

原 著

## 箱根カルデラ西部の湖尻・芦ノ湖地区の温泉水に 溶存している炭酸成分の起源に関する一考察

代田 寧<sup>1)</sup>, 大場 武<sup>2)</sup>, 菊川城司<sup>1)</sup>, 板寺一洋<sup>1)</sup>

(平成 23 年 6 月 29 日受付, 平成 23 年 8 月 24 日受理)

### A Study on the Origin of Dissolved Inorganic Carbon in Hot Spring Waters at Kojiri and Ashinoko Areas in Western Hakone Caldera, Central Japan

Yasushi DAITA<sup>1)</sup>, Takeshi OHBA<sup>2)</sup>, George KIKUGAWA<sup>1)</sup> and Kazuhiro ITADERA<sup>1)</sup>

#### Abstract

Measurements of  $\delta^{13}\text{C}$ ,  $\delta^{18}\text{O}$  and  $\delta\text{D}$ , and concentrations of major chemical components were carried out in five hot spring waters at Kojiri and Ashinoko areas in western Hakone caldera. The values of  $\delta^{18}\text{O}$ ,  $\delta\text{D}$  and d-excess and the fact that  $\delta^{13}\text{C}$  is nearly the same as that of the volcanic  $\text{CO}_2$  gases ejected at Owakidani geothermal area indicated incorporation of volcanic gas to the three hot springs at Kojiri. Until now, the origin of  $\text{HCO}_3^-$  in those hot springs was considered to be due to the organic carbon, but, the result obtained here is consistent with the new scheme of classification of hot spring waters proposed by Kikugawa *et al.* (2011) and Itadera *et al.* (2011), in which at least for some types of hot springs  $\text{HCO}_3^-$  in them is originated from volcanic gas. On the other hand, another thermal water at Kojiri area seemed to be formed by dilution of the so-called Zone II thermal water (Oki and Hirano, 1970) with ground water including  $\text{HCO}_3^-$ . It is probable that thermal water at Ashinoko area consists of deep Na- $\text{HCO}_3$  type ground water that is originally composed of meteoric water.

Key words :  $\delta^{13}\text{C}$ , Hot spring, Kojiri, Ashinoko, Hakone, Origin of dissolved inorganic carbon

#### 要 旨

箱根の湖尻地区の4源泉, ならびに芦ノ湖地区の1源泉について, 温泉水の $\delta^{13}\text{C}$ ,  $\delta^{18}\text{O}$ ,  $\delta\text{D}$ および主要溶存化学成分を測定し, 大涌谷で採取された火山性ガス中の $\delta^{13}\text{C}$ の値と比較

<sup>1)</sup> 神奈川県温泉地学研究所 〒250-0031 神奈川県小田原市入生田 586. <sup>1)</sup> Hot Springs Research Institute of Kanagawa Prefecture, 586 Iriuda, Odawara, Kanagawa 250-0031, Japan.

<sup>2)</sup> 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. <sup>2)</sup> Department of Chemistry, School of Science, Tokai University, 4-1-1 Kitakaname, Hiratsuka, Kanagawa 259-1292, Japan.

した。湖尻地区の4源泉のうち3つの温泉水については、溶存している炭酸成分の $\delta^{13}\text{C}$ が大涌谷から放出される火山性二酸化炭素の $\delta^{13}\text{C}$ と非常に近い値を示すことから、溶存炭酸成分の大部分は大涌谷から放出される火山性二酸化炭素に起因すると推察した。これらの温泉は大木・平野モデル (Oki and Hirano, 1970) では第Ⅱ帯に分類され、その中の溶存炭酸成分の起源は火山堆積物中に取り込まれた有機物であると考えられたが、上の結果は、第Ⅱ帯の溶存炭酸成分が火山ガス由来であることを示唆する。この結果は、菊川ら (2011) および板寺ら (2011) が強羅潜在カルデラ内の温泉について新しい分類法を提案した中で、大木・平野モデルで第Ⅱ帯とされたタイプ3の温泉水に含まれる溶存炭酸成分の起源を火山性とした見方と一致する。湖尻付近で発生する群発地震の特徴が流体の関与を示すことや、群発地震の発生と大涌谷で放出される火山ガス組成変化との関連、そして同地域に潜在カルデラ構造の存在が推定されていることなども、これら3源泉の溶存炭酸の大部分が大涌谷から放出される火山性二酸化炭素に起因するという推察と整合的である。一方、 $\delta^{18}\text{O}$ 、 $\delta\text{D}$ の測定結果からは、どの温泉水についても、その大半は天水起源の地下水からなるとみられるものの、上記の3源泉についてはわずかに火山性水蒸気が関与している可能性も考えられる。なお、湖尻地区のもう一つの温泉は、第Ⅱ帯の温泉が $\text{HCO}_3^-$ 型の地下水で希釈されたもの、また、芦ノ湖地区の温泉はほぼ天水のみを起源とする $\text{Na-HCO}_3^-$ 型の深層地下水と推定される。

キーワード：炭素安定同位体比、温泉、湖尻、芦ノ湖、箱根、溶存炭酸の起源

## 1. はじめに

箱根の温泉の成因論については1960年代末に提案された大木・平野モデルがよく知られている (Oki and Hirano, 1970)。そのモデルでは、大涌谷や早雲山の噴気活動が関わっている酸性硫酸塩泉 (第Ⅰ帯)、その周辺で見られる重炭酸塩硫酸塩泉 (第Ⅱ帯)、強羅地区のみに湧出する高温高塩化物泉 (第Ⅲ帯)、強羅、小涌谷、底倉等の中央火口丘東斜面に分布する塩化物泉と重炭酸塩硫酸塩泉の混合型 (第Ⅳa帯)、それに湯本など箱根の基盤岩類中の温泉 (第Ⅳb帯) に大きく分類され、それぞれの成因が考察された。この従来の成因論に対して、最近、菊川ら (2011) および板寺ら (2011) は、第Ⅱ帯、第Ⅲ帯、第Ⅳa帯の温泉が湧出する強羅潜在カルデラ内の温泉に関して新しい分類法を提案している。その分類では、第Ⅲ帯の高温高塩化物泉がタイプ1とされたほかは、第Ⅱ帯および第Ⅳa帯に含まれる温泉はタイプ2, 3, 4, 5, 6に新しく分けられた。その分類基準は以下の通りである。

タイプ1:  $\text{Cl}^-$  濃度 1,000 mg/L 以上かつ泉温 85°C 以上

タイプ2:  $\text{Cl}^-$  の比率が 60% 以上かつ  $\text{SO}_4^{2-}/\text{HCO}_3^-$  が 1.5 未満

タイプ3:  $\text{Cl}^-$  の比率が 30% 未満かつ  $\text{SO}_4^{2-}$  の比率が 35% 以上

タイプ4:  $\text{Cl}^-$  の比率が 30% 未満かつ  $\text{SO}_4^{2-}$  の比率が 35% 未満

タイプ5:  $\text{Cl}^-$  の比率が 30% 以上 60% 未満

タイプ6:  $\text{Cl}^-$  の比率が 60% 以上かつ  $\text{SO}_4^{2-}/\text{HCO}_3^-$  が 1.5 以上

温泉の成因論との関連でいうと、新しい分類と大木・平野モデルとの大きな違いの一つは、第Ⅱ帯や混合型の第Ⅳa帯 (新しい分類でタイプ3や5など) の温泉に含まれる溶存炭酸は、火山噴出物中にとりこまれた植物の分解による有機物起源ではなく、火山ガスに由来すると考えられたことである。その根拠とされたのは、それらのタイプの温泉で、 $\text{SO}_4^{2-}$  と酸素同位体比の間および  $\text{SO}_4^{2-}$  と  $\text{HCO}_3^-$  との間に相関関係が見られることである。

本報では、大木・平野モデルの第Ⅱ帯に分類される湖尻・芦ノ湖地区の5つの温泉水の $\delta^{13}\text{C}$ 、 $\delta^{18}\text{O}$ 、 $\delta\text{D}$ および主要溶存化学成分を測定した結果について報告する。そして、大涌谷から放出される火山性二酸化炭素の $\delta^{13}\text{C}$  (大場ら, 2007) との比較や、湖尻付近で発生する群発地震と大涌谷で放出される火山ガス組成の変化との関連、さらに地質構造に関する最近の知見などを参照し

て、今回測定した温泉水中の溶存炭酸の起源について考察する。

## 2. 測定方法

今回調査した5源泉の位置を Fig. 1 に示す。現地での採水は2008 (平成20) 年11月21日に実施した。測定項目は、温泉水中の溶存炭酸の炭素安定同位体比 ( $\delta^{13}\text{C}$ ) と、温泉水の酸素・水素同位体比 ( $\delta^{18}\text{O}$ ,  $\delta\text{D}$ )、泉温、pH、電気伝導率、それに主要溶存化学成分である。

$\delta^{13}\text{C}$  の測定は、Kusakabe (2001) の方法によった。まず、現地において10 ml の水酸化バリウム飽和水溶液を入れた50 ml のプラスチックシリンジ内に温泉水を吸引し、温泉水中の溶存炭酸と反応させて炭酸バリウムを沈殿させた。その炭酸バリウムの沈殿を実験室において分離した後、真空ラインでリン酸と反応させて二酸化炭素に変換し、質量分析計 (東京工業大学火山流体研究センター所有の MAT252) で同位体比を測定した。測定誤差は  $\pm 0.2\%$  である。測定した同位体比は、国際的に標準物質として用いられている PDB (米国サウスカロライナ州の Peedee 層から産出されたベレムナイト化石 ( $\text{CaCO}_3$ )) に対する千分率偏差 ( $\delta$  値 (%)) で表現した。

一方、温泉水の  $\delta^{18}\text{O}$ ,  $\delta\text{D}$  は、二酸化炭素および白金触媒を用いた自動平衡法により、質量分析計 (現 micromass 社製 PRISM) を使って測定した。方法の詳細は板寺 (2002) に記述されている。測定誤差は、 $\delta^{18}\text{O}$  が  $\pm 0.1\%$ 、 $\delta\text{D}$  が  $\pm 3\%$  で、同位体比は SMOW (標準平均海水) に対する千分率偏差 ( $\delta$  値 (%)) で表現した。また、泉温、pH、電気伝導率は、それぞれデジタル温度計 (横河電機製 TX-560)、ポータブル pH メーター (METTLER TOLEDO 社製 SG2)、導電率計 (堀

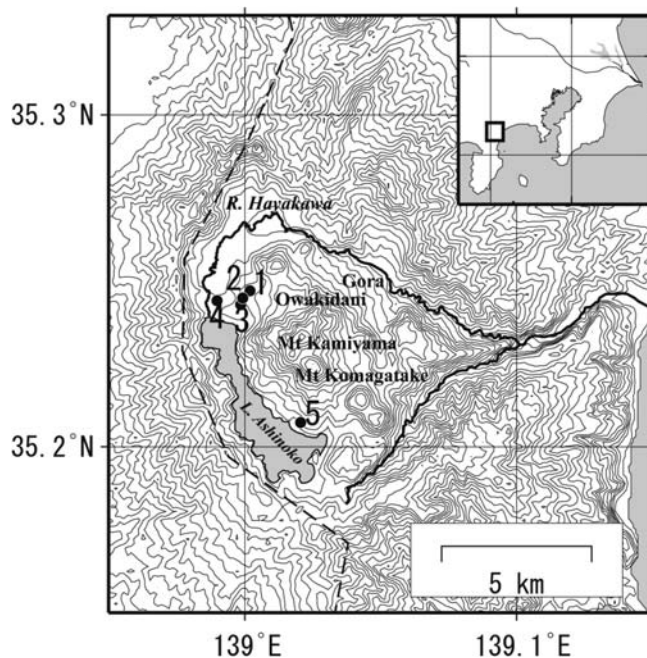


Fig. 1 Location of hot spring wells for which carbon, oxygen, and hydrogen isotope ratios as well as concentrations of major chemical components in the waters are analyzed in this study.

図 1 調査対象源泉の位置。

Table 1 Results of the measurement of water temperature, pH, electric conductivity (EC) and major chemical compositions.

表 1 温泉水の泉温, pH, 電気伝導率, 主要溶存化学成分の測定結果

No.	Depth of well (m)	Temp. (°C)	pH	EC (S/m)	Cation (mg/L)/(meq/L)					Anion (mg/L)/(meq/L)				Type of hot spring water
					Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	total	Cl <sup>-</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	total	
1	600	49.8	6.5	0.12	62.4	6.90	51.8	123	244	6.56	457	281	745	Ca·Mg·Na·SO <sub>4</sub> ·HCO <sub>3</sub>
					2.71	0.18	4.26	6.14	13.3	0.19	9.52	4.61	14.3	
2	742	55.7	6.8	0.15	129	15.3	62.4	125	332	37.7	472	445	955	Ca·Na·Mg·SO <sub>4</sub> ·HCO <sub>3</sub>
					5.61	0.39	5.14	6.24	17.4	1.06	9.83	7.29	18.2	
3	700	56.0	6.8	0.14	130	14.9	56.9	112	314	28.8	421	459	909	Na·Ca·Mg·SO <sub>4</sub> ·HCO <sub>3</sub>
					5.66	0.38	4.68	5.59	16.3	0.81	8.77	7.52	17.1	
4	1000	27.6	7.6	0.04	32.2	4.77	10.7	28.1	75.8	3.71	35.6	181	220	simple thermals (Ca·Na·Mg·HCO <sub>3</sub> ·SO <sub>4</sub> )
					1.40	0.12	0.88	1.40	3.80	0.11	0.74	2.97	3.82	
5	1000	28.5	8.5	0.02	45.1	2.55	0.30	3.04	51.0	4.15	6.00	114	124	simple thermals (Na·HCO <sub>3</sub> )
					1.96	0.07	0.03	0.15	2.21	0.12	0.13	1.87	2.12	

場製作所製 DS-15) を用いて測定した。主要溶存化学成分のうち、陽イオンの分析はイオンクロマトグラフ (DIONEX 社製 ICS-2000) を、HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> 以外の陰イオンの分析はイオンクロマトグラフ (DIONEX 社製 ICS-1500) をそれぞれ用いて行った。HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> については、0.05M 塩酸滴定によりアルカリ度を測定して濃度を算出した。

### 3. 結 果

泉温, pH, 電気伝導率, 主要溶存化学成分の測定結果を Table 1 に示す。泉温は, No. 1~3 が約 50°C であったのに対して, No. 4 と 5 はそれより低く 28°C 前後であった。泉温の違いに対応して成分 (泉質) にも違いが見られ, No. 1~3 は総溶存物質量が 1 g/kg 以上の塩類泉であったのに対し, No. 4 と 5 は溶存成分量が少なく単純温泉であった。菊川ら (2011) により強羅潜在カルデラ内の温泉について提案された新しい分類基準を, 対象領域は違うものの No. 1~5 の温泉にあてはめると, No. 1~3 はタイプ 3 に, No. 4~5 はタイプ 4 に分類される。その分類基準では, タイプ 3 は Cl<sup>-</sup> の比率が 30% 未満かつ SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> の比率が 35% 以上, タイプ 4 は Cl<sup>-</sup> の比率が 30% 未満かつ SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> の比率が 35% 未満とされ, タイプ 3 は Cl<sup>-</sup> が少なく SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> が多い (加えて HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> が多くても該当), タイプ 4 は Cl<sup>-</sup> が少なく HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> が多いという特徴を持つ。したがって, 一般的な HCO<sub>3</sub> 型の地下水の場合はタイプ 4 に分類されることとなる。

Table 2 に  $\delta^{13}\text{C}$ ,  $\delta^{18}\text{O}$ ,  $\delta\text{D}$  の測定結果を示す。 $\delta^{13}\text{C}$  の値は -10.4~-1.6‰ とかなり広い範囲にわたるが, No. 1~3 については -2‰ 前後の値が得られた。また,  $\delta^{18}\text{O}$  は -8.4~-8.1‰,  $\delta\text{D}$  は -53~-48‰ の範囲であった。Table 2 に示した d-excess は, 「 $\delta\text{D}-8\delta^{18}\text{O}$ 」で定義され (Dansgaard, 1964), 降水の起源となる水蒸気が蒸発するときの相対湿度等に依存することから, 水蒸気が作られる場所の気象や海象状況の推定などに利用される指標である。 $\delta^{13}\text{C}$  の場合と同様に, d-excess についても No. 1~3 はほぼ同じ値となった。

Table 2 Results of the measurement of carbon, oxygen and hydrogen isotope ratios.

表 2 炭素, 酸素および水素同位体比の測定結果

No.	$\delta^{13}\text{C}$ (‰)	$\delta^{18}\text{O}$ (‰)	$\delta\text{D}$ (‰)	d-excess* (‰)
1	-1.6	-8.2	-52	14.3
2	-2.1	-8.4	-53	14.5
3	-2.0	-8.4	-53	14.1
4	-5.8	-8.4	-51	16.4
5	-10.4	-8.1	-48	17.2

\* d-excess =  $\delta\text{D} - 8\delta^{18}\text{O}$

## 4. 考 察

## 4.1 温泉水の特徴

Table 1 をみると, No. 1~3 は中性であり, また  $\text{SO}_4^{2-}$  と  $\text{HCO}_3^-$  を主成分とすることから, 大木・平野モデルにおける第 II 帯の特徴を示している. No. 4 は  $\text{HCO}_3 \cdot \text{SO}_4$  型であるものの, No. 1~3 と比較して硫酸イオンの割合が少なく, 溶存成分量も少ないことから, 第 II 帯の温泉が  $\text{HCO}_3$  型の地下水で希釈されたものに相当すると考えられる. No. 4 は, カルシウムイオンとマグネシウムイオンが有意な程度含まれており, その点で No. 5 と異なる. No. 5 については, 硫酸イオンが  $6 \text{ mg/L}$  と非常に少なく, 通常見られる  $\text{Na-HCO}_3$  型の深層地下水と類似している. なお, 先述したように, イオン濃度比から見ると No. 1~3 は菊川ら (2011) の分類でタイプ 3 に, また No. 4 と 5 はタイプ 4 に相当するが, 新しい分類は強羅潜在カルデラ内の温泉を対象としたものであり, 成因まで含めて同じ分類が妥当であるかどうかについては, 今後, あらためて検討する必要がある.

Fig. 2 は,  $\delta^{18}\text{O}$  を横軸,  $\delta\text{D}$  を縦軸にとった  $\delta$  ダイアグラムである. No. 1~4 は, Matsuo *et al.* (1985) による箱根の天水線 (実線) および深部起源の高温火山ガスと天水の混合線 (破線) の交点付近にプロットされており, これらの温泉水 ( $\text{H}_2\text{O}$ ) の大部分は天水起源と考えられる. その中で, No. 4 を除いて No. 1~3 を表す点は天水線よりわずかに右側にシフトしているようにも見える. 一方, No. 5 はほぼ天水線上に乗っており, 天水のみを起源としている可能性が高いと考えられる. No. 5 の  $\delta\text{D}$  ( $-48\%$ ) は, No. 1~3 の  $\delta\text{D}$  の平均値 ( $-53\%$ ) より  $5\%$  大きく, d-excess でも差異は明瞭である. 箱根カルデラ内の降水や地下水について調べた Matsuo *et al.* (1985) によれば, 箱根の天水線は  $\delta\text{D} = 8\delta^{18}\text{O} + 17$  と表すことができるので, 天水の場合, d-excess は  $17\%$  となる. No. 5 については d-excess が  $17.2\%$  であるので, 先に推定した通り, ほぼ天水のみを起源としているとみなしてよいだろう. また, No. 4 の d-excess ( $16.4\%$ ) も天水に近い値を示しており,

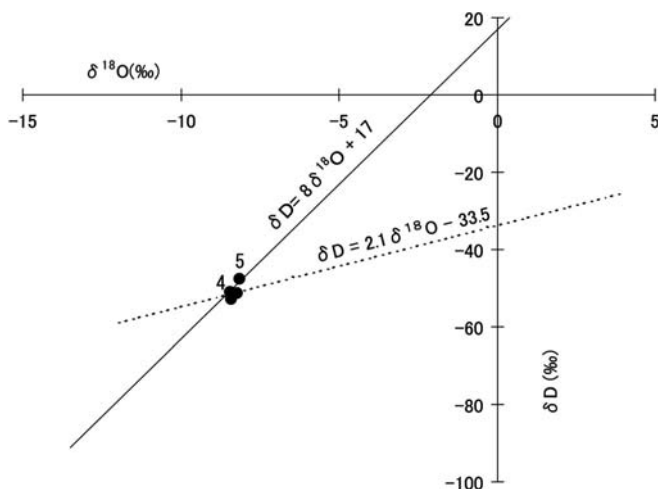


Fig. 2  $\delta$  diagram showing oxygen and hydrogen isotope ratios for hot waters of No. 1 to 5. Solid and broken lines show meteoric water in Hakone mountain and mixing of volcanic vapor of deep origin and the meteoric water by Matsuo *et al.* (1985), respectively.

図 2 温泉水の酸素・水素同位体比を示す  $\delta$  ダイアグラム.

図中の実線および破線は, Matsuo *et al.* (1985) による箱根の天水線および深部起源の火山性水蒸気と天水の混合線をそれぞれ示す



地下水の混合割合が多いと考えられる。一方、深部起源の高温火山ガスと天水の混合線 (Fig. 2 の破線) 上の温泉の場合、d-excess は 17% よりも低い値をとる。板寺ら (2011) は、強羅潜在カルデラ内のタイプ 3 の温泉水に火山性水蒸気が関与していると推定しており、成分的にタイプ 3 に相当する No. 1~3 の d-excess が No. 4, 5 と比較して低い値であるのは、火山性水蒸気の混入を表している可能性も考えられる。なお、No. 2 と 3 については、泉温、主要成分濃度、同位体比などがほぼ同じ値であるので、同じ帯水層から揚湯しているとみられる。

#### 4.2 溶存炭酸の起源の推定

$\delta^{13}\text{C}$  は、火山ガスと有機物では明瞭に異なる値を示すことから、温泉や湧水、地下水における溶存炭酸の起源の推定や火山性二酸化炭素の寄与率の推定などに利用されている (例えば、Ohsawa *et al.*, 2002; Ohsawa *et al.*, 2011; 酒井ら, 2011; 鈴木・田瀬, 2010)。以下では、群発地震や地質構造についての知見も参照しながら、今回の測定結果が示唆することについて検討する。

大場ら (2007) は、大涌谷において複数の自然噴気および蒸気井のガスを採取し、それらに含まれる二酸化炭素の  $\delta^{13}\text{C}$  を測定している。その結果によれば、自然噴気は  $-2.5\sim 0.5\%$  (平均  $-1.2\%$ )、蒸気井は  $-1.1\%$  の値を示し、大涌谷から放出される火山性二酸化炭素の  $\delta^{13}\text{C}$  はおおよそ  $-1\%$  程度である。さらに、大場ら (2007) は希ガスの同位体についても測定しており、それによれば、マントル起源の成分である  $^3\text{He}$  が多く含まれることから大涌谷の火山ガスは深部由来と考えられる。大涌谷の火山性二酸化炭素の  $\delta^{13}\text{C}$  が  $-1\%$  という値をとるのは、スラブ由来の海成炭酸塩の寄与が大きいことを表しているとみられるが、ここでは大涌谷で放出される火山性二酸化炭素の  $\delta^{13}\text{C}$  が  $-1\%$  程度であるという事実注目する。No. 1 で測定された  $\delta^{13}\text{C}$  の  $-1.6\%$  という値は、上記の大場ら (2007) による大涌谷の火山性二酸化炭素の測定値と非常に近い。No. 2 と 3 についても、やや低い値ではあるもののそれに近い値である。先に、Fig. 2 を基に推定したように、No. 1~3 の温泉も、その大部分は天水に由来する地下水とみられる。天水には大気中の二酸化炭素 ( $\delta^{13}\text{C}$  は約  $-7\%$ ) が溶解しているが、地下水の  $\delta^{13}\text{C}$  の値に対するその寄与は小さく、それよりも降水が地下へ浸透していく過程で、土壌中の有機物が分解されて溶解した炭酸成分 ( $\delta^{13}\text{C}$  は約  $-25\%$ ) によって  $\delta^{13}\text{C}$  の値が決まっていると考えられる。箱根の地下水の  $\delta^{13}\text{C}$  を正確に求めたデータはないが、溶存成分が少なく地下水の寄与が大きいとみられる No. 4 と 5 の  $\delta^{13}\text{C}$  が低い値を示すことから、地下水の  $\delta^{13}\text{C}$  が火山性二酸化炭素の  $\delta^{13}\text{C}$  よりも低い値であることは間違いない。したがって、No. 1~3 の温泉水の  $\delta^{13}\text{C}$  が  $-2.1\sim -1.6\%$  という値をとるのは、溶存炭酸の主体が火山性二酸化炭素 ( $\delta^{13}\text{C}$  は  $-1\%$  程度) であり、それに地下水中の溶存炭酸 (低い  $\delta^{13}\text{C}$ ) がわずかに混在しているためでないかと考えられる。以上より、我々は、今回測定した湖尻付近に分布する重炭酸塩硫酸塩泉 (No. 1~3) について、本体である水はほぼ天水起源であるが、溶存している炭酸成分はその大半が火山性のガス起源で、わずかに元々の地下水にあった有機物起源のものが含まれると推察する。また、No. 4 は  $\delta^{13}\text{C}$  の値が No. 5 よりも高く、No. 1~3 との中間的な値を示すことから、その温泉水中にも火山ガス起源の炭酸成分が含まれる可能性があると考えられる。これは、先に溶存化学成分を基に、No. 4 の温泉は第 II 帯の温泉が  $\text{HCO}_3^-$  型の地下水で希釈されたものであろうと考えたことと調和的である。さらに、強羅潜在カルデラ内の温泉について新しい分類法を提案した菊川ら (2011) および板寺ら (2011) が、大木・平野モデルで第 II 帯とされたタイプ 3 の温泉水に含まれる溶存炭酸成分が火山ガス由来であるとした見方とも一致する。なお、今回の調査で得られた  $\delta^{13}\text{C}$  の測定値だけでは、Matsuo *et al.* (1985) が報告しているように、溶存炭酸成分が基盤岩である湯ヶ島層群に含まれる海成炭酸塩鉱物起源 ( $\cong 0\%$ ) である可能性も否定できない。しかし、大木・平野モデルの第 II, III, IV 帯の温泉水について、それぞれ 1 試料ずつ希ガス同位体を測定した

Sakamoto *et al.* (1992) の結果によれば、それらすべてにおいて高い  $^3\text{He}/^4\text{He}$  ( $8.9\sim 9.3\times 10^{-6}$ ) が得られており、マグマ起源のガスの関与が示されている。また、これらの測定結果は、大場ら (2007) による大涌谷の火山ガスの  $^3\text{He}/^4\text{He}$  の測定結果 ( $8.7\sim 9.5\times 10^{-6}$ ) とも近い値である。火山ガスの関与を一層明確にするために、希ガス同位体のより広範な測定が今後望まれる。

箱根では群発地震がしばしば観測されていて、それに伴って温泉の温度や成分に変化が見られたという報告が古くからある (例えば、大木ら, 1968; 石坂ら, 2002)。最近、大場ら (2008) は、大涌谷の蒸気井および自然噴気中の火山ガス組成が、大涌谷付近や芦ノ湖北部 (湖尻付近) で発生する群発地震に連動して変化したことを指摘している。大涌谷付近で発生した群発地震だけでなく、湖尻付近で発生した群発地震についても、それと同時期に大涌谷の火山ガス組成に変化が見られたことは注目に値する。群発地震の発生に火山ガスや熱水などの流体が関与していると仮定すると、この連動的な変化は、大涌谷で放出されている二酸化炭素を含む火山ガスが、深部から上昇する過程で湖尻方向に分岐している可能性があることを示唆する。近年では最も活発だった 2001 年の群発地震において、それまで大涌谷直下で発生していた地震活動が 7 月下旬頃に減少したのと時期を合わせるように、西方の湖尻付近で地震が多発したことがあった (代田ら, 2009)。これは、大涌谷直下で地震を起こしていた流体が湖尻方向に移動したことを示すとみることができるかもしれない。

Yukutake *et al.* (2010) は、1995 年以降に箱根で発生した群発地震について Double Difference (DD) 法による震源の再決定を行い、東西走向ならびに北西—南東走向の面状のゾーン内で地震が発生していることを明らかにし、この特異な震源分布は、その方向に亀裂構造が発達していることと関係していると推定している。こうした亀裂は、大涌谷の西方に位置する湖尻方向への流体や火山ガスの通り道にもなるであろう。また、Yukutake *et al.* (2011) は、2009 年に湖尻付近で発生した群発地震について、稠密観測網のデータを用いた精密な震源の再決定を行い、震源は長さ数 100 m から 1 km、幅 100 m ほどのいくつかの薄い面状のゾーンに集中して分布し、それぞれの集中的な活動において、最初の地震の震源から発生域が時間とともに次第に広がっていった様子がみられることを示した。これについて、Yukutake *et al.* (2011) は、熱水などの流体が断層破砕帯に流入し、その流体が拡散していくことによって群発地震が誘発された可能性を指摘している。

萬年 (2008a) は、2001 年の群発地震活動に伴った地殻変動の解析結果 (代田ら, 2007) やその際に観測された温泉水温度の上昇、また、強羅潜在カルデラ内に温泉が偏在していることなどを基に、強羅潜在カルデラを形成した噴火の際のマグマの通り道が熱水の通路として今でも使われ、それが強羅温泉の成因となっている可能性を指摘した。さらに、萬年 (2008b) は、重力異常や地質学的証拠から、湖尻地区においても潜在カルデラ構造が存在するのはほぼ確実で、カルデラ西部域における温泉が湖尻潜在カルデラ内に偏在しているのは、やはりかつての噴火口が現在も地下からの熱水の供給経路になっているためではないかと推察している。そうした経路は、火山ガスの通路にもなり得ると考えられる。

群発地震や地質構造に関する以上のような知見は、大涌谷の火山ガスが西方の湖尻付近に分岐して放出されている可能性を示唆しており、この地域の温泉水中の溶存炭酸が火山性ガス起源であるとみなした我々の推定を支持する。

## 5. おわりに

湖尻・芦ノ湖地区の 5 つの温泉水について  $\delta^{13}\text{C}$ 、 $\delta^{18}\text{O}$ 、 $\delta\text{D}$  および主要溶存化学成分を測定した。そのうち 3 つの温泉水については、 $\delta^{13}\text{C}$  が大涌谷から放出される火山性二酸化炭素に近い値

を示すことがわかった。これらの温泉は大木・平野モデルで第Ⅱ帯に分類され、その中の $\text{HCO}_3^-$ は有機物起源と考えられたが、今回の結果は、それが火山性ガスに由来していることを示すものである。強羅潜在カルデラ内に湧出する温泉の新しい分類を提案した菊川ら(2011)や板寺ら(2011)は、第Ⅱ帯の温泉に対応するタイプ3の温泉に含まれる $\text{HCO}_3^-$ を火山性ガス由来と考えたが、本調査結果はその推定を支持する。また、群発地震と火山性ガス組成との関連や震源分布特性、カルデラ構造についての地質学的な知見なども、大涌谷に表出する二酸化炭素を含む火山性ガスが深部からの上昇過程で湖尻方向に分岐して放出されている可能性を示唆する。ただし、今回測定した温泉水は湖尻、芦ノ湖地区の5源泉のみであり、その中には、火山性ガスが関与していないとみられる温泉水も含まれていることから、箱根の温泉水中の溶存炭酸の起源を総合的に明らかにするには更に広汎な調査が必要である。

## 謝 辞

本調査を実施するにあたり、源泉所有者の方々ならびに小田原保健福祉事務所温泉課の方々にご協力いただきました。神奈川県温泉地学研究所の吉田明夫所長ならびに鈴木秀和特別研究員には論文の構成および内容に関して大変貴重なコメントをいただきました。また、匿名の査読者ならびに編集委員長の井上源喜氏からは細部にわたる適切かつ丁寧なご指摘をいただきました。ここに記して感謝の意を表します。

## 引用文献

- 代田 寧, 棚田俊收, 丹保俊哉, 伊東 博, 原田昌武 (2007) : 2001年箱根火山で生じた地殻変動の圧力源解析. 日本火山学会講演予稿集, 51.
- 代田 寧, 棚田俊收, 丹保俊哉, 伊東 博, 原田昌武, 萬年一剛 (2009) : 2001年箱根群発地震活動に伴った傾斜変動と圧力源の時間変化. 火山, 54, 223-234.
- Dansgaard, W. (1964) : Stable isotopes in precipitation. *Tellus*, 16 (4), 436-468.
- 石坂信之, 板寺一洋, 菊川城司 (2002) : 箱根群発地震と温泉温度等の変化. 第55回日本温泉科学会大会講演要旨集, 19.
- 板寺一洋 (2002) : 箱根中央火口丘地域における降水の酸素・水素同位体比について. 神奈川県温泉地学研究所報告, 34, 9-12.
- 板寺一洋, 菊川城司, 吉田明夫 (2011) : 酸素同位体比および主要アニオンから見た箱根強羅温泉水の成因. 温泉科学, 60, 459-480.
- 菊川城司, 板寺一洋, 吉田明夫 (2011) : 箱根強羅潜在カルデラ内に湧出する温泉の新しい分類. 温泉科学, 60, 445-458.
- Kusakabe, M. (2001) : A simple method for sampling total dissolved carbonate in carbonate-rich natural waters and  $\text{CO}_2$  preparation for  $\delta^{13}\text{C}$  determination. *Geochem. J.*, 35, 459-464.
- 萬年一剛 (2008a) : 箱根カルデラ—地質構造・成因・現在の火山活動における役割—. 神奈川博調査研報 (自然), 13, 61-76.
- 萬年一剛 (2008b) : 箱根カルデラ—その地下にある潜在カルデラ構造とその意義—. 月刊地球/号外, 60, 98-104.
- Matsuo, S., Kusakabe, M., Niwano, M., Hirano, T. and Oki, Y. (1985) : Origin of thermal waters from the Hokone geothermal system, Japan. *Geochem. J.*, 19, 27-44.
- 大場 武, 澤 毅, 平 徳泰, 大和田道子, 森川徳敏, 風早康平 (2007) : 箱根カルデラ中央火口丘熱水系における火山性流体の化学的進化. 神奈川県温泉地学研究所報告, 39, 1-42.



- 大場 武, 代田 寧, 澤 毅, 平 徳泰, 攪上勇介 (2008) : 箱根カルデラ中央火口丘大涌谷地熱地帯における火山ガス組成の時間変化. 神奈川県温泉地学研究所報告, **40**, 1-10.
- 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 carbon isotope compositions of dissolved inorganic carbon. *Limnology*, **3**, 169-173.
- Ohsawa, S., Sakai, T., Yamada, M., Mishima, T., Yoshikawa, S. and Kagiya, T. (2011) : Dissolved inorganic carbon rich in mantle component of hot spring waters from the Hitoyoshi Basin in a non-volcanic region of central Kyushu, Japan. *J. Hot Spring Sci.*, **60**, 410-417.
- Oki, Y. and Hirano, T. (1970) : The Geothermal System of the Hakone Volcano. *Geothermics Special Issue 2*, Pisa, 1157-1166.
- 大木靖衛, 荻野喜作, 平野富雄, 広田 茂, 大口健志, 守矢正則 (1968) : 箱根強羅温泉の温度異常上昇とその水理地質学的考察. 神奈川県温泉研究所報告, **1** (6), 1-20.
- 酒井拓哉, 大沢信二, 山田 誠, 三島壮智, 吉川 慎, 鍵山恒臣, 大上和敏 (2011) : 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. *温泉科学*, **60**, 418-433.
- Sakamoto, M., Sano, Y. and Wakita, H. (1992) :  $^3\text{He}/^4\text{He}$  ratio distribution in and around the Hakone volcano. *Geochem. J.*, **26**, 189-195.
- 鈴木秀和, 田瀬則雄 (2010) : 浅間山における湧水の溶存炭酸の炭素同位体比—火山性  $\text{CO}_2$  の寄与率の推定—. *地下水学会誌*, **52**, 247-260.
- Yukutake, Y., Tanada, T., Honda, R., Harada, M., Ito, H. and Yoshida, A. (2010) : Fine fracture structures in the geothermal region of Hakone volcano, revealed by well-resolved earthquake hypocenters and focal mechanisms. *Tectonophysics*, **489**, 104-118.
- Yukutake, Y., Ito, H., Honda, R., Harada, M., Tanada, T. and Yoshida, A. (2011) : Fluid-induced swarm earthquake sequence revealed by precisely determined hypocenters and focal mechanisms in the 2009 activity at Hakone volcano, Japan. *J. Geophys. Res.*, **116**, B04308, DOI : 10.1029/2010JB008036.