

関東平野北部における温泉の水質および 安定同位体比とその地質鉱物学的解釈

村松容一^{1)*}, 谷口無我^{2)#}, 大場 武²⁾

(平成 28 年 3 月 1 日受付, 平成 28 年 5 月 31 日受理)

Chemical Composition and Stable Isotope ($\delta^{18}\text{O}$ and δD) Ratios of Hot Spring Waters from the Northern Kanto Plain, Central Japan, and Their Geological and Mineralogical Interpretations

Yoichi MURAMATSU^{1)*}, Muga YAGUCHI^{2)#} and Takeshi OHBA²⁾

Abstract

Chemical and stable isotopic ($\delta^{18}\text{O}$, δD) compositions analyzed this time and reported previously for the hot spring and pore waters from the northern Kanto Plain, Central Japan, additionally mineral constituents analyzed this time for the rock samples from one well, were used to clarify the formation mechanism of the waters. The hot spring waters belong to mainly Na—Cl, subordinately Na·Ca—Cl, Na— SO_4 and Na— HCO_3 types. The chloride-type waters were formed by mixing of local meteoric water with fossil sea water, which has positive $\delta^{18}\text{O}$ value than that of the present sea water. The high saline waters have lower $\text{Mg}^{2+}/\text{Cl}^-$, $\text{SO}_4^{2-}/\text{Cl}^-$, K^+/Cl^- , Na^+/Cl^- equivalent ratios, higher $\text{Ca}^{2+}/\text{Cl}^-$ equivalent ratio than those of the present sea water, and high B/Cl mole ratio (>0.002).

The major chemical compositions of the waters are controlled by anhydrite dissolution, sulphate reduction and calcite nucleation, reaction of volcanic material to form smectite, ion exchange of smectite, and also by transformation of smectite to illite. The fluid formation mechanisms are concordant with the saturation index, estimated underground temperature, and mineral assemblage of the reservoir rocks. The oxygen isotope positive shift of the fossil sea water reflects smectite-illite transformation.

Key words : Northern Kanto Plain, hot spring waters, fossil sea water, diagenetic evolution, fluid formation mechanism, geological and mineralogical interpretations

¹⁾東京理科大学理工学部教養科 〒278-8510 千葉県野田市山崎 2641. ¹⁾Department of Liberal Arts, Faculty of Science and Technology, Tokyo University of Science, 2641 Yamazaki, Noda, Chiba 278-8510, Japan. *Corresponding author : E-mail muramatu@rs.noda.tus.ac.jp, TEL & FAX : 047-347-0621.

²⁾東海大学理学部化学科 〒259-1292 神奈川県平塚市北金目 4-1-1. [#]現在 : 気象庁気象研究所火山研究部 〒305-0032 茨城県つくば市長峰 1-1. ²⁾Department of Chemistry, School of Science, Tokai University, 4-1-1 Kitakaname, Hiratsuka, Kanagawa 259-1292, Japan. [#]Present address : Volcanology Research Department, Meteorological Research Institute, Japan Meteorological Agency, 1-1 Nagamine, Tsukuba, Ibaraki 305-0052, Japan.

要 旨

関東平野北部の塩化物泉を対象に、主成分および酸素・水素安定同位体比 ($\delta^{18}\text{O}$, δD) 分析を実施するとともに、温泉井の掘削時に回収した岩石片の構成鉱物を粉末 X 線回折法で同定し、公表論文等による温泉水と間隙水の分析値を加えて、地質鉱物学的視点に立って温泉の水質形成機構を検討した。炭酸塩泉 ($\text{Na}-\text{HCO}_3$) は足尾、帝釈、八溝山地で地下に涵養された降水が火山性物質の Na -スメクタイト化を受けて形成された降水起源水であり、硫酸塩泉 ($\text{Na}-\text{SO}_4$) はこの $\text{Na}-\text{HCO}_3$ 型降水起源水が弱変質火山岩類中の硬石膏の溶解、陽イオン交換反応による Ca -スメクタイト化を受けて形成されたと推察される。塩化物泉 ($\text{Na}-\text{Cl}$, $\text{Na}\cdot\text{Ca}-\text{Cl}$) は $\text{Na}-\text{HCO}_3$ 型降水起源水と化石海水 ($\delta^{18}\text{O} = +1.40\%$) の混合によって形成されたものであり、高塩化物泉の $\text{Mg}^{2+}/\text{Cl}^-$, $\text{SO}_4^{2-}/\text{Cl}^-$, K^+/Cl^- , Na^+/Cl^- 当量比は現海水より低い一方、 $\text{Ca}^{2+}/\text{Cl}^-$ 当量比はかなり高く、 B/Cl モル比は 0.002 以上を示す。これらの化学成分および安定同位体比の特徴は、次のような間隙水の進化によって合理的に説明される。埋没過程で海成荒川層群相当層下部に閉じ込められた間隙水 (海水) は硫酸還元反応、方解石核形成、 $\text{Na}-\text{HCO}_3$ 型降水起源水による希釈、火山性物質の Mg -スメクタイト化、陽イオン交換反応による Na -スメクタイト化 ($\text{Na}\cdot\text{Ca}-\text{Cl}$ 泉)、スメクタイトのイライト化を受けて進化した。化石海水における $\delta^{18}\text{O}$ 値の現海水に比したプラスシフトはスメクタイトのイライト化によってもたらされたものであり、この再結晶作用は B 濃度が高く K^+ 濃度が低い特徴、化学平衡計算結果、推定地下温度、地下構成鉱物によって支持される。

キーワード：関東平野北部、温泉水、化石海水、続成変質、水質形成機構、地質鉱物学的解釈

1. はじめに

筆頭著者 (村松) は関東平野中央部～南部に分布する塩化物泉の水質形成機構と流動機構を 10 年以上にわたって地質鉱物学的視点に立って研究し、関東平野中央部の上総層群相当層と安中・安房層群相当層を貯留母岩にする高塩化物泉の深部流体は、両層に閉じ込められた間隙水 (海水) が降水起源水による希釈と埋没続成変質を受けて進化するによって形成されたことを明らかにした (村松ら, 2016)。関東平野のなかで同様の研究を実施していない北部の栃木県は源泉総数 630 か所 (2015 年 3 月末で全国第 10 位; 環境省, 2016) を有する全国有数の温泉観光県であり、大部分は那須火山帯に属する那須、日光、高原火山の周辺地域に分布するが、第三紀グリーンタフが分布する中央平地部にも海水に近い高塩化物泉の存在が近年の温泉開発の進展によって確認されている (宇塚・鈴木, 1997)。この中央平地部の温泉を対象にした主成分組成に関する地球化学的研究は多数報告されている一方 (福田ら, 1988; 高屋・佐藤, 1992; 鈴木・宇塚, 1995; 宇塚・鈴木, 1997; 関ら, 2001, 2004), 酸素・水素安定同位体比 ($\delta^{18}\text{O}$ と δD) の報告は少なく (関ら, 2001), 地質鉱物学的視点に立って水質形成機構を研究した報告はさらに少ないのが現状である (鈴木・宇塚, 1995)。

本研究では、関東平野北部の中央低地部を主な対象として、塩化物泉の主成分および $\delta^{18}\text{O}$ と δD 値を分析するとともに、温泉井の掘削時に回収した岩石片の構成鉱物を粉末 X 線回折法で同定し、得られた結果に公表論文等の温泉水および間隙水の分析値を加えて、埋没続成変質による海水起源の間隙水の進化の視点に立って塩化物泉の起源と水質形成機構を検討した。さらに、硫酸塩泉と炭酸塩泉も対象に地質鉱物学的視点で水質形成機構を検討し、水-鉱物相互作用の化学平衡論により検証した。本論では地表で採取された温泉水を温泉水 (Spring water)、地下に賦存する本源的な温泉水を深部流体 (Deep fluid) とそれぞれ呼称する。

2. 地質概要

林ら (2004), 高橋 (2006), 鈴木 (2002) をもとに作成した関東平野北部の地質図を Fig. 1a に, また鶴田 (1965), 林ら (2008) に基づく地質断面図を Fig. 1b にそれぞれ示す. 本地域の中央平地部は新第三系 (火砕岩, 堆積岩類) と第四系 (火砕流堆積物, 礫層, 火山灰層) からなり, 周囲の帝釈・足尾山地と八溝山地に中生界が分布する. このうち, 帝釈・足尾山地は足尾層群 (足尾帯のジュラ紀付加体) と白亜紀の珪長質火成岩類, 八溝山地は八溝層群 (同付加体) と白亜紀の花崗岩, 変成岩 (筑波山地域) でそれぞれ構成される (竹内, 2008). また, 第四紀の那須火山と日光火山が本地域より北方と西方にそれぞれ分布するほか, 本地域の中央北部には約 50 万年前に火山活動を開始し, 約 6,500 年前の噴火で富士山溶岩ドームを形成した高原火山 (標高 1,795 m の成層火山) が分布している (奥野ら, 1997).

八溝山地西縁の新第三系は中川層群とそれを傾斜不整合に覆う荒川層群からなり, 陸成の弱変質火山岩類を主とする中川層群 (前期中新世) は茂木 (Fig. 1a の NG), 那珂川 (同 Bk) 地域に, また海成堆積岩からなる荒川層群 (中・後期中新世) は烏山地域 (同 AG) にそれぞれ露出し (鈴木・宇塚, 1995; 田中・高橋, 1997; 星・高橋, 1996; 高橋, 2006; 天野, 2008), これらは関東山地の北側に分布する富岡層群および安中層群とそれぞれ同時期の地層と考えられる (林ら, 2008).

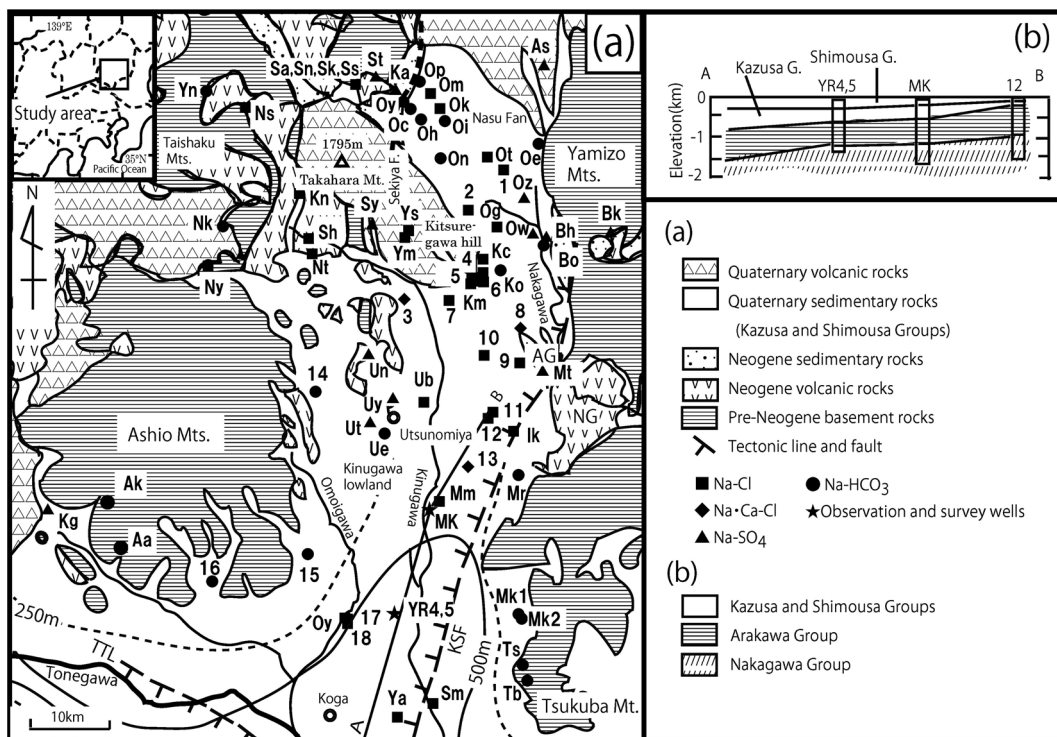


Fig. 1 Geological map and locations of the hot spring and pore waters of the northern Kanto Plain (after Hayashi *et al.*, 2004 ; Takahashi, 2006). Counters in meter indicate depth distribution of basal boundary of Kazusa Group from sea level (after Suzuki, 2002). TTL, Tonegawa Tectonic Line ; KSF, Karasuyama-Sugao Marsh Fault. MK, Moka observation well ; YR, Yuki survey well. AG, Arakawa Group ; NG, Nakagawa Group. Stratigraphies of the No. 12 well, Moka observation well and Yuki survey well in Fig. 1b are from Tsuruta (1965) and Hayashi *et al.* (2008).

中川層群および荒川層群相当層は多数の温泉が分布する中央平低地の地下に広く分布することが孔井地質調査によって確認されており、以下に地域北部の那須扇状地、中央西部の宇都宮地域、南部の真岡地域における孔井地質層序を概観する。那須扇状地の西那須野温泉井(同 Oi)では地表から深度 270m まで第四系、下位には荒川層群相当層(砂岩、泥岩、凝灰岩)が孔底深度 1200m まで続く(鈴木・宇塚, 1995)。一方、宇都宮地域(同 Un)にも弱変質火山岩類(大谷層)が露出する(青島・松居, 1997; 高橋・吉川, 2008)。宇都宮温泉井(同 Un 付近)では深度 773m まで荒川層群相当層(凝灰岩)、深度 1,280m まで中川層群相当層(安山岩・角礫凝灰岩)が分布し、下位には先第三系基盤岩類(足尾帯の花崗岩)が孔底深度 1,283m まで続く(福田ら, 1988; 林ら, 2008)。真岡地域(No. 13 周辺)の地震観測井(同 MK)では地表から深度 643m まで下総層群と上総層群、深度 1,158m まで荒川層群相当層(砂岩、泥岩、凝灰岩)、下位には中川層群相当層(砂岩、凝灰岩、泥岩)が孔底深度 1,738m まで続き(Fig. 1b; 林ら, 2004)、荒川層群相当層の基底深度は宇都宮地域より深い。

3. 試料採取および分析方法

関東平野北部に分布する温泉施設 13 地点で 2015 年 5、10 月に採水した(Fig. 1a の Nos. 1~13)。現地では水温、pH をカスターニー ACT pH メータ(堀場製作所製 D-24)で測定した後、分析用として 500mL のポリエチレン瓶 2 本に採水するとともに、Fe、Al 分析用として 100mL ポリエチレン瓶 1 本に採水して時間経過により沈殿物が生じないように、速やかに濃硝酸 1mL を加えて pH を 1 程度に調整した。これらの水試料を実験室に持ち帰り、各種溶存化学成分を分析した。温泉井の湧出形態は水中ポンプによる動力揚水であり、採水場所は源泉 11 地点(Nos. 1, 3, 5~13)、施設内の浴槽 2 地点(Nos. 2, 4)である。なお、現地では温泉所有者より掘削深度および孔明管の位置に関する聞き取り調査を実施した。温泉水の分析項目と方法は次の通りである。HCO₃⁻濃度は硫酸滴定法(HACH 製 AL-DT)による pH 4.8 アルカリ度から換算した。Na⁺、K⁺、Ca²⁺、Mg²⁺、Fe、Al³⁺、B、Si は連続光源フレイム原子吸光分析法(Aanalytik Jena 製 ContrAA 700)で分析し、Na⁺、K⁺、Fe には C₂H₂-air フレイムを、Ca²⁺、Mg²⁺、Al³⁺、B、Si には C₂H₂-N₂O フレイムをそれぞれ使用した。Cl⁻、SO₄²⁻ はイオンクロマトグラフ法(Dionex 製 ICS-900)で分析した。酸素安定同位体比(δ¹⁸O)と水素安定同位体比(δD)はキャビティリングダウン分光法(PICARRO 製 L-2120-i)を使用し、標準物質からの千分率偏差(‰)で表した。

$$\delta(\text{‰}) = [R_x/R_s - 1] \times 1000 \quad (1)$$

ここで、R_x および R_s は試料および標準物質の安定同位体比をそれぞれ表す。¹⁸O/¹⁶O 比と D/H 比は Vienna 標準平均海水(V-SMOW)を標準物質に用い、δ¹⁸O と δD 値の測定精度はそれぞれ ±0.05 と ±0.12‰ 程度である。

また、No. 2 地点の温泉井掘削時に回収された約 25m 間隔の岩石片(カッティングス)の構成鉱物を肉眼観察と粉末 X 線回折法(BRUKER 製 D8 ADVANCE)で同定した。なお、粉末 X 線回折法によるスメクタイトの同定はエチレングリコール処理を、方解石の同定には塩酸をそれぞれ併用した。

本研究では、関東平野北部に分布する温泉の水質および δ¹⁸O と δD 値に関する多くの公表論文(関ら, 2001, 2004; 鈴木・宇塚, 1995; 村松ら, 2008, 2013; 道前ら, 2003, 杉崎ら, 1963 など)、および入手できた温泉分析書(Fig. 1a のアルファベット大小二文字で略称)を加えて解析した。さらに、茨城県結城市における天然ガス調査井(YR4, 5)の掘削時に回収したコアの間隙水(YR4

Table 1 Chemical composition of the hot spring waters from the northern Kanto Plain.

No.	Locality	Type	Depth (m)	Sampling date	WT (°C)	TG (°C/100m)	pH	EC (mS/cm)	Na ⁺ (mg/L)	K ⁺ (mg/L)	Ca ²⁺ (mg/L)	Mg ²⁺ (mg/L)	Al ³⁺ (mg/L)	Fe (mg/L)	Cl ⁻ (mg/L)	SO ₄ ²⁻ (mg/L)	HCO ₃ ⁻ (mg/L)	B (mg/L)	SiO ₂ (mg/L)	δ ¹⁸ O (‰)	δD (‰)	δ ³⁴ S (‰)	f _{sea}
1	Ohtawara	Na-Cl	1300	10/27/2015	40.4	2.0	7.3	18.1	3381	13.2	760	1.40	0.1	1.00	5430	1302	26.8	9.1	41.7	-4.98	-34.1	-	0.274
2	Ohtawara	Na-Cl	1420	10/27/2015	43.6	2.0	8.5	0.7	143	1.20	3.0	0.10	0.1	0.10	91.3	0.8	205	2.3	34.7	-8.68	-58.4	-	0.005
3	Utsunomiya	Na-Ca-Cl	1300	10/27/2015	47.6	2.5	8.1	6.9	890	3.20	545	0.20	<0.1	0.10	1512	1184	24.4	2.6	31.2	-8.42	-45.5	-	0.076
4	Sakura	Na-Cl	1415	10/27/2015	51.1	2.6	6.7	18.9	3501	19.8	294	6.10	<0.1	0.20	6100	272	200	14.2	81.5	-6.03	-38.6	-	0.308
5	Sakura	Na-Cl	1365	10/27/2015	45.6	2.2	7.2	8.4	1518	15.4	65.5	2.20	<0.1	0.10	2394	51.2	312	10.9	113	-7.61	-49.9	-	0.121
6	Sakura	Na-Cl	1350	10/27/2015	73.6	4.3	6.9	24.5	4566	17.9	493	4.80	0.1	0.10	7881	342.0	74.4	20.8	50.3	-3.58	-26.3	-	0.398
7	Sakura	Na-Cl	1300	5/25/2015	62.8	3.7	7.2	26.9	4990	41.8	1100	6.65	<0.1	<0.1	9500	16.8	51.2	21.7	47.6	-3.16	-25.9	-	0.480
8	Nasukarasuyama	Na-Ca-Cl	1158	5/25/2015	57.3	3.7	7.3	24.5	3440	15.0	1790	17.3	<0.1	0.40	8290	621	35.4	10.3	39.5	-4.84	-31.4	-	0.419
9	Nasukarasuyama	Na-Cl	600	5/25/2015	23.4	1.4	8.4	3.2	523	8.34	16.5	1.24	0.2	0.34	865	2.08	212	2.8	66.5	-7.79	-51.2	-	0.044
10	Tabanezawa	Na-Cl	1600	5/25/2015	59.2	2.8	7.7	14.4	2790	13.7	210	1.01	<0.1	0.10	4750	14.5	65.3	15.5	43.3	-5.44	-38.2	-	0.240
11	Haga	Na-Cl	600	10/27/2015	33.1	3.0	7.2	3.0	575	17.0	8.4	0.90	0.1	0.20	463	<0.1	906	5.4	61.4	-8.51	-54.6	-	0.023
12	Haga	Na-Cl	1500	10/27/2015	50.9	2.4	7.1	12.6	1923	7.70	388	0.80	<0.1	2.20	3950	14.4	69.5	4.9	36.6	-7.96	-48.4	-	0.199
13	Mohka	Na-Ca-Cl	1400	5/25/2015	55.6	2.9	7.6	26.7	3300	15.7	2190	8.54	<0.1	2.38	9340	<0.1	21.4	15.2	31.0	-3.80	-27.4	-	0.471
14 ¹⁾	Kanuma	Na-HCO ₃	1500	8/11/2009	38.6	1.6	8.8	1.1	235	3.60	4.80	<0.1	0.007	<0.1	76.0	45.0	323	-	19.5	-8.74	-54.5	+36.4	0.004
15 ²⁾	Tochigi	Na-HCO ₃	1000	8/13/2009	41.9	2.7	8.0	2.1	487	75.2	15.2	2.20	0.007	0.50	234	136	766	-	19.7	-8.48	-53.0	+47.7	0.012
16 ¹⁾	Sano	Na-HCO ₃	1500	8/11/2009	25.7	0.7	8.5	1.2	273	6.70	6.20	2.10	0.008	0.30	35.0	<0.1	630	-	14.1	-8.81	-56.6	-	0.002
17 ¹⁾	Oyama	Na-Cl	1500	8/11/2009	21.5	0.4	8.1	1.9	406	21.7	36.0	0.50	0.009	1.90	621	<0.1	62.0	-	74.9	-8.46	-51.8	-	0.031
18 ¹⁾	Oyama	Na-Cl	1800	8/11/2009	22.8	0.4	8.4	1.9	325	21.2	53.0	0.40	0.008	<0.1	605	<0.1	69.0	-	78.3	-8.54	-50.9	-	0.031
	Sea water ³⁾			3/4/1988	-	-	8.4	-	11000	391	410	1390	-	-	19800	2690	150	4.5 ³⁾	-	-	-	-	-

WT, Water temperature; TG, Temperature gradient; EC, Electric conductivity; f_{sea}, Sea water fraction. ¹⁾Data from Muramatsu *et al.* (2013), ²⁾Data from Imahashi *et al.* (1996), ³⁾Data from Kamei (2001).

Table 2 Location and data source of the hot spring and pore waters from the northern Kanto Plain.

No.	Locality	Depth(m)	Type	References	No.	Locality	Depth(m)	Type	References
(1) Spring water from the hot spring wells					As	Nasu	500	Na-SO ₄	(9)
1,1a	Ohtawara	1300	Na-Cl	(1)(9)	Bh	Nakagawa	1200	Na-SO ₄	(9)
2,2a	Ohtawara	1420	Na-Cl	(1)(9)	Bo	Nakagawa	1030	Na-HCO ₃	(9)
3,3a	Utsunomiya	1300	Na-Ca-Cl	(1)(9)	Bk	Nakagawa	1800	Na-SO ₄	(9)
4,4a,4b	Sakura	1415	Na-Cl	(1)(9)	Km	Sakura	1242	Na-Cl	(3)
5	Sakura	1365	Na-Cl	(1)	Kc	Sakura	unknown	Na-Cl	(9)
6,6a	Sakura	1350	Na-Cl	(1)(9)	Ko	Sakura	1500	Na-HCO ₃	(9)
7,7a	Sakura	1300	Na-Cl	(1)(9)	Mt	Motegi	1200	Na-SO ₄	(3)
8,8a,8b	Nasukarasuyama	1158	Na-Ca-Cl	(1)(4)(9)	Ik	Ichikai	1500	Na-Cl	(9)
9,9a,9b	Nasukarasuyama	600	Na-Cl	(1)(3)(9)	Mm	Mohka	1500	Na-Cl	(9)
10,10a,10b,10c	Takanezawa	1600	Na-Cl	(1)(9)	Mr	Mashiko	390	Na-HCO ₃	(9)
10d,10e	Takanezawa	500	Na-Cl	(3)(9)	Sma,Smb	Shimotsuma	1500	Na-Cl	(3)(9)
11,11a,11b	Haga	600	Na-Cl	(1)(4)(9)	Yaa,Yab	Yachiyo	1500	Na-Cl	(3)(9)
12,12a	Haga	1050(1500)	Na-Cl	(1)(9)	Mk1	Makabe	30	Na-HCO ₃	(3)
13,13a	Mohka	1400	Na-Ca-Cl	(1)(9)	Mk2	Makabe	unknown	Na-HCO ₃	(3)
13b,13c	Mohka	1500	Na-Ca-Cl	(3)(9)	Tb	Tsukuba	1352	Na-HCO ₃	(3)
14,14a	Kanuma	1500	Na-HCO ₃	(2)(4)	Tsa,Tsb	Tsukuba	1700	Na-HCO ₃	(7)(9)
15	Tochigi	1000	Na-HCO ₃	(2)	Yn	Nikko	1100	Na-HCO ₃	(9)
16	Sano	1500	Na-HCO ₃	(2)	Ns	Nikko	unknown	Na-Cl	(9)
17	Oyama	1500	Na-Cl	(2)	Nk	Nikko	unknown	Na-HCO ₃	(9)
18	Oyama	1800	Na-Cl	(2)	Ny	Nikko	1063	Na-Cl	(9)
Sa	Nasushiobara	0	Na-Cl	(9)	Nt	Nikko	unknown	Na-Cl	(9)
Sk	Nasushiobara	unknown	Na-Cl	(9)	Kn	Kinugawa	unknown	Na-Cl	(9)
Sea,Ssb	Nasushiobara	unknown	Na-Cl	(3)(9)	Sh	Shioya	unknown	Na-Cl	(9)
Sn	Nasushiobara	unknown	Na-Cl	(9)	Sy	Shioya	unknown	Na-SO ₄	(9)
St	Nasushiobara	unknown	Na-SO ₄	(9)	Ys1	Yaita	1404	Na-Cl	(4)
Ka	Nasushiobara	1500	Na-SO ₄	(5)	Ys2	Yaita	1500	Na-Cl	(4)
Op	Nasushiobara	1450	Na-HCO ₃	(5)	Yma,Ymb	Yaita	1116	Na-Cl	(3)(9)
Om	Nasushiobara	1400	Na-Cl	(5)	Una,Unb	Utsunomiya	1000	Na-SO ₄	(3)(9)
Ok	Nasushiobara	unknown	Na-Cl	(5)	Uy	Utsunomiya	1283	Na-SO ₄	(6)
Oia,Oib,Oic	Nasushiobara	1200	Na-HCO ₃	(3)(5)(9)	Ut	Utsunomiya	1000	Na-SO ₄	(9)
Oy	Nasushiobara	1075	Na-HCO ₃	(5)	Ue	Utsunomiya	1050	Na-HCO ₃	(9)
Oc	Nasushiobara	1500	Na-HCO ₃	(5)	Ub	Utsunomiya	1500	Na-Cl	(9)
Oh	Nasushiobara	1500	Na-HCO ₃	(5)	Oy	Oyama	1500	Na-Cl	(9)
On	Nasushiobara	1000	Na-HCO ₃	(3)	Aa	Ashikaga	0	Na-HCO ₃	(2)
Ota,Otb	Ohtawara	1050	Na-Cl	(3)(9)	Ak	Kaisawa	0	Na-HCO ₃	(2)
Og	Ohtawara	1500	Na-Cl	(9)	(2) Pore water from the survey wells				
Ow	Ohtawara	unknown	Na-SO ₄	(9)	YR4a	Yuki R4	678	Na-HCO ₃	(8)
Oz	Ohtawara	1310	Na-SO ₄	(9)	YR4b	Yuki R4	1014	Na-HCO ₃	(8)
Oe	Ohtawara	1500	Na-HCO ₃	(9)	YR5	yuki R5	1041	Na-SO ₄	(8)

References : (1) This study, (2) Muramatsu *et al.* (2013), (3) Seki *et al.* (2001), (4) Seki *et al.* (2004), (5) Suzuki and Uzuka (1995), (6) Fukuda *et al.* (1988), (7) Yabuzaki *et al.* (2007), (8) Tsuruta (1965), (9) Unpublished data.

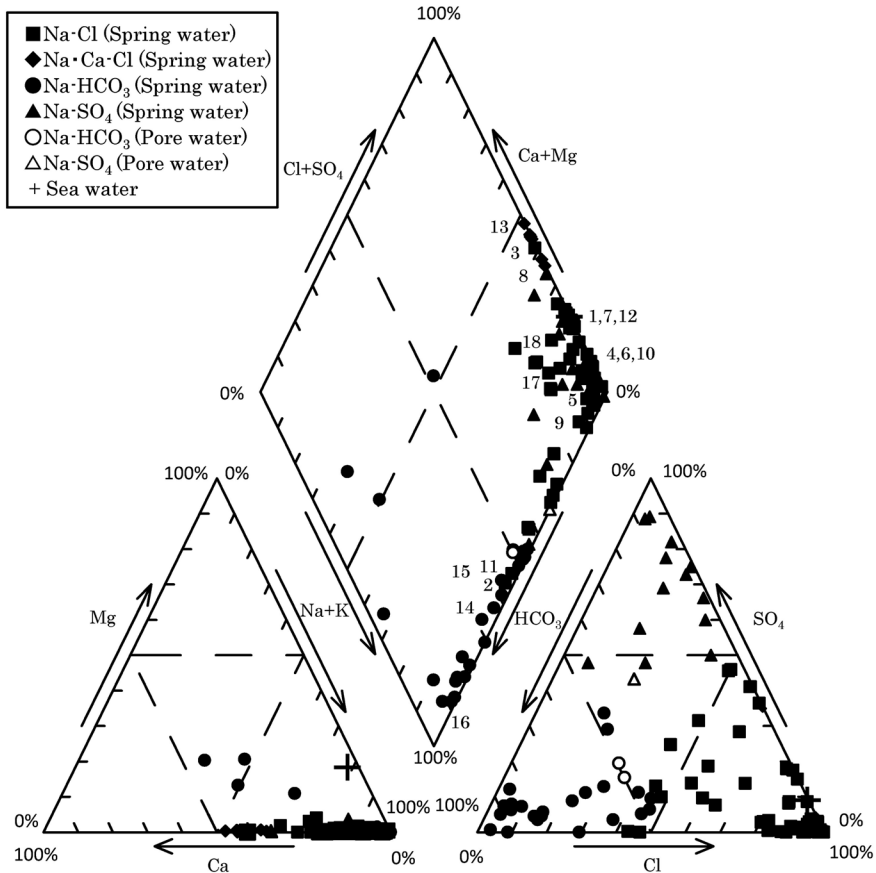


Fig. 2 Trilinear diagram for the hot spring and pore waters. The sample numbers are the same as in Fig. 1.

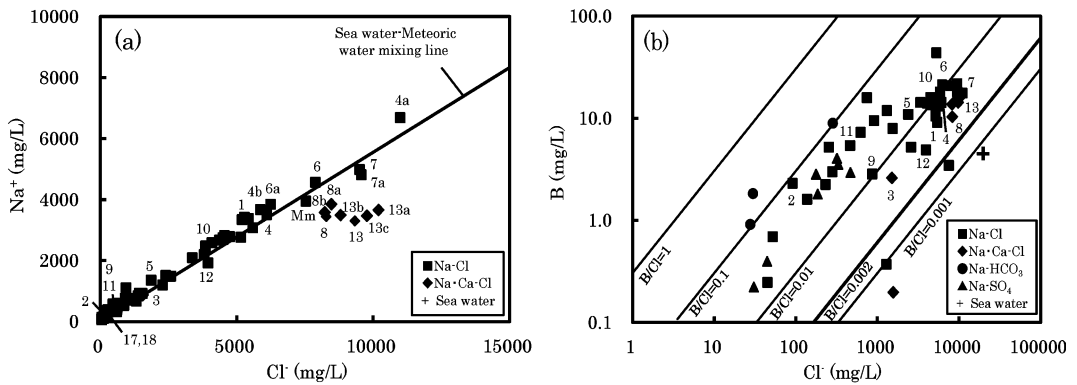


Fig. 3 $\text{Na}^+ - \text{Cl}^-$ (a) and $\text{B} - \text{Cl}^-$ (b) diagrams for the hot spring waters. The sample numbers and abbreviations are the same as in Fig. 1 and Tables 1, 2.

の深度 678, 1,014 m, YR5 の深度 1,041 m) の主成分分析値 (鶴田, 1965) も加えた。

4. 結果および考察

4.1 温泉水の主成分組成

今回採取した塩化物泉の化学分析結果を足尾山地東縁の温泉分析値 (村松ら, 2008) と併せて Table 1 に示す。pH は 6.7~8.8, 泉温は 21.5~73.6°C にある。入手できた温泉水および結城調査井の間隙水の分析値 (Table 2) を加えたトリリニアダイアグラムによれば, 温泉水は塩化物型 (Na—Cl, Na·Ca—Cl) を主とするほか, 炭酸塩型 (Na—HCO₃), 硫酸塩型 (Na—SO₄) からなり, また間隙水は炭酸塩型 (Na—HCO₃), 硫酸塩型 (Na—SO₄) からなる (Fig. 2)。泉質と地質・地形の関係をみると, 塩化物泉は中央平地部, 炭酸塩泉は足尾・帝釈山地, 八溝山地寄り, 硫酸塩泉は弱変質火山岩類が露出する宇都宮, 茂木, 那珂川地域にそれぞれ分布する (Fig. 1a)。温泉井のなかには孔底深度が 1,800 m に達するものもあるが, 全体の約 8 割は 1,000~1,500 m を孔底深度にしており, 採水された深部流体は荒川層群相当層を主要な貯留母岩にしている (Table 2; 関ら, 2004; 林ら, 2008)。塩化物泉 (Na—Cl) は海水希釈線付近にプロットされ (Fig. 3a), ほとんどの塩化物泉の B/Cl モル比は 0.002 以上を示している (Fig. 3b)。

4.2 温泉の熱源および塩化物泉の起源

4.2.1 温泉の熱源

地表温度を 15°C とし, 泉温が孔底温度に等しいと仮定すると, 今回採水した 13 地点の地温勾配は 1.4~4.3°C/100 m を示し, Nos. 6~8 地点は非火山地域の地温勾配 (2~3°C/100 m 程度; 入船, 1995) よりやや高い (Table 1)。本地域北部の中央平地部 (Nos. 7, 8 地点以北) にある深部温泉井 17 本で実施した掘削終了後の温度検層に基づく地温勾配 (3.0~5.0°C/100 m; 高屋・佐藤, 1992) も同様であり, 地域北部は火山性温泉地域の地温勾配を示している。深部流体は孔内上昇過程で冷却されるために泉温は深部流体温度を示していないが, 深部流体温度の全体的な傾向は泉温の二次元分布で知ることができる。Figure 4a からわかるように, 泉温は足尾, 八溝山地寄りで低い一方, 高原火山周辺で高い傾向を示している。温泉と火山および地質・地質構造との関係によれば, 本地域最北部の塩原温泉 (Fig. 1a の Sa~St) は現在も噴気活動が認められる高原火山を熱源にしていると考えられており (鈴木, 1974), 火山性温泉地域の地温勾配を示す温泉の熱源は高原火山である可能性が高い。

4.2.2 塩化物泉の起源

塩化物泉 (Na—Cl) は海水の降水起源水による希釈によって形成されたものと判断されることから (Fig. 3a), 海水混合比を次式により算出した。

$$f_{\text{sea}} = \frac{\text{Cl}_{\text{sample}} - \text{Cl}_{\text{rain}}}{\text{Cl}_{\text{sea}} - \text{Cl}_{\text{rain}}} \quad (2)$$

ここで, f_{sea} は試料の海水混合比, $\text{Cl}_{\text{sample}}$, Cl_{rain} , Cl_{sea} は試料, 降水, 海水の Cl⁻ 濃度をそれぞれ示す。海水混合比の二次元分布をみると, 同比が 0.2 より高いゾーンは中央平地部に分布する一方, 八溝, 足尾, 帝釈山地寄りの海水混合比は低く, 降水はこれらの山地から涵養されたと判断される (Fig. 4b)。塩化物泉のなかで, Cl⁻ 濃度が 8,290 mg/L 以上の高塩化物泉 (Nos. 7, 8, 13) の Mg²⁺/Cl⁻ 当量比 (0.002~0.006), SO₄²⁻/Cl⁻ 当量比 (0.000~0.055), K⁺/Cl⁻ 当量比 (0.002~0.004), Na⁺/Cl⁻ 当量比 (0.545~0.809) は現海水 (Mg²⁺/Cl⁻ 当量比 0.205, SO₄²⁻/Cl⁻ 当量比 0.101, K⁺/Cl⁻ 当量比 0.018, Na⁺/

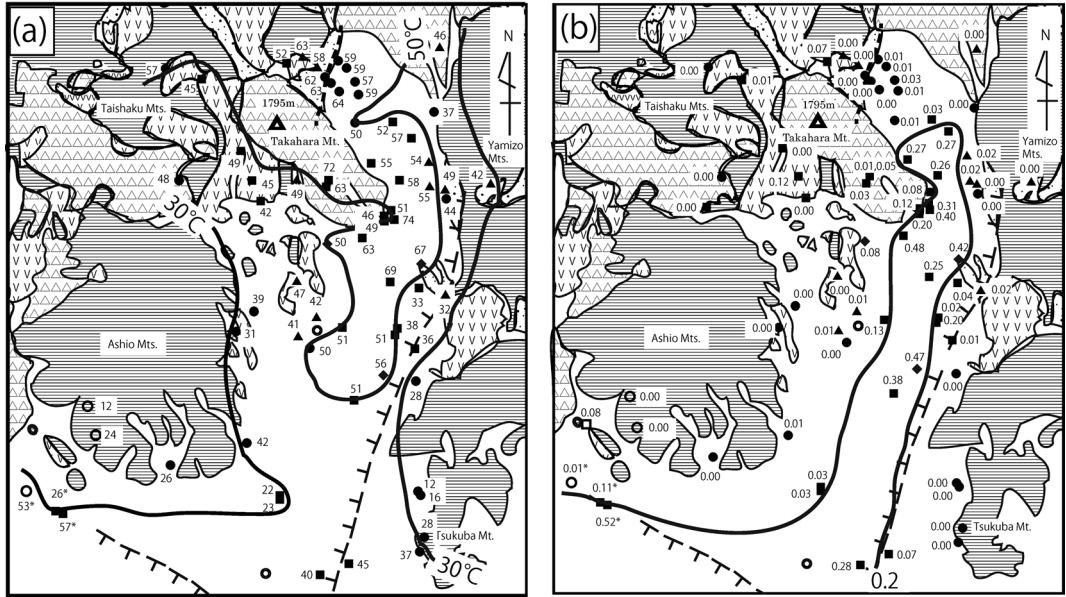


Fig. 4 Horizontal distributions of water temperature (a) and sea water fraction (b) in the hot spring waters. *Data from Muramatsu *et al.* (2013).

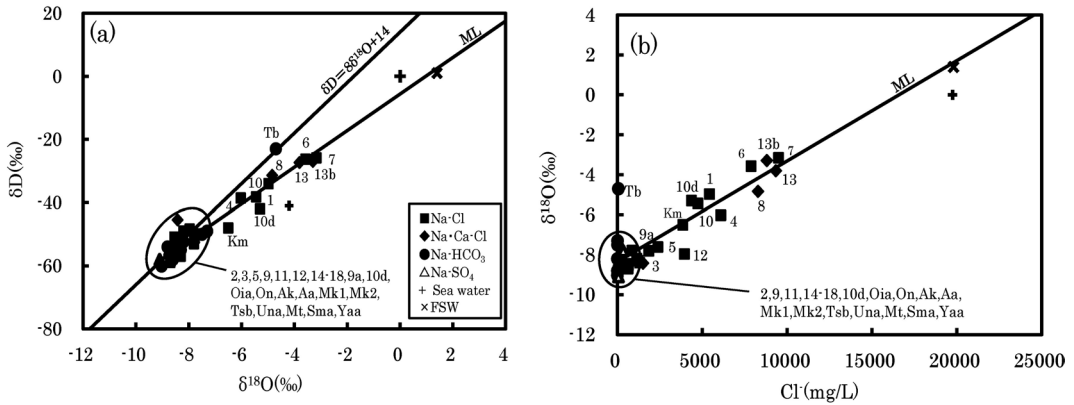


Fig. 5 $\delta^{18}\text{O}$ — δD (a) and $\delta^{18}\text{O}$ — Cl^- (b) diagrams for the hot spring waters. The sample numbers and abbreviations are the same as in Fig. 1 and Tables 1, 2. The FSW shows the fossil sea water. The ML shows the mixing line of fossil sea water and meteoric water.

Cl^- 当量比 0.859) より低い一方, $\text{Ca}^{2+}/\text{Cl}^-$ 当量比 (0.205~0.416) は現海水 (同 0.037) よりかなり高い特徴が認められる。

温泉水の $\delta^{18}\text{O}$, δD 値, Cl^- 濃度間の関係を Fig. 5 に示す。 Cl^- 濃度が低い塩化物泉 (Nos. 2, 3, 5, 9, 11, 12, 17, 18, 9a, 10d, Sma, Yaa), 炭酸塩泉 (Nos. 14~16, Oia, On, Ak, Aa, Mk1, Mk2, Tsb), 硫酸塩泉 (Una, Mt) は天水線 ($\delta\text{D} = 8\delta^{18}\text{O} + 14$) 付近にプロットされ, 降水を起源にしている (Fig. 5a)。 塩化物泉の $\delta^{18}\text{O}$ — δD 値, $\delta^{18}\text{O}$ 値— Cl^- 濃度間には正相関が認められる。 相関直線 (ML) を用いると, Cl^- 濃度を現海水と同じ 19,800 mg/L と仮定した $\delta^{18}\text{O}$, δD 値はそれぞれ +1.40‰ (Fig. 5b), +1.0‰ (図は割愛) と見積もられ, 塩化物泉は $\delta^{18}\text{O}$ 値が現海水よりプラスシフトした化石海水と降水起源

水の混合によって形成されたものであることがわかる。

4.3 深部流体の水質形成機構

温泉水に含まれる化学成分の起源を検討するにあたっては、海水の当該成分に対する過剰・欠損量を求める必要がある。試料の Cl^- は海水起源であると考えられるので、次式より試料の過剰・欠損する M 成分の濃度を算出した。

$$\Delta[M] = [M] - [M/\text{Cl}]_{\text{sea}} \times [\text{Cl}] \tag{3}$$

ここで、 $\Delta[M]$ ：試料の過剰・欠損する M 成分量、 $[M]$ ：試料の M 成分の濃度、 $[M/\text{Cl}]_{\text{sea}}$ ：海水の Cl^- に対する M 成分の濃度、 $[\text{Cl}]$ ：試料の Cl^- 濃度。以下に、泉質別に水質形成機構を検討する。

4.3.1 炭酸塩泉

$\text{Na}-\text{HCO}_3$ 泉 (No. 14a を除く) および同型間隙水 (YR4a, b) の ΔNa^+ と ΔHCO_3^- 濃度は直線 $\Delta\text{Na}^+ = \Delta\text{HCO}_3^-$ 付近にプロットされ (Fig. 6a), Na^+ と HCO_3^- の濃度は火山性物質 (曹長石組成) の Na -ス멕タイト化に規制される。



水-鉱物平衡計算プログラム「SOLVEQ」(Reed, 1982) を用いて、泉温における深部流体の Na -

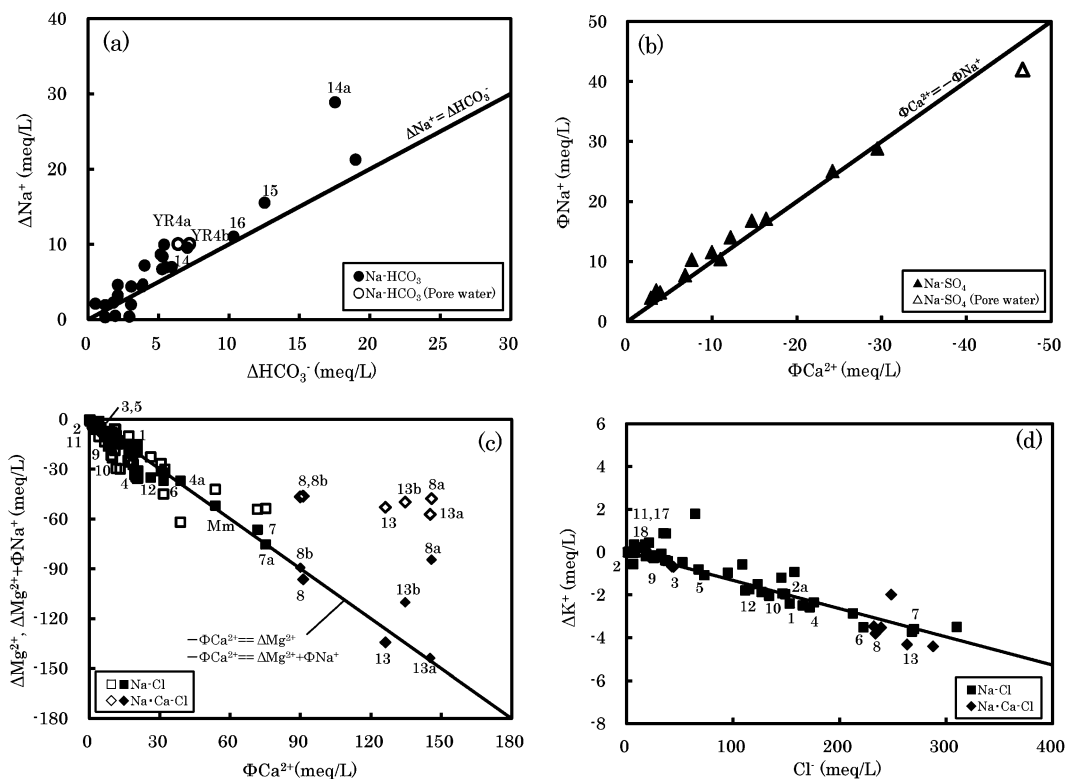


Fig. 6 $\Delta\text{Na}^+ - \Delta\text{HCO}_3^-$ (a), $\Phi\text{Ca}^{2+} - \Phi\text{Na}^+$ (b), $\Phi\text{Ca}^{2+} - \Delta\text{Mg}^{2+}$, $(\Delta\text{Mg}^{2+} + \Phi\text{Na}^+)$ (c) and $\Delta\text{K}^+ - \text{Cl}^-$ (d) diagrams for the hot spring and pore waters. The sample numbers and abbreviations are the same as in Fig. 1 and Tables 1, 2. Open and solid symbols in Fig. 6c are the data for the $\Phi\text{Ca}^{2+} - \Delta\text{Mg}^{2+}$ and $\Phi\text{Ca}^{2+} - (\Delta\text{Mg}^{2+} + \Phi\text{Na}^+)$ diagrams, respectively.

スメクタイトに対する飽和指数を計算した結果, Na—HCO₃ 泉 (Nos. 14~16, Ak, Aa) の深部流体は Na—スメクタイトにはほぼ飽和ないし過飽和状態にある (Fig. 7a). これらの温泉の δ¹⁸O と δD 値は天水線 (δD=8δ¹⁸O+14) 付近にプロットされること (Fig. 5a), および Na—HCO₃ 泉は足尾・帝釈山地, 八溝山地寄りに分布することを勘案すると, これらの山地から地下に涵養された降水が火山性物質の Na—スメクタイト化を受けることによって, Na—HCO₃ 泉の深部流体および同型間隙水が形成されたと推察される.

4. 3. 2 硫酸塩泉

Na—SO₄ 泉が分布する宇都宮, 茂木, 那珂川地域の弱変質火山岩類は足尾山地南側の太田地域に藪塚層として分布する. 本層を貯留母岩にしている笠懸 Na—SO₄ 泉 (Fig. 1a の Kg) の δ³⁴S 値 (+23.8‰) は硫酸態硫黄の硬石膏由来を示唆し, 深部流体は降水の地下浸透に伴う藪塚層中の硬石膏の溶解と陽イオン交換反応によって形成されたと考えられている (村松ら, 2013). また, 足尾山地東側の SO₄²⁻ にやや富む Na—HCO₃ 泉 (Nos. 14, 15) の δ³⁴S 値 (+36.4~47.7‰) は硫酸態硫黄の硬石膏由来と硫酸還元反応の進行を示唆していることから (村松ら, 2013), 関東平野北部の Na—SO₄ 泉に含まれる硫酸態硫黄も硬石膏に由来すると判断される.

Na—SO₄ 泉 (Una, Mt; 関ら, 2001) は天水線 (δD=8δ¹⁸O+14) 付近にプロットされ (Fig. 5a), 同泉質の深部流体と間隙水 (YR5) は降水を起源にしている. 前述したように, 降水は高標域からの地下涵養過程で火山性物質の Na—スメクタイト化を受けていると考えられるので, 火山性物質の Na—スメクタイト化に由来する Na⁺ 分を差引いた Na⁺ 量 (ΦNa⁺=ΔNa⁺-ΔHCO₃⁻) と SO₄²⁻ が硬石膏の溶解に由来すると仮定した時の欠損 Ca²⁺ 量 (ΦCa²⁺=ΔCa²⁺-ΔSO₄²⁻) の関係を見ると, Na—SO₄ 泉と間隙水 (YR5) は ΦCa²⁺=-ΦNa⁺ 付近にプロットされる (Fig. 6b). したがって, 降水が地下涵養過程で火山性物質の Na—スメクタイト化を受けて形成された Na—HCO₃ 型降水起源水が弱変質火山岩類に含まれる硬石膏の溶解を経験した後, Ca²⁺ と貯留母岩中の Na—スメクタイトとの陽イオン交換反応が進行した結果, Na—SO₄ 泉の深部流体および同型間隙水が形成されたと推察される.

4. 3. 3 塩化物泉

(1) 硫酸還元反応, 方解石核形成

孔井地質および孔明管挿入深度に基づけば, 今回採水した塩化物泉のほとんど (Nos. 8, 13 を除

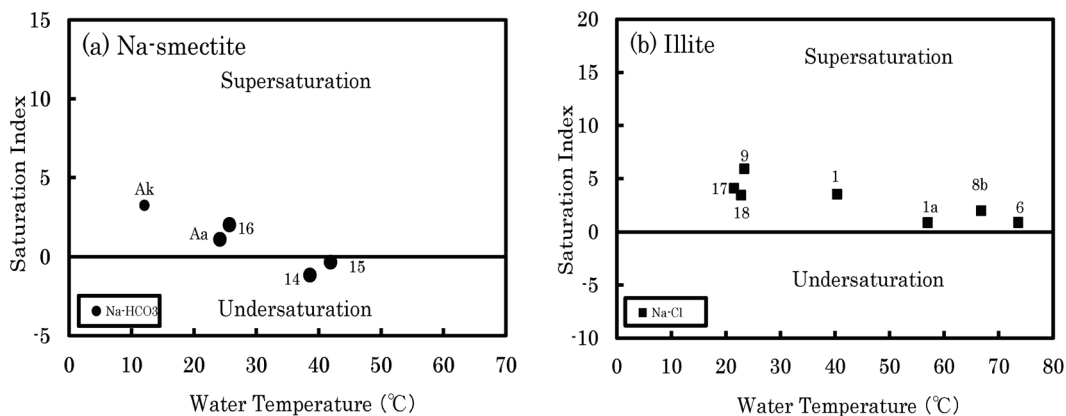


Fig. 7 Relationships between water temperature and saturation index for Na-smectite (a) and Illite (b). The sample numbers and abbreviations are the same as in Fig. 1 and Tables 1, 2.

く)は中新世荒川層群の海成堆積岩を貯留母岩にしている(関ら, 2004; 林ら, 2008). 群馬県安中・富岡地域に分布する同時期の海成安中・富岡層群を貯留層にする高塩化物泉は SO_4^{2-} を殆どないし全く含んでおらず, これは硫酸還元反応に起因することが硫黄安定同位体比により明らかになっている(村松ら, 2010). 今回採水した関東平野北部の塩化物泉のなかで最も Cl^- 濃度が高い No. 7 地点の SO_4^{2-} 濃度は 16.8 mg/L と低く (Table 1), 硫化水素臭が認められることを勘案すると, 海底泥質堆積物に閉じ込められた海水は安中・富岡地域と同様に, 初期続成期に硫酸還元菌による硫酸還元反応を経験したと考えるのが妥当である.



この反応で発生した間隙水の HCO_3^- は Ca^{2+} と反応して, コンクリーションの核になる方解石 (CaCO_3) が生成すると考えられる(平, 2004).



Cl^- 濃度が No. 7 地点に次いで高い No. 13 地点 (孔底深度 $1,400 \text{ m}$) の SO_4^{2-} 濃度は検出限界 (0.1 mg/L) 以下を示している (Table 1). その南西約 6 km の真岡観測井 (MK) では海成荒川層群相当層が深度 $643 \sim 1,158 \text{ m}$ まで分布し, 下位に陸成中川層群相当層が孔底深度 $1,738 \text{ m}$ まで続く(林ら, 2004) ことから, No. 13 地点の深部流体に含まれる化石海水は荒川層群相当層下部の海底泥質堆積物に閉じ込められた間隙水 (海水) に由来し, 硫酸還元反応を経てメタン生成菌が活発なメタン生成帯に近い環境にあったと推察される.

(2) 火山性物質の Mg—スメクタイト化作用, イオ交換反応

カリブ海で海底掘削時に回収されたコアの間隙水の分析によれば, 海底から深度 400 m 間の $\delta^{18}\text{O}$ 値は -3% 程度低くなり Mg^{2+} 濃度も減少する一方 Ca^{2+} 濃度は増加傾向を示しており, 海底堆積物中の火山性物質の Mg—スメクタイト化が一因になっていると考えられている (Lawrence *et al.*, 1975). 高塩化物泉 (Nos. 7, 8, 13) の $\text{Mg}^{2+}/\text{Cl}^-$ 当量比は現海水よりかなり低い一方 $\text{Ca}^{2+}/\text{Cl}^-$ 当量比はかなり高く, 塩化物泉の深部流体をもたらした間隙水は火山性物質の Mg—スメクタイト化を経験してきた可能性が高い.

① Na—Cl 泉

硫酸還元反応と方解石核形成に伴う Ca^{2+} 欠損分を加えた Ca^{2+} 量 ($\Phi\text{Ca}^{2+} = \Delta\text{Ca}^{2+} - \Delta\text{SO}_4^{2-}$) と ΔMg^{2+} の相関関係をみると, Na—Cl 泉は $-\Phi\text{Ca}^{2+} = \Delta\text{Mg}^{2+}$ 付近にプロットされる (Fig. 6c). したがって, 海水が海底泥質堆積物の埋没過程で種々の程度に Na— HCO_3 型降水起源水によって希釈された間隙水は火山性物質の Na—スメクタイト化に加えて, 硫酸還元反応, 方解石核形成, 火山性物質の Mg—スメクタイト化を経験したと推察される.

② Na・Ca—Cl 泉

一方, Na・Ca—Cl 泉の ΦCa^{2+} と ΔMg^{2+} の相関関係は $-\Phi\text{Ca}^{2+} = \Delta\text{Mg}^{2+}$ から大きく外れる (Fig. 6c). Na—Cl 泉の ΦNa^+ はゼロに近いが, Na・Ca—Cl 泉の ΦNa^+ は大きな負の値を示すことから, ΦCa^{2+} と ($\Delta\text{Mg}^{2+} + \Phi\text{Na}^+$) の相関関係をみると $-\Phi\text{Ca}^{2+} = \Delta\text{Mg}^{2+} + \Phi\text{Na}^+$ 付近にプロットされる (No. 8a を除く). したがって, 間隙水は Na—Cl 泉が経験した諸続成作用に加えて, イオン交換反応による Ca—スメクタイトの Na—スメクタイト化も受けたと推察される.



海水と堆積物・岩石の相互作用に関する実験(池田, 1985)によれば, Cl^- 濃度が増加するような海水が浸入してくる環境では, 粘土層の Ca^{2+} に富むイオン交換体と海水のイオン交換反応が行

われて、(7)式の進行による Ca^{2+} に富む塩水化地下水と Na^+ に富むイオン交換体が形成される。そこで、関東平野北部で海水が浸入してくる地質環境にあったかを No. 13 地点で検討しよう。村松ら (2008) は掘削時から掘削終了後において温度検層が数回実施された関東平野中央部の温泉井を対象に、ホーナー法による推定回復温度と泉温を比較し、流入深度ゾーン (1,000~1,500 m) における推定回復温度は泉温より 1~9°C 高くなることを明らかにしている。No. 13 地点の泉温 (約 56°C) に最大温度補正をした流体温度は約 65°C である。1994~96 年に防災科学技術研究所によって掘削された真岡地震観測井 (MK) では、掘削終了後に孔明管を挿入して 10 日間以上放置させ、孔内水がほぼ地層温度まで回復した後に温度検層が実施されている (鈴木・小村, 1999)。それによれば、No. 13 地点の泉温は荒川層群相当層の基底深度 (1,158 m) 付近、最大温度補正後の流体温度は中川層群相当層の上面から約 290 m 深部にそれぞれあたることから、深部流体は中川層群相当層上部から孔井内に流入していると推定される。 Cl^- 濃度が高い同泉質の No. 8 地点も中川層群相当層を貯留母岩にしており (林ら, 2008)、 $\text{Na} \cdot \text{Ca}-\text{Cl}$ 泉の深部流体は荒川層群相当層下部の海底泥質堆積物に閉じ込められた間隙水が埋没過程で前述の諸続成作用を経験した後、圧密作用を受けて陸成中川層群相当層の上部に発達した断裂系に移流・貯留され、イオン交換反応を受けたと推察される。このような Ca -スメクタイトと Na^+ に富む海水間の陽イオン交換反応は伊豆半島の海岸地域 (甘露寺, 1987) や鶴巻温泉 (石坂ら, 1986; Muramatsu *et al.*, 2011) の $\text{Ca}-\text{Cl}$ 泉、榛名火山地域の $\text{Na} \cdot \text{Ca}-\text{Cl}$ 泉 (村松ら, 2014) で報告されている。

(3) スメクタイトのイライト化作用

スメクタイトの層間に $\text{B}(\text{OH})_3$ として存在する B はイライトへ相転移する時に層間水とともに放出される (大沢ら, 2010)。関東平野中央部の安中・安房層群相当層を貯留母岩にし、 B/Cl モル比が約 0.002 以上を有する塩化物泉はスメクタイトのイライト化を経験したと推察されている (村松ら, 2016)。関東平野北部のほとんどの塩化物泉の B/Cl モル比も 0.002 以上を示しており (Fig. 3b)、本地域でもスメクタイトのイライトへの相転移が進行していることが示唆される。この相転移の進行は塩化物泉の深部流体がイライトにほぼ飽和ないし過飽和状態にあることや (Fig. 7b)、次のデータから支持される。

- ① イライトの生成には地温勾配、埋没速度、同一温度の保持時間とともに K^+ の供給量が関係し (吉村, 2001)、本地域の塩化物泉の ΔK^+ と Cl^- 濃度は逆相関を示している (Fig. 6d)。
- ② スメクタイトのイライトへの相転移は 58~142°C で行われる (Freed and Peacor, 1989)。No. 2 地点で温泉井の掘削終了後に実施した温度検層結果によれば、深部流体が孔井内に流入する遮水管挿入区間以深の温度 (73~87°C) はスメクタイト→イライトの相転移温度の下限値をかなり上回る (Fig. 8)。また、泉温に流入深度 (1,000~1,500 m) における推定回復温度への補正值 (1~9°C; 村松ら, 2008) を加えると、相転移温度の下限値を上回る温泉が地域北部に多数存在する (Fig. 4a)。
- ③ No. 2 地点の地下構成鉱物を見ると、スメクタイト/イライト混合層鉱物が遮水管挿入区間以深に普遍的に分布する (Fig. 8)。

上述したように、No. 2 地点の貯留母岩にはスメクタイト/イライト混合層鉱物が普遍的に分布する。出発物質にスメクタイトを用いたスメクタイトのイライト化の相転移実験 (熱水温度 250~450°C) によれば、スメクタイト/イライト混合層鉱物に占めるイライトの割合が高まるにつれて、溶液の $\delta^{18}\text{O}$ 値は大幅にプラスシフトする (Whitney and Northrop, 1988)。この実験結果に基づけば、関東平野北部ではスメクタイトがイライト化する際に ^{18}O に富む層間水の脱水反応が進み、化石海水の $\delta^{18}\text{O}$ 値は現海水よりやや高くなったと推察される (大沢ら, 2010)。

最後に、塩化物泉をもたらした深部流体の形成機構を間隙水の進化の視点で纏めると、次のよう

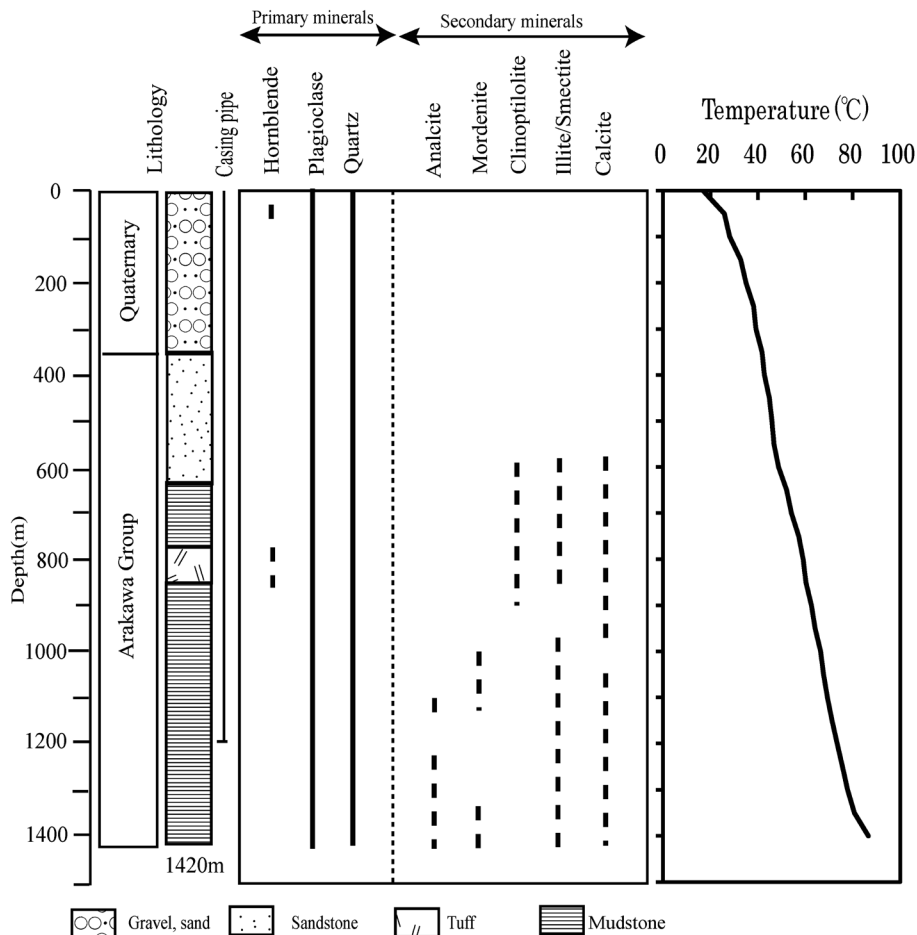


Fig. 8 Stratigraphy, distribution of minerals and temperature logging data in the No. 2 well.

であったと推察される。埋没過程で荒川層群相当層下部の海底泥質堆積物に閉じ込められた間隙水(海水)は硫酸還元反応と方解石の核形成を受けるとともに、降水の地下涵養後に火山性物質のNa—スメクタイト化を受けて形成されたNa—HCO₃型降水起源水によって種々の程度に希釈され、また火山性物質のMg—スメクタイト化を受けた。さらに、Na・Ca—Cl泉をもたらした間隙水は圧密に伴って陸成中川層群相当層の上部の断裂系に移流し、火山ガラスの変質生成物であるCa—スメクタイトとのイオン交換を経験した。その後、地温上昇に伴うスメクタイトのイライト化を経験した結果、塩化物泉をもたらした深部流体が形成された。

5. ま と め

関東平野北部に分布する塩化物泉の主成分および酸素・水素安定同位体比分析、および温泉井の掘削時に回収した岩石片の粉末 X 線回折法による鉱物同定を実施した。得られた結果に公表論文等による温泉水と間隙水の分析値を加えて、地質鉱物学的視点に立って温泉の水質形成機構を検討するとともに、水—鉱物相互作用に関する化学平衡計算を実施し、以下の結果が得られた。

(1) 足尾・帝釈山地, 八溝山地周辺に分布する炭酸塩泉 ($\text{Na}-\text{HCO}_3$) は, これらの山地から地下に涵養された降水が火山性物質の Na -スメクタイト化を受けて形成された降水起源水であり, 水-鉱物相互作用に関する化学平衡計算結果と整合する.

(2) 弱変質火山岩類が分布する宇都宮, 茂木, 那珂川地域の硫酸塩泉 ($\text{Na}-\text{SO}_4$) は, $\text{Na}-\text{HCO}_3$ 型降水起源水が弱変質火山岩類に含まれる硬石膏を溶解するとともに, Ca^{2+} が貯留母岩中の Na -スメクタイトと陽イオン交換反応を行うことによって形成された.

(3) 塩化物泉 ($\text{Na}-\text{Cl}$, $\text{Na}\cdot\text{Ca}-\text{Cl}$) は中央平原地部に分布し, 主に荒川層群相当層を貯留母岩にしている. 高塩化物泉の $\text{Mg}^{2+}/\text{Cl}^-$, $\text{SO}_4^{2-}/\text{Cl}^-$, K^+/Cl^- , Na^+/Cl^- 当量比は現海水より低い一方, $\text{Ca}^{2+}/\text{Cl}^-$ 当量比はかなり高く, B/Cl モル比は 0.002 以上を示す. 塩化物泉は降水起源水と化石海水の混合によって形成されたものであり, 化石海水の $\delta^{18}\text{O}$ 値は現海水より若干プラスシフトする.

(4) (3)に認められた水質と酸素安定同位体比の傾向は, 次のような間隙水の進化による塩化物泉の形成を示唆する. 埋没過程で海成荒川層群相当層下部に閉じ込められた間隙水 (海水) は硫酸還元反応と方解石核形成を受けるとともに, $\text{Na}-\text{HCO}_3$ 型降水起源水によって種々の程度に希釈された. さらに, 間隙水は火山性物質の Mg -スメクタイト化, 陽イオン交換反応による Ca -スメクタイトの Na -スメクタイト化 ($\text{Na}\cdot\text{Ca}-\text{Cl}$ 泉のみ), スメクタイトのイライト化を受けて進化した.

(5) 化石海水における $\delta^{18}\text{O}$ 値の現海水に比したプラスシフトはスメクタイトのイライト化によってもたらされたものであり, この再結晶作用は塩化物泉の B 濃度が高く K^+ 濃度が低い特徴, 化学平衡計算結果, 推定地下温度, 地下構成鉱物によって支持される.

謝 辞

本研究を行うにあたって, 温泉施設管理者ならびに関係者の皆様には温泉水の採取, 温泉井掘削時の岩石片の借用, および掘削工事報告書の閲覧にご協力いただきました. また, 2名の査読者には懇切丁寧なご指摘を頂きました. 以上の方々に深く感謝いたします.

引用文献

- 天野一男 (2008): 棚倉地域. 日本地方地質誌 3 関東地方. 日本地質学会編, 206-214, 朝倉書店, 東京.
- 青島陸治, 松居誠一郎 (1997): 新第三系. 日曜の地学 9 栃木の自然をたずねて. 栃木の自然編集委員会編, 7-9. 築地書店, 東京.
- 道前香緒里, 石賀裕明, 石川憲一, 千代延 俊, 丸岡幹男 (2003): 関東平野の温泉開発と泉質の特徴およびカッティングスの地質学的検討 (予報). 島根大地球資源環境学研報, 22, 21-29.
- Freed, R.L. and Peacor, D.R. (1989): Variability in temperature of the smectite/illite reaction in Gulf Coast sediments. *Caly Minerals*, 24, 171-180.
- 福田 理, 永田松三, 鈴木宏芳 (1988): 関東平野の地下構造と地層流体. 地質学論集, 31, 5-40.
- 林 広樹, 高橋雅紀, 笠原敬司 (2004): 関東平野の地下における新第三系の分布. 石油技術協会誌, 69, 574-586.
- 林 広樹, 高橋雅紀, 笠原敬司 (2008): ボーリング調査. 日本地方地質誌 3 関東地方. 日本地質学会編, 392-400, 朝倉書店, 東京.
- 星 博幸, 高橋雅紀 (1996): 茂木地域に分布する前・中期中新世火山岩類の古地磁気層序と火山活動の時期. 地質学雑誌, 102, 573-590.
- 池田喜代治 (1985): 海岸平野における塩水化地下水の水・堆積物相互作用と化学組成. 陸水学雑誌,

46, 303-314.

今橋正征, 加藤尚之, 高松信樹, 相川嘉正 (1996): 千葉県を中心とした地域の温鉱泉水およびガス田付随水中の臭化物およびヨウ化物イオン含量. 温泉科学, **46**, 69-78.

入船徹男 (1995): マントルと核の物性. 地学団体研究会編「新版地学教育講座 5 巻 地球内部の構造と運動」, 75-96, 東海大学出版会, 秦野 (神奈川県).

石坂信之, 栗屋 徹, 平野富雄 (1986): 鶴巻温泉の化学成分の経年変化. 神奈川県温泉地学研究所報告, **17**, 115-126.

亀井玄人 (2001): 茂原ガス田の地下水に含まれるヨウ素の起源と挙動. 資源地質, **51**, 145-151.

環境省 (2016): 平成 26 年度温泉利用状況. http://www.env.go.jp/nature/onsen/data/riyo_h26.pdf. 環境省自然環境局 (2016.1.24 閲覧).

甘露寺泰雄 (1987): 伊豆半島の海岸地域に分布する塩化物泉の化学組成と海水—岩石相互作用に関する研究. 温泉工学会誌, **21**, 70-80.

Lawrence, J.R., Gieskes, J.M., and Broecker, W.S., (1975): Oxygen isotope and cation composition of DSDP pore waters and the alteration of layer II basalts. Earth Planet. Sci. Lett., **27**, 1-10.

村松容一, 谷口無我, 大場 武 (2016): 関東平野中央部における塩化物泉の水質形成機構—続成変質による間隙水の進化—. 温泉科学, **65**, 216-233.

村松容一, 片山秀雄, 千葉 仁, 奥村文章 (2014): 榛名火山における温泉の水質および安定同位体比とその地質鉱物学的解釈. 温泉科学, **63**, 298-316.

村松容一, 岡崎公美, 大城恵理, 安諸正俊 (2008): 関東平野中央部の非火山性温泉における深部流体の生成機構. 地下水学会誌, **50**, 145-162.

村松容一, 近藤史也, 千葉 仁, 早稲田 周, 長島秀行 (2010): 関東山地北縁における非火山性温泉の水質および安定同位体比とその地質学的解釈. 温泉科学, **60**, 4-21.

村松容一, 大平 孟, 片山秀雄, 千葉 仁, 早稲田 周 (2013): 足尾山地, 赤城火山, 利根川中流低地帯における温泉の水質および安定同位体比とその地質鉱物学的解釈. 温泉科学, **63**, 118-140.

Muramatsu Y., Nakamura, Y., Sasaki J. and Waseda A. (2011): Hydrochemistry of the groundwaters in the Izu collision zone and its adjacent eastern area, central Japan. *Geochem. J.*, **45**, 309-321.

奥野 充, 守屋以智雄, 田中耕平, 中村俊夫 (1997): 北関東, 高原火山の約 6500 cal yr BP の噴火. 火山, **42**, 393-402.

大沢信二, 網田和宏, 山田 誠, 三島壮智, 風早康平 (2010): 宮崎平野の大深度温泉井から流出する温泉水の地化学特性と成因—温泉起源流体としての続成脱水流体—. 温泉科学, **59**, 295-319.

Reed, M.N. (1982): Calculation of multicomponent chemical equilibria and reaction processes in systems involving minerals, gases, and an aqueous phase. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **46**, 513-528.

関 寿子, 林 武司, 丸井敦尚 (2001): 関東平野における深層地下水の性状. 日本水文科学会誌, **3**, 11-24.

関 陽児, 中嶋輝允, 上岡 晃, 金井 豊, 間中光雄, 月村勝宏 (2004): 関東地方東部における大深度温泉の特徴—水質と地質との関係—. 温泉科学, **54**, 1-24.

杉崎隆一, 吉本泰介, 加藤喜久雄, 杉浦 孜 (1963): 南関東ガス田の地球化学的考察—とくにガス成分と鉱床の存在状態との関連について—. 地質学雑誌, **69**, 67-81.

鈴木陽雄 (1974): 栃木の温泉地質. 温泉科学, **25**, 71-74.

- 鈴木陽雄, 宇塚清司 (1995) : 栃木県那須扇状地北西部の温泉群について. 温泉科学, **45**, 52-62.
- 鈴木宏芳 (2002) : 関東平野の地下地質構造. 防災科学技術研究所研究報告, **63**, 1-19.
- 鈴木宏芳, 小村健太郎 (1999) : 関東地域の孔井データ資料集. 防災科学技術研究所研究資料, **191**, 1-80.
- 平 朝彦 (2004) : 地質学2 地層の解説. 121-127, 岩波書店, 東京.
- 高橋雅紀 (2006) : 日本海拡大時の東北日本弧と西南日本弧の境界. 地質学雑誌, **112**, 14-32.
- 高橋雅紀, 吉川敏之 (2008) : 宇都宮地域. 日本地方地質誌3 関東地方. 日本地質学会編, 234-241, 朝倉書店, 東京.
- 高屋 正, 佐藤幸二 (1992) : 鬼怒川地溝帯の温泉. 温泉科学, **42**, 114-124.
- 竹内圭史 (2008) : 中古生界 2.1 地質概説. 日本地方地質誌3 関東地方. 日本地質学会編, 63-66, 朝倉書店, 東京.
- 田中裕一郎, 高橋雅紀 (1997) : 栃木県芳賀町における坑井の石灰質ナンノ化石層序. 地質学雑誌, **103**, 493-496.
- 鶴田均二 (1965) : 関東北部における中新統中の不整合と天然ガス徴候. 石油学会誌, **8**, 102-105.
- 宇塚清司, 鈴木陽雄 (1997) : 栃木の温泉. 栃木の自然編集委員会編, 29-32. 築地書店, 東京.
- 吉村尚久 (2001) : 粘土鉱物と変質作用. 地学双書 32, 地学団体研究会, pp. 293, 東京.
- Whitney, G. and Northrop, H.R. (1988) : Experimental investigation of the smectite to illite reaction : Dual reaction mechanisms and oxygen-isotope systematics. *Am. Mineral.*, **73**, 77-90.
- 藪崎志穂, 田瀬則雄, 辻村真貴, 林 陽生 (2007) : 名水を訪ねて (77) 筑波山の名水. 地下水学会誌, **49**, 153-168.