
原 著

大分平野の深部に賦存される有馬型熱水の起源

京都大学大学院理学研究科附属地球熱学研究施設 (*現在 : 中国地震局解析予知センター)

網田和宏, 大沢信二, 杜 建国*, 山田 誠

(平成 17 年 6 月 24 日受付, 平成 17 年 9 月 2 日受理)

Origin of Arima-Type Deep thermal Water from Hot Spring Wells in Oita Plain, eastern Kyushu, Japan

Kazuhiro AMITA, Shinji OHSAWA, Jianguo DU* and Makoto YAMADA

Beppu Geothermal Research Laboratory, Institute for Geothermal Sciences,
Graduate School of Science, Kyoto University

(* Present affiliation : Institute of Earthquake Prediction, China Seismological Bureau)

Abstract

Chemical and isotopic compositions : concentrations of major and trace dissolved constituents, δD and $\delta^{18}O$ of water and $\delta^{13}C$ of dissolved inorganic carbon (DIC), of hot and cold spring waters of Na-Cl, HCO_3 type collected from deep wells and natural springs in the Oita plain, eastern Kyushu, Japan are reported and the origins of the spring waters are discussed. Most δD and $\delta^{18}O$ data of the spring water samples are plotted near the local meteoric water line in the diagram of $\delta^{18}O$ versus δD , but two of them scatter far away the line and near the point of "Arima-type deep thermal water". The two water samples have very high Cl concentration (24,000 mg/l and 19,000 mg/l) and extremely high δD and $\delta^{18}O$ values (-22.2% , -27.1% and $+2.7\%$, $+1.9\%$, respectively). Such high values in water isotope composition imply that these saline waters are originated from andesitic magmatic steam or metamorphic water. Concentrations and $\delta^{13}C$ values of DIC in the two heavy waters are 24,000 mg/l, 19,000 mg/l and -3.8% , -3.2% , respectively. Reciprocals of concentrations and $\delta^{13}C$ values of DIC of all the hot and cold spring water samples including the two heavy water samples display a linear relationship, and, consequently, DIC in the hot and cold spring waters is a gradual mixture of soil CO_2 and deep-originated CO_2 (magmatic or mantle-derived), and the greater part of the DIC in the heavy waters consists of the deep-originated CO_2 . Therefore, it is appropriate that the saline thermal waters having high δD and $\delta^{18}O$ with high- $\delta^{13}C$ CO_2 found in the Oita plain are derived from the Earth's interior. δD values of the hot and cold spring water samples are in direct proportion to respective concentrations of Li and B. These relations also express that the formation of the hot and cold spring waters in the Oita plain can be explained by the mixture model of two end-members ; one is groundwater of meteoric origin having low δD and low Li and B concentrations, and the other is deep-originated thermal water having high δD and high Li and B concentrations. The latter is likely to

be the fluid devolatilized from the subducting oceanic plate as pieced together from the various accounts, and, furthermore, its formation should have no relation to magma generation, because the Oita plain is located in fore-arc region. In addition, good linear relations between Li and Cl concentrations and between B and Cl concentrations of the hot and cold spring water samples suggest that Cl as a major constituent of the deep-originated thermal water of Na-Cl, HCO₃ type in the Oita plain also comes together with the devolatilized fluid of the slab.

Key words : Oita plain, Arima-type deep thermal water, Isotope, slab-derived fluid
キーワード : 大分平野, 有馬型熱水, 同位体, プレート脱水流体

1. はじめに

有馬型温泉とは、兵庫県の有馬・宝塚地域、大阪府の石仏ならびに長野県の鹿塩に産する Na-Cl 型の高塩分泉のことを指す。Na-Cl 型水質は日本各地に湧出する火山性温泉の起源熱水に共通する水質であるが、上記 3 地域は非火山地域に位置しているため、有馬型温泉の成因を単純に火山性温泉のそれと同じであると結論することができない。非火山地域に湧出する Na-Cl 型水質の高塩分泉の多くは、その化学・同位体組成に見られる特徴から化石海水あるいは現在の海水を起源に持つ水であると考えられているが、これに対して有馬型温泉は、水の水素・酸素安定同位体比 (δD , $\delta^{18}O$) が天水性地下水の値より大きくプラス側にずれることや、水素安定同位体比と塩化物イオン濃度の間に見られる線形関係 (混合関係) から期待される端成分の δD 値が海水では説明できないことなど、いくつかの特徴的な性質を持つことから火山性温泉や化石海水型温泉とは異なる生成機構によって形成された熱水であろうと考えられている (松葉谷, 1991; 酒井・松久, 1996)。

有馬型温泉が存在する地域の地下には、塩化物イオン濃度が海水の約 2 倍程度 (約 50 g/l) で、 δD 値が -30% 、 $\delta^{18}O$ 値が $+8.0\%$ の起源となる熱水が存在し (本論文では以後、このような起源熱水を有馬型熱水と呼ぶ)、それが天水起源の地下水によって希釈されたものが有馬型の温泉水であると説明されている。このような地球化学的性質を持つ有馬型熱水の成因としては、(1) 花崗岩が冷却する際に放出されたマグマ水、(2) 含水鉱物を多く含む堆積岩が変成作用を受ける際に脱水した水、(3) 長期間にわたって地層中に滞留した水、などのいくつかの可能性が考えられている。例えば、松葉谷 (1981) は、石仏や鹿塩が中央構造線に沿うことに着目し、これらの地域の有馬型熱水は構造運動の際の変成作用により生じた熱水であるとしたが、六甲断層帯に位置している有馬・宝塚地域については花崗質マグマの残液ではないかとの見解を示している。

また、有馬や石仏を含む近畿地方の温泉・鉱泉水については、付随ガスの He 同位体比 ($^3\text{He}/^4\text{He}$) の測定が行われており、非火山地域であるにもかかわらず有馬で 9.2×10^{-6} 、石仏で 6.6×10^{-6} とマントル物質の関与を示唆する高い He 同位体比を持つことが明らかにされている (Wakita *et al.*, 1987)。

しかしこれまで、有馬型熱水の成因に関して統一された見解は提示されておらず、十分な理解が得られているという状況にはなかった。最近になって、西村 (2000 a; 2000 b) は、有馬型温泉を含む紀伊半島の温泉や四国北部の温泉の成因を、沈み込むプレートの脱水過程と結び付けて理解しようとする新たな試みを行っている。我々はこの魅力的な試みに触発され、60~50 km 深までに脱水し、マントルの部分融解を伴わずに上昇してくる熱水流体が有馬型熱水の正体ではないかと考え、フィリピン海プレートがユーラシアプレートに沈み込んでいる西南日本において非火山地域 (前弧域) に分布する高塩分泉の調査研究を開始した。本論文では、その研究の中で最初に実施した大分平野での調査によって見出された有馬型熱水について報告し、プレート脱水流体との関連性について

て議論する.

2. 大分平野の温泉とその研究概要

大分平野は中央構造線の延長である大分-熊本構造線の北側に接する後期新生代の堆積盆地であり, 東端に位置する坂ノ市地区には大分層群が分布し, その数 km 東側には佐賀関変成岩類が分布する. 一方, 西端付近に位置する挟間地区は硯南層群が分布し, その北部および西部には山陰系火山岩あるいは筑紫溶岩が広く分布しており, 第四紀の火山フロントがほぼ南北に走っている. 森山・日高(1986)によれば, 温泉水の貯留層は硯南層群と大分層群滝尾層であると考えられている.

本地域には1960年代以降, 比較的深い井戸掘削(600 m~800 m)によって開発された温泉が多数存在している. そのような井戸から流出する温泉水は, 水理学的な特徴から典型的な「深層熱水」であるとされており(吉川・北岡, 1985), その起源は地下深く埋没した地層の間隙水や地質時代の高侵期に地層中に取り込まれた海水であると考えられた. 泉温 30°C~55°C のこれらの熱水は, ものによって数 g/l にも達する多量の炭酸成分を含んでおり, その中のいくつかは炭酸ガス(CO₂)を主成分とするガスを伴って自噴している(野田・北岡, 1981). それ以外にも, 塚野鉱泉や妙見泉など炭酸成分に富んだ冷鉱泉が丘陵地との境界や断層沿いに自然湧出しており, 豊富な炭酸成分は大分平野に産する温泉・鉱泉に共通する化学的特徴となっている.

近年, 大分平野に産する深層熱水の炭酸成分の起源を明らかにすることを目的として, 溶存炭酸の炭素安定同位体組成($\delta^{13}\text{C}$)と濃度および水質の関係が調べられた(大沢, 2001). その結果, 深層熱水の炭酸成分は深部起源(大沢は火山性としている)のCO₂が堆積性有機物起源のCO₂と様々な割合で混ざったものであることが判明し, 特にNa-Cl, HCO₃型水質に分類される高塩分の熱水については, その炭酸成分のほとんどが深部起源CO₂に由来することが明らかにされた. この研究結果は, 大分平野の地下深くに賦存される高塩分のNa-Cl, HCO₃型熱水が深部由来の流体の影響を受けていることを強く示唆しており, その起源を化石海水に求める従来の見解とは大きく異なるものであった. また, NEDO(1989)による大分県中東部の広域地熱資源総合調査の一部として行われた深層熱水の付随ガス分析の結果では, ヘリウム同位体比(³He/⁴He)が 8.7×10^{-6} や 8.0×10^{-6} と高い値を示すものが見つかっており, マントル由来のヘリウムの混入が示唆されている.

以上のように, 大分平野に湧出する深層熱水はいくつかの点で有馬型熱水に共通する地球化学的性質を有しており, そのことから我々は「大分平野の深部に賦存されている熱水が有馬型熱水なのではないかと予想した. しかし, 大分平野で過去に行われた調査や研究から得られた熱水試料には, 有馬型熱水の最大の特徴である『極めて高い水素・酸素安定同位体比』を示すものが見出されておらず, 現段階で大分平野の深層熱水を有馬型と断定するのは根拠不十分だと言わざるを得ない. 大分平野で典型的な有馬型熱水を見つけようとしたのは, このような理由からである.

3. 試料採取および化学・同位体分析

2003年11月と12月に, 大分平野において温泉・鉱泉水試料の採取を行った. 本地域では現在も深度600~800 m級の掘削による温泉開発が継続して進められているが, 今回の調査研究では1999年以降に開発された温泉の中から, 温泉分析書記載の塩化物イオン濃度が数千 mg/l 以上である高塩分泉を主なターゲットとした. また, 自然湧出する鉱泉も同程度の塩化物イオン濃度であるものについては採水を行うことにした. その他に, 水素・酸素同位体比の参照試料として温・鉱泉水採取地点の近傍において地表水(河川水)の採取も行った. 試料水の採取地点を, 井戸(well), 自然

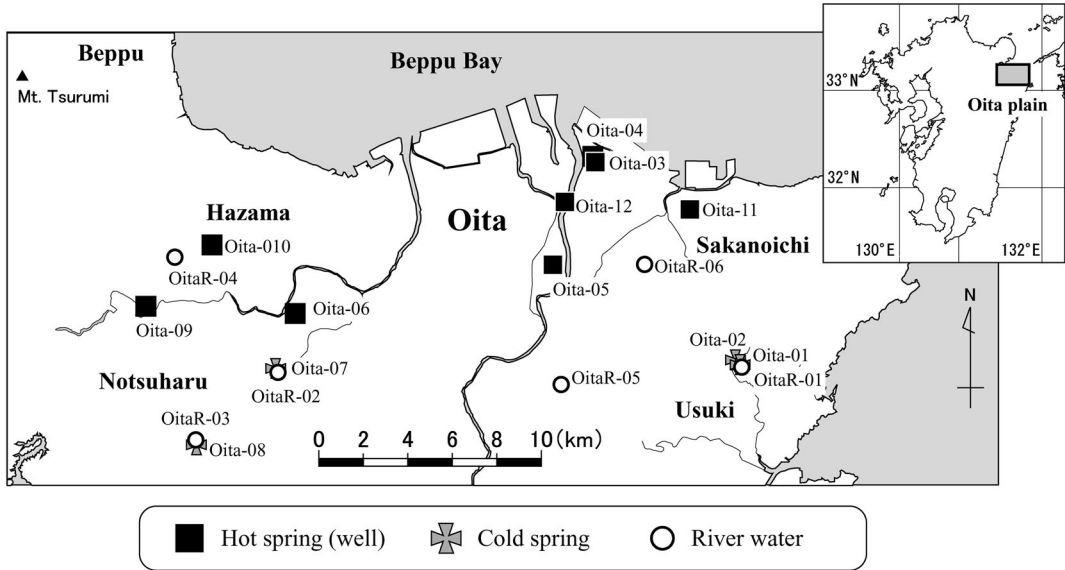


Fig. 1 Map showing locations of water sampling in the Oita plain. Closed squares, gray hatched crosses and open circles show sampling points at hot spring (well), cold spring and river, respectively.

湧出 (spring), 河川 (river) の区別とともに Fig. 1 に示す。

水温と pH は現地測定し、主要化学成分 (Na, K, Ca, Mg, NH₄, Cl, SO₄) および Li の分析はイオンクロマトグラフィーで行った。また、B の分析は、アゾメチン H による分光光度法で行った。溶存全炭酸 (DIC : dissolved inorganic carbon = CO_{2(aq)} + HCO₃⁻ + CO₃²⁻) 濃度は、試料水に H₂SO₄ を加えて硫酸酸性にし、試料中の炭酸成分をすべて CO_{2(aq)} に変換した後、イオンメーターに接続した二酸化炭素電極を用いて、絶対検量線法により測定した。

DIC の炭素安定同位体比 (¹³C/¹²C) は、試料水に Sr(OH)₂ を加え加熱して SrCO₃ を沈殿させ、ろ別・風乾した後、これに濃リン酸を滴下して発生する CO₂ を質量分析計に導入し測定した。また、水の水素・酸素同位体比 (²H/¹H と ¹⁸O/¹⁶O) は、それぞれ金属亜鉛を用いた還元法により発生する H₂、二酸化炭素平衡法により水試料と同位体平衡にした CO₂ を質量分析計に導入し測定した。これら安定同位体比測定は、ニュージーランド地質核科学研究所のラフター安定同位体分析室 (Rafter Stable Isotope Laboratory, Institute of Geological and Nuclear Sciences) で行った。得られる同位体比は常法に従い、標準試料の同位体比からのずれを千分率で表した (δD, δ¹⁸O, δ¹³C ; 単位は全て‰)。

分析によって得られた溶存化学成分 (Na, K, Ca, Mg, NH₄, Cl, SO₄, Li, B) の濃度を Table 1 に、DIC 濃度 (CO₂ 換算濃度) および同位体比 (δD_{H₂O}, δ¹⁸O_{H₂O}, δ¹³C_{DIC}) の測定結果を Table 2 に示す。

4. 結果と考察

4.1 水の水素・酸素安定同位体比

試料水の水素・酸素安定同位体比の関係 (δD-δ¹⁸O ダイアグラム) を Fig. 2 に示す。試料のデータポイントは塩化物イオン濃度を円の大きさで表現した。また、天水線 (MWL : meteoric water line) および安山岩質マグマ性水蒸気 (andesitic magmatic steam ; Giggenbach, 1992) と変成岩

Table 1 Concentrations of major constituents and trace elements (Li and B) of water samples collected

No.	Sampling date	Type	Depth of well (m)	Temp. (°C)	pH	Na	NH ₄	K
Oita-01	Nov. 26, 2003	spring	—	16.5	5.9	1534	62.0	76.7
Oita-02	Nov. 26, 2003	spring	—	15.3	6.1	1878	56.8	82.2
Oita-03	Nov. 28, 2003	well	800	46.9	8.2	1711	38.5	133
Oita-04	Nov. 28, 2003	well	—	47.3	8.3	1509	32.8	116
Oita-05	Nov. 28, 2003	well	800	32.7	8.0	897	38.4	69.6
Oita-06	Nov. 28, 2003	well	710	34.0	8.1	1649	41.2	125
Oita-07	Dec. 2, 2003	spring	—	16.4	6.3	3255	55.8	72.3
Oita-08	Dec. 2, 2003	spring	—	14.8	6.5	3721	86.0	215
Oita-09	Dec. 2, 2003	well	575	34.8	6.7	12213	287	678
Oita-10	Dec. 2, 2003	well	800	48.1	6.6	3702	90.3	244
Oita-11	Dec. 3, 2003	well	900	36.1	6.7	15813	383	231
Oita-12	Dec. 3, 2003	well	800	48.4	8.0	1575	49.1	15.0
OitaR-01	Nov. 26, 2003	river	—	13.7	7.5	19.0	n.d.	1.3
OitaR-02	Dec. 2, 2003	river	—	12.4	7.4	6.4	n.d.	0.5
OitaR-03	Dec. 2, 2003	river	—	11.6	7.4	8.5	0.1	1.7
OitaR-04	Dec. 2, 2003	river	—	11.6	7.6	12.1	n.d.	2.4
OitaR-05	Dec. 3, 2003	river	—	12.6	7.9	6.2	n.d.	0.7
OitaR-06	Dec. 3, 2003	river	—	12.4	7.4	6.7	n.d.	0.5

[Rem] n.d. : not detected

の粒間流体 (metamorphic water) が取る同位体比の範囲 (佐々木, 1977) をそれぞれ点線と実線の囲みで表した。また, 前述したように本研究では塩化物イオン濃度の高いものに限って採水を行っているが, 大分平野の温泉・鉱泉の全体傾向を見ることも重要であるため, 同図には過去に大分平野で採取分析された温・鉱泉水のデータ (NEDO, 1989) も併せてプロットした。

大分平野の温・鉱泉水の水素・酸素同位体比は, 特に高い塩化物イオン濃度を示す 2 つの試料 (Oita-09 と Oita-11) と, それ以外の試料とに大別されていることが分かる。以下ではそれぞれについて詳しく見ていくことにする。

まず, 塩化物イオン濃度が極めて高い 2 試料 (Oita-09 と Oita-11 で, それぞれ 18,600 mg/l, 23,900 mg/l) であるが, これらは δD 値がそれぞれ -27.1% , -22.2% , $\delta^{18}O$ 値がそれぞれ $+1.9\%$, $+2.7\%$ と, これまでに大分平野で得られたことの無い高い水素・酸素同位体比を示し, 安山岩質マグマ性水蒸気や変成岩の粒間流体の同位体比が取る範囲に近い位置にプロットされた。この 2 試料は, 塩化物イオン濃度と水の酸素同位体比がともに, 有馬型熱水の推定値 ($[Cl^-] = 50,000$ mg/l, $\delta D = -30\%$, $\delta^{18}O = +8\%$; 松葉谷, 1991) よりやや低めの値を示しているが, 有馬型の温泉に分類されている鹿塩鉱泉 ($[Cl^-] = 18,800$ mg/l, $\delta D = -53.3\%$, $\delta^{18}O = -3.7\%$; Takamatsu *et al.*, 1986) や石仏鉱泉 ($[Cl^-] = 14,800$ mg/l, $\delta D = -42.9\%$, $\delta^{18}O = -2.0\%$; Matsubaya *et al.*, 1973) の値よりは高い値を示しており, 有馬型熱水と認定しても差し支えないと考えた。

その他の試料水については, 過去に採取された温・鉱泉水も含めて大局的には天水線 (MWL : $\delta D = 8 \times \delta^{18}O + 10$) 付近にプロットされるが, さらに詳細に見れば天水線に沿って分布するものと, 天水線より高 $\delta^{18}O$ 側へ外れてプロットされるものとに分けられる。今回参照用試料として採取した河川水が天水線に沿った分布を示していることから, 大分平野の地表～地下浅部に存在する水の

from wells (hot springs), cold springs and rivers in the Oita plain.

Mg	Ca	Cl	NO ₃	SO ₄	Li	B
(mg/l)						
153	91.5	2286	n.d.	n.d.	10.4	26.8
195	175.4	2360	n.d.	n.d.	9.0	18.6
14.1	37.0	2634	n.d.	2.0	0.2	3.9
8.4	9.8	1807	n.d.	n.d.	0.4	13.2
528	88.9	392	n.d.	n.d.	1.3	3.8
84.9	44.0	2018	n.d.	n.d.	4.5	7.2
742	125.3	4243	n.d.	n.d.	7.2	41.2
195	138.4	4356	n.d.	n.d.	16.5	75.1
784	347.5	18649	n.d.	n.d.	51.8	145
125	77.6	2135	n.d.	n.d.	21.7	50.9
1042	282.0	23878	n.d.	n.d.	33.5	278
35.2	52.8	2675	n.d.	n.d.	0.1	5.4
11.3	5.0	20.4	2.7	8.0	0.1	n.d.
5.5	4.6	3.9	3.6	6.7	n.d.	n.d.
7.4	2.9	6.0	3.3	5.5	n.d.	n.d.
9.8	4.9	5.6	2.5	11.9	n.d.	n.d.
11.6	8.4	4.9	3.7	14.6	n.d.	n.d.
9.2	4.3	5.7	2.9	9.8	n.d.	9.8

水素・酸素同位体比は天水線で示されるそれとほぼ同等であると考えられ、大分平野で掘削により得られる温泉水の多くが降水によって涵養された水であることを示している。天水線より高 $\delta^{18}\text{O}$ 側へ外れてプロットされる4試料については、降水によって涵養された温泉水が貯留層を構成する岩石に含まれるケイ酸塩鉱物との間で酸素同位体交換反応を起こしたものと見ることができ、大分平野の地下深部に賦存される有馬型熱水と地表～地下浅部に存在する水との混合により形成された温泉水であるとする解釈も可能である。我々の調査対象として当初リストアップされていた掘削温泉の中に中程度の塩化物イオン濃度(9,340 mg/l; 川野・本多, 2001)を示すものがあった。その温泉水の水素・酸素同位体比を測定すれば、深部熱水と地表～地下浅部に存在する水との間の混合関係を示すような値が得られるのではないかと予想していたが、湯量が確保できないとの理由で調査時には利用が停止されていた。そのため今回は、この問題に関する検討は断念せざるを得なかった。今後、新たな掘削によって、この問題の検討を可能にする温泉水が得られることを期待したい。

4.2 溶存炭酸の濃度と炭素安定同位体比の関係

Table 2 に示したデータを、溶存全炭酸(DIC)の濃度の逆数と炭素安定同位体比($\delta^{13}\text{C}_{\text{DIC}}$)との関係を表すダイヤグラムにプロットしたものを、Fig. 3 に示す。このダイヤグラムからは、溶存炭酸の供給源や混合に関する情報を得ることができ(水谷, 1995)、大分平野の掘削井からの温泉水中の炭酸成分の起源を明らかにすることを目的として大沢(2001)が利用したものである。このダイヤグラム上に現れるデータポイントの直線状配列は、2種類の端成分の混合関係が存在することを意味しており、大沢(2001)はこの関係の存在から DIC の供給源として地層中の有機物と地球深部

Table 2 δD and $\delta^{18}O$ of water, and $\delta^{13}C$ and concentration of dissolved inorganic carbon (DIC) of water samples from wells (hot springs), cold spring, and river in the Oita plain.

No.	Type	δD_{H_2O}	$\delta^{18}O_{H_2O}$	$\delta^{13}C_{DIC}$	DIC (mg/l)
		(‰)			
Oita-01	spring	-39.8	-6.2	-4.6	1670
Oita-02	spring	-44.3	-6.7	-2.9	1040
Oita-03	well	-53.9	-7.5	-14.5	118
Oita-04	well	-53.3	-7.3	-13.5	320
Oita-05	well	-57.0	-8.5	-3.7	2340
Oita-06	well	-59.7	-9.0	-6.5	882
Oita-07	spring	-47.5	-5.8	-7.5	3020
Oita-08	spring	-47.1	-4.2	-5.0	2880
Oita-09	well	-27.1	+1.9	-3.2	3780
Oita-10	well	-48.3	-5.3	-6.4	1310
Oita-11	well	-22.2	+2.7	-3.8	4320
Oita-12	well	-59.4	-8.3	-7.1	200
OitaR-01	river	-48.8	-7.4	n.a.	n.a.
OitaR-02	river	-50.6	-7.8	n.a.	n.a.
OitaR-03	river	-51.8	-7.8	n.a.	n.a.
OitaR-04	river	-53.0	-8.2	n.a.	n.a.
OitaR-05	river	-50.4	-7.7	n.a.	n.a.
OitaR-06	river	-43.5	-7.3	n.a.	n.a.

[Rem] n.a. : not analyzed

由来の CO_2 があることを結論付けた。Fig. 3 上に白抜きひし形で表したデータポイント (\diamond) は過去に得られたデータ (NEDO, 1989) であり、混合線 (mixing line) は大沢 (2001) がその解析により示したものである。なお、このダイヤグラムの縦軸 ($\delta^{13}C_{DIC}$ 軸) は DIC の混合関係を、横軸 (DIC 濃度の逆数を表す軸) は水の混合関係を表すので、上記 2 種類の端成分の実態は深部由来の CO_2 を溶存させた深部起源熱水 (deep-originated thermal water) と土壌 CO_2 を溶解させた通常の地下水 (normal groundwater) であると考えられる。

今回採取した温・鉱泉水のデータは、概ねそれらの混合線に沿ってプロットされるが、その多くが深部起源熱水に相当する端成分側に位置している。前項 (4.1) で有馬型熱水であるとした試料水 Oita-09 と Oita-11 のデータがこのような位置にプロットされるのは容易に理解できるが、降水によって涵養されたものと解釈したその他の温泉・鉱泉水のデータの多くも深部起源熱水に相当する端成分側にプロットされるのは一見矛盾しているようにも思える。しかし、深部起源熱水の溶存炭酸濃度が極めて高ければ、これに通常の地下水が多量に混ざった場合でも混合後の水の溶存炭酸濃度と炭素安定同位体比は共に高い値を保つことが可能である。実際、深部起源である可能性の高い Oita-09 と Oita-11 の試料水の DIC 濃度は、それぞれで 3,780 mg/l, 4,320 mg/l と相当に高く、この解釈が妥当であることを示している。このデータプロットでは、有馬型と考える深部起源の熱水の水質が単なる Na-Cl 型ではなく、それに炭酸成分が加わった Na-Cl, HCO_3 型であることが示唆されている点をむしろ強調したい。

さて、有馬型と考えている深部起源熱水に含まれる炭酸成分の炭素安定同位体比 ($\delta^{13}C_{DIC}$) は、Oita-09 と Oita-11 のデータに地表流出時の脱 CO_2 の効果で溶存炭酸の同位体比が最大で 0.1‰～

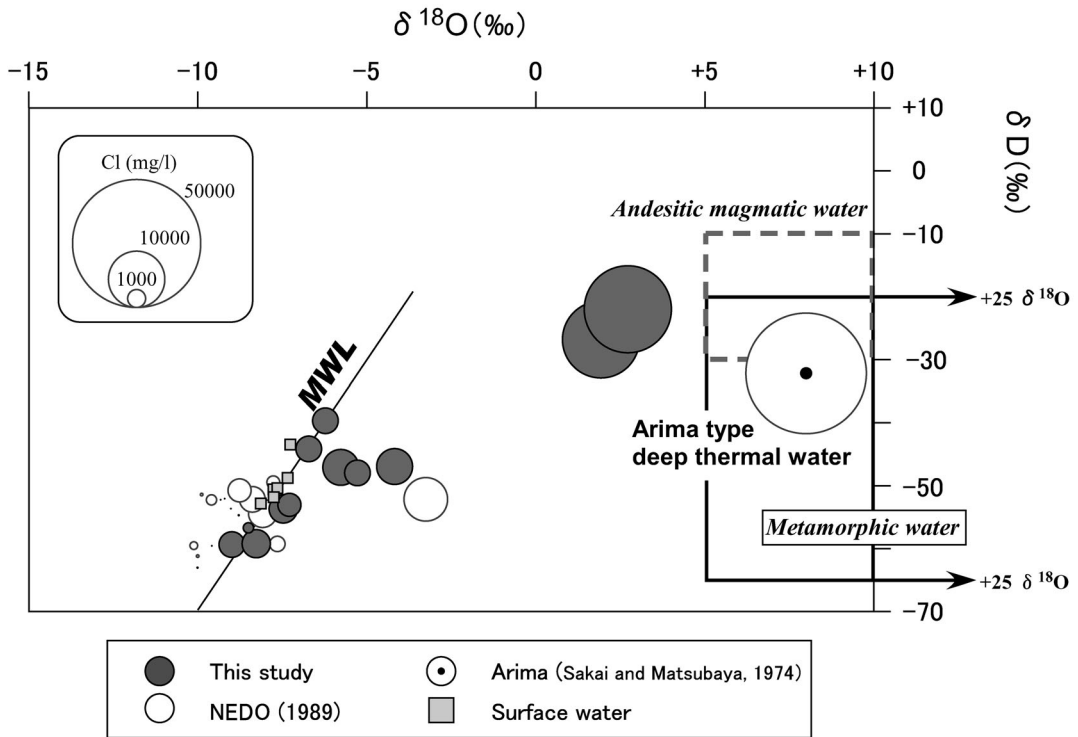


Fig. 2 δD - $\delta^{18}O$ plots of water samples from hot and cold springs (closed circles) and from rivers (gray squares) collected in this study. Open circles show hot spring water samples collected and measured by NEDO (1989). Open circle with dot in center indicates the Arima-type deep thermal water (Sakai and Matsubaya, 1974). Dashed line box shows the range of δD and $\delta^{18}O$ values of andesitic magmatic steam (Giggenbach, 1992). Bold line box shows the range of δ -values of "metamorphic water" (Sasaki, 1977). Solid straight line labeled with MWL expresses meteoric water line: $\delta D = 8 \times \delta^{18}O + 10$.

0.9‰ 重くなることを考慮し（長湯温泉での実測例；岩倉・他，2000）， $-3\text{‰} \sim -5\text{‰}$ の範囲にあると推測される。これは、マントルを起源とする CO_2 の炭素同位体比の推定値（ $-5\text{‰} \sim -6\text{‰}$ ；酒井・松久，1996）に近接する値であり、マントル起源 CO_2 の寄与が示唆される。このことは前述した温泉付随ガス分析の結果（NEDO, 1989）がマントル由来のヘリウムの混入を示していることと整合的である。深部由来と目される CO_2 の起源については、次項においてさらに議論を深めることにする。

4.3 水の水素同位体比と微量元素濃度との関係

4.1 項において、大分平野の深部に賦存される高塩分熱水の水素同位体比 (δD) が、変成岩の粒間流体（岩石の変成作用が進行する際に流体相として放出される水）の取る同位体比の範囲内に収まることを示した。変成作用には様々なタイプがあるが、日本のようなプレート収斂域で沈み込むプレート（スラブ）は、低温高圧型変成作用と呼ばれる広域変成作用を受け、スラブを構成する変質海洋玄武岩やその上位の海洋性堆積物などから水が放出されると考えられている（例えば、巽，1995；笠原ほか，2003）。そのような水（変成水）はプレート脱水流体とか、単に脱水流体などと呼ばれることがある。風早（1997）は、沈み込み帯の水の収支と水素同位体に関する保存則を前提に

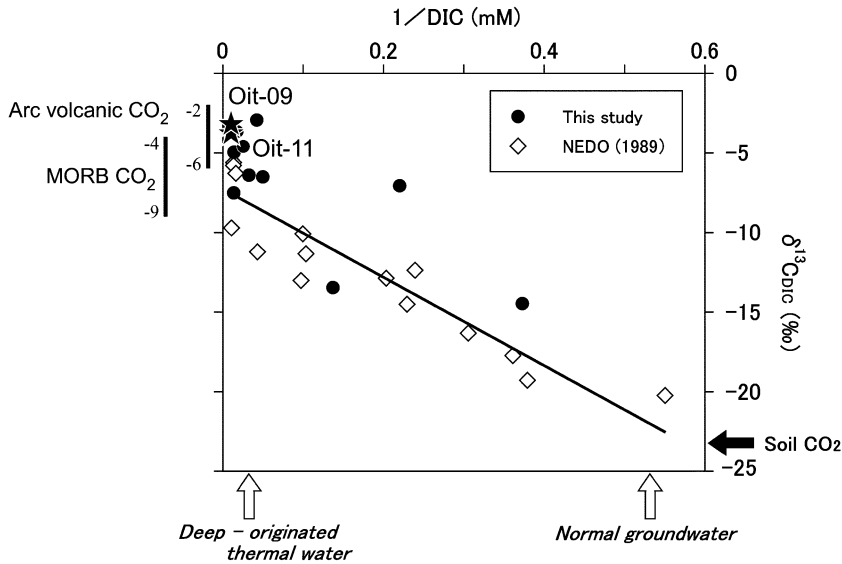


Fig. 3 Plots of $\delta^{13}\text{C}$ versus reciprocal of concentration of dissolved inorganic carbon (DIC). Closed circles show the obtained data in this study and open diamonds are cited from Ohsawa (2001). Two closed asterisks show saline waters found in the Oita plain which are classified into the "Arima-type deep thermal water". Solid straight line is the regression line calculated using data obtained by NEDO by Ohsawa (2001) and represents the mixing relation between deep-originated CO_2 (magmatic or mantle origins) and soil CO_2 . For detail, see text.

した理論的な計算から、プレート脱水流体の水素同位体比が -27% 程度であると見積もっているが、大分平野の高塩分熱水の値はこれとほぼ一致しており、その起源がプレート脱水流体にあることを示唆している。

変成岩が生成する際に生じる流体相は純粋な水ではなく、 CO_2 や NaCl などを副成分として含んでいると考えられており（例えば、都城，1994；Touret，2001），プレート脱水流体も様々な元素を主成分や微量成分として溶かし込んでいると考えるのが自然であろう。事実，変成作用を被った海洋プレートの一部とされる高圧変成岩やそれに伴う岩脈中の流体包有物は， NaCl を主体とする高塩分の水であり， CO_2 や N_2 のようなガス成分や NaCl 以外の様々な溶存成分を含むことが明らかにされている（Scambelluri and Philippot，2001）。ここで重要なことは，プレート脱水流体の“化石”と目される高圧変成岩中の流体包有物の化学組成が，我々が有馬型熱水と考えている大分平野の高塩分熱水の Na-Cl ， HCO_3 型水質と良く似ていることである。このことは，大分平野の深部に賦存される高塩分熱水が，プレート脱水流体を起源にもつという考えを強く支持する知見であると考えられる。

プレート脱水流体に溶存していると予想されるその他の元素（微量元素）としては，岩石成因論でFluid-mobile elementsと呼ばれる元素群を構成する， Li ， Rb ， Cs といったアルカリ元素や B ， Pb などが考えられる。この内， Li と B については，海洋プレートの沈み込みに関係する蛇紋岩，低温高圧型変成岩および火山岩に関する岩石化学的研究や同位体地球化学的研究（例えば，Scambelluri *et al.*，2004；Savov *et al.*，2005；Zack *et al.*，2003；Moriguti *et al.*，2004）によって，スラブの脱水過程で流体相に放出される元素であるという共通認識が持たれるようになった。そこで，今回の調査で採取した大分平野の温泉・鉱泉水および過去に採取された温泉水（NEDO，1989）

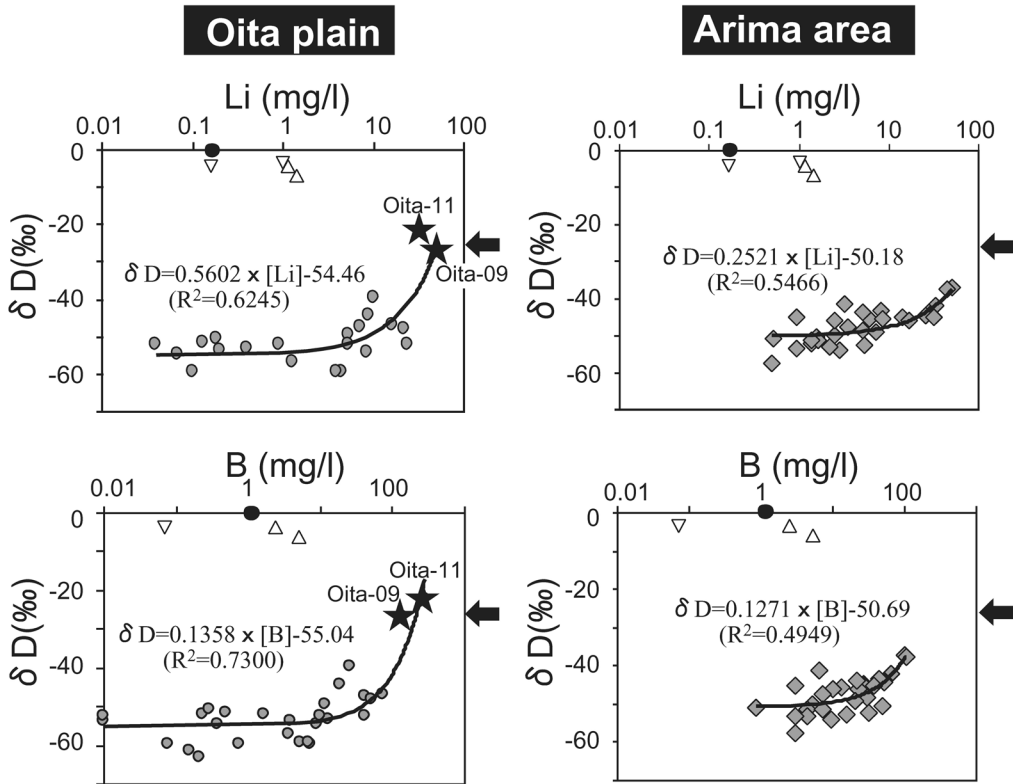


Fig. 4 Plots of δD versus Li concentration and δD versus B concentration of the hot and cold spring waters collected from the Oita plain (left side) and Arima area (right side). Solid lines are regression lines. Closed circle show present sea water and open triangles show brines accompanied by natural gas from Miyazaki and Chiba areas. Closed asterisks are saline waters found in the Oita plain in this study. Thick arrow indicates the estimated δD value of devolatilized fluid from subducting oceanic plate (Kazahaya, 1997). For detail, see text.

について、Li と B の濃度と、プレート脱水流体であることの根拠の一つとした水の水素同位体比 (δD) との関係について検討した。これらの関係を Fig. 4 に示したが、Li 濃度と δD 値および B 濃度と δD 値の間には共に良好な相関が認められた。関係図の中に引かれた線は、最小二乗法によって求めた全てのデータポイントにフィットする近似直線であり (横軸が対数表示であることに注意)、それらの相関係数 (R^2 値) が高いことから大局的には 2 成分混合系で説明することが可能である。ここで示唆される 2 つの端成分は、一方が低い δD 値・低い Li と B 濃度を持つ流体、他方は高い δD 値・高い Li と B 濃度の流体である。前者の δD 値はおよそ -55% であり、大分平野の地表水が示す値の範囲 ($-43\% \sim -53\%$; Table 2) に近い値であることから、この端成分は浅層の地下水であるとして差し支えない。一方、後者の端成分は有馬型と考えている深部起源熱水 (Fig. 4 の★を付した試料水 Oita-09 と Oita-11) の値を用いて近似できるが、これらはプレート脱水流体が持つとされている高い δD 値 (-27% ; 風早, 1997: Fig. 4 の δD 軸に矢印で示した) を持ち、Li, B に富むという性質を示している。この結果は、有馬型と考えている深部起源熱水がプレート脱水流体であることを強く示唆している。また、Fig. 4 の右半分に、Masuda *et al.* (1985) に記載されている有馬地域の温・鉱泉水のデータを同じ関係図にプロットした。近似直線の相関係数がやや低め

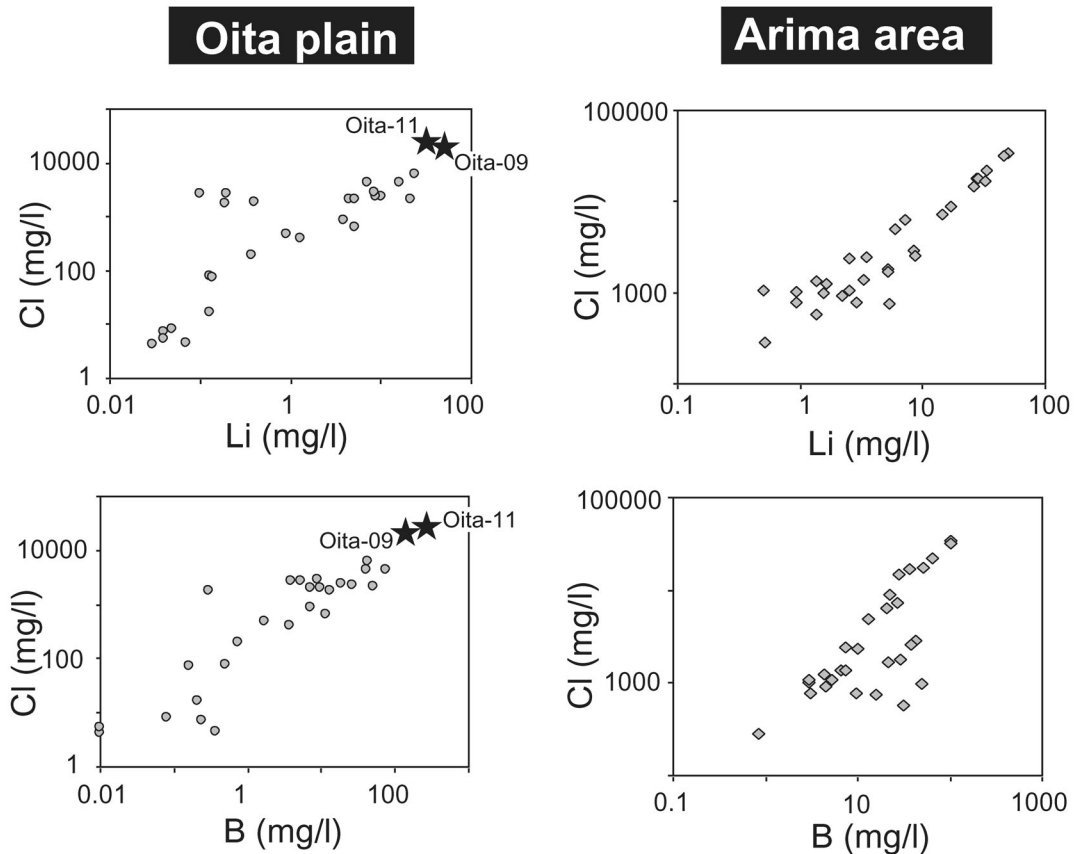


Fig. 5 Plots of Li versus Cl concentrations and B versus Cl concentrations of the hot and cold spring waters collected from the Oita plain (left side) and Arima area (right side). Closed asterisks are saline waters found in the Oita plain in this study.

ではあるが、大筋では大分平野と同様の関係で説明でき、有馬地域の有馬型熱水もまたプレート脱水流体であることが示唆されている。

さて、Fig. 4 には、現海水 (●) と宮崎平野 (△) と房総半島 (▽) に産する天然ガス付随塩水のデータ (大沢・他, 未公表データ; 相川, 1991; 上村・他, 1988) も合わせてプロットしてあるが、有馬型と考えている深部起源熱水とは全く異なる領域にプロットされた。このことは、これらの塩水が有馬型と考えている深部由来の起源水ではないことを積極的に示していると考えられる。むしろ、現海水と天然ガス付随塩水のプロットは、海水が天然ガス付随塩水の直接の起源水であることを暗示しているように見てとれる。つまり天然ガス付随水は、海成の堆積岩が形成される過程 (堆積物の続成過程) で堆積物の空隙に取り込まれた海水が熱変質を受けた、いわゆる化石海水型の熱水であると解釈することが可能である。

4.4 Li・Bの濃度とCl濃度との関係

本研究で、有馬型に分類した Na-Cl, HCO₃型水質の深部起源熱水がプレート脱水流体であると考えた上で根拠となる地球化学データとして、 δD_{H_2O} , $\delta^{13}C_{DIC}$, Li と B の濃度を提示したが、水質の型を決めている重要な溶存化学成分である Cl の起源は、どこにあるのであろうか。最後にこの問題に

ついて考察してみたい。

大分平野の温・鈳泉水に対する、本研究および過去 (NEDO, 1989) の分析データと有馬地域のデータ (Masuda *et al.*, 1985) について、Li 濃度と Cl 濃度の関係、B 濃度と Cl 濃度の関係を検討した (Fig. 5)。Fig. 5 に示されているように、プロットには多少のばらつきが見られるものの、いずれの関係にも正の相関が認められた。前項 (4.3) での考察から大分平野、有馬地域の温泉・鈳泉水は、深部起源熱水 (有馬型熱水) と浅層の地下水が混合して形成されたものであることが示されたが、Li-Cl の濃度関係と B-Cl の濃度関係においても、第一近似的には同様の混合関係で説明できる。

ここで取り上げた 3 つの元素は、いずれも熱水中では可溶性であり、熱水変質鈳物や温泉沈殿物に 2 次的に取り込まれにくい元素であることが一般に知られている。したがって、これら 3 元素は混合以前の段階で深部起源熱水に溶存されていたものと考えた方が自然であろう。Philippot *et al.* (1998) は、Cl がスラブを構成する変質海洋地殻の脱水過程を通して沈み込み帯の表層と深部の間をリサイクルしている、としているが、本研究で示された深部起源熱水中の Cl もそのようなプロセスを経ており、Li や B と共にプレート脱水流体によって地表付近までもたらされたものであろうと考える。

5. おわりに

これまで成因不明とされてきた有馬型温泉の起源水 (有馬型熱水) の実体が、沈み込むプレートからの脱水流体なのではないかと考え、西南日本の前弧域に存在する高塩分泉を対象に調査研究を開始した。そして今回、大分平野の地下に貯留される深層熱水の中から有馬型熱水と共通する化学・同位体組成を有する熱水を見出した。

これらの熱水の塩化物イオン濃度は 15,000 mg/l 以上と、これまで大分平野で得られた温泉・鈳泉水としては極めて高いものであった。水素・酸素同位体比も安山岩質マグマ性水蒸気や変成流体が示す同位体比とほぼ同様の値をもち、天水とは異なる起源を持つ水であることが明瞭に示された。また、大分平野の温泉・鈳泉水の DIC 濃度と $\delta^{13}\text{C}_{\text{DIC}}$ の間には線形の関係が見られ、深部由来の CO_2 を溶存させた深部由来起源水と土壤 CO_2 を溶解させた地下水の 2 種類の端成分が混合して大分平野の温・鈳泉水が形成されていることが分かった。

深部に由来する熱水の起源をさらに詳しく知るために、大分平野と有馬地域で得られた温泉・鈳泉水の Li, B 濃度と δD 値を用いてその関係について調べた。その結果、 δD と Li および δD と B の間には高い一次相関が存在しており、大局的には高い δD 値・高い Li と B 濃度である深部起源熱水と低い δD ・低い Li と B 濃度である地下水との混合関係で説明できることが判明した。理論的に求められたプレート脱水流体の水素同位体比が高い値 (-27‰) であることや、Li, B が海洋プレートの沈み込みの際に生じるスラブの脱水過程で流体相に放出される元素であることなどから、深部起源熱水すなわち有馬型熱水の実体がプレート脱水流体であることが強く示唆された。また、Cl に関しても Li および B との間に良い相関関係が見られた。Li, B, Cl の 3 元素は共に熱水中では可溶性であることを考えれば、Cl もプレート脱水流体と共に地表付近までもたらされた元素である可能性が高いと思われる。

今回、大分平野の有馬型熱水は深部掘削井において見出されており、Oita-09 の井戸深度で 575 m、Oita-11 にいたっては 900 m と大分平野の温泉井の中では最も深く掘削された井戸の一つであった。また、大分平野の南端は中央構造線の延長である大分-熊本構造線が通っており、あらためて有馬型熱水の湧出地点と断層との関係性が示された。これらのことは、岩石の断裂や亀裂などの

地殻に生じる物理的な要因が、深部起源熱水の上昇や地表湧出にとって重要な条件になり得ることを示しているのではないかと考える。

今後も西南日本の前弧域を研究対象地域として、有馬型熱水とプレート脱水流体との関連性について研究を進めていく予定であるが、最終的には両者の関係の直接的な証明やプレート脱水流体の地殻浅所への移動機構にまで立ち入った研究を行いたいと考えている。

謝 辞

今回、調査を行った温泉・鉱泉の所有者、管理者の方々には試料採取に快く応じていただきました。ニュージーランド地質核科学研究所 (Rafter Stable Isotope Laboratory, Institute of Geological and Nuclear Sciences) には水の同位体測定および炭素同位体測定に便宜をはかっていただきました。また、京都自然史研究所の西村進先生からは論文を改善するための有益なご指摘をいただきました。これらの方々に深く感謝いたします。

文 献

- 相川嘉正 (1991) : 千葉県温泉の化学 —温泉およびガス田付随水の化学成分—, 温泉科学, **42**, 22-34.
- Giggenbach, W.F. (1992) : Isotopic shifts in waters from geothermal and volcanic system along convergent plate boundaries and their origin, *Earth Planet. Sci. Lett.*, **113**, 495-510.
- 岩倉一敏, 大沢信二, 高松信樹, 大上和敏, 野津憲治, 由佐悠紀, 今橋正征 (2000) : 長湯温泉 (大分県) から放出される二酸化炭素の起源, 温泉科学, **50**, 86-93.
- 笠原順三, 鳥海光弘, 川村雄行 (2003) : 地震発生と水 地球と水のダイナミクス, 392. 東京大学出版会, 東京.
- 川野田實夫, 本多真美 (2001) : 大分市街地温泉の化学成分経年変化, 大分県温泉調査研究会報告, **52**, 59-62.
- 風早康平 (1997) : 島弧の活火山から放出される水—その起源と量—, 日本水文科学会誌, **27**, 105-116.
- 吉川恭三, 北岡豪一 (1985) : いわゆる深層熱水型温泉について, 大分県温泉調査研究会報告, **36**, 1-12.
- Masuda, H., Sakai, H., Chiba, H. and Tsurumaki, M. (1985) : Geochemical Characteristics of Na-Ca-Cl-HCO₃ type waters in Arima and its vicinity in the western Kinki district, Japan, *Geochemical Journal*, **19**, 149-162.
- Matsubaya, O., Sakai, H., Kusachi, I. and Satake, H. (1973) : Hydrogen and oxygen isotopic ratios and major element chemistry of Japanese thermal water systems, *Geochemical Journal*, **7**, 123-151.
- 松葉谷治 (1981) : 水素および酸素同位体比からみた温泉水の起源, 温泉科学, **31**, 47-56.
- 松葉谷治 (1991) : 熱水の地球科学, 139. 裳華房, 東京.
- 都城秋穂 (1994) : 変成作用, 256. 岩波書店, 東京.
- 水谷義彦 (1995) : 地下水の地化学特性. 島崎英彦・新藤静夫・吉田鎮男編, 「放射性廃棄物と地質科学 地層処分の現状と課題」, 123-146, 東京大学出版会, 東京.
- Moriguti, T., Shibata, T. and Nakamura, E. (2004) : Lithium, boron and lead isotope and trace element systematics of Quaternary basaltic volcanic rocks in northeastern Japan : mineralogical controls on slab-derived fluid composition, *Chemical Geology*, **212**, 81-100.

- 森山善蔵, 日高 稔 (1986) : 大分市温泉の地質, 大分県温泉調査研究会報告, **37**, 38-50.
- NEDO (1989) : 「平成元年度全国地熱資源総合調査 (第 3 次) 広域熱水流動系調査 鶴見岳地域流体地化学調査報告書要旨」, 236.
- 西村 進 (2000 a) : 紀伊半島における前弧火成作用と温泉, 温泉科学, **49**, 207-216.
- 西村 進 (2000 b) : 四国北部の地質構造と温泉, 温泉科学, **50**, 113-119.
- 野田徹郎, 北岡豪一 (1981) : 大分川流域温泉の高塩分泉の付随ガスについて. 大分県温泉調査研究会報告, **32**, 43-55.
- 大沢信二 (2001) : 大分平野に産する深層熱水中の炭酸成分の起源, 大分県温泉調査研究会報告, **52**, 21-26.
- Philippot, P., Agrinier, P. and Scambelluri, M. (1998) Chlorine cycling during subduction of altered crust, *Earth Planet. Sci. Lett.*, **161**, 33-44.
- 酒井 均, 松久幸敬 (1996) : 「安定同位体地球化学」, 83-141, 東京大学出版会, 東京.
- Sano, Y. and Wakita, H. (1985) : Geographical distribution of $^3\text{He}/^4\text{He}$ ratios in Japan : implications for arc tectonics and incipient magmatism, *J. Geophys. Res.*, **90**, 8729-8741.
- 佐々木昭 (1977) : 安定同位体と鉱床. 立見辰夫編, 「現代鉱床学の基礎」, 77-95, 東京大学出版会, 東京.
- Savov, I.P., Guggino, S., Ryan, J.G., Fryer, P. and Mottl, M.J. (2005) : Geochemistry of Serpentinite muds and metamorphic rocks from the Mariana forearc, ODP sites 1200 and 778-779, south Chamorro and Conical seamounts, *Proceedings of the Ocean Drilling Program, Scientific Results Volume 195*.
- Scambelluri, M., Müntener, O., Ottolini, L., Pettke, T.T. and Vannucci, R. (2004) : The fate of B, Cl and Li in the subducted oceanic mantle and in the antigorite breakdown fluids, *Earth and Planetary Science Letters*, **222**, 217-234.
- Scambelluri, M. and Philippot, P. (2001) : Deep fluids in subduction zones, *Lithos*, **55**, 213-227.
- Takamatsu, N., Imahashi, M., Kamimura, K. and Tsutsumi, M. (1986) : Geochemical implication of the lithium content of saline spring waters in Japan., *Geochemical Journal*, **20**, 143-151.
- 巽 好幸 (1995) : 沈み込み帯のマグマ学 全マントルダイナミクスに向けて, 186. 東京大学出版会, 東京.
- Touret, J.L.R. (2001) : Fluids in metamorphic rocks, *Lithos*, **55**, 1-25.
- 上村京子, 高松信樹, 今橋正征 (1988) : 食塩泉の Br/Cl 比について, 温泉科学, **38**, 111-119.
- Wakita, H., Sano, Y. and Mizoue, M. (1987) : High ^3He emanation and seismic swarms observed in a nonvolcanic, forearc region, *Journal of Geophysical Research*, **92**, 12539-12546.
- Zack, T., Tomascak, P.B., Rudnick, R.L., Dalpe, C. and McDonough, W.F. (2003) : Extremely light Li in orogenic eclogites : The role of isotope fractionation during dehydration in subducted oceanic crust, *Earth and Planetary Science Letters*, **208**, 279-290.