

平成8年6月

原 著

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

東邦大学理学部化学科*1, 東邦大学医学部化学研究室*2

今 橋 正 征*1, 加 藤 尚 之*2
高 松 信 樹*1, 相 川 嘉 正*2

(平成8年3月26日受付, 平成8年4月25日受理)

Bromide and Iodide Contents of Mineral Spring Waters and Gas-field Brines in the Vicinity of Chiba Prefecture, Japan

Masayuki IMAHASHI*1, Naoyuki KATO*2
Nobuki TAKAMATSU*1 and Kasho AIKAWA*2

*1Department of Chemistry, Faculty of Science, Toho University, Chiba

*2Department of Chemistry, School of Medicine, Toho University, Tokyo

Abstract

Spring waters and gas-field brines collected from Boso, Miura and Izu peninsulas were analyzed for Br⁻ and I⁻ in an attempt to know the effect of the gas-field brines on the mineral springs. The spring waters and gas-field brines from Boso district are 1 to 3 times higher in Br/Cl ratios and about 1000 times in higher I/Cl ratios than seawater. Bromine and iodine originated from organisms in the marine sediments underlying the greater part of the Boso peninsula seem to have been added to the spring waters and gas-field brines. Br/Cl and I/Cl ratios in the gas-field brines decreased toward the northern part of the peninsula. This may be due to the variation in the thickness of Lower Kazusa Formation containing natural gases.

The Br/Cl weight ratios in the spring waters from Boso district range from 3 to 8×10^{-3} and are higher than those in the spring waters from Miura and Izu districts ranging from 3 to 4×10^{-3} . Generally the spring waters with high Br/Cl ratios have also high chloride contents. This may be due to the influx of gas-field brines with high Br/Cl ratios and chloride contents into the very diluted spring waters with low Br/Cl ratios. It can be concluded that some springs in the central part of the Boso peninsula are genetically related to the gas-field brines.

1. はじめに

千葉県には房総半島を中心に多くの温鉱泉が分布している。平成2年度末現在で95本の源泉が存在し、そのうち62本の源泉が利用されている¹⁾。また金原²⁾によれば千葉県には48の温鉱泉が存在し、Na-Cl・HCO₃、Na-HCO₃、Na-Clの3つのタイプで37個を占めている。相川ら³⁾は千葉県の温鉱泉を化学成分から検討を行ない、内陸部と海岸地域では化学成分の特徴が異なること、ガス田付随水や海水の影響を受けていることなどを報告している。さらに相川⁴⁾は千葉県内の温鉱泉44源泉について調査し、海岸付近のNa-Clタイプ、ヨウ素を含むガス田付随水およびフミン酸などの有機物を含むタイプ、の3種に分類した。近藤⁵⁾は95の源泉の大半は、Na-Cl型とNa-Cl・HCO₃型で一般にヨウ化物イオンを含むものが多く、温鉱泉水の起源は主として化石海水と循環地下水との混合水であると報告している。

千葉県は新潟県につぐわが国第二の天然ガスの産地であり⁶⁾、九十九里地区を中心に南関東ガス田が広く分布している^{7,8)}。これらの天然ガスには多量のかん水が付随し、このガス田付随水が温鉱泉に少なからず影響を及ぼしていることが知られている^{3,9)}。これらのガス田付随水にはヨウ化物および臭化物イオンが濃集しており^{4,5,8)}、付随水の起源は化石海水とされている⁷⁾。杉崎ら⁷⁾はガス田付随水の臭化物およびヨウ化物イオン含量から、付随水を大きく二つのグループに分けている。すなわち、Br含量がI含量よりかなり多く、Iの絶対量が比較的少ないグループとBrとIがほぼ同じでIの絶対量が比較的多いグループの二つである。前者は船橋・江東地区のガス田であり、日本の主なガス田付随水に共通しているが、後者は千葉県九十九里地区に特徴的なもので他の日本のガス田とはやや異なる。本研究では千葉県を中心とした温鉱泉(千葉県と三浦半島の一部)が、ガス田付随水の影響をどのくらい受けているのかを臭化物・ヨウ化物イオン含量およびBr/Cl比を中心に検討した。また比較のために伊豆半島中西部の温鉱泉についてもBr、Cl含量を測定した。

2. 試料

図1に試料を採取した地点を番号で示す。温鉱泉等の名称は表1～3に示す。温鉱泉は千葉県内で22温鉱泉・33試料、三浦半島で7鉱泉(M1～M7)、伊豆半島(採取地点の図は省略)では西伊豆地域で10個、中伊豆地域で11個の試料を採取した。ガス田付随水は4ガス田(Gn, Ga, Gm, Go)13試料、海水(Sw)は房総半島鴨川海岸で採取した。温鉱泉は褐色から暗褐色を呈していたものが多かったが、これはフミン酸などの有機物が溶存しているためと思われる。ガス田付随水は茂原の試料(Gm₂)が褐色を呈していたが、他は無色から淡黄色であった。

3. 分析方法

分析した項目および分析方法は次のとおりである：Na, K：原子吸光法, Ca, Mg：キレート滴定法, Cl：銀滴定法(モール法), SO₄, Br：イオンクロマトグラフ法, I：ヨウ素滴定法およびイオンクロマトグラフ法, アルカリ度：中和滴定法(B.C.G. pH 4.3アルカリ度)。泉温およびpHは現地にて測定した。

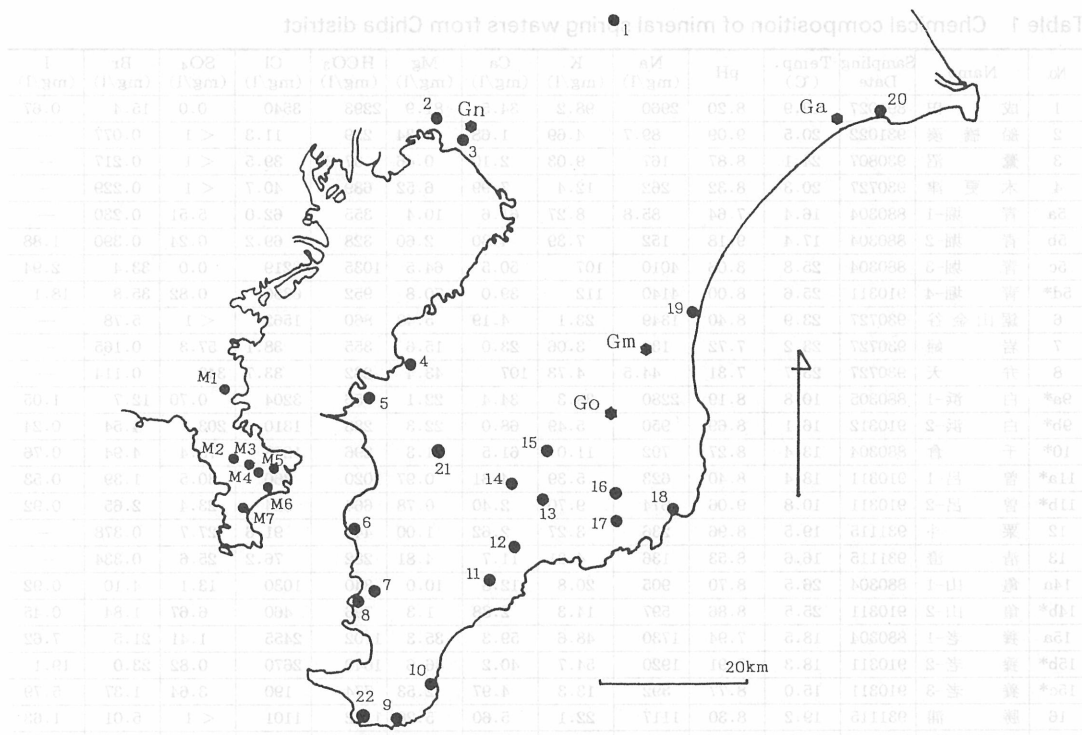


Fig. 1 Map of sampling locations
 1~22, M1~M7=Spring water Gn: Ga: Gm: Go=Gas-field brine

4. 結果および考察

4-1 主要化学成分

千葉県内の温鉱泉およびガス田付随水, および三浦半島内の温鉱泉の化学成分含量を表1~3に示す. これらの水のタイプをNa, K, Ca, Mg, Cl, SO₄, HCO₃含量の当量%で表すと, 千葉県内温鉱泉33試料のうち一部(No. 5a, 8, 19b)を除いてNa・Cl-HCO₃型またはNa・HCO₃-Cl型であった. 一方ガス田付随水も, 一つの試料(Gm₂)がNa・Cl-HCO₃型で他は全てNa・Cl型であった. この三つの型にあてはまらずやや特異的なのは, 試料番号5a(青堀-1), 7(岩婦), 8(弁天), 19b(白子-1), M2(阿部倉), M3(衣笠)などで, これらは比較的Na, HCO₃, Clが少なく, Ca, Mg, SO₄が多いもので, 一例を除いて房総半島西南部と三浦半島に位置しているものであった. このように海水と比較してNa, HCO₃, Clが増加し, Ca, Mg, SO₄が減少するのはすでに報告⁷⁾されているように化石海水およびガス田付随水の特徴である. 三浦半島の鉱泉についても全体的にはNa, HCO₃, Clの3成分に卓越しているが, 房総半島ほど明瞭ではなく, たとえばSO₄の当量%が海水より大きいもの(M2, M3)も存在した.

ガス田付随水の起源は化石海水と考えられている⁷⁾. このガス田付随水の化学成分の特徴は前述したように海水と比較してNaClとHCO₃濃度が高く, Ca, Mg, SO₄含量が少ないことである. このHCO₃は有機物の分解によって生じた炭酸ガスが堆積層中に閉じ込められた間隙水(海水)に溶け込み, これが周りの地層と反応して生成したものと考えられる. この際Na, Caが溶出されるが, Caは硫酸塩などとしてまたSO₄は生物学的還元などにより溶液から取り除かれる. 温鉱泉水には塩分濃度はあまり高くはないがHCO₃の当量%の高いものが見つかった. 図2に

Table 1 Chemical composition of mineral spring waters from Chiba district

No.	Name	Sampling Date	Temp. (°C)	pH	Na (mg/l)	K (mg/l)	Ca (mg/l)	Mg (mg/l)	HCO ₃ (mg/l)	Cl (mg/l)	SO ₄ (mg/l)	Br (mg/l)	I (mg/l)
1	成田	891027	19.9	8.20	2960	98.2	34.5	81.9	2293	3540	0.0	15.4	0.67
2	船橋湊	931022	20.5	9.09	89.7	4.69	1.68	0.34	229	11.3	< 1	0.077	—
3	鷺沼	930807	24.1	8.87	167	9.03	2.10	0.46	37.2	39.5	< 1	0.217	—
4	木更津	930727	20.3	8.32	262	12.4	7.99	6.52	689	40.7	< 1	0.229	—
5a	青堀-1	880304	16.4	7.64	85.8	8.27	61.6	10.4	355	62.0	5.51	0.230	—
5b	青堀-2	880304	17.4	9.18	152	7.39	4.80	2.60	328	69.2	0.24	0.390	1.88
5c	青堀-3	880304	25.8	8.08	4010	107	50.5	64.5	1035	6219	0.0	33.4	2.94
5d*	青堀-4	910311	25.6	8.00	4140	112	39.0	70.8	952	6350	0.82	35.8	18.1
6	鋸山金谷	930727	23.9	8.40	1349	23.1	4.19	5.48	860	1562	< 1	5.78	—
7	岩婦	930727	23.2	7.72	132	3.06	23.0	15.6	355	38.1	57.3	0.165	—
8	弁天	930727	23.7	7.31	44.5	4.73	107	43.4	232	33.7	349	0.114	—
9a*	白浜-1	880305	10.8	8.19	2280	38.3	34.4	22.1	956	3204	0.70	12.7	1.05
9b*	白浜-2	910312	16.1	8.69	950	5.49	68.0	22.3	283	1310	203	4.54	0.24
10*	千倉	880304	13.4	8.27	792	11.0	61.5	21.3	296	1258	78.4	4.94	0.76
11a*	曾呂-1	910311	18.4	8.40	623	5.39	4.81	0.97	1020	360	30.5	1.39	0.53
11b*	曾呂-2	910311	10.8	9.06	674	9.70	2.40	0.78	664	624	23.4	2.65	0.92
12	粟斗	931115	19.5	8.96	236	3.27	2.62	1.00	447	91.6	27.7	0.378	—
13	清澄	931115	16.6	8.53	136	4.31	11.7	4.81	282	76.2	25.6	0.334	—
14a	亀山-1	880304	26.5	8.70	905	20.8	12.8	10.0	840	1030	13.1	4.10	0.92
14b*	亀山-2	910311	25.5	8.86	597	14.3	2.88	1.3	796	460	6.67	1.84	0.45
15a	養老-1	880304	18.5	7.94	1730	48.6	59.3	35.3	1102	2455	1.41	21.5	7.62
15b*	養老-2	910311	18.3	7.91	1920	54.7	40.2	46.6	1040	2670	0.82	23.0	19.1
15c*	養老-3	910311	15.0	8.77	392	13.3	4.97	2.53	774	190	3.64	1.37	5.79
16	勝浦	931115	19.2	8.30	1117	22.1	5.60	5.28	1142	1101	< 1	5.01	1.63
17	湯場原	931115	20.5	8.58	458	12.0	2.48	2.32	992	116	4.49	0.436	—
18a	御宿-1	880305	22.1	8.69	640	12.8	4.40	1.20	1610	85.2	12.1	0.350	—
18b*	御宿-2	910312	15.2	8.65	644	14.0	2.56	0.78	1460	123	13.3	0.380	—
18c	御宿-3	880305	21.0	7.65	5310	87.1	242	24.0	436	8765	37.4	33.6	1.53
19a	白子-1	880305	28.5	7.97	2415	75.6	97.0	103	499	4186	41.3	28.8	5.57
19b*	白子-1	910312	15.3	8.18	68.7	13.2	45.2	34.6	366	46.0	16.0	0.120	—
20*	飯岡	910312	17.4	8.23	252	21.6	19.7	13.6	771	35.3	5.5	0.290	—
21	鹿野山	931229	—	8.23	2100	52.0	11.4	20.9	28.6	2288	< 1	17.8	4.90
22	不老山薬師	931229	17.3	8.27	174	6.76	5.28	1.77	5.50	45.3	69.5	0.176	—

* Quoted from the reference (4)

Table 2 Chemical composition of gas-field brines

No.	Name	Sampling Date	Temp. (°C)	pH	Na (mg/l)	K (mg/l)	Ca (mg/l)	Mg (mg/l)	HCO ₃ (mg/l)	Cl (mg/l)	SO ₄ (mg/l)	Br (mg/l)	I (mg/l)
Gn 1	習志野 1	841000	34.3	7.9	11310	353	327	332	552	19530	< 0.5	117	51.1
Gn 2	習志野 2	841000	30.6	7.8	10950	336	267	482	552	19460	< 0.5	116	44.0
Gn3*	習志野 3	910603	34.6	7.4	11720	344	349	340	549	19000	1.0	116	49.8
Gn4*	習志野 4	910603	29.9	7.5	11610	317	279	511	544	19300	1.5	111	42.6
Gn5*	習志野 5	910603	33.7	7.5	11690	324	314	410	561	19400	1.0	120	49.5
Gn6*	習志野 6	910603	31.1	7.5	11660	321	282	478	561	19400	1.0	118	45.1
Ga 1	旭 1	880305	26.0	7.6	10000	261	259	511	906	17580	0.0	90.8	53.8
Ga2*	旭 2	910312	25.2	7.4	11000	265	237	538	940	18100	0.8	97.8	51.0
Gm1*	茂原 1	880721	24.6	8.1	11500	316	207	419	1075	19420	0.0	162	142
Gm 2	茂原 2	880721	23.4	8.1	4060	114	46.7	101	1336	6140	0.0	42.5	31.1
Go1*	大多喜 1	880721	24.5	8.0	10100	249	211	173	806	16460	0.0	141	122
Go2*	大多喜 2	880721	32.4	8.0	11000	324	259	240	893	18330	0.0	147	118
Go3*	大多喜 3	880721	30.6	8.2	11800	361	163	291	1571	19240	0.0	168	136

* Quoted from the reference (4)

Table 3 Chemical composition of mineral spring waters from Miura district

No.	Name	Sampling Date	Temp. (°C)	pH	Na (mg/l)	K (mg/l)	Ca (mg/l)	Mg (mg/l)	HCO ₃ (mg/l)	Cl (mg/l)	SO ₄ (mg/l)	Br (mg/l)	I (mg/l)
M 1	赤井	930324	15.8	8.21	211	12.3	19.9	15.7	564	101	28.2	0.42	0.0
M 2	阿部倉	930324	13.5	8.96	106	2.69	24.8	4.76	306	30.8	39.7	0.14	<0.1
M 3	衣笠	930324	11.1	10.2	118	1.1	3.00	0.08	196	23.6	94.0	0.08	0.0
M 4	大矢部	930324	17.4	8.64	335	13.8	5.91	7.75	527	243	62.5	0.96	<0.1
M 5	吉井	930324	17.5	8.94	200	7.92	12.8	8.88	570	66.2	3.29	0.31	<0.1
M 6	野比	930324	15.0	9.46	325	6.68	1.57	1.85	943	22.4	29.0	0.07	<0.1
M 7	三浦海岸	930324	16.7	7.85	10200	217	328	413	301	18600	<1	83.1	14.6
S W	海水	880304	—	8.38	11000	391	410	1387	150	19750	2690	67.5	0.05

温鉱泉水およびガス田付随水のNa/Cl比とHCO₃/Cl比の関係を示した。また海水寄与の成分を除いた値(閉じ込められた海水がその変質の際に最も変化しにくいと考えられるClを基準として)⁷⁾, $\Delta C = C_m - C_s (Cl_m/Cl_s)$ を求めた。ここで、 ΔC は溶存化学成分Cの変化量(海水寄与分を除いた量), C_m は温鉱泉水中の溶存成分Cの量, C_s は海水中の溶存成分Cの量, Cl_m , Cl_s はそれぞれ温鉱泉水および海水中のClの量である。この式より求めた ΔNa と ΔHCO_3 の関係を図3に示す。図2および3から三浦半島を含めた温鉱泉水のNaの増加の大部分はHCO₃に起因していることが分かる。暗褐色を呈した成田(1), 青堀(5), 白浜(9), 亀山(14), 養老(15)などは高塩分かつHCO₃濃度が高い。このような温鉱泉水は、腐植物質を含んだ高HCO₃含量の水と海水起源の高塩分の水との混合によって生成したと考えられる。ガス田付随水の一部(Gm₂)に褐色を呈したものがあつたが、これはCl含量も他のガス田付随水と比較して低いことから、腐植物質を含んだNa・HCO₃型の水が混入したものと考えられる。

三浦半島と房総半島中西部とは地質学的に関連していることが知られている^{10, 11)}。とくに上総層群の下部に位置する三浦層群などは浦賀水道を隔てて両半島に存在する。したがって温鉱泉水についても関連があると考えられるが、主要化学成分で両地域の温鉱泉水に共通した特徴を見出すことは難しかった。比較的他のグループからはずれて主要化学成分が互いに似ている

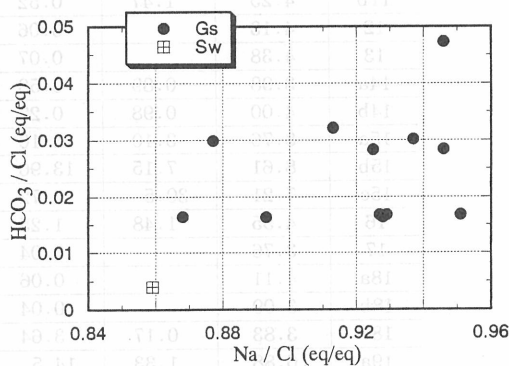
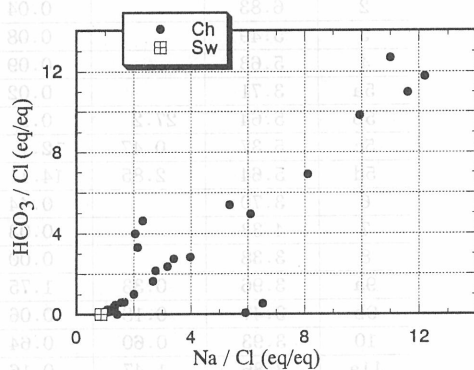
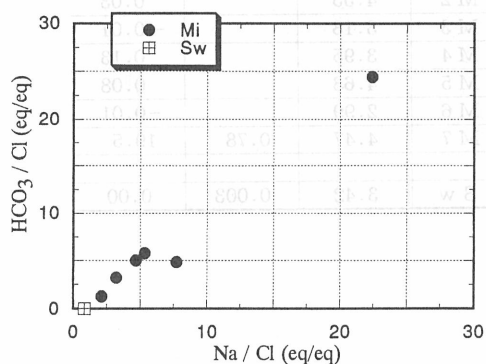


Fig. 2 Relationship between Na/Cl and HCO₃/Cl ratios

Ch=Mineral spring water from Chiba district
 Mi=Mineral spring water from Miura district
 Gs=Gas-field brine, Sw=Seawater

ものに、阿部倉(M2)と岩婦(7)があったが、これらは地域的にも近いので何らかの関連性があると考えられる。この両地域の関連性については、伊藤ら¹¹⁾も指摘しているように興味ある課題の一つである。

4-2 臭化物およびヨウ化物イオン含量

温鉱泉およびガス田付随水の臭化物およびヨウ化物イオン含量を表1～3に示す。またBr/Cl, I/Cl比の値を伊豆半島地域の温鉱泉の値とともに表4, 5に示す。Br, Iの起源としては多くの報告にあるように化石海水(海成堆積物)が考えられるので、海水のBr/Cl, I/Cl比と比較するのが妥当と思われる。千葉県と三浦半島の温鉱泉およびガス田付随水のBr/Cl比

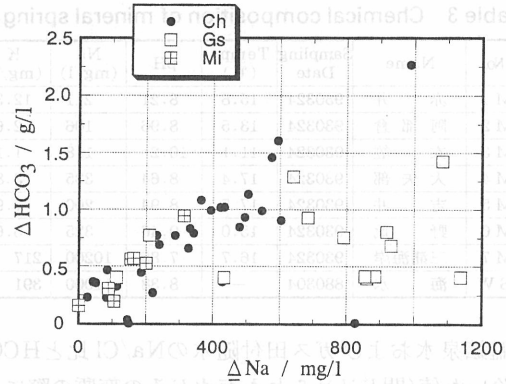


Fig. 3 Relationship between ΔNa and ΔHCO_3 contents
 Ch=Mineral spring water from Chiba district
 Mi=Mineral spring water from Miura district
 Gs=Gas-field brine

Table 4 Br/Cl and I/Cl ratios, and ΔBr of spring waters and gas-field brines

No.	Br/Cl ×1000	I/Cl ×1000	ΔBr (mg/l)	No.	Br/Cl ×1000	I/Cl ×1000	ΔBr (mg/l)
1	4.35	0.19	3.30	Gn 1	5.99	2.62	50
2	6.83		0.04	Gn 2	5.96	2.26	49
3	5.49		0.08	Gn 3	6.11	2.62	51
4	5.63		0.09	Gn 4	5.75	2.21	45
5a	3.71		0.02	Gn 5	6.19	2.55	54
5b	5.64	27.2	0.2	Gn 6	6.08	2.32	52
5c	5.37	0.47	12.1	Ga 1	5.16	3.06	31
5d	5.64	2.85	14.1	Ga 2	5.40	2.82	36
6	3.70		0.44	Gm 1	8.34	7.31	96
7	4.33		0.03	Gm 2	6.92	5.07	22
8	3.38		0.00	Go 1	8.57	7.41	85
9a	3.96	0.33	1.75	Go 2	8.02	6.44	84
9b	3.47	0.18	0.06	Go 3	8.73	7.07	102
10	3.93	0.60	0.64				
11a	3.86	1.47	0.16	M 1	4.16		0.07
11b	4.25	1.47	0.52	M 2	4.55		0.03
12	4.13		0.06	M 3	3.18		-0.01
13	4.38		0.07	M 4	3.95		0.13
14a	3.98	0.89	0.58	M 5	4.68		0.08
14b	4.00	0.98	0.27	M 6	2.99		-0.01
15a	8.76	3.10	13.10	M 7	4.47	0.78	19.5
15b	8.61	7.15	13.90				
15c	7.21	30.5	0.72	S w	3.42	0.003	0.00
16	4.55	1.48	1.25				
17	3.76		0.04				
18a	4.11		0.06				
18b	3.09		0.04				
18c	3.83	0.17	3.64				
19a	6.88	1.33	14.5				
19b	2.61		-0.04				
20	8.22		0.17				
21	7.78	2.14	10.0				
22	3.89		0.02				

Table 5 Bromide and chloride contents, and Br/Cl ratios of mineral spring waters from Izu district

西伊豆地域				中伊豆地域			
Name	Cl (mg/l)	Br (mg/l)	Br/Cl ×1000	Name	Cl (mg/l)	Br (mg/l)	Br/Cl ×1000
戸田	184	0.484	2.63	畑毛	11.8	0.040	3.35
土肥	265	0.707	2.67	駒の湯3号	13.3	0.038	2.38
堂ヶ島	54.1	0.176	3.25	駒の湯1号	10.1	0.030	2.97
松崎	64.6	0.214	3.31	奈古谷	7.24	0.027	3.77
雲見	8030	27.9	3.47	長岡	116	0.288	2.48
石部	1410	5.13	3.64	葦山	138	0.318	2.30
大沢	13.4	0.054	4.02	大仁	181	0.472	2.61
湯ヶ島	40.4	0.120	2.97	修善寺独鈷	106	0.290	2.74
月ヶ瀬	29.8	0.102	3.42	嵯峨沢	67.1	0.185	2.76
船瀬原	128	0.316	2.47	おつきの湯	26.7	0.073	2.74
Av.			3.19	吉奈	63.4	0.172	2.71
				Av.			2.84

は二、三の例外を除いて海水のそれより大きかったが、三浦半島の方が房総半島よりやや小さい傾向が見られた。一方、伊豆半島の温鉱泉のBr/Cl比は全体的にみて海水のそれより小さかった。またI/Cl比は海水の値が非常に小さいので、温鉱泉、ガス田付随水とも海水比よりかなり大きかった。一般にガス田付随水のこれらの比の値は温鉱泉の値より大きく、とくにガス田付随水のI/Cl比はその湧出地点によってかなり異なっていることがわかった。

南関東ガス田は、主として上部鮮新世から中部更新世にかけて堆積した主として砂と泥岩の互層からなる海成の上総層群に産出する⁹⁾。この上総層群は大きくゆるやかな盆状構造(堆積盆)をしており¹²⁾、天然ガスは主として上総層群の黄和田層、大田代層、梅ヶ瀬層(この順に浅くなる)の3層から採取される。これらのガス採取層の層厚はとくに九十九里地区では北部から南部にかけて増すことが知られており⁹⁾、大多喜、茂原付近が最も厚い(図4)。ガス田付随水のBr/Cl、I/Cl比をこの層厚の等高線の上にプロットしてみると大多喜(Go)、茂原(Gm)が大きく、旭(Ga)、

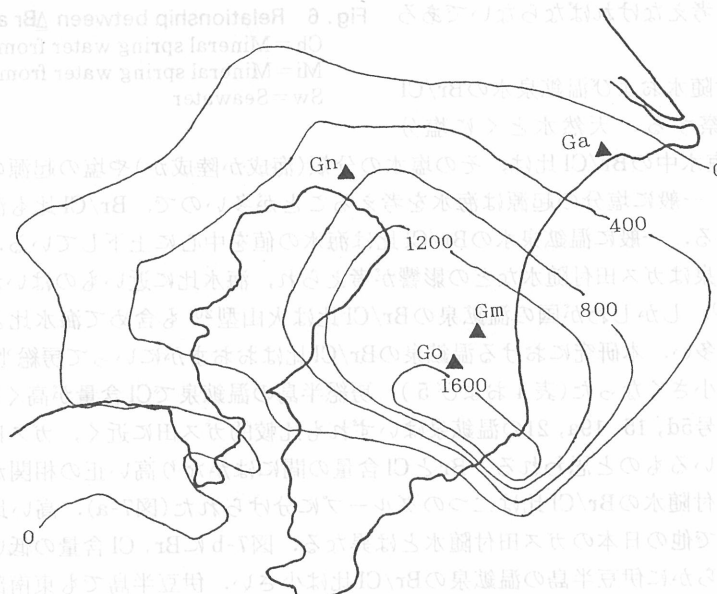


Fig. 4 Contour map of the thickness for Lower Kazusa-formations (m) (transcribed from the reference No.9)

習志野(Gn)が小さい(表4)。これはI, Brともに深層に濃集し浅層にかけて減少しているとの報告⁹⁾と一致する。

次に臭化物, ヨウ化物イオンの起源についてであるが, ガス田付随水のBr, Iは一般に海成堆積物に取り込まれた有機物(生物)に由来するものとされている^{13~15)}。海水中のI含量の値はかなり小さいので¹⁶⁾, ガス田付随水中のIはその大部分が有機物等から付加されたものと考えてよい。一方Brは海水にもかなり含まれているので, 海水寄与分を除いた値 ΔBr を考える必要がある。図5にガス田付随水および温鉱線水の ΔBr とI含量の関係を示す。一般的に正の相関が認められるのでBrとIの起源が同じであることが示唆される。海成堆積物に取り込まれたBr, Iを濃集している有機物は, 時間の経過とともに分解し, その際Br, Iが溶液に移動するためと考えられる。とくにIを含む海成堆積物とその分解の際に溶液に移ることは実験的にも確かめられている¹⁷⁾。しかし, とくに温鉱泉でBr, I含量の少ないところは必ずしも正の相関が認められないので(図6), 別の起源の水の混入, あるいはBr, Iが固相に取り込まれる, なども考えなければならないであろう。

次にガス田付随水および温鉱泉水のBr/Cl比について考察する。天然水とくに塩分(NaCl)の濃い塩水中のBr/Cl比は, その塩水の分類(海成か陸成か)や塩の起源の考察に利用されている^{18, 19)}。一般に塩分の起源は海水を考慮することが多いので, Br/Cl比も海水の値と比較すると便利である。一般に温鉱泉水のBr/Cl比は海水の値を中心に上下している。海水比より高い値を示す温鉱泉はガス田付随水などの影響が考えられ, 海水比に近いものはいわゆる海岸型の温鉱泉である¹⁸⁾。しかしわが国の温鉱泉のBr/Cl比は火山型²⁰⁾も含めて海水比とはほぼ同じかやや小さいものが多い。本研究における温鉱泉のBr/Cl比はおおまかにいって房総半島, 三浦半島, 伊豆半島の順に小さくなった(表4および5)。房総半島の温鉱泉でCl含量が高くBr/Cl比が比較的大きい試料番号5d, 15, 19a, 21の温鉱泉はいずれも比較的气体田に近く, ガス田付随水の影響をかなり受けているものと思われる。BrとCl含量の間にはかなり高い正の相関が認められたが(図7), ガス田付随水のBr/Cl比は二つのグループに分けられた(図7-a)。高い比は大多喜, 茂原地区に特徴的で他の日本のガス田付随水とは異なる。図7-bにBr, Cl含量の低い温鉱泉について示したが, 明らかに伊豆半島の温鉱泉のBr/Cl比は小さい。伊豆半島でも東南部の海岸型ではほぼ海水比に近い²¹⁾ので, 内陸になるにつれてやや小さくなるようである。Br/Cl比を小さくする因子として次のようなことが考えられる。塩水から食塩が結晶するときにはBrは取り込ま

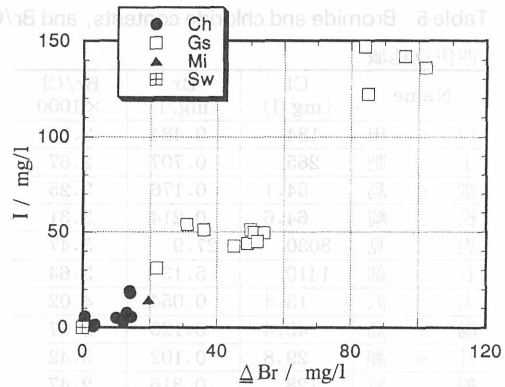


Fig. 5 Relationship between ΔBr and I contents
Ch=Mineral spring water from Chiba district
Mi=Mineral spring water from Miura district
Sw=Seawater

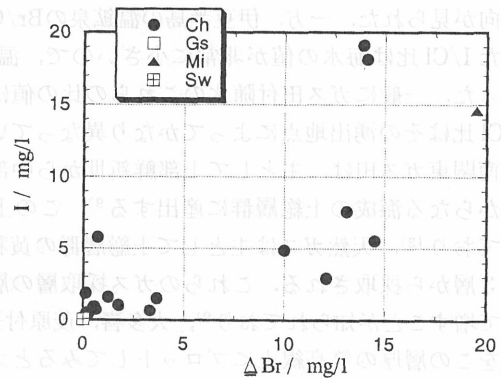


Fig. 6 Relationship between ΔBr and I contents
Ch=Mineral spring water from Chiba district
Mi=Mineral spring water from Miura district
Sw=Seawater

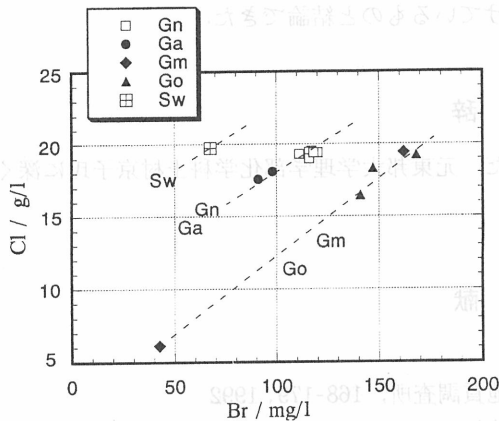


Fig. 7-a Relationship between Br and Cl contents of gas-field brines
Gn=Narashino, Ga=Asahi, Gm=Mobara, Go=Ohtaki, Sw=Seawater

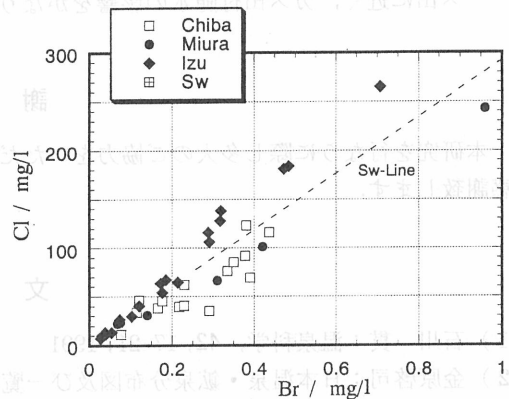


Fig. 7-b Relationship between Br and Cl contents of mineral spring waters
Chiba=Chiba district, Miura=Miura district, Izu=Izu district, Sw=Seawater

れにくい²²⁾ので、食塩が溶けた溶液は一般にBr/Cl比は小さくなる(この中には家庭排水なども含まれる)。また河川水や沢水などに含まれるBrの起源は海塩や大気中の自動車排ガス(ガソリン)²³⁾などであるが、河川水などのBr/Cl比は一般に海水比よりやや小さい²⁴⁾。これはBrが土壌などに取り込まれるためといわれている^{25, 26)}。

図8に同じ温鉱泉でBr/Cl比とCl含量の異なる二つの源泉のBr/Cl比とCl含量の関係を示す。Cl含量が高くなるとBr/Cl比も大きくなる傾向が認められた。またこれらの二つの源泉(例えば19aと19b)の当量量によるタイプを比較してみると、Br/Cl比とCl含量の高いものはNa・Cl型でそれらの低いものはNa・HCO₃(Cl)型であった。これらのことはガス田付随水起源の塩分が濃くBr/Cl比の高い水が、Br/Cl比が低く塩分の薄いNa・HCO₃型の水に混入したことを示唆している。すなわち塩分が濃くBr/Cl比の高い源泉(No.15, 19, 20など)はガス田付随水の影響をかなり受けているものと考えられる。

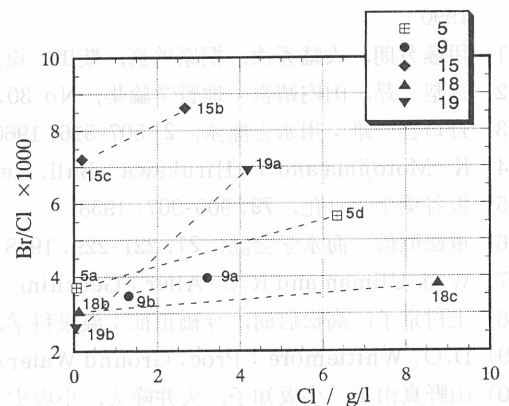


Fig. 8 Br/Cl ratios as a function of Cl contents
Numbers=Sample number in Table 1.

5. ま と め

本研究において次のような結論が得られた。

- 1) 房総半島のガス田付随水はNa・Cl型でBr, I含量がともに高く、とくに大多喜, 茂原地区の付随水はBr/Cl, I/Cl比が大きかった。これはガス産出層の層厚の違いの反映と思われる。
- 2) 温鉱泉水のBr/Cl比は一般的に房総半島で高く、三浦半島, 伊豆半島(中西部)の順に小さくなった。三浦半島は房総半島中西部と地質的に関連があると考えられているが、三浦半島の温鉱泉は房総地区のガス田付随水の影響はほとんど受けていないと思われる。
- 3) 房総半島の温鉱泉の一部に塩分が濃くBr/Cl比の高いものが存在したが、これらは比較的ガ

ス田に近く、ガス田付随水の影響をかなり受けているものと結論できた。

本研究を行なうに際し多大のご協力をいただいた、元東邦大学理学部化学科上村京子氏に深く感謝致します。

-
- 1) 石川一貫：温泉科学，42，17-21，1991
 - 2) 金原啓司：日本温泉・鉱泉分布図及び一覧，地質調査所，168-179，1992
 - 3) 相川嘉正，加藤尚之，塚本邦子：東邦大学教養紀要，13，112-121，1981
 - 4) 相川嘉正：温泉科学，42，22-34，1991
 - 5) 近藤精造：温泉科学，42，35-40，1991
 - 6) 近藤精造：千葉の自然をたずねて，築地書館，p 174，1992
 - 7) 杉崎隆一，吉本泰介，加藤喜久雄，杉浦 孜：地質学雑誌，69，67-81，1963
 - 8) 磯村泰治：岩石鉱物鉱床学会誌，58，188-200，1967
 - 9) 石川秀雄，友成明久：千葉大学教育学部研究紀要，33，43-56，1984
 - 10) 卜部厚志，佐目元昭，秋山普二，椿 和弘，山内靖喜，三梨 昂：地質学論集，No.34，31-44，1990
 - 11) 伊藤芳朗，衣幡秀次，桐原啓真，柴田 東，湯原浩三：温泉工学会誌，23，1-14，1989
 - 12) 三梨 昂，山内靖喜：地質学論集，No.30，67-75，1988
 - 13) 野口喜三雄：用水と廃水，2，507-516，1960
 - 14) K. Motojima and T. Hirukawa：Bull. Geol. Surv. Jpn.，30，441-457，1979
 - 15) 板谷実平：日化，79，900-907，1958
 - 16) 重松恒信：海水学会誌，21，221-229，1968
 - 17) W. J. Ullman and R. C. Aller：Geochim. Cosmochim. Acta，44，1177-1184，1980
 - 18) 上村京子，高松信樹，今橋正征：温泉科学，38，111-119，1988
 - 19) D. O. Whittemore：Proc. Ground Water Geochem. Conf.，Denver，339-359，1988
 - 20) 山野真由美，小坂知子，大井隆夫，小坂文子：日化，1995，656-659，1995
 - 21) 水谷義彦，浅井 寛，浜砂武聖：火山第2集，19，139-150，1975
 - 22) J. L. Melvin：Evaporites, Petroleum and Mineral Resources, Elsevier, pp.304-307, 1991
 - 23) 鈴木章悟，平井昭司：日化，1983，523-530，1983
 - 24) 上野精一：日化，86，389-393，1965
 - 25) 結田康一，渋谷政夫：日本土壤肥科学雑誌，44，69-80，1973
 - 26) 鶴見 実，一国雅巳：環境科学会誌，2，9-16，1989