

原 著

## 九州中央部の非火山地域に湧出する温泉の炭酸成分の起源

酒井拓哉<sup>1)</sup>, 大沢信二<sup>2)</sup>, 山田 誠<sup>2)</sup>, 三島壮智<sup>2)</sup>,  
吉川 慎<sup>3)</sup>, 鍵山恒臣<sup>3)</sup>, 大上和敏<sup>1)</sup>

(平成 23 年 1 月 7 日受付, 平成 23 年 2 月 23 日受理)

## Origin of Dissolved Inorganic Carbon of Hot Spring Waters Discharged from the Non-volcanic Region of Central Kyusyu, Japan

Takuya SAKAI<sup>1)</sup>, Shinji OHSAWA<sup>2)</sup>, Makoto YAMADA<sup>2)</sup>, Taketoshi MISHIMA<sup>2)</sup>,  
Shin YOSHIKAWA<sup>3)</sup>, Tsuneomi KAGIYAMA<sup>3)</sup> and Kazutoshi OUE<sup>1)</sup>

### Abstract

For elucidation sources of dissolved inorganic carbon (DIC) in hot spring waters discharged from the non-volcanic region between Aso and Kirishima volcanoes of Kyusyu District, Japan, and also in order to search a deep-seated aqueous fluid derived from subducting oceanic plate in the region, we analyzed major chemical components,  $\delta D$  and  $\delta^{18}O$  of water and  $\delta^{13}C$  and concentration of DIC of the hot spring waters. Although water of every hot spring is originated from meteoric water shown by water isotopic data ( $\delta D$  and  $\delta^{18}O$ ), relationships between  $\delta^{13}C$  and concentration of DIC demonstrate that the DIC should be formed by mixing of soil and two kinds of deep-originated  $CO_2$ . This idea is supported by isotopic data of rare gases ( $^3He/^4He$  vs.  $^4He/^{20}Ne$ ) and relation between concentrations of Ca and  $HCO_3$  ions. It is confirmed that the two kinds of deep-originated  $CO_2$  are mantle-derived  $CO_2$  and  $CO_2$  originated from subducted marine carbonate by a calculation of contributions of source carbons of selected hot spring waters. Moreover, we calculated respective contribution ratios of deep-originated  $CO_2$  to DIC of all the hot spring waters on the basis of the linear relation observed between contribution ratios of deep-originated  $CO_2$  and  $\delta^{13}C$  values of DIC of selected hot spring waters, and expressed hot springs showing high contribution ratios ( $\geq 55\%$ ) on a published map showing crustal resistivity structure of this studied area, thereby it appears that hot springs rich in DIC derived from the subducted marine carbon-

<sup>1)</sup>大分大学大学院教育学研究科教科教育専攻理科専修 〒870-1192 大分県大分市大字旦野原 700.

<sup>1)</sup>Graduate School of Education, Oita University, 700 Dannoharu, Oita, Oita 870-1192, Japan.

<sup>2)</sup>京都大学大学院理学研究科附属地球熱学研究施設 〒874-0903 大分県別府市野口原. <sup>2)</sup>Beppu Geothermal Research Laboratory, Institute for Geothermal Sciences, Graduate School of Science, Kyoto University, Noguchibaru, Beppu, Oita 874-0903, Japan.

<sup>3)</sup>京都大学大学院理学研究科附属地球熱学研究施設火山研究センター 〒869-1404 熊本県阿蘇郡南阿蘇村河陽 5280. <sup>3)</sup>Aso Volcanological Laboratory, Institute for Geothermal Sciences, Graduate School of Science, Kyoto University, Minami-Aso, Aso, Kumamoto 869-1404, Japan.

ate are roughly concentrated on low electrical resistivity zone extending NE direction from Kirishima volcano. This result suggests the possibility that an associated aqueous fluid of dehydrated fluid from subducting oceanic plate forms the low electrical resistivity zone. On the other hand, distributions of high contributions of mantle-originated CO<sub>2</sub> of hot spring waters are concentrated in the Hitoyoshi Basin which is thought to be a tectonic basin formed by fault movement, and this result suggests that a passageway for rising of mantle-derived CO<sub>2</sub> must be formed in the crust under this area.

Key words : Central Kyusyu, Non-volcanic region, Dissolved inorganic carbon, Deep-originated CO<sub>2</sub>, Low electrical resistivity zone, Dehydrated fluid from subducting plate, Mantle

## 要 旨

九州地方の阿蘇火山と霧島火山の間の非火山地域に湧出する温泉水の溶存全炭酸 (DIC) の起源の解明ならびにその地域の地下深部に潜在するプレート脱水流体の検知のために、当該地域の温泉水の一般水質、水の安定同位体組成 ( $\delta D$  と  $\delta^{18}O$ )、DIC の濃度と炭素安定同位体比 ( $\delta^{13}C$ ) を測定した。温泉水の安定同位体組成 ( $\delta D$  vs.  $\delta^{18}O$ ) からこれらは天水起源であることが示されたが、DIC の濃度と  $\delta^{13}C$  の関係は、温泉水の DIC には土壌 CO<sub>2</sub> 以外に2つのタイプの深部起源 CO<sub>2</sub> が混入していることを示した。このアイディアは、温泉付随ガスの希ガス同位体組成 ( $^3He/^4He$ ,  $^4He/^20Ne$ ) と Ca イオン濃度と HCO<sub>3</sub> イオン濃度の関係から支持され、セレクトした温泉水の DIC の起源炭素の寄与率の計算から、深部起源 CO<sub>2</sub> の1つはマントル由来の CO<sub>2</sub>、もう1つはプレートの沈み込みにもなって地球内部に持ち込まれた海成炭酸塩起源の CO<sub>2</sub> であることが確認された。さらに、セレクトした温泉水の DIC の  $\delta^{13}C$  と深部起源 CO<sub>2</sub> の寄与率の間にある直線的な関係を用いて、その他の温泉全てについて DIC に占める深部起源 CO<sub>2</sub> の寄与率を算出し、深部起源 CO<sub>2</sub> の寄与率の高い ( $\geq 55\%$ ) 温泉をこの地域の地下比抵抗構造分布図上で見たところ、沈み込み海成炭酸塩起源 CO<sub>2</sub> に富む温泉が霧島火山の北東方向に見られる低比抵抗ゾーン上に集まる傾向があることが認められた。この結果は、プレート脱水流体に関係する熱水流体が低比抵抗ゾーンの形成に関与している可能性を示唆している。一方、マントル起源 CO<sub>2</sub> に富む温泉は構造性盆地だと考えられている人吉盆地内に集中しており、そのエリアにマントル起源ガスを地殻浅部まで上昇させる流体の通路の存在が示唆された。

キーワード：中部九州、非火山地域、溶存全炭酸、深部起源 CO<sub>2</sub>、低比抵抗域、プレート脱水流体、マントル

## 1. はじめに

九州地方のほぼ中央部に位置する阿蘇火山と霧島火山の間の距離は 110 km と他の火山間の間隔よりも広く (九州地方では一般に 30~50 km)、火山が存在しない特異な地域であるとされている (例えば、堀越, 1979; 吉田・瀬野, 1992)。Okubo *et al.* (1989) に表されているキュリー点深度分布図では、当該地域には活発な火山地域に現れるようなキュリー点深度が周辺よりも明らかに浅い領域の存在は認められず、マグマの潜在は無いと思われるが、近年、鍵山・宗包 (2006) は低比抵抗ゾーンの存在を示し、岩石の電気抵抗を低下させる流体が深部から供給されているのではないかと報告している。

地殻 (からマントル上部まで) の比抵抗構造に関する研究は古くから行われてきており、データの蓄積は多いが、低比抵抗ゾーンが熱水変質あるいは熱水そのものによって現れているのかを判別することができず、その実態に迫ることが困難である時代が長く続いた。しかし、近年になって大きな進展があり、岩石物性で用いられる抵抗ネットワークモデルの活用によって地殻における水の

存在量を論じることができるようになる一方で(例えば, 上嶋, 2005), 温泉の地球化学的特徴との比較検討から深部流体の存在について議論されるようになり, 紀伊半島南部で行われた研究(Umeda *et al.*, 2006)ではマントルに沈み込む海洋プレートからの脱水流体が捉えられたとされている。

そのような非火山地域の温泉からプレート脱水流体に迫る研究の中で深部流体の地球化学的指標として多用されているのは, 温泉に付随するガスの希ガス同位体組成 ( $^3\text{He}/^4\text{He}$ ,  $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ ) であり(例えば, Dogan *et al.*, 2006; Sano and Nakajima, 2008), 我々も本地域で先行的に行った研究(Ohsawa *et al.*, 2010)で利用し, マントル成分に富んだHeを溶存させる温泉を人吉盆地内に発見した。また, その研究では溶存全炭酸(dissolved inorganic carbon; DIC)の炭素安定同位体比( $\delta^{13}\text{C}$ )とのマルチ解析も行い, 人吉盆地ではHeのみならずDICもマントル成分に富むことを認め, それとは別にプレート脱水流体に由来すると思われる $\text{CO}_2$ を溶解させた温泉の存在も検知した。

以上のような新たな研究が展開される中, 我々は, 鍵山・宗包(2006)に示されている低比抵抗ゾーンに注目し, 主として地下深部に潜在するプレート脱水流体の検知を目的として, 可能な限り当該地域の多くの温泉から温泉水試料を採取し, 一般水質, 水の安定同位体組成( $\delta\text{D}$  vs.  $\delta^{18}\text{O}$ ), DICの濃度と炭素安定同位体比( $\delta^{13}\text{C}$ )のデータを入手し, それらの地球化学的解析を行った。

## 2. 研究対象地域の地質概要, 試料の採取と化学分析

本調査地域の大部分は, 地形学的には九州山地に属し, 主に中生代の地層から構成されている。その古い時代の地層は, 北から大分—熊本構造線・臼杵—八代構造線間の三波川帯, 臼杵—八代構造線・仏像構造線間の秩父累帯, 仏像構造線以南の四万十累帯に分けられ, 北東—南西方向に配列している(後述のFig. 8)。また, 四万十累帯はさらに延岡—紫尾山構造線によって北帯と南帯に分けられる。秩父累帯にはジュラ紀の付加体堆積物に由来する小規模な石灰岩体が南西から北東方向にかけて分布しているのが特徴である(Fig. 1)。冒頭で述べたように, 新しい火山(第四紀)に乏しい地域であるが, 大分—熊本構造線・臼杵—八代構造線間の地域や秩父累帯, 四万十累帯北帯, 南帯には, 中新世の花崗岩類や火山岩類が点在している(Fig. 1)。

研究対象地域内にある計43ヶ所の温泉(Fig. 1)を調査した。温泉水は全て井戸掘削によって得られたものであり, 自噴しないものは, 温泉AYの一例を除き, 全て水中ポンプによって揚湯されている。現地でも水温とpHの測定を行い, 試料水は, 後述のように分析目的別に異なる容器に採取し, 実験室に持ち帰った。溶存全炭酸( $\text{DIC}=\text{CO}_{2(\text{aq})}+\text{HCO}_3^-+\text{CO}_3^{2-}$ )の化学・同位体分析用の試料水は, 容器壁からの $\text{CO}_2$ 逃散を回避するために, ガスバリア性に優れたニッコー製テクノボトル(BAREX<sup>®</sup>)に採取した。水の安定同位体( $\delta\text{D}$  vs.  $\delta^{18}\text{O}$ )分析用には, 保存中に水の蒸発が起こらないように, ガラスバイアルを使用した。その他の成分の分析用試料水は, 一括して汎用的なポリ瓶に採取した。

$\text{HCO}_3^-$ を除く主要化学成分( $\text{Na}^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ )の分析はイオンクロマトグラフ(DIONEX; イオンクロマトグラフDX-120)で行った。DIC濃度は, 試料水を硫酸酸性にして試料中の炭酸成分をすべて $\text{CO}_{2(\text{aq})}$ に変換し, イオンメーター(東亜電波; IM-1B)に接続した二酸化炭素電極(東亜電波; CE-235)を用いて絶対検量線法により測定した。 $\text{HCO}_3^-$ 濃度はDIC濃度の測定値と水温, pHの値を用いて化学平衡計算から求めた。水の $\delta\text{D}$ と $\delta^{18}\text{O}$ の測定は, 質量分析計を用いて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り行った。DICの炭素安定同位体比( $\delta^{13}\text{C}$ )は, 試料水に $\text{Sr}(\text{OH})_2$ を加え加熱して沈殿した $\text{SrCO}_3$ をろ別し風乾した後, これに濃リン酸を滴下して発生する $\text{CO}_2$ を質量分析計に導入し測定した。なお, 同位体分析

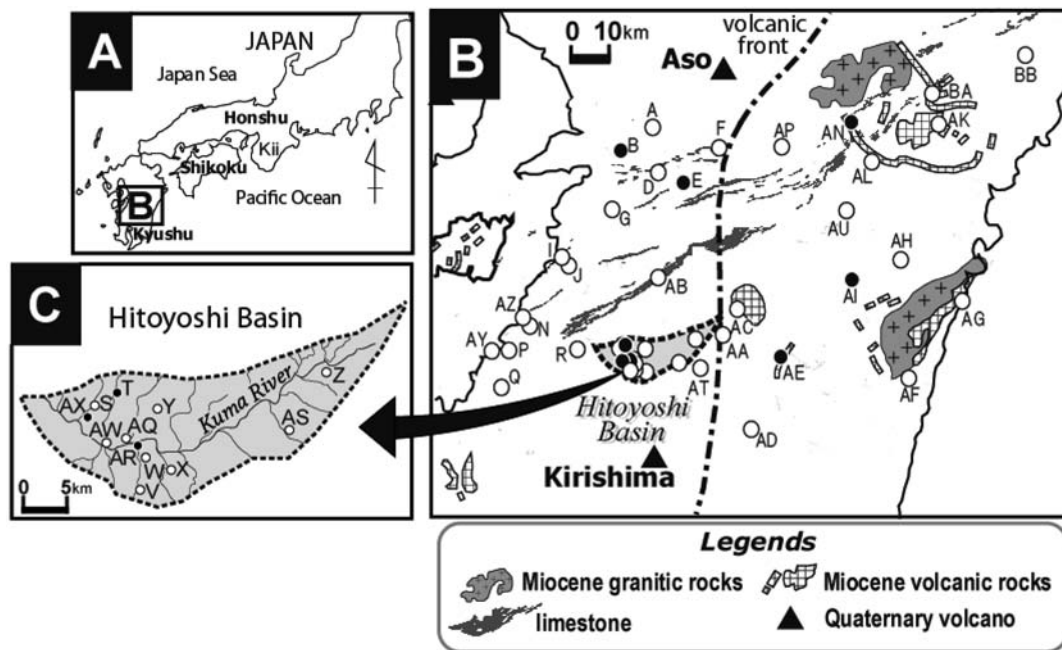


Fig. 1 Maps showing localities of hot springs investigated in this study (○) with related geologic information. Solid circles (●) denote hot springs previously examined in Ohsawa *et al.* (2010). Figures of A and B are partially reproduced from Ohsawa *et al.* (2010) and figure C is originally illustrated for this research paper.

はすべて The Stable Isotope Laboratory, GNS Science Limited 保有の安定同位体質量分析計 (Geo 20-20 model) を用いて行った。以上の分析結果を、水温、pH の測定値とともに Table 1 に示す。

### 3. 結果および考察

#### 3.1 水の同位体組成

試料水の安定同位体データ ( $\delta D \cdot \delta^{18}O$ ) を、天水線 (MWL: meteoric water line;  $\delta D = 8\delta^{18}O + 10$ )、現海水 (modern seawater) の値、安山岩質マグマ性水蒸気 (andesitic magmatic water) がとる同位体比の範囲 (Giggenbach, 1992) とともに、 $\delta D$  vs.  $\delta^{18}O$  図上に表した (Fig. 2)。今回入手した試料水のすべてが概ね天水線上にプロットされており、天水線に沿ったデータポイントの幅広い分布は、同位体比と湧出地標高に認められるおおまかな負の相関関係の存在 (高標高の温泉ほど温泉水の同位体比が低い) から、温泉水の源となる天水の同位体標高効果の現われと見ることが出来る。

このように、水の同位体組成は温泉の水は天水起源であることを明示しており、温泉成分のほとんどは天水が地下を循環する際に水 + 岩石相互作用によって岩石から供給されてきたものと考えられる。しかし、そうだとした場合、天水線からの酸素同位体シフトがほとんどないこと (Fig. 2) から相互作用の場の温度はさほど高くないと予想でき、そのことは、温泉水の陽イオン組成 (Fig. 3) から支持される。すなわち、全ての温泉水のデータポイントは partially equilibrated

Table 1 Localities (latitude, longitude and altitude) and well depths of hot springs, and chemical cited from Ohsawa *et al.* (2010).

No.	Latitude(N)	Longitude(E)	Elevation(m)	Depth of well(m)	Discharge form	Temp(°C)	pH	DIC(mg/L)	Na(mg/L)
A	32° 42' 55"	130° 48' 37"	50	1100	submerged pump	41.2	8.6	250	163
B*	32° 40' 1"	130° 44' 1"	71	996	submerged pump	35.5	9.4	109	64.6
D	32° 37' 25"	130° 49' 21"	83	1000	submerged pump	34.3	9.5	45.0	117
E*	32° 36' 32"	130° 53' 0"	210	1000	self	29.6	9.4	36.0	31.5
F	32° 40' 46"	130° 59' 37"	463	1200	submerged pump	33.3	9.6	38.0	38.2
G	32° 32' 53"	130° 42' 56"	29	1200	submerged pump	24.8	9.2	38.0	77.0
I	32° 25' 58"	130° 34' 31"	2	?	submerged pump	43.6	7.3	105	443
J	32° 25' 3"	130° 37' 2"	51	1200	submerged pump	30.6	8.8	420	250
N	32° 16' 22"	130° 30' 7"	8	120	submerged pump	42.6	7.7	151	195
P	32° 13' 57"	130° 27' 25"	32	950	submerged pump	40.5	7.4	121	122
Q	32° 8' 52"	130° 26' 22"	153	100	submerged pump	52.1	8.3	130	201
R	32° 14' 32"	130° 38' 46"	99	600	self	38.4	9.1	122	115
S	32° 14' 20"	130° 43' 31"	115	420	submerged pump	34.7	8.3	590	466
T*	32° 14' 57"	130° 44' 48"	133	1000	self	37.5	7.7	520	316
V	32° 10' 37"	130° 45' 54"	148	600	submerged pump	39.4	7.7	181	139
W	32° 13' 3"	130° 46' 19"	139	500	submerged pump	47.3	8.4	350	364
X	32° 11' 30"	130° 47' 40"	138	950	submerged pump	41.1	8.3	145	167
Y	32° 14' 12"	130° 46' 57"	173	?	submerged pump	42.8	7.8	400	224
Z	32° 15' 50"	130° 55' 59"	159	1000	submerged pump	18.5	7.6	360	1470
AA	32° 16' 47"	130° 59' 27"	197	?	submerged pump	18.5	7.6	210	250
AB	32° 23' 49"	130° 49' 30"	260	1100	submerged pump	23.0	8.2	175	69.1
AC	32° 19' 18"	131° 2' 28"	345	?	self	35.5	10.2	36.5	46.6
AD	32° 4' 3"	131° 33' 22"	399	1800	submerged pump	27.3	8.3	126	48.0
AE*	32° 13' 25"	131° 9' 49"	221	1400	submerged pump	35.7	8.9	740	392
AF	32° 10' 10"	131° 28' 41"	17	1200	submerged pump	25.2	8.7	68.5	26.6
AG	32° 20' 31"	131° 37' 34"	24	1200	submerged pump	28.3	7.6	43.5	1970
AH	32° 26' 15"	131° 26' 38"	72	1500	submerged pump	22.1	8.5	295	344
AI*	32° 23' 21"	131° 19' 52"	303	1500	submerged pump	38.0	8.9	435	547
AK	32° 38' 55"	131° 23' 28"	97	1674	submerged pump	32.0	8.6	305	205
AL	32° 43' 48"	131° 33' 41"	394	?	submerged pump	27.4	8.7	78.0	70.7
AN*	32° 43' 30"	131° 20' 48"	369	1000	submerged pump	27.8	8.0	105	15.1
AP	32° 40' 41"	131° 12' 31"	574	?	submerged pump	21.5	9.3	134	136
AQ	32° 12' 44"	131° 45' 24"	107	500	submerged pump	43.6	8.2	450	388
AR*	32° 12' 34"	131° 45' 47"	106	?	submerged pump	49.6	8.1	360	289
AS	32° 12' 48"	130° 54' 12"	0	1000	submerged pump	35.3	7.9	700	345
AT	32° 14' 11"	130° 55' 53"	171	50	submerged pump	27.9	6.9	495	346
AU	32° 30' 30"	131° 19' 57"	148	1000	self	19.4	8.5	129	51.6
AW	32° 12' 43"	130° 43' 51"	96	?	submerged pump	45.4	7.7	370	280
AX*	32° 13' 33"	130° 43' 2"	96	400	self	42.3	7.8	560	958
AY	32° 13' 49"	130° 25' 14"	23	157	air lift pump	46.9	7.0	775	466
AZ	32° 4' 21"	130° 28' 47"	2	0	self	45.6	6.8	139	1040
BA	32° 47' 15"	131° 33' 22"	365	0	submerged pump	15.5	8.1	110	52.0
BB	32° 52' 19"	131° 47' 6"	79	250	submerged pump	16.4	7.8	45.0	22.0

\*: Data from Ohsawa *et al.* (2010).

#: Classified according to dominant cation and anion on the basis of mg/L.

n.d.: Not detected.

and isotopic date of hot springs waters with water temperatures. Data marked by asterisks are

K(mg/L)	Mg(mg/L)	Ca(mg/L)	Cl(mg/L)	SO <sub>4</sub> (mg/L)	HCO <sub>3</sub> (mg/L)	$\delta$ D(‰)	$\delta$ <sup>18</sup> O(‰)	$\delta$ <sup>13</sup> C <sub>DIC</sub> (‰)	Water Type <sup>#</sup>
0.5	0.6	8.0	32.9	0.3	337	-57.0	-8.18	-6.82	Na-HCO <sub>3</sub>
0.2	0.1	2.8	1.1	0.4	154	-48.3	-7.11	-13.51	Na-HCO <sub>3</sub>
0.3	0.1	5.8	86.8	1.9	65.8	-53.2	-7.73	-12.54	Na-Cl
0.3	0.1	6.0	5.7	15.8	64.0	-55.2	-8.19	-16.28	Na-HCO <sub>3</sub>
0.3	n.d.	n.d.	15.4	27.1	58.9	-58.0	-8.68	-13.35	Na-HCO <sub>3</sub>
0.4	0.1	15.0	15.0	51.0	74.0	-49.5	-7.27	-20.02	Na-HCO <sub>3</sub>
4.3	3.7	63.0	2.6	14.9	103	-48.8	-7.39	-14.73	Na-HCO <sub>3</sub>
1.1	2.6	4.5	18.6	0.9	532	-53.2	-8.03	-10.62	Na-HCO <sub>3</sub>
2.7	1.0	14.4	203	2.5	185	-46.2	-7.13	-12.49	Na-Cl
4.7	13.3	62.7	3.8	290	118	-49.0	-7.69	-7.72	Na-SO <sub>4</sub>
1.6	0.3	6.6	147	189	173	-49.0	-7.66	-10.85	Na-SO <sub>4</sub>
3.3	1.3	36.7	137	585	178	-51.5	-7.97	-14.47	Na-SO <sub>4</sub>
2.8	1.6	12.8	63.1	109	791	-50.7	-7.68	-10.68	Na-HCO <sub>3</sub>
12.0	44.8	56.0	484	32.5	622	-51.6	-7.63	-9.96	Na-HCO <sub>3</sub>
1.7	11.3	29.3	151	17.5	195	-50.1	-7.55	-13.62	Na-HCO <sub>3</sub>
231	52.0	529	1620	1210	419	-49.2	-7.24	-14.71	Na-Cl
21.6	0.7	9.4	171	n.d.	176	-52.1	-7.7	-19.44	Na-HCO <sub>3</sub>
1.8	2.5	11.2	432	n.d.	474	-52.3	-7.9	-10.95	Na-HCO <sub>3</sub>
13.9	273	8.9	1770	n.d.	4270	-52.0	-7.54	0.66	Na-HCO <sub>3</sub>
6.8	5.3	21.0	2.5	n.d.	250	-51.5	-7.57	-11.27	Na-HCO <sub>3</sub>
0.8	4.3	12.3	2.8	n.d.	212	-53.2	-8.41	-10.66	Na-HCO <sub>3</sub>
0.4	0.1	2.1	10.5	13.8	76.4	-55.7	-8.67	-21.52	Na-HCO <sub>3</sub>
1.9	2.7	10.9	1.9	n.d.	170	-49.3	-7.7	-10.95	Na-HCO <sub>3</sub>
5.7	0.8	6.0	1.6	n.d.	894	-53.9	-8.35	-4.47	Na-HCO <sub>3</sub>
0.7	2.9	14.1	0.2	n.d.	101	-40.0	-6.58	-21.65	Na-HCO <sub>3</sub>
3.6	40.0	261	2820	1770	55.9	-37.9	-6.32	-22.11	Na-Cl
2.2	2.4	15.4	54.0	3.1	715	-50.4	-7.86	-5.22	Na-HCO <sub>3</sub>
3.9	1.1	6.2	115	n.d.	1060	-57.5	-8.76	-3.68	Na-HCO <sub>3</sub>
1.5	0.5	6.4	394	n.d.	372	-51.1	-8.07	-2.03	Na-Cl
0.6	0.2	7.6	232	89.1	114	-54.6	-8.54	-6.43	Na-Cl
0.8	8.6	26.8	20.0	109	144	-57.0	-8.48	-13.29	Na-HCO <sub>3</sub>
0.7	0.9	6.4	12.2	59.8	176	-58.3	-9.08	6.05	Na-HCO <sub>3</sub>
55.3	1.5	12.5	260	1.1	546	-51.2	-7.36	-14.51	Na-HCO <sub>3</sub>
48.7	1.5	12.5	559	321	420	-50.3	-7.54	-13.9	Na-Cl
3.1	6.7	7.0	27.2	n.d.	784	-54.7	-8.15	-8.54	Na-HCO <sub>3</sub>
7.7	13.7	9.6	98.5	n.d.	917	-54.1	-8.23	-4.3	Na-HCO <sub>3</sub>
0.5	3.8	18.0	2.0	3.9	174	-51.6	-7.93	-13.5	Na-HCO <sub>3</sub>
35.8	2.5	12.4	98.6	81.0	427	-50.6	-7.6	-13.39	Na-HCO <sub>3</sub>
7.4	2.2	5.1	297	351	1380	-51.8	-7.68	-9.03	Na-HCO <sub>3</sub>
16.5	15.6	16.7	267	169	647	-48.7	-7.11	-2.26	Na-HCO <sub>3</sub>
22.2	111	263	1740	1780	108	-44.1	-6.72	-9.95	Na-SO <sub>4</sub>
8.0	0.1	8.0	17.0	7.0	99.0	-58.1	-8.8	-5.2	Na-HCO <sub>3</sub>
5.0	1.0	15.0	4.0	9.0	91.0	-46.5	-7.2	-13	Na-HCO <sub>3</sub>

waters (部分平衡) の領域あるいは immature waters (未熟成水) の領域にプロットされ, 地下における推定温度は, K—Mg 温度で平均 60°C, 最高でも 140°C である. ところが, 炭酸成分のように一部あるいは全部がガスに由来することができる成分については, 単純に水-岩石相互作用の産物として片づけることができないため, 慎重になる必要がある. 次節ではこのような観点から分析データを精査する.

### 3.2 炭酸成分の濃度と炭素安定同位体比の関係

Figure 4-(A) は試料水の DIC の濃度と炭素安定同位体比 ( $\delta^{13}\text{C}$ ) の関係を図示したものである. DIC 濃度が高くなると  $\delta^{13}\text{C}$  の値が大きくなる傾向があるように見えるが, 両者の関係は生成機構に則って説明される必要があり, それには大別して 2 つの考え方が基本として存在する. 一つは地下浅所における現象の産物として捉える考え方, もう一つは深部起源の  $\text{CO}_2$  の寄与を想定する考え方であり, それぞれの立場で試料水の DIC の濃度と炭素安定同位体比 ( $\delta^{13}\text{C}$ ) の関係を説明を加えて図示したのが, それぞれ Fig. 4-(B) と Fig. 4-(C) である. ただし, 前述のように, 温泉 AY はエアリフトポンプによる揚湯を行っており, DIC の一部が  $\text{CO}_2$  として脱ガスし, 地表流出以前の濃度や  $\delta^{13}\text{C}$  の値を保持していない可能性が高く, その影響の程度も不明であるため, 以後の議論から除外する.

Fig. 4-(B) は試料水のデータに加えて石灰岩地域の地下水 (大分県の鍾乳洞および周辺地域の地下水: 大沢, 未発表) や石灰岩地域に湧出する温泉 (Mutlu, 2007; Liu *et al.*, 2000) のデータを含めた図である. 試料データポイントの一部は石灰岩地域の地下水や石灰岩地域に湧出する温泉のデータが分布する範囲内にあり, この関係だけでみれば, 石灰岩と水の相互作用, すなわち土壌  $\text{CO}_2$  を溶解した通常の地下水 (土壌水: Soil water) による石灰岩の溶解反応 [ $\text{CaCO}_3 + \text{CO}_2 + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{Ca}^{2+} + 2\text{HCO}_3^-$ ] を経て生成した水として説明することが可能である. また, 範囲外にあるデータポイントの多くについても, 土壌水とのさらなる混合 (図中に両端を矢印とした線分で示した) によって作り出すことも不可能ではない.

大沢 (2001), Ohsawa *et al.* (2002), 山田ら (2005), 網田ら (2005) や Yamada *et al.* (2011) は, 地下水や温泉水の DIC の成り立ちを土壌水への深部起源  $\text{CO}_2$  の混入によって説明しており, Fig. 4-(C) は彼らの解析方法を用いて試料データポイントを説明したものである. 図中に表された 3 本の曲線は, いずれも, 土壌水とそれより高い同位体比をもつ深部起源  $\text{CO}_2$  の段階的混合の結果で生じる DIC の濃度と  $\delta^{13}\text{C}$  値の関係を示す混合線である. 3 本の混合線は, 山田ら (2005) に倣って, 試料水のデータポイントに最も良くフィットするように引いたものであるが, そのうち上 2 本は高濃度側で同じ  $\delta^{13}\text{C}$  値 (約 -1‰) に収束し, 深部起源  $\text{CO}_2$  としては共通のものが想定される. そのような共通の深部起源  $\text{CO}_2$  を端成分にもつそれら 2 つの混合線の間に挟まれる領域に分布するデータポイントは, 一定の高い  $\delta^{13}\text{C}$  値をもつ深部起源  $\text{CO}_2$  が様々な DIC 濃度をもつ土壌水と混合してできたものとして統一的に説明できる (大沢ら, 2002). そのため, ひとつの混合系列に属すると考えてよく, 最も下側の混合線に沿う一群の温泉水を説明する混合関係を含め, 大別して 2 つの混合系列 (mixing a, mixing b) が認められる. なお, どの混合系列からも大きくはずれるデータポイント AP は, 温泉水湧出時に  $\text{CO}_2$  の脱ガスが起こり, DIC の濃度の減少と  $\text{CO}_2$ —DIC 間の同位体分別による  $\delta^{13}\text{C}$  値の増加を被った水として説明できる.

以上のように, 試料水の DIC の濃度と炭素安定同位体比 ( $\delta^{13}\text{C}$ ) の関係は, 生成機構に則って 2 通りの説明が可能であるが, それだけからはどちらが妥当であるかを結論づけることは容易ではない. この点が, DIC の炭素安定同位体地球化学的研究が提供する情報の不確実性の理由とされているが, 他の情報を組み合わせて見ることで, 妥当性の判定が可能となり, ここでは溶存希ガスの

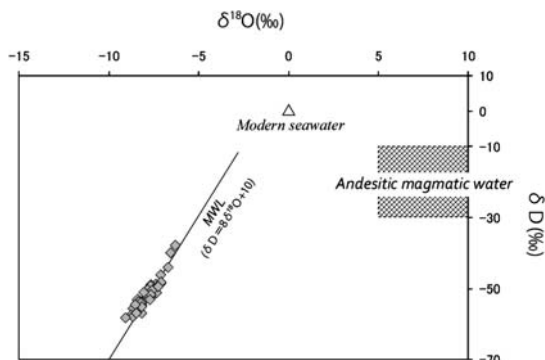


Fig. 2  $\delta D$  vs.  $\delta^{18}O$  plots of hot spring waters with modern seawater, range of andesitic magmatic water (Giggenbach, 1992). Solid line labeled with MWL expresses meteoric water line :  $\delta D = 8 \times \delta^{18}O + 10$ .

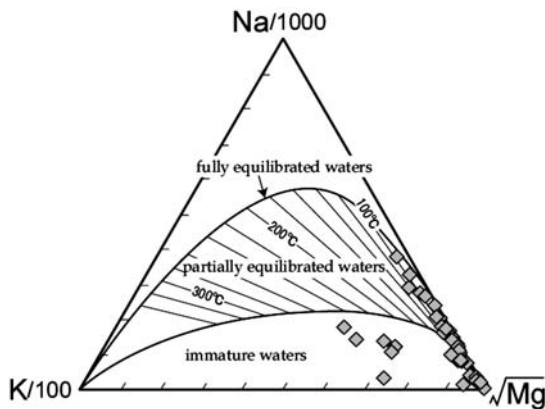


Fig. 3 Na-K-Mg diagram (after Giggenbach, 1988) for hot spring water samples.

に引かれた直線は、 $Ca^{2+}$  と  $HCO_3^-$  のモル濃度比が 1 : 2 の関係となる直線であり、石灰岩地域の地下水と温泉水のデータはほぼこの直線に沿った分布をしており、土壌  $CO_2$  を溶解した地下水による石灰岩の溶解反応  $[CaCO_3 + CO_2 + H_2O \rightarrow Ca^{2+} + 2HCO_3^-]$  で生成した水であることを表わしている。一方、本研究で用いた試料水の  $Ca^{2+}$  と  $HCO_3^-$  の関係はこの 1 : 2 の関係から明らかにずれており、石灰岩と水の相互作用からだけの産物ではなく、別の要因も考えなければならないことを示しており、これもまた、試料水の DIC の濃度と炭素安定同位体比 ( $\delta^{13}C$ ) の関係の妥当な解釈としては、土壌水と深部起源  $CO_2$  の混合であることを支持していると言えよう。なお、試料水の大部分が  $Ca^{2+} : HCO_3^- = 1 : 2$  で表される濃度関係よりも  $HCO_3^-$  に富む一方で、逆に  $Ca^{2+}$  に富むものもあるが (試料 W, AG, AZ)、それらは他の温泉よりも比較的高塩分であり、アルカリ元素、 $Cl^-$  や  $SO_4^{2-}$  に富むものであることから (Table 1)、その形成に際しては、海水や古海水の混入が想像される。

同位体データとの対比、溶存化学成分の分析データの検討の 2 つの例を提示することにする。まず、溶存希ガスの同位体データとの対比であるが、Fig. 4 中でデータポイントを黒く塗りつぶして表わした 8 つの温泉は Ohsawa *et al.* (2010) において He 同位体とのマルチ解析が施されたものであり、そのうち試料 AE, AI, AX, T, AR には深部起源  $CO_2$  の混入が認められている (AE と AI はプレートの沈み込みにともなって地球内部に持ち込まれた海成炭酸塩に由来する  $CO_2$  を含み、AR, T, AX はマントル起源  $CO_2$  に富む)。もし、どの温泉水も石灰岩と土壌  $CO_2$  を溶解させた地下水の反応で生成したものならば、それら温泉水の DIC は全てが、試料 B, AN, E のように (Ohsawa *et al.*, 2010 の Fig. 3 を参照)、土壌  $CO_2$  に富んだものになるはずであり、水-岩石相互作用説を支持しない。次に、その他の溶存化学成分の分析データを検討すると判ることであるが、初めての提示であるので、改めて次節 (3.3) に示す。

### 3.3 Ca イオン濃度と $HCO_3^-$ イオン濃度の関係

Figure 5 は、試料水の  $Ca^{2+}$  濃度と  $HCO_3^-$  濃度の関係をモル濃度単位で表わしたものであり、同図には DIC の濃度と炭素安定同位体比 ( $\delta^{13}C$ ) の関係図 (Fig. 4-(A)) にも参照データとして表わした石灰岩地域の地下水と温泉水のデータもプロットしてある。図中



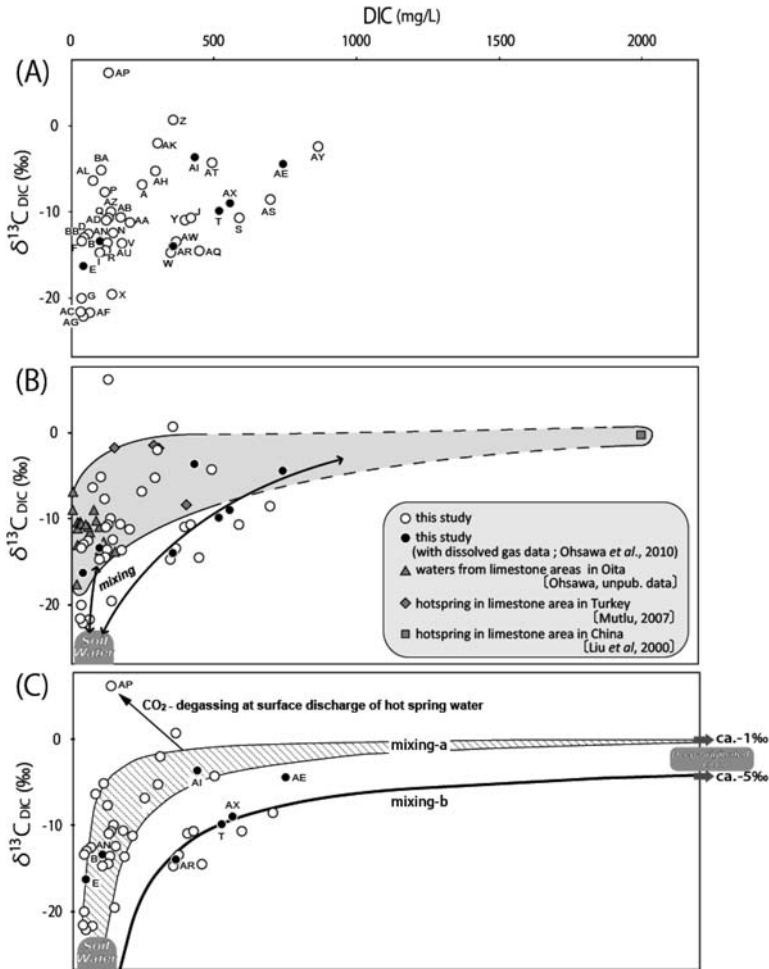


Fig. 4 Plots of concentration and  $\delta^{13}\text{C}$  values of dissolved inorganic carbon (DIC) of sample waters. (A) raw data, (B) explanation by a model of water-rock interaction (dissolution of  $\text{CaCO}_3$  by soil water) with data of groundwaters from limestone areas in Oita Prefecture (Ohsawa unpublished data) and hot spring waters discharged from limestone bed rocks (Mutlu, 2007 ; Liu *et al.*, 2000), and (C) explanation by a mixing model of deep-originated  $\text{CO}_2$  into shallow groundwater formed from soil water (see text in detail).

### 3.4 深部起源 $\text{CO}_2$ の由来

前節までの解析において、対象地域の温泉の水は天水起源であるが、溶存全炭酸 (DIC) はその起源として土壌  $\text{CO}_2$  以外に深部起源  $\text{CO}_2$  に由来する部分があることが示された。そこで、本節では、深部起源  $\text{CO}_2$  の由来の解明を主な目的として考察を加えることにする。

Figure 4-(C) に表わされた混合系列のうち、混合系列 a の深部起源  $\text{CO}_2$  がもつ  $\delta^{13}\text{C}$  値の予想値は、前述したように、 $-1\%$ 程度であり、それと同様な外挿によって、混合系列 b の深部起源  $\text{CO}_2$  のそれはおよそ  $-5\%$ であると予想できる。前者は海成炭酸塩の  $\delta^{13}\text{C}$  値 ( $0\%$ ; Hoefs, 1987) に、後者はマンタルのそれ ( $-4.5\%$ ; Cartigny *et al.*, 2001) に近い値であることから、各混合系列の深部起源  $\text{CO}_2$  はそれぞれに由来することが示唆される。そこで、この点についてももう少し深く考察を加えて、起源  $\text{CO}_2$  の由来を確定させてみる。

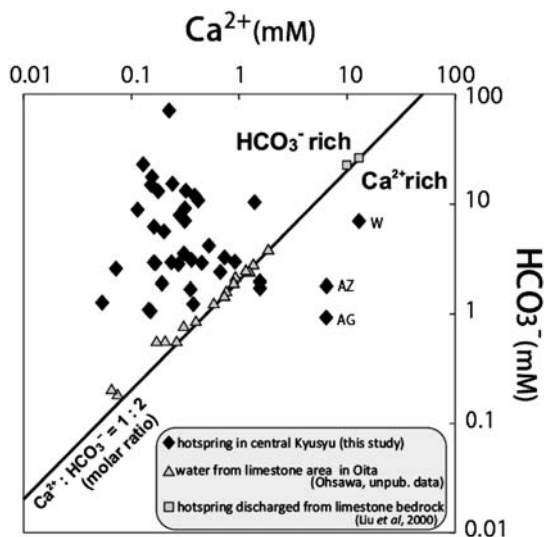


Fig. 5 Relationship between concentrations of  $\text{Ca}^{2+}$  and  $\text{HCO}_3^-$  of sample waters (◆) with groundwaters distributed in limestone areas (△) and hot spring waters discharged from limestone bed rock (□).

Ohsawa *et al.* (2010) は、前にも述べたように、溶存希ガス同位体データが取得できた 8ヶ所 (T, AR, AX, AI, AE, AN, B, E) の温泉水の  $\text{C}/^3\text{He}$  比と  $\delta^{13}\text{C}$  の関係の図的解析から DIC の炭素の起源推定を行い、AR, T, AX はマントル起源炭素に、B, AN, E は土壌  $\text{CO}_2$  に、AE と AI はプレートの沈み込みにともなって地球内部に持ち込まれた海成炭酸塩に起源する炭素に (以後、沈み込み海成炭酸塩起源炭素と短縮して表記する) それぞれ富んでいるという結果を得ている。その解析は質量および同位体の保存則を前提とした混合関係の解析であるので、Sano and Marty (1995) に準じ、下式を用いて起源炭素の混合率の推算を行うことができる。

$$\delta^{13}\text{C}_S = \delta^{13}\text{C}_M \cdot M + \delta^{13}\text{C}_C \cdot C + \delta^{13}\text{C}_O \cdot O \quad [1]$$

$$1/(\text{CO}_2/^3\text{He})_S = 1/(\text{CO}_2/^3\text{He})_M \cdot M + 1/(\text{CO}_2/^3\text{He})_C \cdot C + 1/(\text{CO}_2/^3\text{He})_O \cdot O \quad [2]$$

$$M + C + O = 1 \quad [3]$$

ここに、S, M, C, O はそれぞれ試料、マントル、沈み込み海成炭酸塩、土壌  $\text{CO}_2$  を表わし、大文字はそれらの混合率を、添字をもってそれぞれの  $\delta^{13}\text{C}$  値と  $\text{CO}_2/^3\text{He}$  比を表わす。それぞれのパラメータに、Sano and Marty (1995), Nishio *et al.* (1998), Deines (2002) に表記してあるマントル起源炭素、海成炭酸塩、堆積性有機物の値の平均値を代入して、起源炭素の混合率 M, C, O を計算し (Table 2), 視覚的にわかりやすいように、その混合率を三角図として表した (Fig. 6)。また、同図には霧島火山と阿蘇火山の噴気ガスのデータ (佐藤ら, 1999; NEDO, 1989) から求めた沈み込み帯の火山性  $\text{CO}_2$  に関する起源炭素の混合率計算結果も合わせて表示した。

Figure 6 から、混合系列 a に属する試料 AE, AI, AN, B, E の DIC はマントル起源炭素の寄与がほとんど無く、沈み込み海成炭酸塩起源炭素と土壌  $\text{CO}_2$  の混合によるものだということがよくわかる。その中でも AE と AI は沈み込み海成炭酸塩起源炭素の占める割合が大きく、沈み込み帯の火山性  $\text{CO}_2$  (霧島火山や阿蘇火山の噴気ガス) に近い混合関係にあることを示す。一方、混合系列 b の AX, AR, T の DIC は混合系列 a とは明らかに異なり、マントル起源炭素の寄与が大きい。

Figure 6 を参照しながら Fig. 4-(C) の該当する温泉のデータポイントを見てみると、深部起源の  $\text{CO}_2$  としてマントル起源炭素が予想された AX, AR, T は混合系列 b に、AE, AI, AN, B, E は土壌  $\text{CO}_2$  に沈み込み海成炭酸塩起源  $\text{CO}_2$  が混入する混合系列 a に属し、このうち AE と AI は AN, B, E より沈み込み海成炭酸塩起源炭素に富むという関係も現われていることがわかる。このことは、深部起源  $\text{CO}_2$  の由来や土壌  $\text{CO}_2$  との混合関係についての予想が確からしいことを示していると言ってよいであろう。

Table 2 Estimated result of contributions of sources carbon in dissolved inorganic carbon (DIC) of the selected hot springs waters following the calculation method presented by Sano and Marty (1995) using data in Ohsawa *et al.* (2010).

Mixing series	Sample No.	Carbon source (%)			Deep-originated CO <sub>2</sub> (%) (Mantle + Carbonate)
		Mantle	Carbonate	Organic	
a	AN	0.1	51	49	51
	B	0.1	50	50	50
	E	1	39	60	40
	AI	0.3	86	14	86
	AE	0.5	83	16	84
b	T	47	25	28	72
	AR	37	18	45	55
	AX	not calculated but almost mantle origin			—

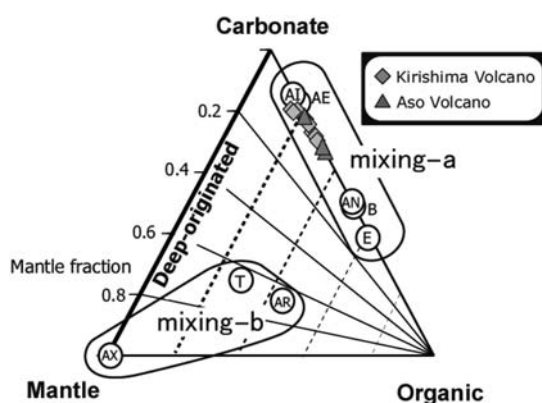


Fig. 6 Ternary diagram showing calculation results of the contribution of source carbons listed in Table 2, together with those of subduction-related fumarolic gases from Aso and Kirishima volcanoes. For mixings a and b, see Fig. 3-(C) and text.

### 3.5 炭素同位体比 ( $\delta^{13}\text{C}$ ) のみからの深部起源 CO<sub>2</sub> の寄与率の見積り

上述の DIC の濃度と  $\delta^{13}\text{C}$  の関係図に見られる起源炭素の混合関係と、 $\delta^{13}\text{C}$  値と CO<sub>2</sub>/<sup>3</sup>He 比を用いた DIC の起源炭素の混合率の計算結果の整合性は、通常では考えられない DIC の  $\delta^{13}\text{C}$  値から起源炭素の寄与率を推定する術を提供する。ここでは、その方法を提示し、それを用いて前述の 8 つの温泉以外の温泉の DIC に占める深部起源 CO<sub>2</sub> の寄与率を算出し、さらに次節での考察に利用することにする。Table 2 に表わした混合系列 a, b に属する温泉の起源炭素の寄与率のうち、マントル起源炭素 (Mantle) と沈み込み海成炭酸塩起源炭素 (Carbonate) のそれを合したものを深部起源 CO<sub>2</sub> の寄与率とし、 $\delta^{13}\text{C}$  値との相関関係を見た (Fig. 7)。そうしたところ、

混合系列 a では、 $R^2=0.999$  という極めて高い相関性のあることが認められた。この関係を用いれば、溶存希ガスの同位体データがなくても、DIC の  $\delta^{13}\text{C}$  値のみから深部起源炭素の寄与率を推定することが可能であり、その関係式を使って混合系列 a に属するその他の温泉の深部起源 CO<sub>2</sub> の寄与率を見積もった結果を Table 3 に示した。試料 AX についての起源炭素の混合率が計算できなかったため、混合系列 b については深部起源炭素の寄与率と  $\delta^{13}\text{C}$  値の相関性の検証はできなかったが、混合系列 a と同様に直線的な関係にあると考えて関係式を試料 T と試料 AR のデータポイントを結ぶ直線として求め、その関係式を使って混合系列 b に属するその他の温泉の深部起源 CO<sub>2</sub> の寄与率を見積もった (Table 3)。ただし、試料 Z は、DIC の  $\delta^{13}\text{C}$  値が計算式にのらないため、寄与率の値を求めることができなかった。

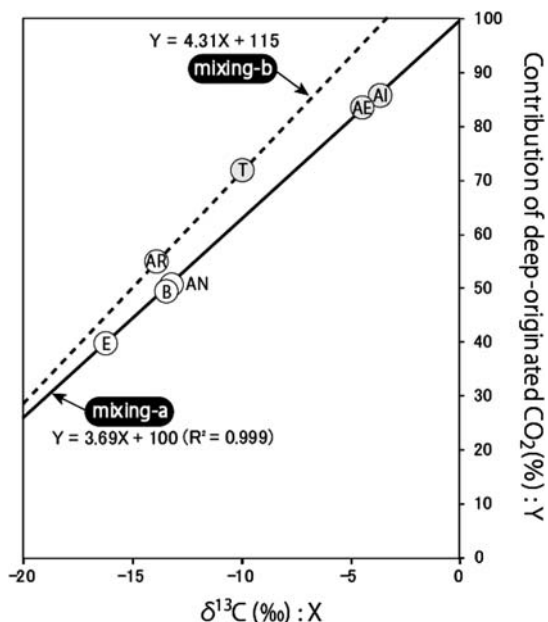


Fig. 7 Linear relationships between  $\delta^{13}\text{C}$  values of dissolved inorganic carbon (DIC) and contribution of deep-originated  $\text{CO}_2$  of the selected hot spring waters sampled in Ohsawa *et al.* (2010). See text for mixings a and b.

### 3.6 深部起源 $\text{CO}_2$ に富む温泉の地理的分布

前節の解析で、DIC に占める深部起源  $\text{CO}_2$  の寄与率を見積もることができたので、寄与率の高い温泉の地理的分布に着目してみた。ある程度恣意的にならざるを得ない寄与率の高い低い判断基準は最も単純に考えると  $> 50\%$  となろうが、 $50\%$  という値は見方によっては寄与率の低い中で最も高いものとも取れ、この値に設定すると本質的でない議論を呼んでしまいそうに思える。そこで、それを回避するための便法として、 $50\%$  よりやや高目の  $55\%$  を閾値とすることにした。

混合系列毎に深部起源  $\text{CO}_2$  の寄与率が高い温泉、深部起源  $\text{CO}_2$  の寄与が低い温泉に区別して、鍵山・宗包 (2006) の深さ  $10\sim 30\text{ km}$  における比抵抗分布図上に示したのが Fig. 8 の (a) である。ここで最初に目を引く特徴は、混合系列 a に属する沈み込み海成炭酸塩起源  $\text{CO}_2$  の寄与の大きい温泉が北東—南西方向に帯状に並ぶ傾向であり、霧島火山の北東方向にある低比抵抗ゾーン ( $< 70\ \Omega \cdot \text{m}$ ) との

大まかな一致がみられることである。沈み込み海成炭酸塩起源  $\text{CO}_2$  の発生は沈み込む海洋プレートの脱水に伴うとするのが妥当な見方であるので、両者の一致はその低比抵抗ゾーンの形成に地下に潜在するプレート脱水流体が関与している可能性を示唆するものであると思われる。なお、温泉 AK, BA, BB が位置するエリアは比抵抗の調査の範囲外であるが、沈み込み海成炭酸塩起源  $\text{CO}_2$  の寄与の高い温泉 BA と AK の存在は低比抵抗ゾーンがこのエリアまで伸びている可能性があることを示していると見ることができよう。そして、この北東方向の先には大分平野があり、そこに湧出する温泉の深部起源水がプレート脱水流体であると示唆されていること (網田ら, 2005) は興味深く、そのエリアでの比抵抗構造探査の実施が望まれる。

以上のように、沈み込み海成炭酸塩起源  $\text{CO}_2$  の寄与の高い温泉の稠密域の地下にはプレート脱水流体の上昇域が存在する可能性の高いことが示されたが、Fig. 8 の (b) を見ると、その方向が現在のフィリピン海プレートの沈み込み等深度線の方とは一致していない。鎌田 (2002) によると、フィリピン海プレートの沈み込み方向は北北西方向から  $2\sim 1.5\text{ Ma}$  頃に現在の西北西方向に転換したとされており、沈み込み方向転換以前に、沈み込むフィリピン海プレートから脱水した流体が地殻まで上昇してきて低比抵抗ゾーンを形成しているとすれば、稠密域の配置が現在のフィリピン海プレートの沈み込み等深度線の方よりやや東に傾いた配置となるのは一応納得できる。

Figure 8 の (a) で次に目を引く特徴は、混合系列 b に属するマントル起源  $\text{CO}_2$  の寄与の大きい温泉のほとんどが、人吉盆地内に集中していることである。比抵抗分布図だけを頼りに人吉盆地の温泉を見ると霧島火山の強い低比抵抗ゾーンの北側辺縁部に位置することから、霧島火山のマグマ熱水系から派生したものとも見られるが、その見方は的を得ないことを本研究の結果は示している。人吉盆地は断層運動によって相対的に落ち込んできた構造盆地だと考えられており (千田,

Table 3 Estimated contributions of deep-originated carbons (for mixing series a, CO<sub>2</sub> mostly derived from subducting oceanic plate ; mantle CO<sub>2</sub> for mixing series b) on dissolved inorganic carbon (DIC) of all the hot spring waters.

Sample No.	$\delta^{13}\text{C}$ (‰)	Contribution of deep-originated CO <sub>2</sub> (%)		Sample No.	$\delta^{13}\text{C}$ (‰)	Contribution of deep-originated CO <sub>2</sub> (%)	
		mixing a	mixing b			mixing a	mixing b
A	-6.82	75		AC	-21.52	21	
B	-13.51	50		AD	-10.95	60	
D	-12.54	54		AE	-4.47	84	
E	-16.28	40		AF	-21.65	20	
F	-13.35	51		AG	-22.11	18	
G	-20.02	26		AH	-5.22	81	
I	-14.73	46		AI	-3.68	86	
J	-10.62		69	AK	-2.03	93	
N	-12.49	54		AL	-6.43	76	
P	-7.72	72		AN	-13.29	51	
Q	-10.85	60		AQ	-14.51		52
R	-14.47	47		AR	-13.90		55
S	-10.68		69	AS	-8.54		78
T	-9.96		72	AT	-4.30	84	
V	-13.62	50		AU	-13.50	50	
W	-14.71		51	AW	-13.39		57
X	-19.44	28		AX	-9.03		76
Y	-10.95		68	AZ	-9.95	63	
Z	0.66	cannot be calculated		BA	-5.20	81	
AA	-11.27	58		BB	-13.00	52	
AB	-10.66	61					

2000; 山路ら, 2003), そのエリアにマントル起源 CO<sub>2</sub> を地殻浅部まで上昇させる何らかの流体の通路が形成されていることを示唆しているものとする。なお, マントル起源 CO<sub>2</sub> の寄与の大きい温泉 J が孤立して存在する理由について熟考することは難しいが, 白杵—八代構造線に沿うことから, そのような大きな地質構造線の関与も考えられ, 地質構造線が CO<sub>2</sub> を含む深部起源のガスや熱水流体を地表付近にまで上昇させてくる経路の 1 つとして注目すべきものであるということを暗示している。

霧島火山の影響を受けた深部起源 CO<sub>2</sub> の寄与の大きい温泉には, むしろ, 沈み込み海成炭酸塩起源 CO<sub>2</sub> の混合系列に属する温泉 P, Q が該当するものと考えられる。しかし, これらの温泉の湧出地域自体には鮮新世火山岩類が分布し, 鮮新世から更新世にかけての火山活動に伴う浅熱水金鉱床の分布域 (渡辺, 2004) の北限域の際にも当たるため, そのようなやや古い時代の火山活動のなごりとしての CO<sub>2</sub> が関与している可能性もありうる。

#### 4. おわりに

阿蘇火山と霧島火山の間にある非火山地域において, 低比抵抗ゾーンを形成する深部流体を検出し, その素性を知るために, 可能な限り多くの温泉から温泉水を採取し, 一般水質, 水の安定同位体組成, DIC 濃度, 炭素安定同位体比の測定を実施し, それらの地球化学的データ解析を行った

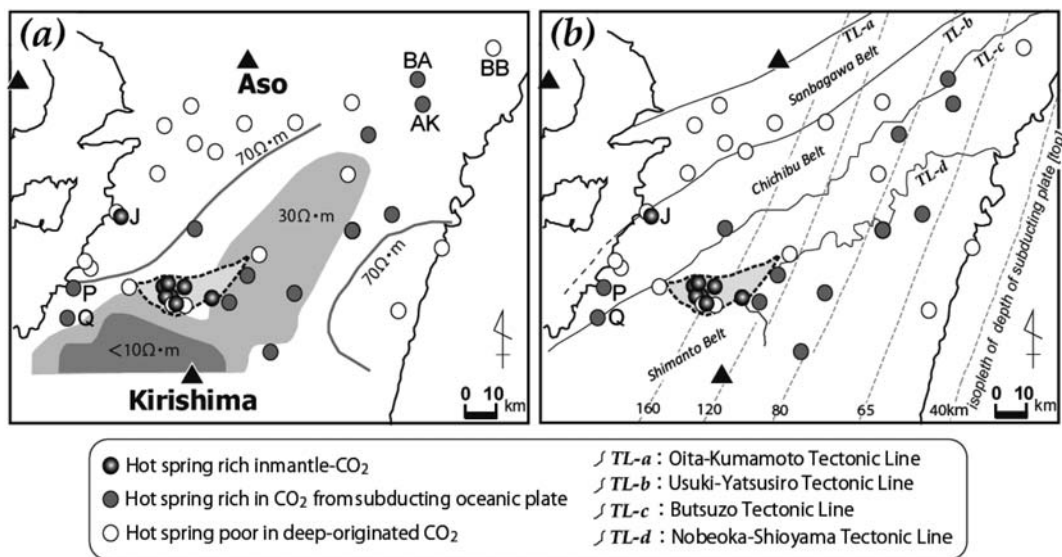


Fig. 8 Geographical distribution of hot springs showing high contributions of deep-originated  $CO_2$  overlaid on maps showing (a) resistivity distribution in 10-30 km depth illustrated by Kagiya and Munekane (2006) and (b) major tectonic lines and isopleth of depth of subducting Philippine-sea plate.

ところ、以下のことがらが明らかとなった。

- ・ 温泉水の水自体は天水起源であるが、DICとして深部起源  $CO_2$  の寄与が著しい温泉を複数認めた。
- ・ 深部起源  $CO_2$  には起源の異なる2種類の起源  $CO_2$  が存在することが示され、1つはマントル由来であり、もう1つはプレートの沈み込みにともなって地球内部に持ち込まれた海成炭酸塩由来に由来すると推定された。
- ・ 沈み込み海成炭酸塩起源  $CO_2$  に富む温泉の分布と、鍵山・宗包(2006)に示されている霧島火山の北東方向に見られる深さ10~30 kmに存在する低比抵抗ゾーンが大まかに一致し、この低比抵抗ゾーンの形成にプレート脱水流体が関与している可能性が示唆された。
- ・ マントル起源  $CO_2$  に富む温泉は構造盆地だと考えられている人吉盆地内に集中しており、そのエリアにマントル起源ガスを地殻浅部まで上昇させる流体の通路の存在が示唆された。

本研究を実施することで上記のような様々な知見を得ることができた。それらは、当該地域で今後行われる様々な分野の研究の中で束縛条件として利用されるものと信じるが、そのこと以外に、温泉水のDICの炭素安定同位体地球化学的研究が単独で提供できる情報の不確実性は、希ガス同位体データを取り込んだマルチ解析へ持ち込まれることで大きく解消され、研究の意義が上がるということを示すことができたと考える。これは決して本研究で初めて提示されるものでないが、研究のスタンスが強くDIC側であって、希ガス側あるいは両者均等というこれまでの研究とは一線を画していると思う。全ての試料について希ガスデータが取得できなくても、試料をうまく選択すれば、DICの炭素安定同位体データを主体とし、希ガスデータでそれを補強する形でデータ解析が行え、十分な考察や議論が行えるということである。そのような意味で、本研究が、他の地域の温泉のDICの炭素安定同位体地球化学的研究に対していくらかでも参考となれば幸いである。

## 謝 辞

同位体測定はニュージーランド地質核科学研究所の安定同位体研究室 (The stable isotope Laboratory, GNS Science Limited) に便宜をはかっていただいた。また、現地調査に際しては温泉所有者のご理解とご協力を賜った。本研究の費用の一部には、独立行政法人日本学術振興会科学研究費補助金基盤研究 (B) (一般), 研究課題番号: 19310116 (研究代表者: 鍵山恒臣) を用いた。ここに記して感謝いたします。

## 引用文献

- 網田和宏, 大沢信二, 杜 建国, 山田 誠 (2005): 大分平野の深部に賦存される有馬型熱水の起源. 温泉科学, **55**, 64-77.
- Cartigny, P., Harris, J. and Javoy, M. (2001): Diamond genesis, mantle fractionations and mantle nitrogen content: a study of  $\delta^{13}\text{C}$ -N concentrations in diamonds. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **185**, 85-98.
- Deines, P. (2002): The carbon isotope geochemistry of mantle xenoliths. *Earth-Sci. Rev.*, **58**, 247-278.
- Dogan, T., Sumino, H., Nagao, K. and Notsu, K. (2006): Release of mantle helium from forearc region of the Southwest Japan arc. *Chem. Geol.*, **233**, 235-248.
- Giggenbach, W.F. (1988): Geothermal solute equilibria. Derivation of Na-K-Mg-Ca geothermometers. *Geochim. Cosmochim. Acta.*, **52**, 2749-2765.
- 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.
- Hoefs, J. (1987): *Stable Isotope Geochemistry*, 3rd. edition, 241 p., Springer-Verlag, Berlin.
- 堀越 叡 (1979): 第四紀火山分布と黒瀬川帯の下部構造. *地質雑誌*, **85**, 427-434.
- 鍵山恒臣, 宗包浩志 (2006): 九州火山地域・非火山地域の比抵抗構造. *月刊地球*, **28** (2), 110-114.
- 鎌田浩毅 (2002): フィリピン海プレート北縁部に見られる広域テクトニクスの転換. 京都大学防災研究所研究集会 13K-7 報告書, 10-22.
- Liu, Z., Yuan, D., He, S., Zhang, M. and Zhang, J. (2000): Geochemical features of the geothermal  $\text{CO}_2$ -water-carbonate rock system and analysis on its  $\text{CO}_2$  sources—Examples from Huanglong Ravine and Kangding, Sichuan, and Xiage, Zhongdian, Yunnan. *Science in China*, **43**, 569-576.
- Mutlu, H. (2007): Constraints on the origin of the Balıkesir thermal waters (Turkey) from stable isotope ( $\delta^{18}\text{O}$ ,  $\delta\text{D}$ ,  $\delta^{13}\text{C}$ ,  $\delta^{34}\text{S}$ ) and major-trace element compositions. *Turkish J. Earth Sci.*, **16**, 13-32.
- NEDO (1989): 「昭和 63 年度全国地熱資源総合調査 (第 3 次) 広域熱水流動系調査 阿蘇地域 流体地化学調査報告書要旨」, **9**.
- Nishio, T., Sasaki, S., Gamo, T., Hiyagon, H. and Sano, Y. (1998): Carbon and helium isotope systematics of North Fiji Basin basalt glasses: carbon geochemical cycle in the subduction zone. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **154**, 127-138.
- 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.
- 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): evi-

- dence from chemical and stable carbon isotope compositions of dissolved inorganic carbon. *Limnology*, **3**, 169-173.
- Ohsawa, S., Sakai, T., Yamada, M., Mishima, T., Yoshikawa, S. and Kagiya, T. (2010) : Dissolved inorganic carbon extremely rich in mantle component of hot spring waters from the Hitoyoshi Basin located in a non-volcanic region of central Kyushu, Japan. *J. Hot Spring Sci.*, **60**, in press.
- Okubo, Y., Thu H., Ogawa, K. (1989) : Estimation of Curie point temperature and geothermal structure of island arcs of Japan. *Tectonophysics*, **159**, 279-290.
- Sano, Y. and Marty, B. (1995) : Origin of carbon in fumarolic gas from island arcs. *Chem. Geol.*, **119**, 265-274.
- Sano, Y. and Nakajima, J. (2008) : Geographical distribution of  $^3\text{He}/^4\text{He}$  ratios and seismic tomography in Japan. *Geochem. J.*, **42**, 51-60.
- 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.
- 千田 昇 (2000) : 人吉盆地の活断層. *活断層研究*, **19**, 87-90.
- 上嶋 誠 (2005) : 電気伝導度構造から探る地殻の水の存在. *地質雑誌*, **114**, 862-870.
- Umeda, K., Ogawa, Y., Asamori K. and Oikawa, T. (2006) : Aqueous fluids derived from a subducting slab : Observed high  $^3\text{He}$  emanation and conductive anomaly in a non-volcanic region, Kii Peninsula southwest Japan. *J. Volcanol. Geotherm. Res.*, **149**, 47-61.
- 渡辺 寧 (2004) : 生きている九州—浅熱水性金鉱床生成区の変遷. *地質ニュース*, **599**, 31-39.
- 山路 敦, 長谷義隆, 鳥井真之 (2003) : 上部鮮新統人吉層の小断層による古応力推定と南九州における鉱脈鉱床形成期の地殻応力. *資源地質*, **53**, 217-225.
- 山田 誠, 網田和宏, 大沢信二 (2005) : 同位体水文学的手法による九重火山南東麓に湧出する炭酸泉の形成機構の解明. *温泉科学*, **54**, 4, 163-172.
- Yamada, M., Ohsawa, S., Kazahaya, K., Yasuhara, M., Takahashi, H., Amita, K., Mawatari, H. and Yoshikawa, S. (2011) : Mixing of magmatic  $\text{CO}_2$  into volcano groundwater flow at Aso volcano assessed combining carbon and water stable isotopes. *J. Geochem. Explor.*, **108**, 81-87.
- 吉田朋夫, 瀬野徹三 (1992) : 阿蘇火山の地学的成因. *火山*, **37**, 6, 297-301.