

平成 14 年 9 月

原 著

島原半島の温泉・鉱泉の流体地球化学

¹京都大学地球熱学研究施設, ²産業技術総合研究所深部地質環境研究センター大沢信二¹, 風早康平², 安原正也²

(平成 14 年 2 月 4 日受付, 平成 14 年 8 月 1 日受理)

Geochemistry of Fluids from Hot Springs, Mineral Springs,
Wells and Fumarolic Area in the Shimabara Peninsula,
Middle Western Kyushu, JapanShinji OHSAWA¹, Kohei KAZAHAYA² and Masaya YASUHARA²¹Beppu Geothermal Research Laboratory, Kyoto University²Geological Survey of Japan, AIST

Abstract

Water and gas samples from hot springs, mineral springs, wells and fumarolic area in the Shimabara Peninsula, middle western Kyushu, were collected for chemical and isotopic analyses. Geochemical data analyses lead us to the following results. Hot spring water of acid SO₄ type in Unzen-Jigoku fumarolic area is derived from meteoric shallow groundwater heated up to 150°C by secondary steam originated from deep hydrothermal water of about 300°C. Thermal water of Cl type in Obama area, which is basically mixture of seawater and shallow groundwater of meteoric origin, interacts with reservoir rock at about 200°C. The thermal water in the reservoir is heated by steam of about 300°C containing magmatic He and CO₂. Thermal waters of HCO₃ type in Shimabara and Harajo areas are slightly heated groundwater of meteoric origin. However, it is detected that magmatic CO₂ is dissolved in the thermal waters. Both thermal waters from Mizuho and Yue, which are classified chemically into Cl-HCO₃ mixed type and HCO₃ type, respectively, are likely to be non-volcanic formation waters. The accompanying methane gases with these waters have thermogenic and biogenic origins, respectively. Mineral water of Cl type from Karako may be mixture of seawater and meteoric groundwater, and is not affected by magmatic emanation. Mineral water of HCO₃ type from Karimizu in Obama area is originated from meteoric water, but the accompanying gas with strong H₂S smell would be derived from the reservoir of the Obama thermal water.

Key words : Shimabara Peninsula, Unzen Volcano, hot spring, mineral spring, hydrogeo-chemistry

キーワード : 島原半島, 雲仙火山, 温泉, 鉱泉, 流体地球化学

1. はじめに

島原半島の中央部には普賢岳を主峰とする雲仙火山が位置し、その噴出物が広く半島を覆っている。基盤岩は鮮新世～更新世中期以前の火山岩や堆積岩類（口之津層群など）であり、島原半島全域に広く分布しているが、その地表への露出は半島の北と南の一部に限られている。雲仙火山の最高峰は、かつては普賢岳（標高 1,359 m）であったが、現在は 1990～1995 年の噴火で出現した溶岩ドームの平成新山（標高 1,486 m）である（星住・宇都，2000）。また、島原半島の中央部には、東西性の正断層群が発達し、雲仙地溝と呼ばれる陥没構造が存在し（Fig. 1）、地溝を縦断する側線での繰り返し水準測量から、最近 100 年間は 2 mm/year の割合で沈降していると推定されている（多田，1985）。この沈降運動は地質時代から継続しており、これと平行して起こった火山岩の噴出により、噴出物の厚さは、地溝の外側で 0～500 m 程度（最も厚い所で 900 m）、地溝の内側では厚く、最大で 2 千数 100 m に達する（星住・宇都，2000）。

島原半島には、泉質の異なる種々の温泉の湧出がみられるが、それらの分布は主として雲仙地溝内に限られている（太田，1987）。地溝西部の小浜温泉（食塩泉）、東岸の島原温泉（重碳酸土類泉～重曹泉）、地溝中央部やや西寄りの

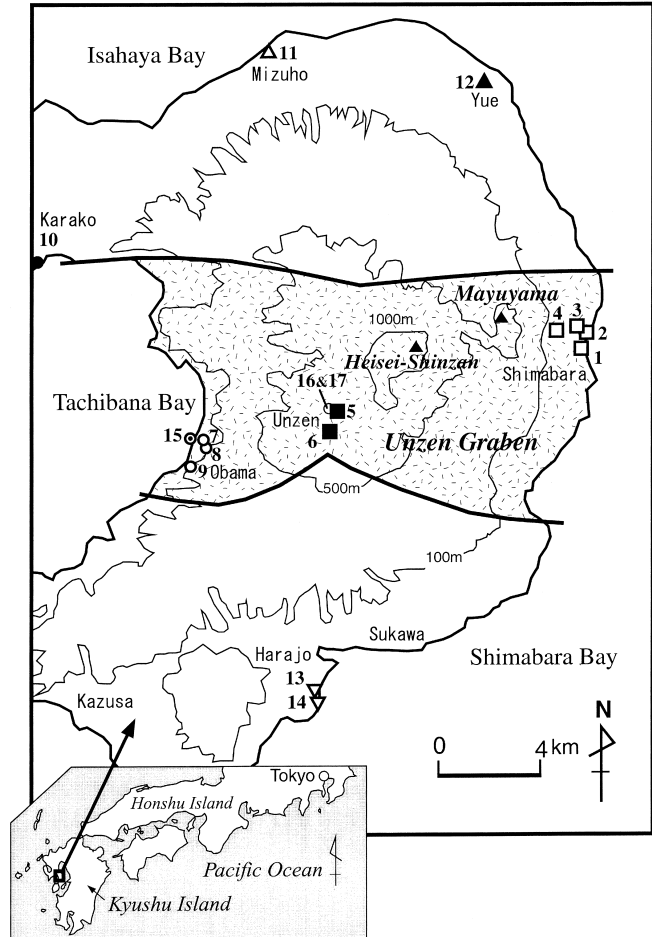


Fig. 1 Sampling sites in the the Shimabara Peninsula. □1 : Shimabara-kanko Hotel (hot spring water [well]), □2 : Shimabara-onsen (hot spring water [well]), □3 : Motoike (hot spring water [well]), □4 : Shinyama-onsen (mineral spring water [well]), ■5 : Shinyu (hot spring water), ■6 : Kojigoku (hot spring water), ○7 : Tanaka-so (boiling spring water and separated steam [well]), ○8 : Karimizu (mineral spring water and bubble gas), ○9 : Kunisaki-ryokan (hot spring water [well]), ●10 : Karako-onsen center (mineral spring water [well]), 11 : Mizuho Sennen-no-yu (hot spring water and accompanying gas [well]), ▲12 : Yugyoku-onsen (hot spring water and accompanying gas [well]), ▽13 : Harajo-so (hot spring water [well]), ▽14 : Harajo Masago (hot spring water [well]), ⊙15 : Obama harbor (seawater), ○16, 17 : Seishichi-jigoku (fumarolic gas). Numbers correspond to those in Tables 1 and 5.

高地に湧出する雲仙温泉 (H_2S を含む硫酸塩泉) である。太田 (1973) は、橘湾地下深所のマグマ溜りから放出されたマグマ発散物が、雲仙地溝東側の浅所に向かって上昇する過程で冷却を受けているとすれば、上記諸温泉の配置と泉質形成が説明可能であるとした。雲仙地溝外の口之津、加津佐 (かづさ)、原城、須川、唐比 (からこ)、瑞穂、湯江にも掘削によって得られた温泉・鉱泉が存在する (存在した) が、地溝内に分布する温泉に比べ規模は小さく、それらの形成過程や泉質生成機構などについては不明な点が多い。

本研究では、島原半島に分布する温泉、鉱泉、掘削井ならびに噴気地から流出する種々の流体、即ち、温泉水、鉱泉水、噴気ガス、沸騰泉分離蒸気 (ガス)、温泉・鉱泉遊離ガス (以降本論文では、気泡となって水から分離してきているガスをこのように表現する) を採取し、それらの化学・同位体分析を行った。得られたデータから、半島全域の温泉水・鉱泉水について、それらの地中での温度と性状、ならびに水および炭酸成分の起源を推定した。さらに、噴気ガス、沸騰泉分離蒸気、鉱泉遊離ガスのデータ解析から、地下に潜在する流体の平衡状態と貯留温度、含有される CO_2 と CH_4 の起源を推定した。本論文では、上記のデータとその解析結果について報告する。

2. 島原半島の温泉・鉱泉の概要

前述の様に、島原半島に分布する温泉・鉱泉のうち規模の大きなものは、雲仙地溝内にある雲仙温泉、小浜温泉および島原温泉である (以下は主に太田, 1973 ; 1984 による)。雲仙温泉は、半島のほぼ中央に位置する絹笠山と矢岳に挟まれた標高 700 m の小盆地に存在し、大別して別所-古湯-新湯地区と小地獄地区に分けられる。両地区ともに H_2S に富む H-SO_4 型の熱水が自然湧出しており、前者は活発な噴気活動を伴っている。現在の小浜温泉は、深さ数 10 m ~ 100 m あまりの掘削によって開発された海岸地帯の温泉群で、源泉は数 10 ヶ所に及び、南部の一部を除き、 Na-Cl 型の熱水が沸騰自噴している。また、山手に寄った刈水には、冷鉱泉が主に CO_2 と H_2S から成る気泡を伴いながら湧出している (名称は刈水鉱泉又は小浜炭酸泉)。島原温泉は、海岸地帯において数 100 m から 800 m 余の掘削により開発された温泉群であり、 HCO_3 型の温泉水 (30°C 前後) が揚水により得られている。また、やや内陸側に 10 m 以浅の掘削井が存在し、 20°C 以下の鉱泉水が揚水、加温され、浴用に利用されている (新山温泉の上の湯と下の湯)。さらに、眉山背後の普賢岳東麓にあたる標高約 400 m の谷合には、古くから「炭酸泉」として知られていた安中 (あんなか) 鉱泉が存在したが、1990~1995 年の噴火で発生した火砕流により埋没消失した。

上記の主要な温泉以外に、雲仙地溝外の唐比、瑞穂、湯江、口之津、加津佐、原城、須川の各地域に温泉・鉱泉の存在が知られている (以下は主に太田, 1973 ; 山口他, 1993 による)。唐比温泉は、愛津 (あいづ) 地峡の橘湾に面した丘の上であり、源泉は元々灌漑用水のために掘削された井戸 (深さ 98 m) であったが、揚水される水は溶存物質量が多く温泉の認定を受けたものであり、現在は保養目的に利用されている (唐比温泉センター)。瑞穂温泉 (瑞穂先年の湯) は、瑞穂町西郷の海岸付近に掘削された深井戸 (深さ 1,055 m) を源泉とする町有の温泉であり、 $50\sim 60^\circ\text{C}$ の Na-Cl-HCO_3 型の熱水が動力揚湯され、保養施設で利用されている (みずほすこやかランド)。湯江温泉 (有玉温泉) は、有明町池田にあるマルマサ水産所有の深さ 460~470 m の井戸を源泉とし、 30 数 $^\circ\text{C}$ の Na-HCO_3 型の温泉水がポンプ揚湯されて、浴用に利用されている。口之津鉱泉は、口之津町の早崎漁港そばの町有地で掘削によって得られた冷鉱泉 (22°C) であり、 Na-Cl-HCO_3 型の水質を示す。加津佐温泉は、加津佐町水下津の加津佐中学校に存在し、上水道用水源として掘削された井戸から冷鉱泉水 (21°C) が得られたが、現在は利用されていない。原城温泉は、南有馬町浦田駒崎海浜に古くから自然湧出していたものを、その近傍において 100 m ~ 数 100 m の掘削により開発した

温泉群で、流出する温泉水は、いずれも 30 数°C で Na-HCO₃ 型の水質を示す。須川温泉は、西有家町引無田に掘削された深さ 300 m の井戸を泉源とし、孔口で 30°C の Ca²⁺ に富む HCO₃ 型の温泉水が得られている。なお、後 3 者の湧出母岩は、雲仙火山の基盤を成す口之津層であると考えられている。

3. 試料と分析

3.1 試料

分析に供した水試料は、7 つの温泉地（雲仙温泉、小浜温泉、島原温泉、唐比温泉、瑞穂温泉、湯江温泉、原城温泉）の合計 14 地点から採取し（Fig. 1 と Table 1）、小浜港において海水を採取した。pH は現地で測定し、水温は流出口で計測した。小浜温泉の田中荘の沸騰泉（No. 7）では、泉源のそばに設置されているタンクで蒸気と熱水の分離が行われているので、分離前の流体の化学成分濃度と同位体組成を知るために、温泉水と分離蒸気の流量測定、分離蒸気（ガス）の採取も合わせて行った。分離蒸気の流量測定はピトー管-マンメータ法（湯原・瀬野，1969）で行い、温泉水についてはバケツとストップウォッチを用いて測定した。

ガス試料として、小浜温泉の田中荘と刈水鉱泉からそれぞれ沸騰泉分離蒸気と遊離ガス（気泡）を、瑞穂先年の湯と湯江の有玉温泉から温泉遊離ガスを、また雲仙温泉の噴気地（清七地獄）から自然噴気（2 試料）を採取した（Fig. 1 と Table 5）。沸騰泉分離蒸気と自然噴気および瑞穂先年の湯の遊離ガスは、KOH（5M）を含むガス採取容器に直接採取し（網田・大沢，2001）、その他の温泉・鉱泉遊離ガスは、水上置換により一旦ビニール袋に集めたものを KOH（5M）入りガス採取容器に移した（岩倉ほか，2000）。また、小浜温泉の田中荘の沸騰泉分離蒸気については、上述の目的のために、水冷した注射器中に凝縮水を採取した。

3.2 分析

3.2.1 水試料

Na⁺, K⁺, Mg²⁺, Ca²⁺ は原子吸光法により、Cl⁻, SO₄²⁻ はイオンクロマトグラフィーにより、Al³⁺ は ICP 発光分光法により定量した。全鉄（ΣFe）は、検液に還元剤を加えた後、オルソフェナントロリンで発色させて分光光度計を用いて定量した。HCO₃⁻ 濃度は、BCG を指示薬とした中和滴定により間接的に求めた（4.8 アルカリ度）。全炭酸（DIC）は、検液を硫酸酸性にして炭酸成分を全て CO_{2(aq)} に変換し、イオンメータ（東亜電波製 IM-1B）に接続した二酸化炭素電極（東亜電波製 CE-235）を用いて、絶対検量線法により分析した。

水の D/H 比と ¹⁸O/¹⁶O 比は、それぞれ金属亜鉛を用いた還元法、二酸化炭素平衡法によって測定し、V-SMOW スケールで表示した（δD と δ¹⁸O）。測定精度は、それぞれ ±1‰、±0.1‰ である。全炭酸（DIC）の ¹³C/¹²C 比は、プラスチック製注射器内で検液に炭酸を含まない Sr(OH)₂ 溶液を作用させ（約 40°C）、SrCO₃ として沈殿分離した後、濃リン酸を滴下して発生する CO₂ を質量分析計に導入して測定した。同位体組成は、V-PDB 同位体比で規格化して千分偏差で表した（δ¹³C）。測定誤差は、同一試料の再現性から 0.1‰ 以下と見積もられる。ΣSO₄ (= HSO₄⁻ + SO₄²⁻) の ¹⁸O/¹⁶O 比は、BaCl₂ 溶液を加えて沈殿させた BaSO₄ をグラファイトと共に真空中で 1,000°C に加熱して発生する CO₂ を質量分析計に導入して測定し、同時に生成する BaS を Ag₂S に変換した後、Cu₂O と共に 800°C に加熱して発生する SO₂ から、ΣSO₄ の ³⁴S/³²S 比を求めた。同位体組成は、それぞれ V-SMOW 同位体比と V-CDT 同位体比で規格化して千分偏差で表した（δ¹⁸O-ΣSO₄ と δ³⁴S-ΣSO₄）。測定誤差は、それぞれ ±0.3‰、±0.2‰ である。

3. 2. 2 ガス試料

ガス採取容器に採取された試料について、CO₂、H₂S、N₂、CH₄、Ar、H₂、He、O₂の濃度を、二酸化炭素電極、イオンクロマトグラフおよびガスクロマトグラフを用いて測定した(大沢ほか, 1998; 網田・大沢, 2001)。さらに、沸騰泉分離蒸気と自然噴気については、試料採取前後のガス採取容器の重量差より H₂O 濃度を求めた(大沢ほか, 1998)。また、ヘッドスペースガスの C₂H₆ を、Ar をキャリアーガスとした FID 昇温ガスクロマトグラフィーにより定量した。カラム充填材には Polapac Q (5 m) を用い、試料注入 (1 ml) 後の最初の 5 分間は 50°C に保ち、その後 5°C/min. の割合で 150°C まで昇温させた。分析誤差は、分析値の 2% である。

ガス採取容器内の KOH 溶液に吸収された CO₂ の $\delta^{13}\text{C}$ を、水試料と同様の方法で測定して求めた。H₂S の ³⁴S/³²S 比は、H₂O₂ 処理を施した KOH 吸収液から単離した BaSO₄ に SiO₂ と V₂O₅ を混合し、真空中で加熱分解させて発生した SO₂ を、質量分析計に導入して測定した。同位体組成は、V-CDT 同位体比で規格化して千分偏差で表した ($\delta^{34}\text{S}$)。測定誤差は、 $\pm 0.2\%$ である。CH₄ の ¹³C/¹²C 比は、ガス採取容器のヘッドスペース・ガス 0.5~1 ml を真空ラインに通して液体窒素トラップ (-196°C) で H₂O と CO₂ を除去した後、900°C の Cu₂O に通して CH₄ を CO₂ に変換し、同時に生成した H₂O をエタノールドライアイススラッシュ (-90°C) で除去した後に、質量分析計に導入して測定した。同位体組成は、V-PDB 同位体比で規格化して千分偏差で表した ($\delta^{13}\text{C}$)。測定誤差は、 $\pm 0.2\%$ である。凝縮水の D/H 比と ¹⁸O/¹⁶O 比は、水試料と同様の方法で測定し、V-SMOW スケールで表示した。

4. 結果と考察

4. 1 温鉱泉水の溶存成分の化学組成

温鉱泉水の化学分析の結果を Table 1 に示した。得られたデータを、主要陰イオン組成図 (Cl-HCO₃-SO₄ 図) 上にプロットしたところ (Fig. 2A), 瑞穂温泉 (No. 11) が Cl-HCO₃ 混合型であるのを除いて、どれか 1 つの陰イオン成分が卓越する水質をもつことが示された。即ち、島原温泉 (No. 1, 2, 3, 4), 原城温泉 (No. 13, 14), 湯江温泉 (No. 12) および小浜の刈水鉱泉 (No. 8) は HCO₃ 型、雲仙温泉 (No. 5, 6) は SO₄ 型、小浜温泉 (No. 7, 9) と唐比温泉 (No. 10) が Cl 型である。これらのうち、雲仙温泉だけが明らかに酸性を呈する (Table 1)。また、強い H₂S 臭を放ちながら湧出する刈水の鉱泉水はやや酸性を呈するが (pH=5.7), 低温であるためか H₂S の酸化による硫酸の生成は顕著に進んでおらず、前述のように水質としては HCO₃ 型となっている。

主要陰イオン組成だけから見ると、深部地熱水 (地熱開発の対象となるような高温の Na-Cl 型熱水を本論文ではこのように呼ぶことにする) の地表への流出の可能性があるのは、小浜温泉と唐比温泉ということになるであろう。そこで、熱水の化学平衡状態の達成度を判定する目的で利用されている Na-K- $\sqrt{\text{Mg}}$ 図 (Giggenbach, 1988) を使い、深部地熱水の可能性について検討を加えた (Fig. 2B)。HCO₃ 型や SO₄ 型の温泉・鉱泉水 (No. 1~6, 8, 13, 14) と同様に、小浜温泉 (No. 7, 9) と唐比温泉 (No. 10) のどちらもが平衡状態からかけ離れた未成熟水 (immature waters) の領域にプロットされており、少なくとも典型的な深部地熱水そのものではないことを示している。一方、未成熟水領域にプロットされない瑞穂温泉 (No. 11) と湯江温泉 (No. 12) の温泉水は、前述のようにそれぞれ Cl-HCO₃ 混合型、HCO₃ 型であり、いずれも SO₄ を欠き、陽イオンの大半を Na⁺ が占めるなど、非火山性のいわゆる深層熱水によく見られる水質を示す。以上のことから、島原半島では、天水性の深部地熱水の地表への直接流出は見られないと言えよう (このことが妥当であることについては、次項で行う水の同位体組成の解析により明らかにされる)。

Table 1 Chemical and isotope compositions of waters from wells, hot springs and mineral springs in the Shimabara Peninsula

No.	Area [®]	Name	Temp. (°C)	pH	Na ⁺ (mg/l)	K ⁺ (mg/l)	Mg ²⁺ (mg/l)	Ca ²⁺ (mg/l)	Al ³⁺ (mg/l)	ΣFe (mg/l)	Cl ⁻ (mg/l)	SO ₄ ²⁻ (mg/l)	HCO ₃ ⁻ (mg/l)	δD (‰)	δ ¹⁸ O (‰)
1	SB	Shimabara-kanko Hotel ^w	24.9	6.4	190	33.6	250	179	n.a.	n.a.	92.5	77.0	2,060	-49.4	-7.04
2	SB	Shimabara-onsen ^w	30.7	7.4	145	23.0	63.3	55.7	n.a.	n.a.	18.6	11.3	889	-49.4	-7.72
3	SB	Motoike ^m	30.5	7.2	287	32.2	99.5	62.8	n.a.	n.a.	38.1	14.6	1,420	-49.5	-7.78
4	SB	Shinyama-onsen Kami-no-yu ^w	16.1	6.7	12.2	3.9	9.3	25.6	n.a.	n.a.	8.7	7.3	137	-47.3 [#]	-7.47 [#]
5	UZ	Shinyu ^h	55.7	2.4	6.1	2.3	2.4	7.7	2.3	0.51	3.7	246	0	-52.2	-7.72
6	UZ	Kojigokut ^h	47.2	4.3	6.5	2.4	2.2	6.8	0.80	0.37	3.5	129	0	-50.7	-7.24
7	OB	Tanaka-so ^w	100	8.4	2,800	256	157	137	n.a.	n.a.	4,920	284	208	-36.9	-4.47
8	OB	Karimizut ^m	24.7	5.7	13.7	8.5	18.8	24.2	n.a.	n.a.	6.2	18.3	173	-49.5	-7.46
9	OB	Kunisaki-ryokan ^w	67.0	8.0	2,490	234	150	148	n.a.	n.a.	4,500	325	222	-38.1	-4.55
10	KK	Karako-onsen center ^w	13.2	7.5	1,810	98.5	241	293	n.a.	n.a.	3,900	441	140	-30.2	-5.49
11	MH	Mizaho Seamen-no-yu ^w	49.9	7.8	4,260	16.3	7.8	18.0	n.a.	n.a.	5,170	n.d.	2,700	-41.3	-5.88
12	YH	Yugokui-onsen ^w	36.2	8.4	437	1.8	1.4	5.7	n.a.	n.a.	12.5	n.d.	1,160	-57.7	-8.31
13	HJ	Harajo-so ^w	26.6	8.3	29.8	7.2	9.2	18.4	n.a.	n.a.	4.7	n.d.	92.4	-45.4	-7.27
14	HJ	Harajo Masago ^w	26.8	7.7	112	11.2	7.2	13.3	n.a.	n.a.	11.9	2.9	391	-48.6	-7.26
15		Seawater (Obama)	16.8	8.3	9,880	374	1,200	380	n.a.	n.a.	18,600	2,140	157	-1.5	-0.16

Sampling date (in 2000): Nos. 10 and 13 on Feb. 8; Nos. 4, 7, 8, 11, 12 and 15 on Dec. 13; Nos. 1, 2, 3, 9 and 16 on Dec. 14; Nos. 5, 6 and 14 on Dec. 15

® SB : Shimabara, UZ : Unzen, OB : Obama, KK : Karako, MH : Mizuho, YE : Yue, HJ : Harajo

w : well, h : hot spring, m : mineral spring; n. a. : not analyzed, n. d. : not detected (detection limit of SO₄ ion = 0.01 mg/l)

: Water sample was collected from Shinyama-onsen Shimo-no-yu about 100 m away from Shinyama-onsen Kami-no-yu.

δ¹⁸O and δ³⁴S of ΣSO₄ (= HSO₄⁻ + SO₄²⁻) in No. 5 sample (Shinyu) are +4.2‰ and +5.7‰, respectively.

4.2 温鉱泉水の水の同位体組成【水の起源】

水の水素・酸素同位体データ (Table 1) を, 島原半島全域の湧泉・浅井戸より採取した地下水データ (風早ほか, 未公表資料) とともに, δD - $\delta^{18}O$ ダイアグラム上に表わした (Fig. 3A). なお, 小浜温泉の田中荘 (No. 7) については, 熱水データ (Table 1) に蒸気分離の補正 (蒸気/熱水比 = 0.046; 蒸気の δD と $\delta^{18}O$ はそれぞれ -66.5‰ , -9.91‰) を施したものをプロットした. また, 図中に表わした天水線 (MWL) の d 値の最小値と最大値 (7.0‰と 20.2‰) は, 地下水データの $d = \delta D - 8 \times \delta^{18}O$ 式から求めた.

主要陰イオン組成から HCO_3 型と SO_4 型に分類された温泉・鉱泉水 (No. 1~6, 8, 13, 14) は, 湯江温泉 (No. 12) を除き, 現在の地下水が分布する範囲内にプロットされ, これらの温泉・鉱泉水の水自体は, 天水起源であることを示している. 唐比温泉 (No. 10), 瑞穂温泉 (No. 11) および湯江温泉 (No. 12) は, 上述の 2 本の天水線に挟まれた領域内にあるが, 明らかに現在の地下水とは異なった同位体組成を持っている. また, 小浜温泉 (No. 7, 9) のデータポイントは, 天水線から大きく外れた位置にプロットされており, 起源を現在の浅層地下水と同様な水であるとした場合, 何らかの変質を受けていると考えなければならない.

現在の地下水と起源を異にする小浜温泉, 唐比温泉, 瑞穂温泉および湯江温泉の温泉・鉱泉水 (No. 7, 9, 10, 11, 12) について, Cl^- 濃度と δD の関係から, さらに詳しく水の起源を探ってみる. これらの温泉は, いずれも海岸に近い場所での掘削によって得られた温泉・鉱泉であり, 湯江温泉以外は天水起源の深部地熱水が通常示す Cl^- 濃度より高い値を示すので (Table 1), 海水混入の可能性がある. そこで, 小浜湾で採取した海水と現在の地下水のデータを用いて, 海水-天水混合領域を Fig. 3 B 中に表わした (2 本の実線と δD 軸で囲まれた範囲). この領域内に, 小浜温泉 (No. 7, 9) のデータポイントは収まっており, 小浜温泉の熱水が現在の浅層地下水を涵養した天水と海水の混合によって生成したものと説明可能である. そしてこの考えに立って, もう一度 δD - $\delta^{18}O$ ダイアグラム上の小浜温泉のデータポイントを見ると (Fig. 3A の No. 7, 9), 混合の他に酸素同位体比を増大させる作用を受けていることが判る. その作用として最も考えやすい

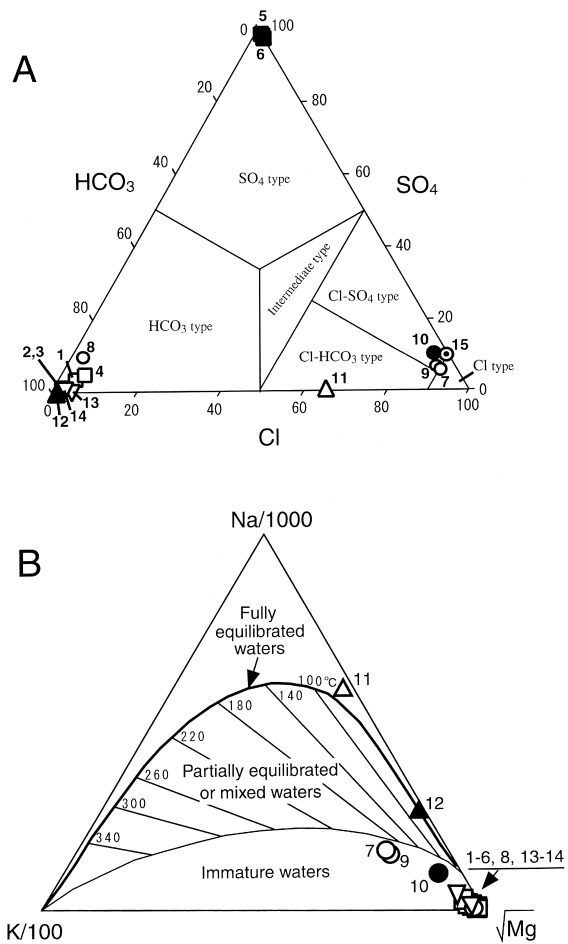


Fig. 2 Ternary plots used to classify waters based on the relative proportions of Cl , SO_4 and HCO_3 ions (A) and used to recognize equilibrated waters (B) for waters from wells, hot springs and mineral springs in the Shimabara Peninsula. Symbols with numbers correspond to those in Fig. 1.

のは、湯原ほか (1986) の論文でも述べられている岩石との酸素同位体交換反応であるが、マグマ水 (andesite-magmatic water) ($\delta D = -20 \sim 0\text{‰}$, $\delta^{18}O = +8 \sim +12\text{‰}$; Giggenbach, 1992a) の混入も否定できない. そのようなマグマ性流体の寄与の可能性については、本項より後に行う解析・議論によって示すことにする.

一方、湯江、瑞穂、唐古の各温泉の温泉・鉱泉水は、少なくとも現在の浅層地下水を涵養した天水と海水の混合によって生成したものではないようである. しかし、Cl- δD 図上に表わした地下水-海水混合領域の近傍にプロットされているので (Fig. 3B), 地下水や海水の涵養年代も考慮に入れた解析を行えば、小浜温泉と同様に天水と海水の混合により説明可能かもしれない. 深層熱水である可能性が高い湯江温泉 (No. 12) と瑞穂温泉 (No. 11) および現在の海水 (No. 15) のデータポイントが、 δD - $\delta^{18}O$ ダイアグラム (Fig. 3A) 上や Cl- δD 図 (Fig. 3B) 上でほぼ一直線に並んでいるのは (Fig. 3A, 3B 中の破線), これらの温泉水を涵養した古い時代の地下水の同位体組成が、現在のそれと違っていたことを示しているのかもしれない.

4.3 地化学温度計による温泉水の貯留温度の推定

湧出温度が比較的高い小浜温泉の田中荘 (No. 7) と国崎旅館 (No. 9), 瑞穂温泉 (No. 11) および雲仙温泉の新湯 (No. 5) について、地化学温度計を用いて、地下における温泉水の温度を推定した. 前者3温泉については、前項 (4.2) での解析から海水の混合が認められるので、 Mg^{2+} 濃度の補正を施した Na-K-Ca 温度計 (Fournier and Potter, 1979) を使用し、雲仙温泉については、酸性条件でも利用可能な H_2O - $\Sigma SO_4 (= HSO_4^- + SO_4^{2-})$ 間の酸素同位体交換平衡の温度依存性を利用した温度計 (Mizutani and Rafter, 1969) を使用した.

計算結果を Table 2 に示す. 小浜温泉の熱水温度は約 $200^\circ C$ を示し、1984年に湯原らが求めた値の $187^\circ C \sim 202^\circ C$ (湯原ほか, 1986) とほぼ一致する. 水質に関しても全般に大きく変化した様子はないので、小浜温泉の熱水帯水層はここ 10 数年間安定した状態にあると言えよう. 瑞穂温泉の推定温度は $87^\circ C$ であり、温泉井の孔底 (1,055 m) 温度 $65^\circ C$ との差は、約 $20^\circ C$ と小差である. 雲仙温泉の地中熱水温度はおおよそ $150^\circ C$ と算出され、温泉水の ΣSO_4 の $\delta^{34}S$ 値 ($+5.7\text{‰}$) が噴気 H_2S のそれ ($+4.8\text{‰} \sim +4.9\text{‰}$) とほぼ一致することも考慮すると、深部地熱水から発せられた二次的な蒸気により浅層地下水が加熱されて生成した熱水であることを伺わせる. より高温の深部地熱水の存在

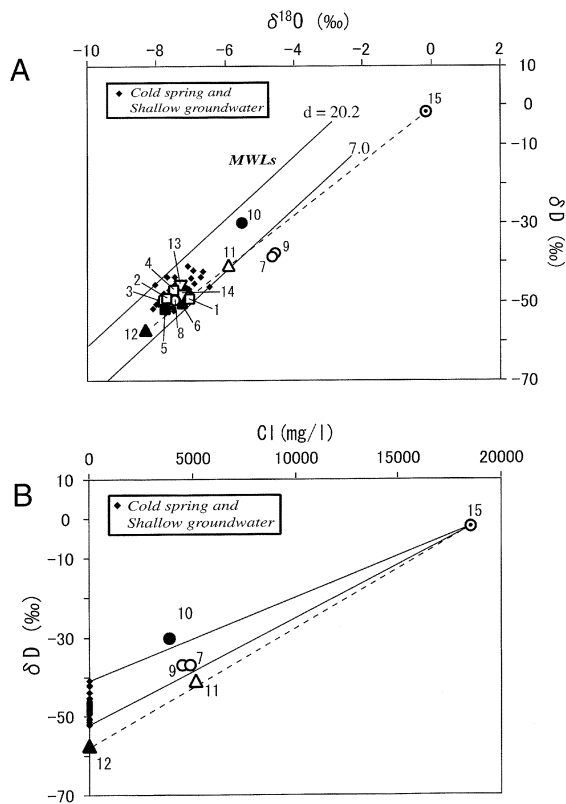


Fig. 3 δD vs. $\delta^{18}O$ plot (A) and δD vs. Cl ion concentration plot (B) for waters from wells, hot springs and mineral springs in the Shimabara Peninsula. Cold spring and shallow groundwater data are referred from Kazahaya et al. (unpublished data). Symbols with numbers correspond to those in Fig. 1.

Table 2 Estimations of underground fluid temperatures in the Shimabara Peninsula

No.	Area [@]	Name	Calculated Temp.(°C)	Geothermometer
5	UZ	Shinyu	151	$\delta^{18}\text{O}$ ($\text{H}_2\text{O} - \Sigma \text{SO}_4^\#$) [A]
7	OB	Tanaka-so	196	Mg-correction to the Na-K-Ca geothermometer[B]
9	OB	Kunisaki-ryokan	208	ditto
11	MH	Mizuho Sennen-no-yu	87	ditto

@ UZ : Unzen, OB : Obama, MH : Mizuho

[A] Mizutani and Rafter (1969), [B] Fournier and Potter (1979)

: $\Sigma \text{SO}_4 = \text{HSO}_4^- + \text{SO}_4^{2-}$

については、ガスデータの解析の項で後ほど議論する。

Table 3 Concentrations and isotope ratios of dissolved inorganic carbon (DIC) in waters from wells, hot springs and mineral springs in the Shimabara Peninsula

No.	Area [@]	Name	DIC* (mg/l)	$\delta^{13}\text{C}_{\text{DIC}}$ (‰)
1	SB	Shimabara-kanko Hotel	2,070	-4.04
2	SB	Shimabara-onsen	664	-7.76
3	SB	Motoike	1,120	-6.77
4	SB	Shinyama-onsen Kami-no-yu	124	-20.40
7	OB	Tanaka-so	2,380**	-5.60**
8	OB	Karimizu	1,090	-3.64
9	OB	Kunisaki-ryokan	150	-8.61
10	KK	Karako-onsen center	44.7	-11.58
11	MH	Mizuho Sennen-no-yu	174	-6.48
12	YE	Yugyoku-onsen	74.0	+0.78
13	HJ	Harajo-so	122	-12.89
14	HJ	Harajo Masago	270	-8.87
15		Seawater (Obama)	87.8	+1.7***

@ SB : Shimabara, OB : Obama, KK : Karako, MH : Mizuho, YE : Yue, HJ : Harajo

* $\text{DIC} = \text{CO}_{2(\text{aq})} + \text{HCO}_3^- + \text{CO}_3^{2-}$

** collected values for CO_2 separation using chemical and isotopic compositions of steam phase, and steam/water ratio (0.046)

*** cited from Sakai and Matsuhisa (1996)

4.4 温鉱泉水の炭酸成分の炭素同位体組成【炭酸成分の起源】

4.1 で示したように、島原半島に産する温鉱泉水の半数以上が、 HCO_3^- 型の水質を持ち、Cl 型や Cl- HCO_3^- 混合型に分類されるものでも、100 から 1,000 mg/l オーダーの HCO_3^- を含む。このように HCO_3^- は、島原半島の温泉水・鉱泉水の重要な成分であるのにもかかわらず、これまでその起源について十分議論されることはなかった。近年、温泉水の溶存全炭酸

($\text{DIC} = \text{CO}_{2(\text{aq})} + \text{HCO}_3^- + \text{CO}_3^{2-}$) の濃度と炭素安定同位体組成 ($\delta^{13}\text{C}$) の解析から、炭酸成分の供給源と混合過程を考察する方法が提示されたので (大沢, 2001), ここでもその手法を用いて解析を行った。

酸性泉である雲仙温泉を除く全ての温鉱泉水の DIC の濃度と $\delta^{13}\text{C}$ 値を、Table 3 に示した (酸性泉については、DIC が湧出時に大気中へ逃散するので、信頼できる値が得られない)。この表に掲げた小浜温泉の田中荘 (No. 7) の数値は、沸騰による温泉水からの CO_2 の飛散とそれによる同位体分別の補正を行ったもので、沸騰泉水の DIC の濃度と $\delta^{13}\text{C}$ 値、分離蒸気中の CO_2 の濃度と $\delta^{13}\text{C}$ 値 (Table 5) および蒸気/熱水比 (0.046) を使って算出した。

4.2 における議論から、小浜温泉 (No. 7, 9) は、海水の混入が認められるので、DIC の一部もま

た海水に由来すると考えるのは妥当であろう。そこで、温泉水中の Cl^- が全て海水に由来すると仮定して、以下の2式から海水由来分の DIC を差し引き、非海水起源の DIC の濃度と炭素同位体組成を求めた。また、唐比温泉 (No. 10) も、海水混入があるとして同じ作業を行った。

$$[\text{DIC}]_{\text{nsw}} = [\text{DIC}]_{\text{smp}} - (\text{DIC}/\text{Cl})_{\text{sw}} \times [\text{Cl}]_{\text{smp}}$$

$$\delta^{13}\text{C}_{\text{nsw}} = (\delta^{13}\text{C}_{\text{smp}} - \delta^{13}\text{C}_{\text{sw}}) \times ([\text{DIC}]_{\text{smp}} / [\text{DIC}]_{\text{nsw}}) + \delta^{13}\text{C}_{\text{sw}}$$

ここに、 $[\text{DIC}]_{\text{nsw}}$ は非海水起源 DIC の濃度、 $[\text{DIC}]_{\text{smp}}$ は温泉水の DIC 濃度、 $(\text{DIC}/\text{Cl})_{\text{sw}}$ は海水の DIC/Cl 比、 $[\text{Cl}]_{\text{smp}}$ は温泉水の Cl^- 濃度を表わし、 $\delta^{13}\text{C}_{\text{nsw}}$ 、 $\delta^{13}\text{C}_{\text{smp}}$ 、 $\delta^{13}\text{C}_{\text{sw}}$ はそれぞれ非海水起源、温泉水、海水の DIC の炭素同位体組成を表わす。なお、ここでの計算では、炭酸塩鉱物の沈殿などに伴う同位体分別の効果は無いものとした。以上の方法により、小浜温泉の田中荘 (No. 7)、小浜温泉国崎旅館 (No. 9)、唐比温泉 (No. 10) の温泉水の DIC に占める海水由来の DIC の寄与率は、それぞれ 1%、14%、41% と見積もられた。

海水の寄与を差し引いたデータを、また、海水の寄与のないものは生データを、DIC の濃度の逆数対 $\delta^{13}\text{C}$ 図 (以下、 $1/\text{DIC} - \delta^{13}\text{C}$ 図) にプロットした (Fig. 4)。島原温泉の新山温泉上の湯 (No. 4) と海水由来の DIC の寄与を差し引いた唐比温泉 (No. 10) は、 -20‰ より小さな $\delta^{13}\text{C}$ 値を持ち、DIC のほとんど全てが土壤空気中の CO_2 (水谷, 1995; 大沢, 2001, 以降土壤 CO_2 と表現する) に由来することを示している。ここで、両者の DIC 濃度に大きな違いが見られるのは、土壤 CO_2 濃度や浸透水量、土壤層の厚さなどの地域差が反映されているためであると考えられる。その他の温泉水について、地域ごとにデータポイント間の関係を検討してみると、島原、原城、小浜の各地域の温泉水が、それぞれ一定の直線上に乗り、さらにそれらの直線は、 $\delta^{13}\text{C}$ 軸上の一点 (約 -5‰) に収束する傾向にあることが判る (Fig. 4)。ここで、島原温泉の島原観光ホテル (No. 1) と小浜の刈水鉱泉 (No. 8) のデータポイントが直線から高 $\delta^{13}\text{C}$ 値側にずれているが、これは遊離ガス中の CO_2 との同位体分別により水中の DIC に重い同位体が濃縮されたためであると考えられる。事実、遊離ガス中の CO_2 の $\delta^{13}\text{C}$ 値は、DIC のそれより 2% から 5% ほど小さい (Table 3 と Table 5; Kita *et al.*, 1993)。 $1/\text{DIC} - \delta^{13}\text{C}$ 図上に現れる直線は、2つの供給源とそれら2成分の混合関係の存在を意味するので、島原半島の温泉水・鉱泉水の DIC は、土壤 CO_2 と半島全体に発散される一定の高い $\delta^{13}\text{C}$ 値をもった CO_2 との混合物であると言える。同様な関係は、島原半島の浅層地下水についても見出されており (Ohsawa *et al.*, 2002)、そのような高い $\delta^{13}\text{C}$ 値を持つ CO_2 をマグマ起源であ

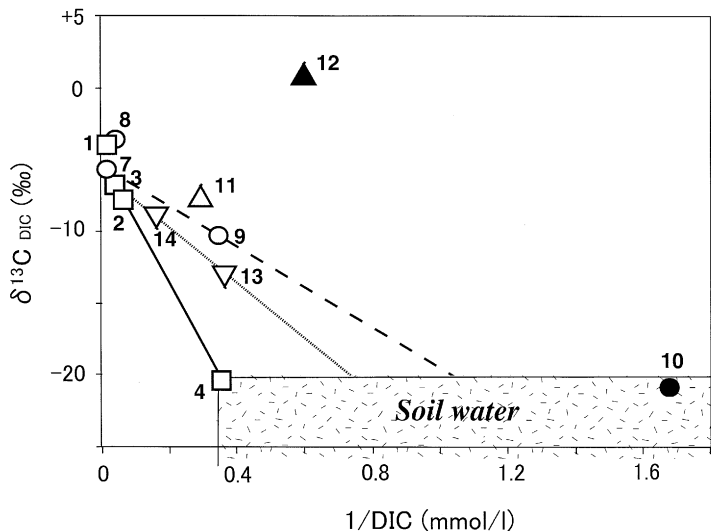


Fig. 4 $\delta^{13}\text{C}$ vs. reciprocal concentration plot of dissolved inorganic carbon (DIC) for waters from wells, hot springs and mineral springs in the Shimabara Peninsula. Symbols with numbers correspond to those in Fig. 1. For soil water box see text.

Table 4 Estimated carbon sources of dissolved inorganic carbon (DIC) in waters from wells, hot springs and mineral springs in the Shimabara Peninsula

No.	Area [®]	Name	Contribution (%)		
			Magmatic CO ₂	Soil CO ₂	Seawater DIC
1	SB	Shimabara-kanko Hotel	100	0	0
2	SB	Shimabara-onsen	85	15	0
3	SB	Motoike	90	10	0
4	SB	Shinyama-onsen Kami-no-yu	14	86	0
7	OB	Tanaka-so	95	4	1
8	OB	Karimizu	100	0	0
9	OB	Kunisaki-ryokan	61	25	14
10	KK	Karako-onsen center	7	52	41
13	HJ	Harajo-so	56	44	0
14	HJ	Harajo Masago	79	21	0

@ SB : Shimabara, OB : Obama, KK : Karako, MH : Mizuho, YE : Yue, HJ : Harajo

ると結論している。高 $\delta^{13}\text{C}$ 値の CO_2 の混入率が最も高い島原温泉の島原観光ホテル (No. 1) と小浜の刈水鉱泉 (No. 8) の遊離ガス中のヘリウム同位体比 ($^3\text{He}/^4\text{He}$) が極めて高いことから (Kita *et al.*, 1993), -5% 程度の高い $\delta^{13}\text{C}$ 値を持つ CO_2 をマグマ起源であるとするのは妥当である。深層熱水である可能性の高い瑞穂温泉 (No. 11) と湯江温泉 (No. 12) は、遊離ガスに多量の CH_4 が含まれていることから (Table 5), 「温泉水中の DIC は元々土壌 CO_2 起源で低い $\delta^{13}\text{C}$ 値を持っていたが、有機物の熱分解等で発生した CH_4 との間に同位体交換が起こり、軽い同位体 (^{12}C) が CH_4 に濃縮した結果、DIC は相対的に高い $\delta^{13}\text{C}$ 値を示すことになった」とするのが妥当な解釈であると考えられる。ただし、深層熱水にはマグマ性 CO_2 の寄与が認められるものもあるので (例えば、大分平野; 大沢, 2001), 両温泉の周辺地下水の DIC に関する実測データ (濃度と同位体組成) を収集し、マグマ性 CO_2 と土壌 CO_2 の混合関係の有無を検討する必要はあろう。

瑞穂温泉と湯江温泉を除き、DIC に関して上述の混合関係があることが明らかとなったので、各温泉・鉱泉水の DIC に占めるマグマ性 CO_2 と土壌 CO_2 の寄与率を、同位体に関する保存則 (下式) を前提に試算してみた。

$$\delta^{13}\text{C}_{\text{smp}} = \delta^{13}\text{C}_{\text{mgm}} \times X + \delta^{13}\text{C}_{\text{soil}} \times (1 - X)$$

ここに、X はマグマ性 CO_2 の寄与率、 $\delta^{13}\text{C}_{\text{smp}}$, $\delta^{13}\text{C}_{\text{mgm}}$, $\delta^{13}\text{C}_{\text{soil}}$ は、それぞれ温泉水の DIC, マグマ性 CO_2 , 土壌 CO_2 の炭素同位体組成を表わし、 $\delta^{13}\text{C}_{\text{mgm}}$ と $\delta^{13}\text{C}_{\text{soil}}$ の数値として、それぞれ -5% (前の議論からの推定値), -23% (Ohsawa *et al.*, 2002) を代入した。先に求めた海水由来の DIC の寄与分を含めて、計算結果を Table 4 にまとめた。雲仙地溝内の島原、小浜地域の温鉱泉水にマグマ起源の CO_2 が相当量溶存していることが示されているが、ここで特に注目すべきことは、地溝外の原城温泉の DIC の少なくとも半分がマグマ起源であるという結果が得られたことであり、この温泉を火山性温泉とした太田の考え (太田, 1973) を支持している。なお、唐比温泉 (No. 10) の DIC に 7% 程度のマグマ性 CO_2 の寄与があるとなっているが、寄与率の算出のために代入した数値が数 % 変わるだけで、寄与率は 0% となるため、マグマ性 CO_2 の寄与があったとしても無視できる程度であると考えるのがよいであろう。

4.5 噴気ガス・温鉱泉遊離ガス中の無機炭素化合物の起源

前項(4.4)で行った解析・議論より、島原半島の温鉱泉の形成にマグマ起源のCO₂の関与が認められた。ここでは、さらに温泉・鉱泉に付随するガスや噴気地帯から放出されるガスの化学・同位体組成を解析し、ガスに含まれるCO₂とCH₄の起源やガスを供給する深部流体の温度の推定を行う。

分析されたO₂(Table 5)を、試料の採取、保存(輸送)や分析中の大気の影響(試料汚染)によるものとして、現在の大気の化学組成を用いて分析データを補正し、CO₂-He-Ar 相対組成図(Giggenbach, 1992b)にプロットしたのが、Fig. 5である。図中に示された andesitic と記された領域は安山岩質マグマのガス組成で、マグマ性ガスが地殻中の有機物の熱分解により生成したCO₂の混入を受けると、組成はAS (andesitic subducted) から AT (andesitic thermogenic) に向かう。一方、玄武岩質マグマのガス組成は、basaltic と記された領域にあり、同様に浅所に存在するCO₂の混入を受けると、組成はBM (basaltic mantle) から BC (basaltic contaminated) へ変化する。以上のようなバリエーションを示すマグマ性ガスに大気由来の成分(土壌空気や大気に飽和した地下水)が混合すると、それらの組成はME (meteoric endmember) に向かう。雲仙地溝内に噴出するガス(No. 7, 8, 16, 17)は、地殻中の有機炭素の影響を受けていない安山岩質マグマ起源ガスに、大気に由来する成分が混入したものであることを示しているが、CO₂/Ar 比が $2.5 \times 10^3 \sim 1.9 \times 10^4$ と、大気のもの(4.0×10^{-2})より5~6桁大きいことから、CO₂については大気に由来する部分は僅かであり、ほとんどがマグマ起源であると見なせる。一方、雲仙地溝外で得られたガス

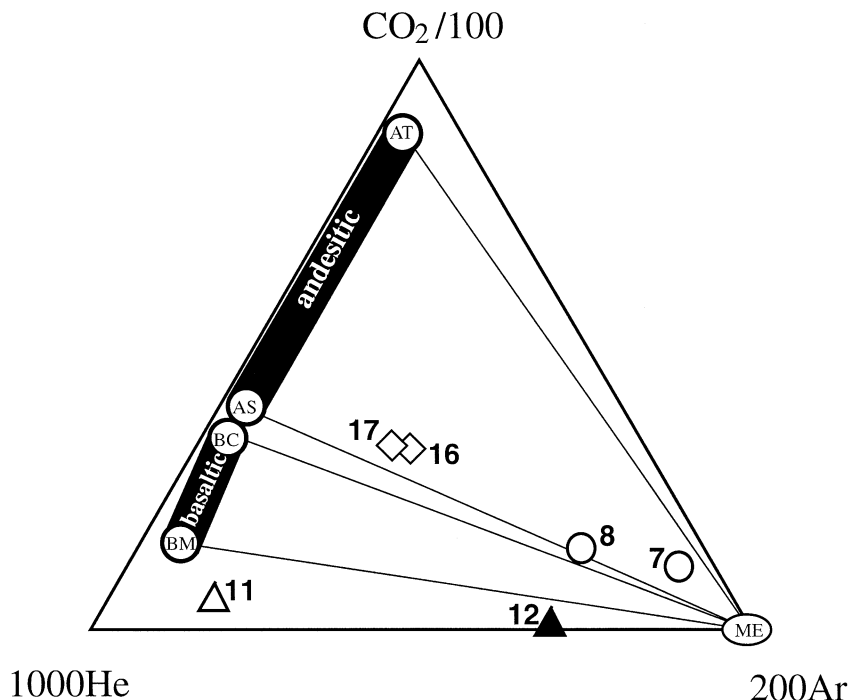


Fig. 5 Relative CO₂, He and Ar contents of sample gases listed in Table 5, together with those of the potential endmember components : meteoric (ME), andesitic (AS, AT) and basaltic (BM, BC) gases. Symbols with numbers correspond to those in Fig. 1. For AS (andesitic subducted), AT (andesitic thermogenic), BM (basaltic mantle) and BC (basaltic contaminated) see text.

Table 5 Chemical and isotope compositions of gases from fumaroles, thermal water wells and mineral spring in the Shimabara Peninsula

No.	Area [®]	Name	Temp. (°C)	H ₂ O (Vol.%)	Composition of gas exclusive of H ₂ O (Vol.%)										δ ¹³ C (‰)	
					CO ₂	H ₂ S	N ₂	CH ₄	O ₂	Ar	H ₂	He	C ₂ H ₆	CO ₂	CH ₄	
7	OB	Tanaka-so ^w	100	97.82	97.0	0.55	1.9	0.54	0.011	0.038	0.016	0.0005	0.0028	-5.3	-27.8	
8	OB	Karimizu ^m	24.7	n.a.	95.3	0.14	2.6	1.7	0.18	0.032	0.0087	0.0013	0.011	-5.8	-29.2	
11	MH	Mizuho Sennen-no-yu ^w	49.9	n.a.	41.0	n.d.	6.2	51.8	0.71	0.035	0.0005	0.0059	0.28	n.a.	-35.6	
12	YE	Yugyoku-onsen ^w	36.2	n.a.	28.0	n.d.	11.4	59.8	0.57	0.13	0.0005	0.0094	0.0029	n.a.	-68.8	
16	UZ	Seishichi-jigoku ^f	97.1	96.48	95.7	2.4	1.0	0.65	0.009	0.0055	0.20	0.0011	n.a.	-4.2	n.a.	
17	UZ	Seishichi-jigoku ^f	107	96.38	95.9	2.1	0.97	0.81	0.012	0.0050	0.20	0.0011	0.0046	-4.2	-28.2	

Sampling date (in 2000) : Nos. 7, 8, 11 and 12 on Dec. 13; Nos. 17 and 18 on Dec. 15

[®]SB : Shimabara, OB : Obama, MH : Mizuho, YE : Yue, UZ : Unzen

f : fumarole, m : mineral spring, w : thermal water well

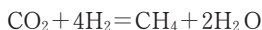
n.a. : not analyzed, n.d. : not detected

δ³⁴S of H₂S in Nos. 16 and 17 samples collected from Seishichi-jigoku are +4.9‰ and +4.8‰, respectively.

δD and δ¹⁸O of H₂O in No. 7 sample (Tanaka-so) are -66.5‰ and -9.91‰, respectively.

(No. 11, 12) の組成は、マグマ性ガスと大気由来成分との混合では説明できない領域にあり、これらを供給する熱水が深層熱水である可能性が高いとする先の推定と矛盾しない。

雲仙の清七地獄および小浜から放出されるガスの CH_4/CO_2 比は、 $5.6 \times 10^{-3} \sim 1.8 \times 10^{-2}$ であり、 CO_2 に比べ CH_4 の存在量は極わずかである。従って、 CH_4 と CO_2 を含む下記の化学反応がある温度の下で平衡に達していれば、 CH_4 の同位体組成 ($^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比) は CO_2 のそれによって一義的に決まると考えてよい。



以上のことを図解し (Ono *et al.*, 1993), さらに実測データをそのダイアグラム上にプロットしたのが、Fig. 6 である。図中の Magmatic CO_2 と付された破線は、噴火活動期に雲仙火山山頂部から放出された噴気ガス中の CO_2 の $\delta^{13}\text{C}$ 値 (-4.1‰ ; Kita *et al.*, 1993) から求めたもので、この破線上の CO_2 と化学・同位体平衡にある CH_4 は、その CO_2 点から Chemical + isotopic equilibrium と付された点線へ向かって降ろされた垂線との交点に位置することになる。Figure 6 上の実際のデータポイント (No. 7, 8, 17) を見てみると、 CH_4 と CO_2 はほぼ化学・同位体平衡にあり、平衡温度は 300°C 付近にあることが読み取れる。なお、ここで取り上げた化学反応は、この程度の温度条件では平衡移動の速度が遅く、再平衡に達しにくいと言われているので (Giggenbach and Goguel, 1989), マグマから放出されたガスは、地表への上昇途中で、平衡の再構築が十分に行われるほど長時間滞留していた可能性が高い。

雲仙地溝外の瑞穂温泉 (No. 11) および湯江温泉 (No. 12) の遊離ガスには多量の CH_4 が含まれ、他の温鉱泉には見られない特徴の一つとなっている (Table 5)。 CH_4 の炭素同位体組成 ($\delta^{13}\text{C}$) が、 CH_4 の起源を特定するのに有効であるとされているので (例えば、佐藤ほか, 1999), ここでは CH_4 の $\delta^{13}\text{C}$ 値と $\text{CH}_4/\text{C}_2\text{H}_6$ 比を用いる方法 (Kiyosu *et al.*, 1992) を利用して、 CH_4 の起源を推定した。なお、雲仙地獄の噴気ガスと小浜の温泉・鉱泉遊離ガスの CH_4 は、前述のように平衡の再構築によって、元々の同位体組成と濃度が失われている可能性が高いので、この検討からは除いた。 $\delta^{13}\text{C}$ - $\text{CH}_4/\text{C}_2\text{H}_6$ ダイアグラム (Fig. 7) 上にプロットされたデータポイントから、瑞穂温泉 (No. 11) の CH_4 は堆積物中の有機物の熱分解生成物 (Thermogenic) であり、湯江温泉 (No. 12) の CH_4 は微生物の作用により生成したもの (Biogenic) であることが示された。なお、このように CH_4 の起源に明確な違いが認められるのには、泉質や塩分濃度の違い (Table 1) が関係している可能性がある。

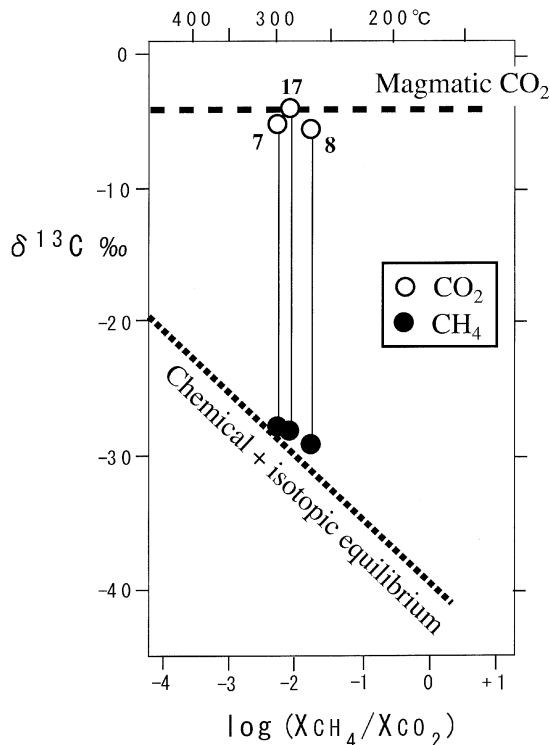
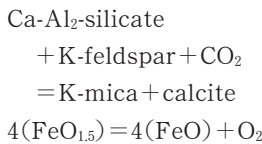


Fig. 6 $\delta^{13}\text{C}$ values for CO_2 (open symbols) and CH_4 (closed symbols), and CH_4/CO_2 ratios of gases discharged from Unzen and Obama areas (Numbers correspond to those in Table 5). The trend for both chemical and isotopic equilibrium between magmatic CO_2 with a values of -4.1‰ and CH_4 is shown as short dashed line, and the equilibrated temperatures are plotted along the top (Ono *et al.*, 1993).

るが、これを確かめるためには、典型的な深層熱水地域の多数の源泉において同様な調査を行い、生物地球化学的な考察も含めた詳細な議論を行う必要がある。

4.6 噴気ガス・温鉱泉遊離ガスの化学組成【地下流体の性状】

地下に潜在する地熱流体の物理・化学的狀態を、地表に噴出するガスの化学組成から推定する方法として、CO₂/Ar-H₂/Ar ダイアグラムが有効であるとされている (Giggenbach and Goguel, 1989 ; 大沢ほか, 1998 ; 大沢ほか, 2000 ; 大沢, 2000). Table 5 中の検討に必要なデータを、前項 (4.5) で行ったのと同様に空気汚染の影響を補正して、このダイアグラム上にプロットしたのが、Fig. 8 である。雲仙温泉の噴気地帯に噴出するガス (No. 16, 17) は、下の 2 つの化学反応から予想される平衡状態のうち、液相平衡 (Equilibrium liquid) 線上にプロットされ、これらのガスをもたらした地熱流体が熱水卓越状態にあり、さらにその温度は約 300°C であることを表わしている。



4.3 で行った解析の中で、雲仙温泉の地下に深部地熱水の存在が示唆されたが、その素性は以上のようなものであると推定される。なお、ここで推定された温度は、先述 (4.5) の CO₂-CH₄ 系の化学・同位体平衡温度とほぼ一致する。

小浜温泉田中荘の沸騰泉分離ガス (No. 7) と刈水鉱泉の遊離ガス (No. 8)、瑞穂温泉 (No. 11) 及び湯江温泉 (No. 12) の遊離ガスは、いずれも液相平衡 (Equilibrium liquid) 線から CO₂/Ar 軸の方へ外れた領域にプロットされてい

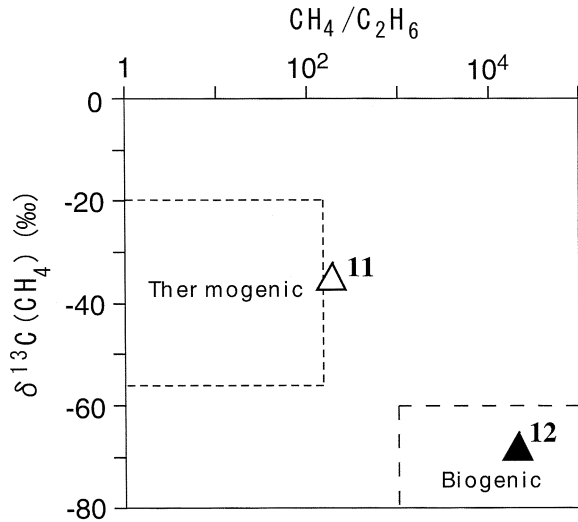


Fig. 7 $\delta^{13}\text{C}$ values of CH₄ and CH₄/C₂H₆ ratios of accompanying gases from Mizuho (Mizuho Sennen-no-yu : No. 11) and Yue (Yugyoku-onsen : No. 12). Thermogenic and biogenic boxes are referred from Sato *et al.* (1999).

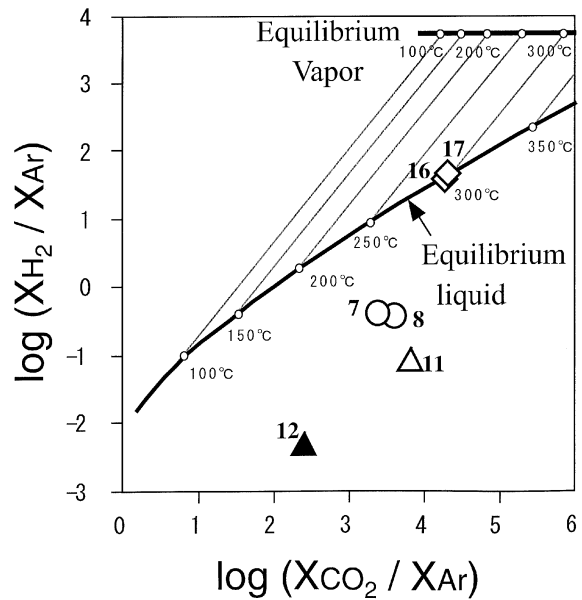


Fig. 8 Evaluation of H₂-Ar, CO₂-Ar equilibration conditions for gases from the Shimabara Peninsula. Symbols with numbers correspond to those in Fig. 1.

る。このような状況を、Giggenbach and Goguel (1989) は、高温のガスが地表へ移動し冷却される際、 $\text{CO}_2\text{-Ar}$ 系の化学平衡に比べて $\text{H}_2\text{-Ar}$ 系のそれが低温側へシフトしやすいためであると説明し、その場合でも $\text{CO}_2\text{-Ar}$ 系の化学平衡は高温状態を保持しやすく、より深部の情報を提供している。この考えに従えば、小浜温泉の地下の熱水は 250°C 程度以上、瑞穂温泉の場合は 250°C 以上、湯江温泉の場合でも約 200°C であるということになる。しかし、小浜温泉の熱水貯留層温度は、温泉水の化学組成から 200°C 程度と推定されており (4.3)、これに比べ 50°C も高く算出されている。この差は、「ガス温度計が熱水の化学組成や同位体比を利用した温度計ほどの精度が得られない (犬山ほか, 1999)」からとして説明してしまうには、あまりにも大きい。また、 $\text{H}_2\text{-Ar}$ 温度は 150°C であり、こちらの方は逆に 50°C も低い。先述のように (4.5)、熱水貯留層に熱を供給していると考えられる蒸気がおよそ 300°C はあるので、応答速度の遅い $\text{CO}_2\text{-Ar}$ 温度は見かけ上その温度と熱水貯留層温度 (200°C) の中間的な値 (250°C) を示し、他方応答速度の速い $\text{H}_2\text{-Ar}$ 温度は、ガスが熱水に溶けて地表に向けて上昇してきていることから (沸騰泉であることに注意)、熱水の上昇途中で再平衡化が進み熱水貯留層温度 (200°C) と流出温度 (100°C) の中間的な値 (150°C) を示すことになったとして定性的には説明できる。また、この解釈によって、水蒸気圧の急激な低下によって地表への流動途中で上昇能力を失った熱水から遊離したガスであるとされている刈水鉱泉 (No. 8) の遊離ガス (太田, 1977) のデータポイントが、田中荘 (No. 7) のそれとほぼ同じ位置にプロットされることも説明可能である。

一方、瑞穂・湯江両温泉の 200°C 以上の高温度を説明するには、以下のように考えなければならない。即ち、深層熱水である可能性が高いことから、地温勾配を $6^\circ\text{C}/100\text{ m}$ (大分平野の値) と仮定すると、 200°C 以上の高温熱水の貯留深度は $3,000\text{ m}$ 以深となり (地温勾配をもっと緩やかに設定するとさらに深くなる)、そこでの化学平衡を記録したガスが熱水から分離して浅部に向けて上昇し、 $500\text{ m}\sim 1,000\text{ m}$ 深度に存在する熱水帯水層 (瑞穂温泉や湯江温泉の取水層) に加わり、しかもここでは CO_2 を含む化学反応が平衡に達していないとしなければならないであろう。しかし、ここで利用したダイアグラムが深層熱水には適用できない可能性があるので、Chiba (1991) が深部地熱水で検討したように、深層熱水の化学組成が、貯留層内のどのような化学反応により決められているかを詳細に研究する必要がある。ここでは問題提起にとどめ、今後の研究課題としたい。

5. ま と め

島原半島に分布する温泉、鉱泉、掘削井ならびに噴気地から流出する温泉水、鉱泉水、噴気ガス、沸騰泉分離蒸気 (ガス)、温泉・鉱泉遊離ガスを採取し、それらの化学・同位体分析を行った。データの解析と考察により得られた知見をまとめると、以下のようになる。

① 雲仙温泉の地下には、火山性蒸気を熱源とする約 300°C の地熱水が潜在しており、そこから分離した二次的な蒸気が浅層地下水を加熱し、約 150°C の酸性 SO_4 型の熱水が生成している。

② 小浜温泉の温泉水は、基本的に海水と天水性の地下水の混合物であるが、約 200°C で貯留層岩石と相互作用を起こして変質している。また、貯留層内の熱水には、マグマ性ガス (二酸化炭素やヘリウム) の混入が認められる。熱源は 300°C 程度の蒸気であると推定された。

③ 小浜温泉の山の手にある刈水鉱泉は、水自体は天水に由来するが、遊離ガスは小浜温泉の沸騰泉分離蒸気 (ガス) の非凝縮性ガスと同様な化学・同位体組成を持つ。沸騰熱水が上昇途中で急冷され、非凝縮性ガスだけが分離して地表付近に達し、浅層地下水に溶解したものと考えられる。

④ 島原温泉と原城温泉の温泉水は、天水性の地下水が加温されたものであり、貯留層岩石との化学反応は十分に進行していない。また、マグマ起源の CO_2 の混入が認められる。

⑤ 唐比温泉の鉱泉水は、海水と天水性の地下水の混合物であると考えられるが、少なくとも溶解成分に明瞭なマグマ起源物質の混入は認められない。

⑥ 瑞穂温泉と湯江温泉はともに非火山性の深層熱水である可能性が高く、前者には海水の混入が認められる。付随するメタンガスは、前者が堆積物中の有機物の熱分解生成物、後者が微生物活動により生成したものであると推定される。

謝 辞

試料採取では網田和宏、岩倉一敏、山田誠の諸氏に、試料の化学・同位体分析では網田和宏と岩倉一敏の両氏、Institute of Geological and Nuclear Sciences の G. L. Lyon 博士と W. Gooley 氏ならびに三菱マテリアル総合研究所の上田晃博士と川端明子氏の助力を得た。また、泉源所有者および管理者の皆様からは、現地作業や試料採取に対して快諾いただいた。ここに記して感謝の意を表します。

本研究の費用の一部に、科学技術庁振興調整費「総合研究課題(第 I 期:平成 11~13 年度)雲仙火山:科学掘削による噴火機構とマグマ活動解明のための国際共同研究 研究代表者:宇都浩三」を当てた。関係者の皆様に深謝いたします。

文 献

- 網田和宏, 大沢信二 (2001): 噴気ガス採取用改良注射器法, 九大地熱・火山研究報告, **10**, 158-167.
- Chiba, H. (1991): Attainment of solution and gas equilibrium in Japanese geothermal system, *Geochemical J.*, **25**, 335-355.
- Fournier, R.O. and Potter, R.W. (1979): Magnesium correction to the Na-K-Ca chemical geothermometer, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **43**, 1543-1550.
- Giggenbach, W.F. (1988): Geothermal solute equilibria. Derivation of Na-K-Mg-Ca geothermometers, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **52**, 2749-2765.
- Giggenbach, W.F. and Goguel, R.L. (1989): Collection and analysis of geothermal and volcanic water and gas discharges, Fourth Edition. Report CD2401, Chemistry Division, DSIR, New Zealand, 81p.
- Giggenbach, W.F. (1992 a): Isotopic shifts in waters from geothermal and volcanic systems along convergent plate boundaries and their origin, *Earth Planet. Sci. Lett.*, **113**, 495-510.
- Giggenbach, W.F. (1992 b): The composition of gases in geothermal and volcanic systems as a function of tectonic setting, *Proceedings of the Seventh International Symposium on Water-Rock Interaction*, 873-878.
- 星住英夫, 宇都浩三 (2000): 雲仙火山の形成史, *月刊地球*, **22**, 237-245.
- Kiyosu, Y., Asada, N. and Yoshida, Y. (1992): Origin of light hydrocarbon gases from Matsu-kawa geothermal area in Japan, *Chem. Geol.*, **94**, 321-329.
- 犬山文孝, 島田寛一, 鴫田洋行, 横井浩一 (1999): 温泉・地下水系影響予測マニュアル (1), *地熱エネルギー*, **24**, 245-281.
- 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.
- Kita, I., Nagao, K., Taguchi, S., Nitta, K. and Hasegawa, H. (1993) Emission of magmatic He with different $^3\text{He}/^4\text{He}$ ratios from the Unzen volcanic area, Japan, *Geochemical J.*, **27**, 251-259.
- Mizutani, Y. and Rafter, T.A. (1969): Oxygen isotopic composition of sulfates, 3. Oxygen

- isotopic fractionation in the bisulfate ion-water system, *N.Z. J. Sci.*, **12**, 54-59.
- 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.
- 大沢信二, 由佐悠紀, 大上和敏 (1998) : 岳湯地熱地域 (熊本県小国町) の噴気・蒸気井から放出されるガスの化学組成, *日本地熱学会誌*, **20**, 289-292.
- 大沢信二 (2000) : 噴気ガスの化学・同位体組成からみた別府温泉の地熱流体の起源及び性状, *大分県温泉調査研究会報告*, **51**, 19-28.
- 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.
- 大沢信二, 由佐悠紀, 大山正雄 (2000) : 噴気ガスの化学組成から得られる箱根火山の地熱情報, *温泉科学*, **49**, 151-161.
- Ohsawa, S., Kazahaya, K., Yasuhara, M., Kono, T., Kitaoka, K., Yusa, Y. and Yamaguchi, K. (2002) : Escape of volcanic gas into shallow groundwater systems at Unzen volcano (Japan) : Evidence from chemical and stable isotope compositions of dissolved inorganic carbon, *Limnology*, (in press).
- 太田一也 (1973) : 島原半島における温泉の地質学的研究, *九州大学理学部島原火山観測所研究報告*, **8**, 1-33.
- 太田一也 (1977) : 雲仙火山における温泉観測 [II] - 1974年4月~1975年7月, *九州大学理学部島原火山観測所研究報告*, **11**, 13-25.
- 太田一也 (1984) : 雲仙火山 地形・地質と火山現象, 長崎県, 98p.
- 太田一也 (1987) : 雲仙火山の地質構造と火山現象, *地団研専報*, **33**, 71-85.
- Ono, A., Sano, Y., Wakita, H. and Giggenbach, W.F. (1993) : Carbon isotopes of methane and carbon dioxide in hydrothermal gases of Japan, *Geochemical J.*, **27**, 287-295.
- 酒井 均, 松久幸敬 (1996) : 炭素の同位体地球化学, 「安定同位体地球化学」, 143-222, 東京大学出版会, 東京.
- 佐藤雅規, 森 俊哉, 野津憲治, 脇田 宏 (1999) : 霧島火山地帯から放出される噴気, 温泉ガスの炭素およびヘリウム同位体比, *火山*, **44**, 279-283.
- 多田 堯 (1985) : 沖縄トラフの拡大と九州地方の地殻変動 (2), *地震*, **38**, 1-12.
- 山口道雄, 仁位敏明, 熊野眞佐代, 豊村敬郎, 中山泰三, 山口正広, 古賀浩光, 柿田光一, 山道竜司, 園入京子, 山岸美保 (1993) : 島原温泉と雲仙・普賢岳噴火災害, 長崎県衛生公害研究所, 長崎, 545p.
- 湯原浩三, 瀬野錦蔵 (1969) : 噴気の測定, 「温泉学」, 197-203, 地人書館, 東京.
- 湯原浩三, 江原幸雄, 二子石正雄, 藤光康宏 (1986) : 長崎県小浜温泉の法熱量と湧出機構, *温泉科学*, **37**, 20-31.