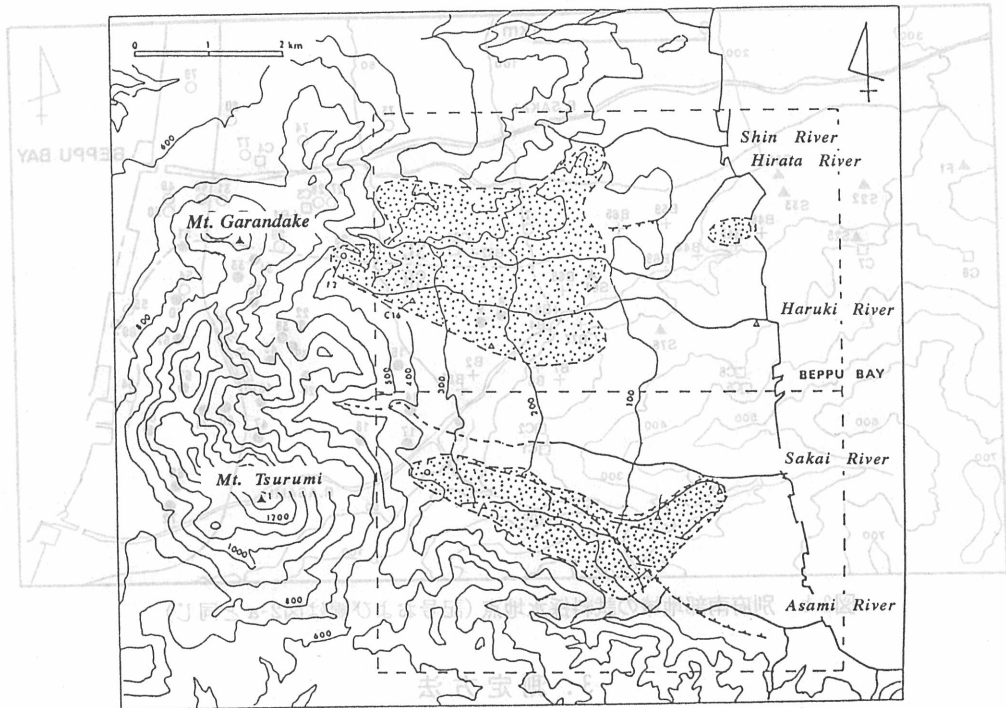


図1 別府温泉の地熱地帯

●: 自然噴気地, 噴気泉および沸騰泉の分布する範囲

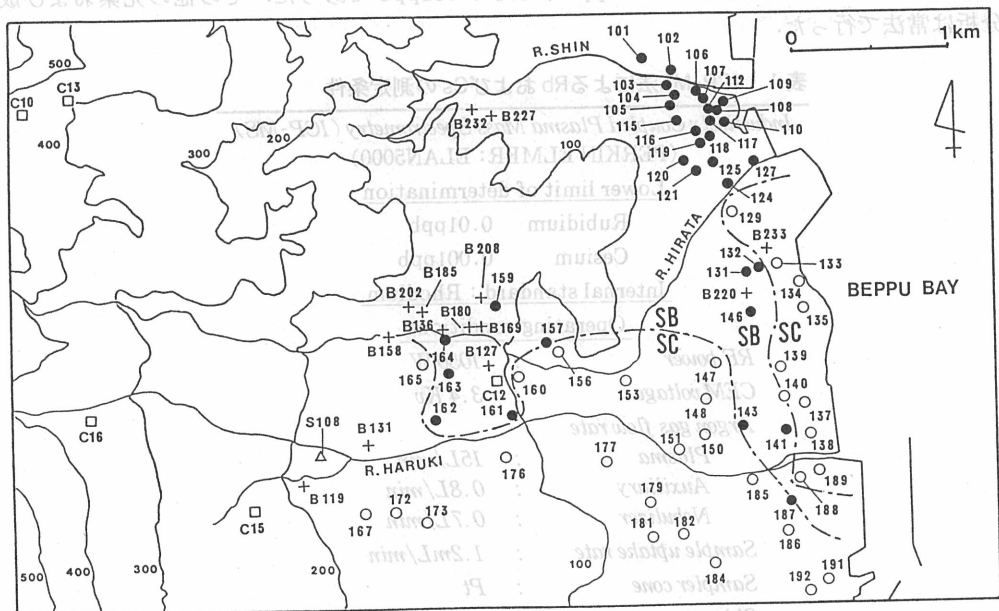


図2-a 別府温泉北部地域の試料採水地点

+ : 沸騰泉 (boil), 一般温泉 ● : SBおよび○ : SC;  
 □ : 冷地下水 (cold), ▲ : 自然噴気孔および掘削噴気井 (steam)  
 一点鎖線は一般温泉のSB型とSC型の分布境界を表す

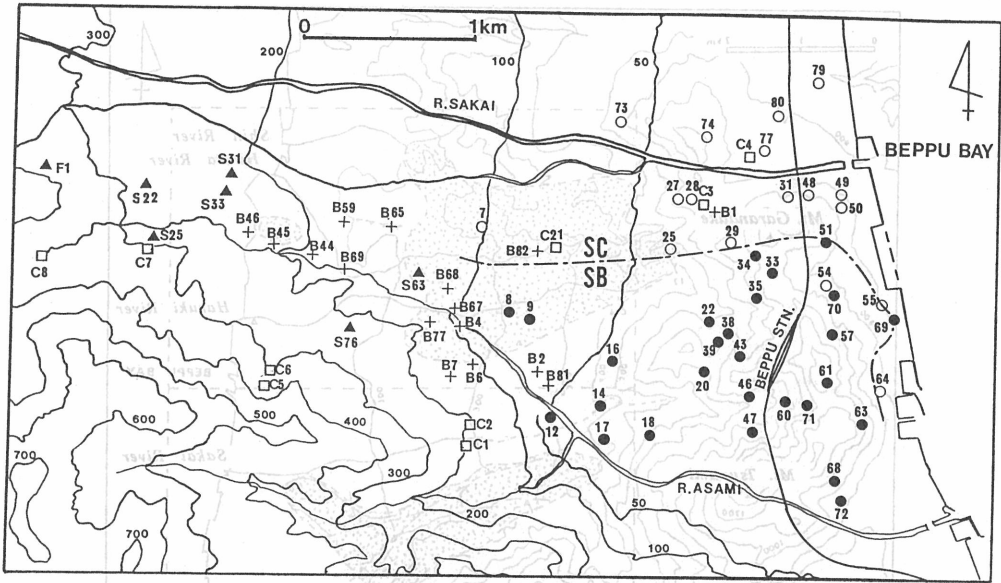


図2-b 別府南部地域の試料採水地点 (記号および線は図2-aと同じ)

### 3. 測定方法

RbおよびCs含量の分析はPERKIN ELMER社製ELAN 5000誘導結合プラズマ質量分析(ICP-MS)法を用いて行った. 表1に示した測定条件で分析した結果を表2-a, bと表3-a, bに示した. 今回測定したRbとCsの定量限界は0.01ppbおよび0.001ppbであった. その他の元素および成分の分析は常法で行った.

表1 ICP-MS法によるRbおよびCsの測定条件

*Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry (ICP-MS)*

(PERKIN ELMER: ELAN5000)

Lower limit of determination

Rubidium 0.01ppb

Cesium 0.001ppb

Internal standard: Rhodium

Operating conditions

RF power : 1050 W

CEM voltage : 3.4 Kv

Argon gas flow rate

Plasma : 15L/min

Auxiliary : 0.8L/min

Nebulizer : 0.7L/min

Sample uptake rate : 1.2mL/min

Sampler cone : Pt

Skimmer cone : Pt

Resolution : Normal

Number of replicates : 5



表2-a 別府北部地域における一般温泉の分析結果

No.	Date	Temp. ℃	pH	Na ppm	Rb ppb	Cs ppb	Rb/Cs	Cl ppm	HCO <sub>3</sub> ppm	δD ‰
SB101	Jun.89	46.2	7.87	199	120	16.0	7.50	244	230	-50.9
SB102	Jun.89	43.5	8.00	145	75.2	10.6	7.09	167	234	-53.1
SB103	Jun.89	46.8	7.81	198	96.3	13.6	7.08	239	239	-55.4
SB104	Jun.89	60.5	7.76	304	194	50.3	3.86	485	207	-53.3
SB105	Jun.89	71.8	8.01	453	301	68.9	4.37	787	173	-51.3
SB106	Mar.90	53.1	7.30	240	107	8.55	12.5	372	221	-53.1
SB107	Mar.90	48.7	7.40	352	359	131	2.74	435	170	-51.9
SB108	Mar.90	46.7	7.75	184	145	67.2	2.16	193	173	-50.2
SB109	Mar.90	59.9	7.25	565	306	21.5	14.2	1127	266	-53.1
SB111	Mar.90	61.0	7.40	422	182	24.8	7.34	812	223	-51.2
SB112	Mar.90	56.4	7.50	198	148	61.5	2.41	208	143	-54.0
SB115	Mar.90	53.9	7.75	256	185	56.2	3.29	365	124	-53.0
SB116	Mar.90	42.2	7.60	159	135	65.4	2.06	171	126	-53.9
SB117	Mar.90	41.1	7.70	184	106	22.7	4.67	211	133	-52.3
SB118	Mar.90	—	7.80	163	143	68.5	2.09	176	132	-52.0
SB119	Mar.90	51.5	7.55	163	142	69.3	2.05	174	124	-54.8
SB120	Mar.90	50.2	7.85	166	136	66.1	2.06	176	127	-54.4
SB121	Mar.90	44.5	7.52	166	142	72.8	1.95	177	135	-54.2
SB124	Mar.90	—	7.80	147	111	47.8	2.32	163	137	-54.5
SB125	Mar.90	—	7.95	143	116	56.9	2.04	151	137	-53.0
SB127	Mar.90	52.9	7.78	188	138	58.1	2.38	200	146	-54.3
SB131	Mar.90	56.6	8.50	374	217	133	1.63	402	182	-54.4
SB132	Mar.90	51.5	8.15	198	103	49.0	2.10	213	156	-54.9
SB141	Mar.90	43.6	7.78	585	285	125	2.28	826	163	-55.3
SB143	Mar.90	55.9	8.00	710	299	119	2.51	976	241	-54.7
SB146	Mar.90	77.8	8.30	530	340	234	1.45	708	165	-54.3
SB157	Mar.90	44.9	7.50	233	73.2	26.7	2.74	80.6	189	-54.3
SB159	Mar.90	33.3	7.60	150	16.9	5.76	2.93	246	137	-52.9
SB161	Mar.90	45.7	6.90	41	24.7	4.06	6.08	38.8	124	-54.0
SB162	Mar.90	—	7.00	35.3	25.1	1.59	15.8	31.0	132	-54.3
SB163	Mar.90	36.3	6.78	48	36.3	3.52	10.3	11.8	211	-52.9
SB164	Mar.90	67.6	7.55	306	148	61.6	2.40	234	186	-52.5
SB187	Mar.90	—	7.50	450	236	135	1.75	651	154	-55.2
SC129	Mar.90	43.0	7.85	139	106	32.4	3.27	161	134	-57.2
SC133	Mar.90	55.0	8.05	507	138	70.8	1.95	711	222	-58.0
SC134	Mar.90	52.0	7.75	873	506	332	1.52	1357	274	-56.5
SC135	Mar.90	55.0	8.05	262	271	130	2.08	325	178	-56.0
SC137	Mar.90	51.8	8.00	785	444	244	1.82	1160	247	-59.1
SC138	Mar.90	49.5	7.90	383	293	152	1.93	764	99	-56.3
SC139	Mar.90	43.4	8.00	570	310	186	1.67	709	161	-57.2
SC140	Mar.90	42.8	8.00	268	137	61.4	2.23	339	121	-55.5
SC147	Mar.90	63.3	8.50	384	233	141	1.65	415	262	-56.5
SC148	Mar.90	44.4	7.50	941	661	416	1.59	1459	91	-57.9
SC150	Mar.90	44.5	8.00	440	240	136	1.76	602	232	-56.6
SC151	Mar.90	32.4	7.80	392	190	132	1.44	440	257	-56.8
SC153	Mar.90	48.2	8.20	172	64.4	29.5	2.18	116	116	-57.0
SC156	Mar.90	41.6	7.20	73.9	80.2	21.7	3.70	106	106	-61.3
SC160	Mar.90	48.7	6.70	58.5	36.1	6.89	5.24	31.4	184	-55.9
SC165	Mar.90	51.5	7.20	105	124	37.2	3.33	15.1	399	-57.3
SC167	Mar.90	50.6	7.55	40.5	30.4	1.26	24.1	10.4	189	-60.2
SC172	Mar.90	34.7	7.30	34.3	25.5	1.15	22.2	6.9	144	-59.9
SC173	Mar.90	54.4	7.60	46.8	40.0	2.74	14.6	7.4	205	-59.8
SC176	Mar.90	—	8.30	243	48.5	19.5	2.49	80.6	542	-61.7
SC177	Mar.90	34.2	7.98	234	104	74.8	1.39	120	405	-59.5
SC179	Mar.90	44.8	6.35	815	692	438	1.58	1107	4	-57.5
SC181	Mar.90	41.5	7.60	191	107	81.1	1.32	217	131	-58.3
SC182	Mar.90	44.0	7.85	342	145	148	0.980	442	138	-56.5
SC184	Mar.90	50.0	7.92	435	216	205	1.05	589	144	-58.8
SC185	Mar.90	43.2	7.70	248	202	109	1.85	316	96	-58.3
SC186	Mar.90	46.0	7.65	226	192	81.4	2.36	388	179	-57.7
SC188	Jun.89	40.8	7.48	326	224	136	1.65	556	60	-55.7
SC189	Mar.90	49.0	8.00	730	420	190	2.21	976	263	-59.1
SC191	Mar.90	50.4	8.00	344	156	56.8	2.75	418	269	-59.1
SC192	Jun.89	47.8	7.80	373	187	68.2	2.74	533	182	-56.2
SC196	Jun.89	45.5	7.74	638	425	290	1.47	925	103	-56.6

表2-b 別府北部地域における沸騰泉(B), 冷地下水(C)および蒸気凝縮水[自然噴気孔(F)および掘削噴気井(S)]の分析結果

No.	Date	Temp. °C	pH	Na ppm	Rb ppb	Cs ppb	Rb/Cs	Cl ppm	HCO <sub>3</sub> ppm	δD ‰
B119	Jul.89	96.4	8.77	882	643	324	1.98	1285	76	-46.4
B127	Jun.89	98.0	8.73	631	502	369	1.36	820	71	-51.7
B131	Jun.89	97.6	8.65	888	699	434	1.61	1268	54	-52.1
B136	Jun.89	95.5	2.99	293	281	132	2.13	292	0	-53.9
B158	Jun.89	97.2	2.45	1422	1750	942	1.86	2403	0	-52.1
B169	Sep.79	99.0	5.48	1051	991	585	1.69	1545	7.9	-51.7
B180	Jun.89	99.1	3.29	1160	1130	590	1.92	1790	0	-51.1
B185	Jun.89	98.4	4.23	1188	1290	708	1.82	1856	0	-48.5
B202	Jun.89	80.0	4.14	1051	1240	688	1.80	1826	0	-49.6
B220	Jun.89	99.4	2.77	1003	972	585	1.66	1483	0	-50.1
B227	May.89	66.7	2.70	488	669	281	2.38	733	0	-49.3
B232	May.89	65.1	2.51	463	618	253	2.44	715	0	-47.1
B233	Jun.89	76.5	8.37	366	220	137	1.61	309	134	-51.9
C 10	Jun.89	15.2	6.55	5	7.13	0.601	11.9	—	41	-56.8
C 11	Jun.89	22.7	6.60	64	37.8	5.99	6.31	111	74	-52.9
C 12	Feb.80	35.5	8.30	50	41.1	1.41	29.1	24.4	8.5	-55.3
C 13	Jun.89	15.2	7.17	5	12.6	0.272	46.3	2.72	51	-55.8
C 14	Jun.89	15.1	7.20	6	10.9	0.135	80.7	2.33	26	-56.8
C 15	Jun.89	20.7	7.03	10	9.77	0.203	48.1	4.50	60	-56.9
C 16	Jun.89	17.7	6.88	9	15.5	0.264	58.7	3.14	58	-52.7
C 17	Jun.89	16.6	7.10	6	10.2	0.126	81.0	4.62	51	-53.4
C 18	Jun.89	19.9	6.74	19	16.1	0.925	17.4	17.9	83	-53.3
C 19	Jun.89	17.8	6.78	12	12.9	0.378	34.1	9.79	63	-54.6
C 20	Mar.90	21.1	8.00	24.5	24.0	2.92	8.22	26.4	95	-54.9
F 4	Jun.89	96.5	3.32	3.50	0.538	0.016	33.6	1.22	—	-53.5
F 5	Jun.89	119.3	3.95	3.37	0.425	0.009	47.2	0.498	—	-52.4
S 25	Jun.89	132.1	5.78	4.48	1.88	1.10	1.71	0.583	—	-48.4
S 31	Jul.89	98.6	5.54	4.13	0.884	0.233	3.79	0.199	—	-73.5
S 33	Jul.89	98.1	7.10	6.37	1.26	0.213	5.92	1.03	—	-74.6
S 91	Jul.89	121.3	6.52	4.18	0.736	0.177	4.16	0.203	—	-53.6
S108	Jul.89	99.1	—	4.13	0.641	0.031	20.7	0.109	—	-69.4

表3-a 別府南部地域における一般温泉の分析結果

No.	Date	Temp. °C	pH	Na ppm	Rb ppb	Cs ppb	Rb/Cs	Cl ppm	HCO <sub>3</sub> ppm	δD ‰
SB 8	Mar.89	44.7	7.55	76	45.3	19.4	2.34	30.2	546	-55.4
SB 9	Mar.89	42.8	7.40	87	50.1	21.7	2.31	42.8	443	-52.0
SB 12	Mar.89	88.5	8.32	318	245	219	1.12	173	214	-52.3
SB 14	Mar.89	47.6	7.86	144	101	84.2	1.20	165	218	-51.6
SB 16	Mar.89	56.2	7.65	112	83.7	41.5	2.02	46.6	615	-53.5
SB 17	Mar.89	44.2	7.75	107	58.5	48.6	1.20	57.9	206	-52.8
SB 18	Mar.89	48.5	7.69	152	80.0	65.0	1.23	196	332	-54.3
SB 20	Mar.89	46.7	7.60	83	49.3	23.4	2.11	43.7	423	-52.3
SB 22	Mar.89	55.0	7.50	135	92.5	67.7	1.37	69.5	424	-54.5
SB 33	Mar.89	47.4	7.89	300	119	109	1.09	186	673	-54.8
SB 34	Mar.89	54.9	8.05	390	121	129	0.938	286	636	-54.2
SB 35	Mar.89	54.2	7.95	330	143	164	0.872	309	585	-53.8
SB 38	Mar.89	34.9	7.42	73	44.1	25.6	1.72	39	298	-53.9
SB 39	Mar.89	54.1	7.90	181	77.0	67.6	1.14	80	608	-53.9
SB 43	Mar.89	54.1	8.00	225	80.7	65.8	1.23	118	582	-54.7
SB 46	Mar.89	45.7	7.39	118	76.9	37.9	2.03	57.6	566	-54.2
SB 47	Mar.89	40.0	7.30	96	58.4	25.6	2.28	114	344	-54.2
SB 51	Mar.89	53.4	7.30	310	146	5.07	28.8	197	965	-55.3
SB 57	Mar.89	53.4	7.44	133	67.6	52.5	1.29	61.4	435	-54.1
SB 60	Mar.89	50.3	7.49	98	59.3	31.4	1.89	61.5	455	-52.1
SB 61	Mar.89	39.4	7.53	83	40.4	18.6	2.17	45.2	340	-53.5
SB 63	Mar.89	57.7	7.41	182	99.5	40.9	2.43	210	641	-55.4
SB 64	Mar.89	43.0	7.25	90	43.5	27.6	1.58	99	377	-51.9
SB 68	Mar.89	48.7	7.75	144	55.2	2.05	26.9	159	335	-52.9
SB 69	Mar.89	52.6	8.09	254	134	25.5	5.25	187	813	-54.8
SB 70	Mar.89	51.1	8.01	308	105	71.3	1.47	192	714	-54.8

SB 71	Mar.89	50.9	7.15	101	57.3	32.0	1.79	69.2	461	-52.6
SB 72	Mar.89	53.4	7.19	230	102	5.02	20.3	176	666	-54.5
SC 7	Mar.89	51.1	7.60	138	71.1	8.95	7.94	74.4	760	-56.0
SC 25	Mar.89	48.0	7.75	94	50.8	50.1	1.01	41.1	364	-56.5
SC 27	Mar.89	54.9	7.51	228	104	47.9	2.17	114	1190	-57.6
SC 28	Mar.89	52.0	7.60	212	90.0	28.6	3.15	118	1130	-56.8
SC 29	Mar.89	47.2	8.01	206	90.9	110	0.826	84.3	508	-55.9
SC 31	Mar.89	55.8	8.02	225	93.1	5.09	18.3	113	680	-57.3
SC 48	Mar.89	53.9	7.49	256	139	13.9	10.0	131	1210	-56.9
SC 49	Mar.89	44.9	7.55	206	110	2.30	47.8	109	922	-57.7
SC 50	Mar.89	45.8	7.40	230	142	5.79	24.5	119	1280	-58.1
SC 54	Mar.89	61.2	7.79	242	95.7	61.2	1.56	155	773	-56.1
SC 55	Mar.89	51.6	8.10	253	56.9	1.29	44.1	109	526	-57.7
SC 73	Mar.89	37.6	7.71	124	59.8	0.215	278	76.1	614	-57.0
SC 74	Mar.89	47.8	7.71	124	50.6	0.105	482	68.7	564	-56.0
SC 77	Mar.89	48.5	7.70	191	99.9	0.862	116	103	998	-56.3
SC 79	Mar.89	43.9	7.50	125	80.5	2.81	28.6	139	727	-56.2
SC 80	Mar.89	40.4	7.99	143	61.8	0.405	153	67.4	632	-56.8

表3-b 別府南部地域における沸騰泉(B), 冷地下水(C)および蒸気凝縮水[自然噴気孔(F)および掘削噴気井(S)]の分析結果

No.	Date	Temp. C	pH	Na ppm	Rb ppb	Cs ppb	Rb/Cs	Cl ppm	HCO <sub>3</sub> ppm	δD ‰
B 1	May.89	98.6	8.97	322	137	213	0.643	240	409	-55.0
B 2	Jun.89	98.9	9.04	436	345	367	0.940	594	131	-51.1
B 4	Jun.89	98.7	9.30	384	288	288	1.00	377	190	-51.8
B 6	Jul.89	99.2	8.76	669	702	640	1.10	947	94	-52.5
B 7	Jun.89	99.3	8.74	524	487	477	1.02	771	95	-52.1
B 44	Jun.89	98.0	8.63	558	485	382	1.27	677	90	-48.0
B 45	Jul.89	98.7	8.60	1021	1030	782	1.32	1516	71	-50.5
B 46	Jul.89	98.8	8.59	910	1140	629	1.81	1192	86	-49.6
B 59	Jul.89	98.1	9.09	152	86.6	57.8	1.50	46.8	246	-49.8
B 65	Jun.89	98.9	9.33	327	220	183	1.20	111	641	-53.3
B 67	Jun.89	99.3	9.22	298	204	192	1.06	168	251	-53.2
B 68	Jun.89	99.3	9.18	264	174	135	1.29	84.8	472	-52.7
B 69	Jun.89	98.8	9.32	306	250	186	1.34	126	171	-52.2
B 77	Jul.79	99.5	8.60	535	406	401	1.01	606	99	-50.6
B 77	Jun.89	98.7	9.25	371	281	280	1.00	262	155	-50.9
B 81	Jul.89	96.5	8.47	403	216	244	0.885	351	237	-51.9
B 82	Dec.88	87.3	8.53	233	118	129	0.915	77.5	494	-55.4
C 1	May.89	—	—	25.0	3.86	2.51	1.54	4.67	—	-51.2
C 2	Aug.77	28.1	7.75	16	25.8	0.950	27.2	17.5	141	-52.8
C 3	May.89	23.4	7.00	54	25.1	0.880	28.5	57.4	110	-53.3
C 4	May.89	23.3	5.80	49	10.7	0.987	10.8	42.1	142	-54.2
C 5	Jun.89	18.0	7.75	7	13.4	0.603	22.2	3.03	47	-57.8
C 6	Jun.89	19.6	7.40	25	1.33	0.073	18.2	21.4	112	-56.6
C 7	Jun.89	19.3	2.81	16	9.82	0.094	104	12.0	0	-52.3
C 8	Jun.89	20.1	7.25	26	14.8	0.676	21.9	23.9	109	-57.4
C 9	Jun.89	13.6	7.77	5	9.76	0.144	67.8	3.24	38	-55.5
F 1	Jun.89	99.3	—	3.34	0.383	0.010	38.3	0.317	—	-58.9
S 22	Jul.89	98.1	7.38	235	26.3	7.64	3.44	38.8	104	-46.5
S 63	Jun.89	115.1	7.62	3.9	1.46	1.06	1.38	0.397	—	-75.2
S 72	Jul.89	98.9	6.07	4.28	1.20	0.848	1.42	0.349	—	-66.6
S 76	Jul.89	99.0	6.86	57	55.0	40.5	1.36	85.8	0	-70.9

4. 結果および考察

pHとRbの関係を図3に示した。Rb含量は、北部地域では弱アルカリ性側に比べpH 2.5~5.5の酸性側に高い値が見られた。一方、南部地域ではpH 8.5~9.3の弱アルカリ性側にのみ高い値が見られ、両地域で明らかに異なる分布を示した。この傾向はCsでも同様であった。

北部地域では、伽藍岳の地下深部にNa-Cl型の熱水が形成されていると考えられている<sup>1)</sup>。ア

ルカリ性側にある試料を深部熱水のRb/Cl (重量)比の値と仮定すると、酸性沸騰泉はそれよりも高い比を示しているものが多い。このことは、一般に岩石中にはCl含量が少なく、岩石からの溶出も少ないと考えられるので、酸性沸騰泉は深部熱水に含まれていた硫化水素ガスが地表近くで硫酸(酸性沸騰泉のSO<sub>4</sub>含量は他の沸騰泉に比べ多い<sup>12)</sup>)に酸化され、その硫酸が湧出過程にある壁岩からRb, Csを二次的に溶出付加させて生成されているものと推察される。

泉温とClの関係を図4に示した。北部、南部の両地域共SB型、SC型の温度範囲は30~60℃位であるが、北部地域のSB型にはそれよりも若干高いものが見られる。なお、北部地域の沸騰泉の中で泉温の低い試料が幾つか見られるが、これらは源泉と採水地点が異なるためである。

温泉の主成分であるNaとClの関係を見ると(図5)、北部地域では沸騰泉のはぼ線上にSB型、SC型が位置していることから、SB型、SC型は蒸気によって暖められた天水と沸騰泉との混合によって生成されているものと考えられるが、これらの生成機構については後で詳しく考察する。南部地域では沸騰泉のプロットの傾きとSB型、SC型のプロットの傾きが極端に異なることから天水による単純な希釈では説明できない。そこでHCO<sub>3</sub>とClとの関係を見ると(図6)、北部地域の沸騰泉にはHCO<sub>3</sub>がほとんど含まれていないことがわかる。また、SB型、SC型のHCO<sub>3</sub>含量も少なくCl含量の増加に対してHCO<sub>3</sub>含量にはほとんど変化が見られない。逆に南部地域の沸騰泉には100ppm前後のHCO<sub>3</sub>が含まれている。また、Cl含量の少ないSB型、SC型でも北部地域に比べHCO<sub>3</sub>を多く含んでいることから、南部地域では火山性<sup>3)</sup>あるいは非火山性<sup>13)</sup>からのCO<sub>2</sub>の寄与がかなり大きく、この点からも両地域で温泉水の生成機構がかなり異なっていることが示唆される。

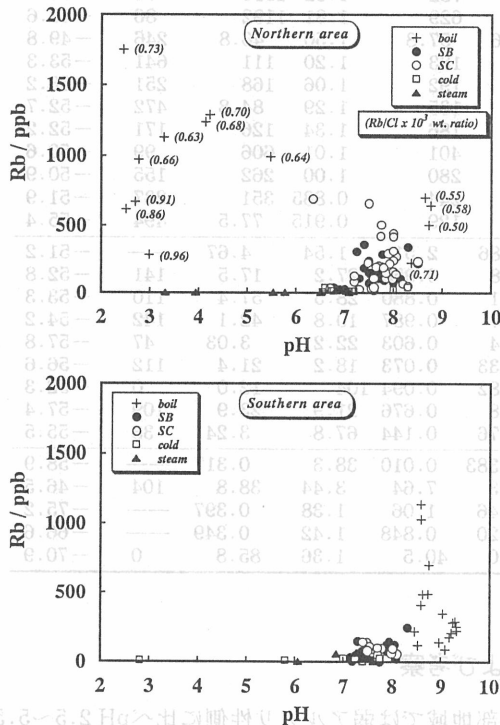


図3 別府温泉におけるpHとRb含量との関係  
北部地域の( )内の値はRb/Cl (重量)比を表す

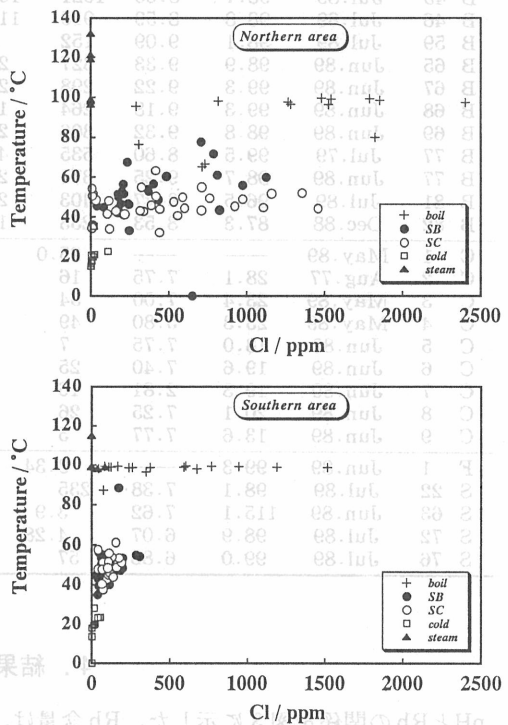


図4 別府温泉における泉温とCl含量との関係

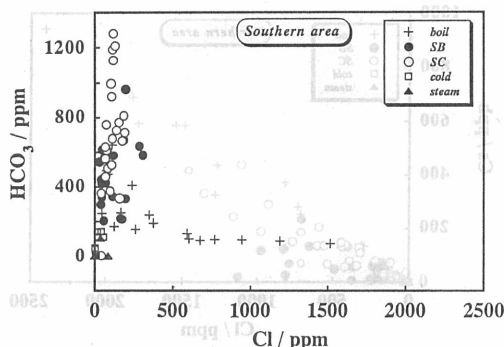
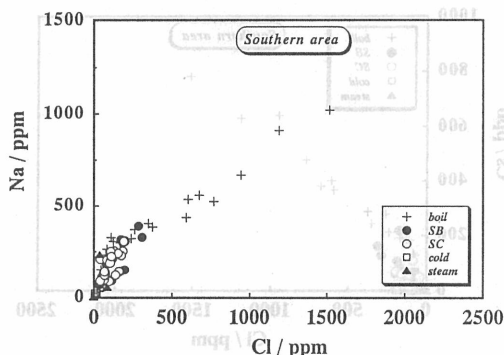
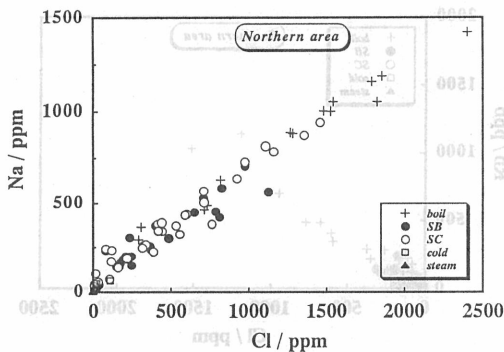


図5 別府温泉におけるNa含量とCl含量との関係

図6 別府温泉におけるHCO<sub>3</sub>含量とCl含量との関係

Rb およびCs とClとの関係を図7に示した。北部地域および南部地域のSB型、SC型の分布には明らかな違いが見られる。沸騰泉のCl含量は北部地域が多く、SB型、SC型のCl含量も南部地域に比べ北部地域ではかなり多い。また、沸騰泉、SB型、SC型の傾きの傾向も北部地域と南部地域では異なっている。蒸気は泉温が高いにもかかわらずRb、Csはほとんど含まれていない。このことは熱水が気液分離する過程で蒸気中にはRb、Csがほとんど移行されていないためと考えられる。一方、Rb およびCs とHCO<sub>3</sub>との関係(図8)では、北部、南部地域共にHCO<sub>3</sub>含量の少ない沸騰泉にRb、Csが多く含まれている。また、北部地域ではHCO<sub>3</sub>とRbおよびCsの関係は似た傾向を示しているが、南部地域では若干異なっている。特に南部地域のSB型、SC型では、HCO<sub>3</sub>含量が多くなるとRb含量も増える傾向にあるが、Csではそのような傾向は見られない。山下は別府温泉のアルカリ元素の起源を岩石からの溶出で説明し、Csの岩石からの溶出は炭酸物質が関与する場合は著しく少なくなると報告しており<sup>11)</sup>、このことから結果と整合的である。

次に、地熱流体の移動過程を調べるために、北部および南部地域の一般温泉(SB型、SC型)について詳しく考察を行った。

【北部地域】

Rb およびCs とClとの関係を図9-aに示した。Rb とClとの関係では、SB型、SC型共に高い相関関係が見られる。また、CsとClとの関係では、SC型のみ高い相関が見られる。しかし、図9-bに示した平田川以北の低地部の温泉と平田川以南(SB157, 159, SC156を含む)の温泉のRb およびCs とClとの関係では平田川以北の低地部の温泉を除くとSB型でも高い相関が見られ、RbではSB型とSC型で同様な傾きを示した。一方、平田川以北の低地部の温泉のRb含量はClの増加に伴い

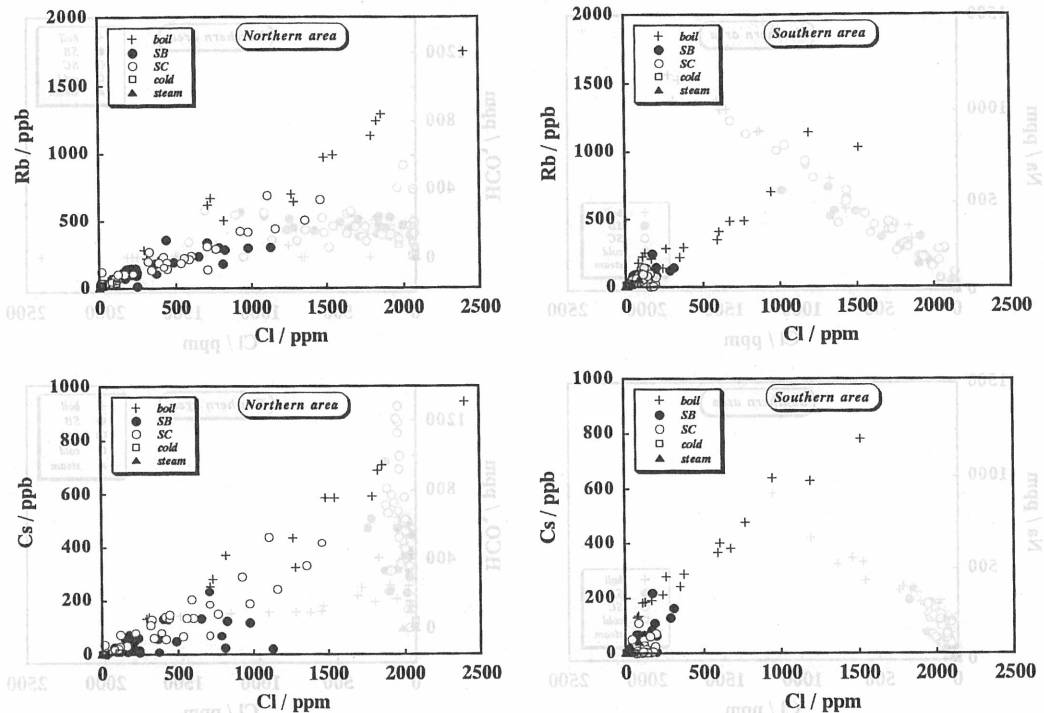


図7 別府温泉におけるRbおよびCs含量とCl含量との関係

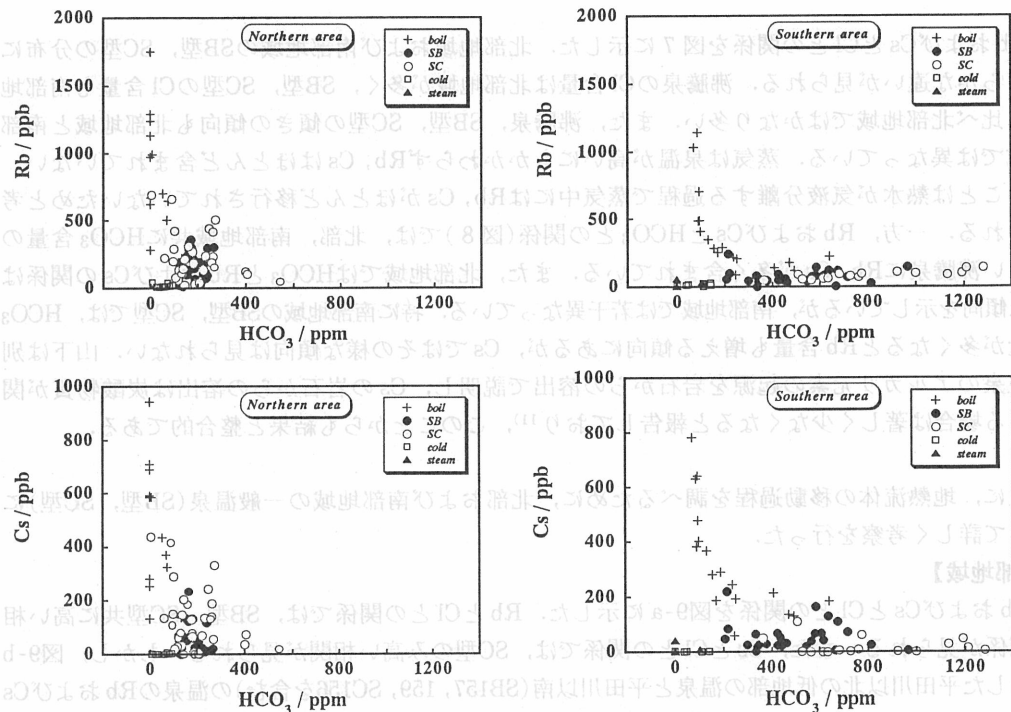


図8 別府温泉におけるRbおよびCs含量とHCO<sub>3</sub>含量との関係



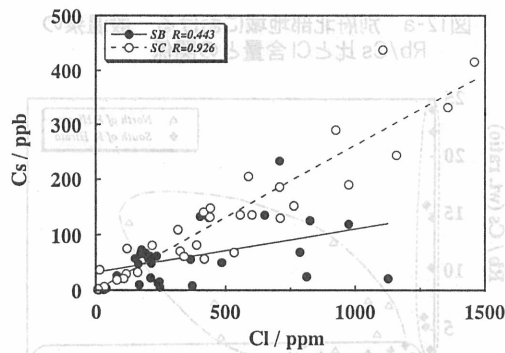
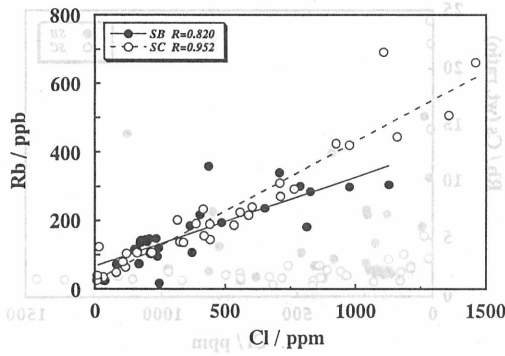


図9-a 別府北部地域における一般温泉のRb およびCs 含量とCl 含量との関係

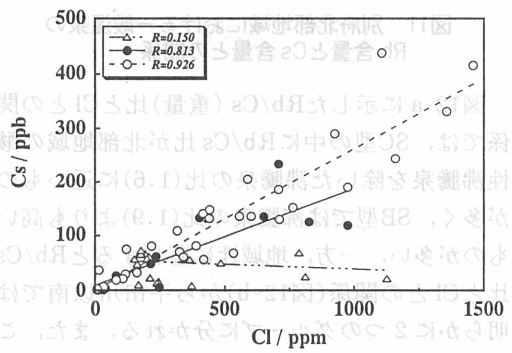
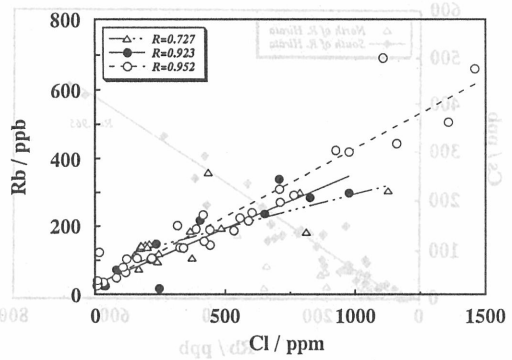


図9-b 別府北部地域の平田川以北および以南における一般温泉のRb およびCs 含量とCl 含量との関係  
△：平田川以北の低地部，平田川以南の●：SB および○：SC

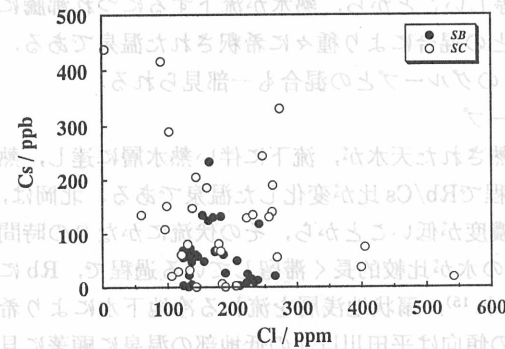
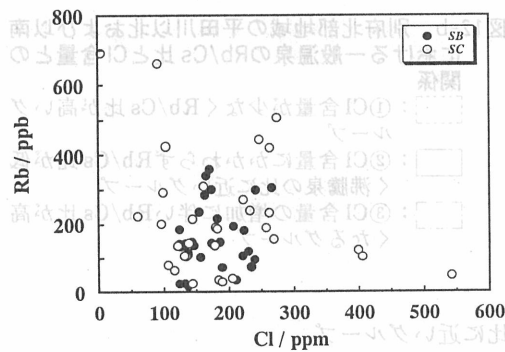


図10 別府北部地域における一般温泉のRb およびCs 含量とHCO<sub>3</sub> 含量との関係

ほぼ直線的な増加傾向を示すが、Cs ではCl が増加してもその含量にほとんど変化が認められなかった。

Rb およびCs とHCO<sub>3</sub> との関係(図10)から、北部地域はHCO<sub>3</sub> 含量が少ないことから南部地域ほど明瞭な関係は見られないが、特に南部地域と異なっている点はRb, Cs 共に似た傾向を示していることである。SC型ではHCO<sub>3</sub> 含量の増加に伴いRb, Cs 含量は共に減少傾向を示し、Cl 含量の多い温泉はHCO<sub>3</sub> 含量が少ない。この傾向は春木川以南の温泉に明瞭に現れている。

Rb とCs の関係を図11に示した。ここでも平田川以北の低地部の温泉を除けば、SB型、SC型にかかわらず高い相関関係(R=0.965)を示した。これらのことから、北部地域の地熱流体の移動過程を説明するためには、地域性も考慮に入れて考察する必要があると考えられる。

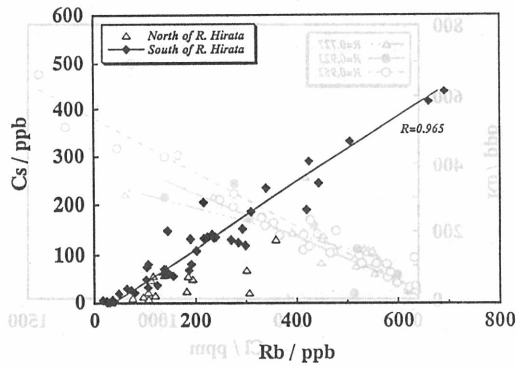


図11 別府北部地域における一般温泉の Rb 含量とCs 含量との関係

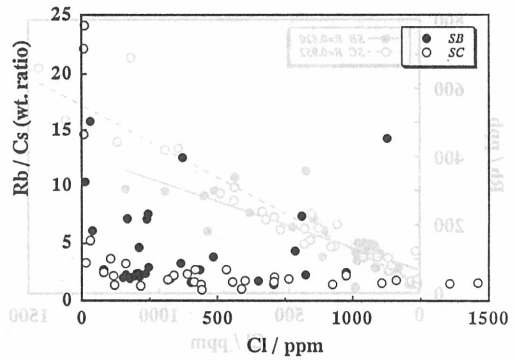


図12-a 別府北部地域における一般温泉の Rb/Cs 比とCl 含量との関係

図12-a に示したRb/Cs (重量)比とClとの関係では、SC型の中にRb/Cs比が北部地域の酸性沸騰泉を除いた沸騰泉の比(1.6)に近いものが多い、SB型では沸騰泉の比(1.9)よりも高いものが多い。一方、地域性に着目するとRb/Cs比とClとの関係(図12-b)から平田川以南では明らかに2つのグループに分かれる。また、この2つのグループに属さない温泉が平田川以北の低地部の温泉である。以上から、北部地域の一般温泉は次の3つのタイプに分けられた。

1. Cl含量が少なくRb/Cs比が高いグループ

これらは、SB型、SC型にかかわらず平田川以南の標高100~200mの沸騰泉に近いところに存在し、他と比べてRb、Cs含量が少ないことから、浅層の冷地下水が深部からの蒸気によって暖められた温泉である。このことは、別府地域の冷地下水のRb/Cs比が高いことから支持される。

2. Cl含量にかかわらずRb/Cs比が低く沸騰泉の比に近いグループ

Rb/Cs比が北部地域の沸騰泉の比(1.9)とほぼ等しいことから、熱水が流下するにつれ沸騰による潜熱で温度が下がり、塩分の高い温泉が天水との混合により種々に希釈された温泉である。また、このグループには標高約50~100m付近で1のグループとの混合も一部見られる。

3. Cl含量の増加に伴いRb/Cs比が高くなるグループ

熱水から分離した蒸気が天水を加熱し、この加熱された天水が、流下に伴い熱水層に達し、熱水は新しい天水の混入を受けて低温化し、その過程でRb/Cs比が変化した温泉である。北岡は、新川に沿うように流下している温泉はトリチウム濃度が低いことから、その伏流にかなりの時間を要していることを報告した<sup>14)</sup>。従って、これらの水が比較的長く滞留している過程で、Rbに比べ、Csが相対的に多く粘土鉱物などに取り込まれ<sup>15)</sup>、扇状地浅層を流れる冷地下水により希釈されて生成された温泉であると推定できる。この傾向は平田川以北の低地部の温泉に顕著に見られる。

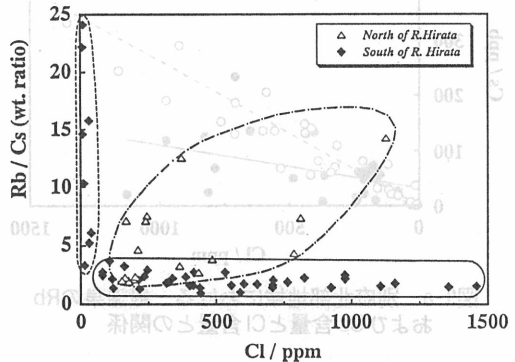
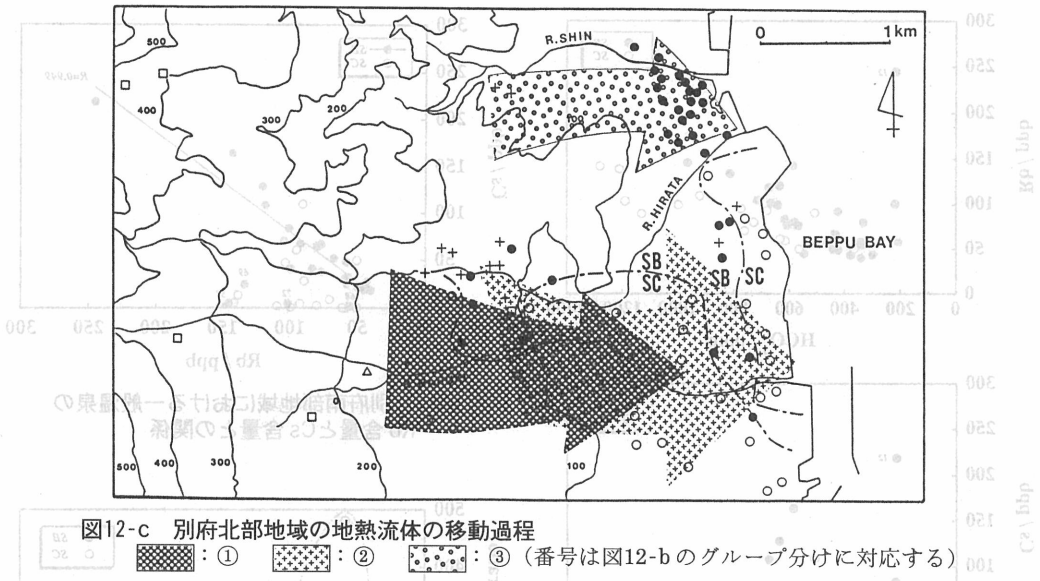


図12-b 別府北部地域の平田川以北および以南における一般温泉のRb/Cs比とCl含量との関係

- ① Cl含量が少なくRb/Cs比が高いグループ
- ② Cl含量にかかわらずRb/Cs比が低く沸騰泉の比に近いグループ
- ③ Cl含量の増加に伴いRb/Cs比が高くなるグループ



これらの結果から、北部地域の地熱流体の移動過程は図12-cに示したような3つの流れが考えられた。

【南部地域】

Rb および Cs と Cl との関係を図13に示した。Rb と Cl との関係では、SB型(12を除く)、SC型共に相関がみられるが、SB型では、Cl 含量と Rb 含量が共に多いグループと少ないグループに分かれる。この少ないグループは、地下水が蒸気の混入を受けて  $\text{HCO}_3^-$  を得た温泉水であり、多いグループは、NaCl を主成分とする熱水が地下水に混入した熱水性の温泉水と考えられる。しかし、Cs と Cl との関係では、この熱水性の温泉水の中でも Cs 含量の少ない温泉水がいくつか見られる。

北岡らは  $\delta\text{D}$  と  $\delta^{18}\text{O}$  の関係から、南部地域の Cl 濃度の低い温泉水は、 $\text{HCO}_3^-$  濃度の違いによって2つのグループに分かれることを見いだしている<sup>7)</sup>。Rb と  $\text{HCO}_3^-$  の関係(図14)からも、 $\text{HCO}_3^-$  の多いSC型のグループと少ないSB型のグループに分かれ、Cl 含量の少ないSC型の温泉水は  $\text{HCO}_3^-$  含量が多い。一方、Cs との関係では  $\text{HCO}_3^-$  含量の増加に伴い Cs 含量が減少する傾向がみられ、SB型、SC型の中で Cs がほとんど含まれていないものに  $\text{HCO}_3^-$  含量が多い。このことは Cs 含量の多い熱水混入型の温泉水に重碳酸タイプ

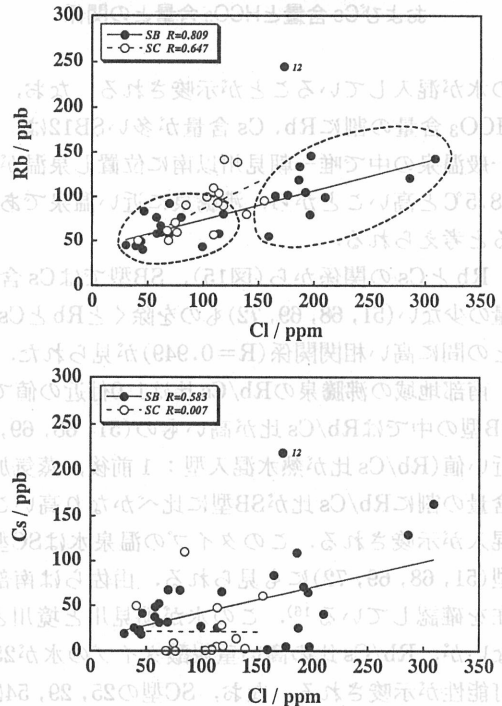


図13 別府南部地域における一般温泉の Rb および Cs 含量と Cl 含量との関係

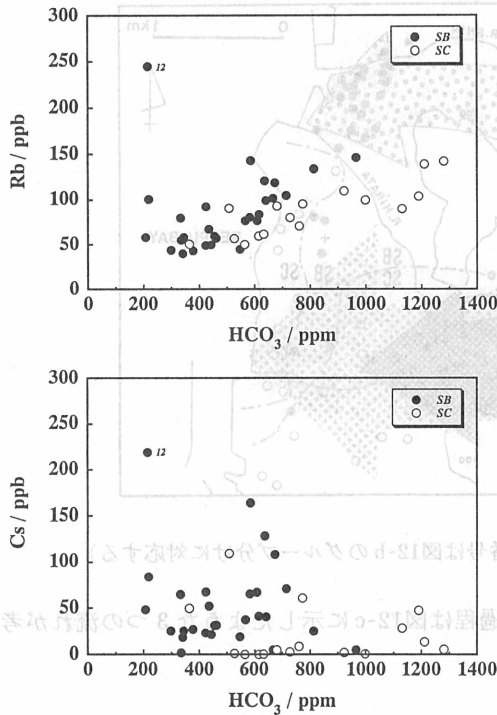


図14 別府南部地域における一般温泉のRbおよびCs含量とHCO<sub>3</sub>含量との関係

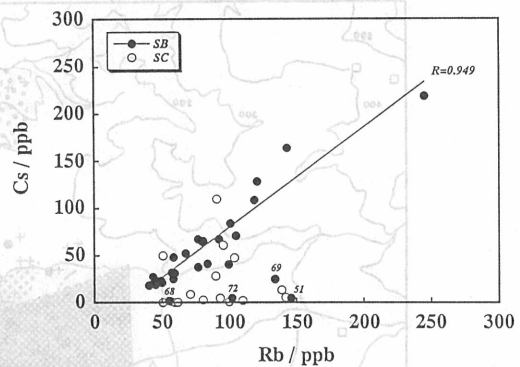


図15 別府南部地域における一般温泉のRb含量とCs含量との関係

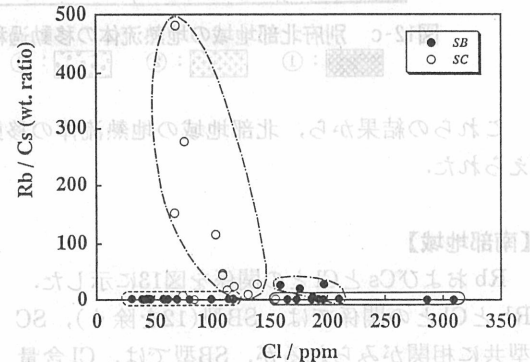


図16-a 別府南部地域における一般温泉のRb/Cs比とCl含量との関係

- : ①Rb/Cs比が沸騰泉の比に近い熱水混入型のグループ
- : ②Rb/Cs比が2前後の蒸気加熱型のグループ
- : ③Rb/Cs比が蒸気加熱型よりも高く比較的深部を流れる温泉水のグループ

の水が混入していることが示唆される。なお、HCO<sub>3</sub>含量の割にRb, Cs含量が多いSB12は、一般温泉の中で唯一朝見川以南に位置し泉温が88.5℃と高いことから、沸騰泉に近い温泉であると考えられる。

RbとCsの関係から(図15), SB型ではCs含量の少ない(51, 68, 69, 72)ものを除くとRbとCsとの間に高い相関関係(R=0.949)が見られた。

南部地域の沸騰泉のRb/Cs比は1.0付近の値であった。Rb/Cs比とClの関係(図16-a)を見ると、SB型の中ではRb/Cs比が高いもの(51, 68, 69, 72)を除くと他は熱水混入型か蒸気加熱型の比に近い値(Rb/Cs比が熱水混入型: 1前後, 蒸気加熱型: 2前後)を示している。一方、SC型ではCl含量の割にRb/Cs比がSB型に比べかなり高いことや、図14からRbに富んだ重炭酸タイプの水の混入が示唆される。このタイプの温泉水はSC型だけでなく、朝見川と境川との間の海岸域のSB型(51, 68, 69, 72)にも見られる。由佐らは南部地域の深さ300m付近にHCO<sub>3</sub>濃度の高い水の存在を確認している<sup>16)</sup>。この水が朝見川と境川との間の海岸域に直接伏流しているかは断定できないが、Rb/Cs比の高い重炭酸タイプの水が250m以深を上流から海岸域に向かって流れている可能性が示唆される。なお、SC型の25, 29, 54は熱水混入型の比に近い値を示している。

これらのことから、RbおよびCs含量から見た南部地域の地熱流体と天水の混合の結果生成された一般温泉は、1) Rb, Csを多く含む熱水混入型(Cl>150ppm)の温泉水。2) 浅層で地下水が蒸気の混入を受けて重炭酸を得た、Rb, Cs含量の少ない温泉水(蒸気加熱型: Cl<150ppm)。

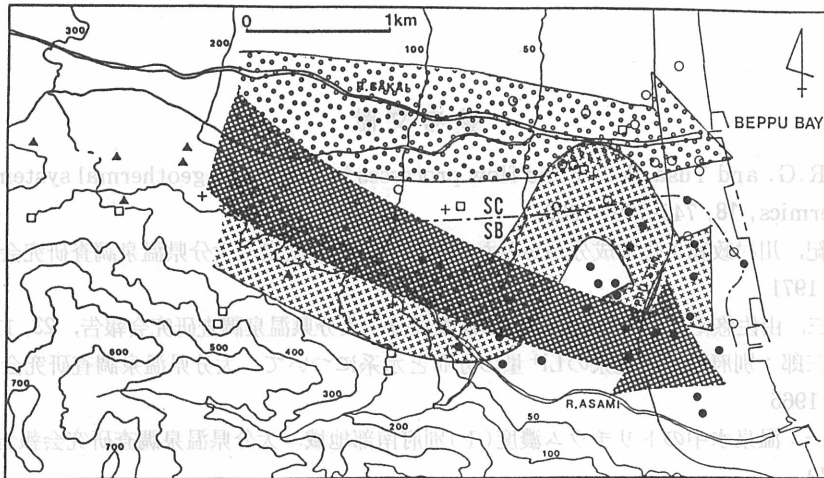


図16-b 別府南部地域の地熱流体の移動過程

① : ①    ② : ②    ③ : ③ (番号は図16-a のグループ分けに対応する)

3) 境川沿いおよび朝見川と境川との間の海岸域に見られるHCO<sub>3</sub>含量が多く(Cl<150ppm), Rb, Cs含量は沸騰泉に比べ少ないけれども, Rb/Cs比の高い比較的深部(250m以深)を流れる温泉水の3つのタイプに分けられた.

これらの結果から, 南部地域の地熱流体の移動過程は図16-bに示したような3つの流れが考えられた.

以上からRb/Cs比とClとの関係は別府温泉の地熱流体の移動過程を解明する有効な手段と成り得ることがわかった.

### 5. ま と め

1. 別府温泉のRb, Cs含量は北部, 南部地域とも沸騰泉が最も高く, 最高値はそれぞれ北部地域 Rb: 1750ppb, Cs: 942ppb, 南部地域 Rb: 1140ppb, Cs: 782ppbを示した. 次いでHCO<sub>3</sub>を含む一般温泉(SB型, SC型)が高かったが, 北部地域の平田川以南のSC型に特に高いものが見られた. また, 冷地下水および蒸気は微量であった.

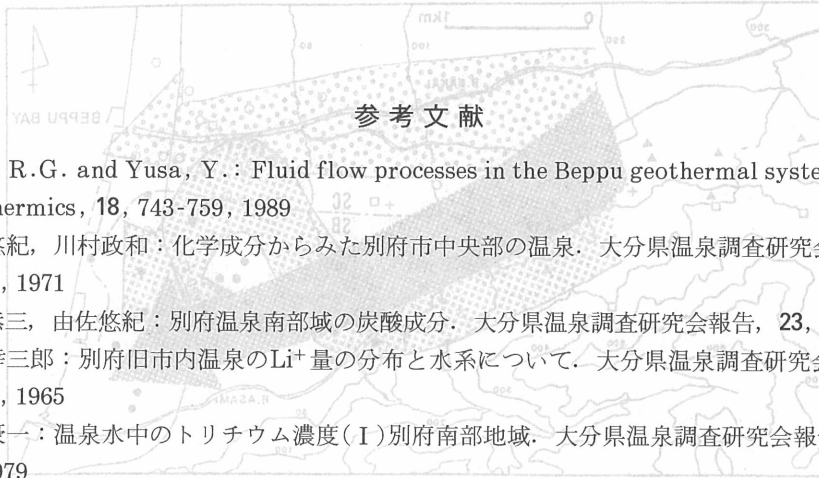
2. Rb, Cs含量は北部地域でpH 2.5~5.5の酸性側に, 南部地域ではpH 8.5~9.3の弱アルカリ性側に高い値を示すものが多く, 両地域において異なる分布を示した. 北部地域の酸性沸騰泉は, 深部熱水に含まれていた硫化水素ガスが地表近くで硫酸に酸化され, 湧出過程にある壁岩からRb, Csを二次的に溶出付加させて生成されているものと推察された.

3. 一般温泉は, 別府温泉の地熱流体の複雑な移動過程を反映しているものと考えられる.

Rb/Cs比とClとの関係から, 別府温泉における一般温泉は, 北部地域では, Cl含量が少なくRb/Cs比が高いグループとCl含量にかかわらずRb/Cs比が低く沸騰泉の比(1.9)に近いグループおよびCl含量の増加に伴いRb/Cs比が高くなるグループの3つのタイプに分かれた. 一方, 南部地域では, Rb/Cs比が沸騰泉の比(1.0)に近い熱水混入型(Cl>150ppm)とRb/Cs比が2前後の蒸気加熱型(Cl<150ppm)およびRb/Cs比が蒸気加熱型よりも高く比較的深部を流れる温泉(Cl<150ppm)の3つのタイプに分かれた.

以上からRb/Cs比とClとの関係は地熱流体の移動過程を解明する有効な手段と成ることがわ

かった。



参考 文献

- 1) Allis, R.G. and Yusa, Y.: Fluid flow processes in the Beppu geothermal system, Japan. *Geothermics*, **18**, 743-759, 1989
- 2) 由佐悠紀, 川村政和: 化学成分からみた別府市中央部の温泉. 大分県温泉調査研究会報告, **22**, 55-65, 1971
- 3) 吉川恭三, 由佐悠紀: 別府温泉南部域の炭酸成分. 大分県温泉調査研究会報告, **23**, 11-19, 1972
- 4) 山下幸三郎: 別府旧市内温泉のLi<sup>+</sup>量の分布と水系について. 大分県温泉調査研究会報告, **16**, 44-47, 1965
- 5) 北岡豪一: 温泉水中のトリチウム濃度(I)別府南部地域. 大分県温泉調査研究会報告, **30**, 19-27, 1979
- 6) Kitaoka, K.: Water circulation rates in a geothermal field: a study of tritium in the Beppu hydrothermal system, Japan. *Geothermics*, **19**, 515-539, 1990
- 7) 北岡豪一, 由佐悠紀, 神山孝吉, 大沢信二, Stewart, M.K., 日下部 実: 水素と酸素の安定同位体比からみた別府温泉における地熱流体の移動過程. 地下水学会誌, **35**, 287-305, 1993
- 8) 野田徹郎, 古賀昭人: 九重・大岳八丁原地区深部熱水の微量成分. 大分県温泉調査研究会報告, **24**, 64-73, 1973
- 9) 山下幸三郎: 大岳, 八丁原地区熱水の生成機構(II)地下岩石の化学成分からみた地熱地帯における熱水の動向. 九電研究期報, **42**, 1-22, 1974
- 10) 山下幸三郎: 別府温泉水中のアルカリイオンについて. 温泉科学, **25**, 12-20, 1974
- 11) 山下幸三郎: 九重火山地域における温泉水系(IV)温泉水中のアルカリ元素について. 大分県温泉調査研究会報告, **23**, 20-29, 1972
- 12) 北岡豪一, 由佐悠紀, 神山孝吉, Stewart, M.K.: 別府温泉の水素・酸素安定同位体比(2)別府北部地域. 大分県温泉調査研究会報告, **43**, 3-15, 1992
- 13) 古賀昭人: 温泉水中のヒドロ炭酸イオンの生成機構. 大分県温泉調査研究会報告, **20**, 59-62, 1969
- 14) 北岡豪一: 温泉水中のトリチウム濃度(III)別府亀川地区. 大分県温泉調査研究会報告, **32**, 1-6, 1981
- 15) Giggibach, W. F. and Goguel, R. L.: Collection and analysis of geothermal and volcanic water and gas discharges. DSIR New Zealand, Report No. CD 2401, 1-81, 1989
- 16) 由佐悠紀, 北岡豪一, 神山孝吉, 竹村恵二: 掘削による地下温泉水の層構造の検出—別府温泉南部地域での試み—. 温泉科学, **44**, 39-44, 1994