
原 著

房総半島南部の三浦—房総付加体における間隙水の進化

村松容一^{1)*}, 佐藤友規²⁾, 千葉 仁³⁾

(平成 26 年 8 月 4 日受付, 平成 26 年 9 月 20 日受理)

Evolution of pore fluid in the Miura-Boso accretionary prism at the the Southern Boso peninsula, Central Japan

Yoichi MURAMATSU^{1)*}, Yuki SATO²⁾ and Hitoshi CHIBA³⁾

Abstract

Chemical and stable isotopic compositions of hot spring water from the Miura-Boso accretionary prism at the Southern Boso peninsula, Central Japan, were analyzed to construct evolution of the pore water and formation mechanism of its related hot spring water. They belong to mainly Na—Cl, subordinately Na—HCO₃, Ca—HCO₃ and Na—SO₄ types. Based on the arrangement of the thermal wells, it is estimated that the fossil sea water as an original fluid of the Na-Cl type is reserved in a thrust with strike of E-W (Tateyama fault) at the Tateyama area. Most water falls on or near the meteoric water line ($\delta D = 8 \delta^{18}O + 17$), but the brine with high chloride content of 28,500 mg/L is plotted on the remarkable left side of the meteoric water line. The sulfate-rich water has wide ranges of $\delta^{34}S$ from -0.2 to $+41.0\%$, indicating that sulfur is originated by anhydrite dissolution and pyrite oxidation.

The chloride-type water was formed by mixing of local meteoric water with fossil sea water, which is derived from the pore water in the siltstone of the Miura Group deposited on the deep sea floor on the southern part of the trench at the subduction zone of the Philippine Sea Plate. We interpreted the abnormal negative oxygen isotope shift (-5.68%) of the brine as evolution of the pore water by ion filtration as follows. As ion filtration occurs during subsequent compaction of the sediments, the released abundant pore fluid with lower chloride content and $\delta^{18}O$, δD values than those of seawater has to pass through permeability barriers to escape, and then reserved in the Tateyama fault. The minor residual pore fluid trapped in the increasingly compacted sediments becomes a higher chloride content and $\delta^{18}O$, δD values than those of seawater, and then fracturing may flush

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

²⁾ 東京理科大学理学部化学科 〒162-8601 東京都新宿区神楽坂 1-3. ²⁾ Department of Chemistry, Faculty of Science, Tokyo University of Science, 1-3 Kagurazaka, Shinjuku-ku, Tokyo 162-8601, Japan.

³⁾ 岡山大学理学部地球科学科 〒700-8530 岡山県岡山市北区津島中 3-1-1. ³⁾ Department of Earth Sciences, Faculty of Science, Okayama University, 3-1-1 Tsushima-naka, Kita-ku, Okayama, Okayama 700-8530, Japan.

out the brine and focus them towards the fault. Therefore, the negative oxygen isotope shift of the brine reflects pervasive reaction of volcanic material to form $\delta^{18}\text{O}$ -rich Mg-smectite in the residual pore fluid. The major chemical compositions are controlled by reaction of volcanic material to form smectite, ion exchange of smectite, calcite and anhydrite dissolutions, sulphate reduction, pyrite oxidation, and also by calcite cementation.

Key words : Southern Boso peninsula, Miura-Boso accretionary prism, Evolution of pore fluid, Fluid formation mechanism, Isotope anomaly, Ion filtration

要 旨

フィリピン海プレートの沈み込みで形成された標題付加体に分布する温泉水の主成分と安定同位体比を分析し、間隙水の進化に伴う温泉の形成機構を検討した。温泉の過半数はNa—Cl型であり、Cl⁻濃度が海水をかなり上回る強塩泉が $\delta^{18}\text{O}$ — δD 値図で天水線の左側にプロットされる同位体異常を示すのを除けば、天水線沿いに分布する。三浦層群西岬層（付加体）には東西走向の館山衝上断層が推定され、Na—Cl型深部流体の主要貯留層になっている。SO₄²⁻/Cl⁻当量比と $\delta^{18}\text{O}$ 、 δD 値に基づけば、Na—Cl泉は続成期の最下部硫酸還元帯・嫌氣的硫酸還元メタン酸化帯とメタン生成帯にある深層泥質堆積物の間隙水（化石海水A、B）、および基盤隆起後の後続成期に衝上断層群に貯留された現海水に近い若い断層流体（化石海水C）を本源流体にしている。このうち、続成期の間隙水は次のように進化したと推察される。メタン生成帯にある深層泥質堆積物の間隙水（初期化石海水IFSW）は埋没深度の増加に伴ってスメクタイトで濾過され、Cl⁻濃度、 $\delta^{18}\text{O}$ 、 δD 値がIFSWより低い化石海水Aになった。一方、これらの値がIFSWを上回る残渣化石海水は多量の火山性物質のMg—スメクタイト化に伴い化石海水Bに進化した後、異常間隙水圧の発生で間隙から解放された。したがって、化石海水Bに該当する強塩泉の高Cl⁻濃度・同位体異常はスメクタイトの濾過と多量の $\delta^{18}\text{O}$ に富むスメクタイトの形成に起因する。泉質は火山性物質の風化作用、イオン交換反応、方解石・硬石膏の溶解作用、硫酸還元反応、黄鉄鉱の酸化作用、方解石セメント化作用に規制される。

キーワード：房総半島南部、三浦—房総付加体、間隙水の進化、温泉の形成機構、同位体異常、スメクタイトの濾過作用

1. はじめに

日本海溝軸付近のプレート境界断層帯を構成する岩石中の間隙水は2011年3月の東北地方太平洋沖地震（M9.0）の発生機構に関して重要な役割を担っており（例えば、Chester *et al.*, 2013; Ujiie *et al.*, 2013; Fulton *et al.*, 2013）、海溝型地震の発生機構を解明する上でプレート境界断層帯と付加体堆積物を包含した広域的な間隙水の挙動（進化）が重要であると考えられる（三ヶ田ら, 2006）。フィリピン海プレートが北米プレートの下に沈み込む相模トラフでは、地殻変動を伴う巨大地震が1703年（元禄関東地震；M8.2）と1923年（大正関東地震；M7.9）に発生しており、今後30年以内に最大M8.6の巨大地震が5%の確率で発生すると予測されている（地震調査研究推進本部, 2014）。このフィリピン海プレートの沈み込みに伴って形成された付加体堆積物と海溝陸側斜面に堆積した地層群（小竹, 1988; 小竹ら, 1995）からなる房総半島南部地域では、今日までに温泉開発が盛んに進められ多数の温泉井が掘削された。回収された温泉水は間隙水（海水）起源の流体（本源流体と呼称）を含んでおり、その地球化学的研究は付加体堆積物中の間隙水の進化に関する重要な情報を提供してくれる。

村松ら（2012）は千葉県房総半島から茨城県東部にわたる広域に分布する強塩泉の成因に関する概査的研究を実施し、房総半島南部の三浦—房総付加体地域に海水のCl⁻濃度をかなり上回り天水線の左側にプロットされる同位体異常を示す強塩泉の存在を報告した。本研究では、本付加体地域

を対象に温泉水を採取して主成分および酸素・水素・硫黄安定同位体分析を実施し、村松ら (2012) および三浦半島の同付加体地域に分布する強塩泉のデータ (Muramatsu *et al.*, 2011) を加えるとともに地質構造・地史を踏まえて、続成作用により付加体堆積物中の間隙水が進化するプロセス、および後続成作用により本源流体が温泉水へ進化するまでの流動機構と水質形成機構を検討した。その結果、強塩泉が高 Cl⁻ 濃度・同位体異常を示す要因に加えて、(1) 間隙水が海底泥質堆積物の埋没過程における有機物の酸化分解、圧密、粘土鉱物の濾過、セメント化などの続成作用を受けて多様な化石海水に進化するプロセス (2) 海水が付加体形成後の基盤隆起から現在に至る過程で衝上断層に貯留された後に後続成作用 (吉村, 2001) で変質した若い化石海水が混在することなどを明らかにした。なお、本論では地表で採取された温泉水を温泉水 (Hot spring water) と呼称し、地下に賦存する本源的な温泉水である深部流体 (Deep fluid) と区別する。

2. 地質概要

房総半島南部地域の地質と地質構造は小竹 (1988, 1997), Yamamoto *et al.* (2005), 高橋 (2008) などによって報告されており、これらをもとに作成した地質図および地質断面図を Fig. 1 に示す。以下に、本地域の地質および地質構造を概述する。

関東地方の南部に位置する三浦半島と房総半島にはフィリピン海プレートの沈み込みに伴って形成された前期中新世～前期鮮新世の三浦一房総付加体堆積物 (三浦層群) が分布し (小竹, 1997), 三浦半島南部では三崎層, 房総半島南部では主に西岬層で構成され (Yamamoto, 2006), 初声層と鏡ヶ浦層がこれらの地層をそれぞれ不整合に覆う (小竹, 1988; 斎藤, 1992)。このうち、房総半島南部地域の三浦層群は下位より石堂層 (9.9～5.6 Ma; 川上, 2001), 西岬層 (10.0～6.8 Ma; 同), 平館層, 鏡ヶ浦層 (約 3 Ma) に細分され (高橋, 2008), 石堂層 (層厚 1 km 以上) はスコリア・砂岩等の薄層を挟む塊状シルト岩, 西岬層 (層厚 2 km 以上) は凝灰質砂岩の薄層を挟む塊状シルト岩でそれぞれ構成される (成瀬ら, 1951)。また、平館層 (層厚 350 m 以上) は凝灰質粗粒砂岩および塊状シルト岩, 鏡ヶ浦層はスコリア・軽石などの粗粒火砕岩やそれらの二次堆積物からなる。館山市の西川名地域 (Fig. 1b の a 地点) に分布する西岬層は地層の乱れが少ない整然層 (Upper coherent unit) からなり、西北西～東南東走向の地層面にはほぼ平行な衝上断層によって地層の繰り返しが発達し、プレート境界のデコルマンが西岬層上面から深度約 1.5～2.0 km に存在すると考えられている (Fig. 1d; Yamamoto *et al.*, 2005; Yamamoto, 2006)。

三浦層群は後期鮮新世～中期更新世の海溝陸側斜面堆積物である千倉層群によって不整合に覆われる (小竹, 1988; 斎藤, 1992)。千倉層群最下位の白浜層 (露出部の層厚 120 m) は凝灰質砂岩～砂質シルト岩・礫岩互層からなり、礫岩はシルト岩偽礫・玄武岩角礫・赤色チャートの細礫・緑色変質した火山岩礫を含み、野島崎灯台付近 (Fig. 1b の b 地点) に露出する (成瀬ら, 1951)。白浜層を整合に覆う白間津層は砂岩・シルト岩互層からなり、上位の布良層 (層厚 400 m 程度) はスコリア質凝灰岩や凝灰質砂岩の薄層を挟むシルト岩, 蓮台枝礫岩部層は角礫岩, 南朝夷層 (層厚 450 m) は砂岩・シルト岩互層, シルト岩, 畑層 (層厚 500 m 以上) は凝灰質砂岩・シルト岩互層からそれぞれなる (成瀬ら, 1951; 小竹, 1988; 小竹・井上, 2004)。畑層の同時異相である真野層 (層厚 150 m) は凝灰質砂岩・シルト質砂岩互層, シルト岩, 凝灰質砂質シルト岩, 嵯峨志・根方層 (層厚 500 m 程度) は凝灰質砂岩, 凝灰質シルト岩, 礫岩からなる (成瀬ら, 1951; 中尾ら, 1986; 小竹, 1988)。豊房層群 (加茂層, 神余層, 神余畑層, 東長田層, 滝川礫岩) は凝灰質砂岩, シルト岩, 礫岩などからなり、三浦層群と千倉層群を不整合に覆う。

房総半島南部地域の地質構造はフィリピン海プレートの沈み込みに伴う東西性の褶曲と衝上断層

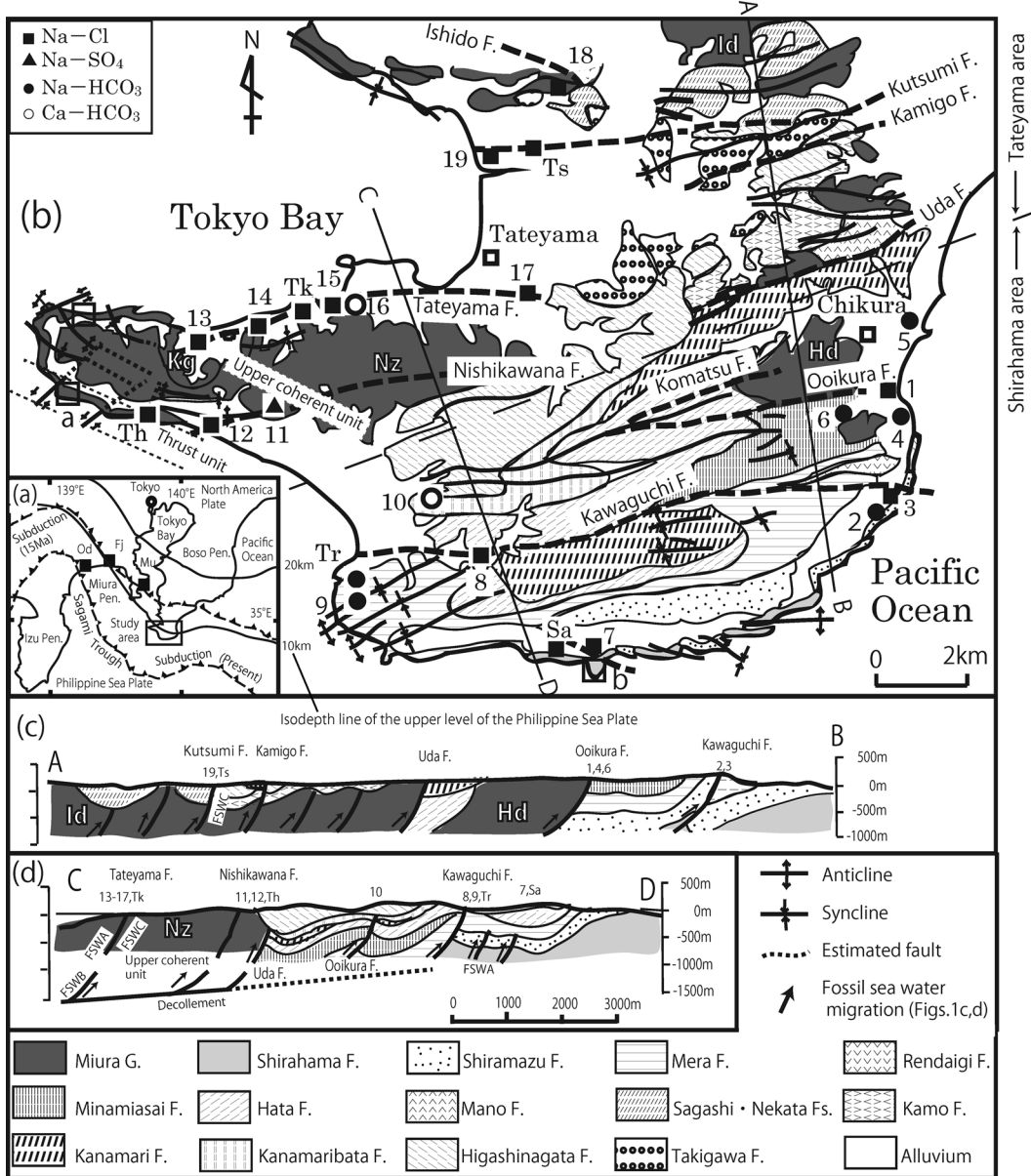


Fig. 1 Geological map and sample locations of the hot spring water from the Southern Boso accretionary prism, Central Japan (after Kotake, 1988, 1997 ; Yamamoto *et al.*, 2005 ; Takahashi, 2008). Id, Ishido F. ; Nz, Nishizaki F. ; Kg, Kagamigaura F. ; Hd, Hiradate F. ; Sa, Aoi-noyu hot spring ; Tk, Kobarayanoyu hot spring ; Th, Heisaura hot spring ; Tr, Kisshoryujinnoyu hot spring ; Ts, Shirakame hot spring ; Od, Odawara hot spring ; Fj, Fujisawa hot spring ; Mu, Miura hot spring. Kutsumi fault is after Furuya *et al.* (2009). The isodepth line of the upper level of the Philippine Sea Plate from the sea level in Fig. 1a is after Headquarters for Earthquake Research Promotion, 2014.

(南に衝上する石堂, 沓見, 上郷, 宇田, 小松, 大井倉, 川口などの逆断層) によって特徴づけられる. 約 10 Ma から海溝より南側の深海底 (水深約 2 km) に堆積した泥質堆積物 (三浦層群西岬層シルト岩の先駆物質) が陸側斜面に付加し, 非対称褶曲を特徴とする複雑な地質構造を形成した (小竹, 1997). その後, 後期鮮新世 (約 3 Ma) 以降の基盤沈降により砂泥質堆積物 (千倉層群の先駆物質) が海溝陸側斜面堆積盆 (水深約 2 km) に堆積した後, 前期更新世 (約 1 Ma) になると隆起に転じて浅海域からの粗粒堆積物 (豊房層群の先駆物質) が堆積盆を埋積した結果, 豊房層群堆積期末期 (約 0.4 Ma) の海底は水深 0.2~0.3 km まで浅くなったと考えられている (小竹, 1988, 1997; 斎藤, 1992; 小竹ら, 1995; 斎藤ら, 1997).

3. 試料採取および分析方法

千葉県房総半島南部に分布する温泉施設 14 地点で 2012 年 7~10 月に採水した (Fig. 1). 現地では水温, pH をカスタンイー ACT pH メータ (堀場製作所製 D-24) で測定した後, 分析用として 500 mL のポリエチレン瓶 3 本に採水するとともに, Fe, Al 分析用として 50 mL ポリエチレン瓶 2 本に採水して時間経過により沈殿物が生じないように, 速やかに濃硝酸 1 mL を加えて pH を 1 程度に調整した. これらの水試料を実験室に持ち帰り, 各種溶存化学成分を分析した. 温泉はすべて掘削泉 (水中ポンプによる動力揚水) であり, 採水場所は源泉 11 地点 (Nos. 1, 5~7, 10, 12, 14, 16~19), 温泉貯湯槽への吐出口 2 地点 (Nos. 3, 15), 施設内の浴槽 1 地点 (No. 4) である. なお, 現地では温泉所有者より掘削深度およびストレーナの位置に関する聞き取り調査を実施した.

温泉水の分析項目と方法は次の通りである. HCO_3^- は容量法によって総アルカリ度として算出し, HCO_3^- 濃度に換算した. その際, アルカリ度は pH4.8 酸消費量として, MR-BCG 混合指示薬で硫酸標準溶液による滴定法で実施した. Na^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} , Cl^- , SO_4^{2-} , F^- , Br^- はイオンクロマトグラフ (島津製作所製 LC-VP) を用いた. K^+ , Fe は原子吸光光度計 (島津製作所製 AA-6200), Al^{3+} は簡易吸光光度計 (エリオクロムシアン R とアルミニウムイオンの呈色反応を利用した比色法; HACH 製 DR-2800), B は簡易吸光光度計 (カルミン法; 同), Si^{4+} は紫外可視分光光度計 (モリブデンイエロー法; 島津製作所製 UV-1650PC) でそれぞれ分析した.

酸素安定同位体比 ($\delta^{18}\text{O}$) と水素安定同位体比 (δD) は全水試料を 0.45 μm のフィルターで濾過した後気化させ, キャビティ内に導入しキャビティリングダウン分光法により WS-CRDS 方式ガスアナライザー (PICARRO 製 L-2120i) で測定した. 光学キャビティ内に H_2O を導入して半導レーザーを通すと, レーザーはキャビティ内の鏡に反射し続けるが, H_2O に吸収されて徐々に減衰していく. レーザー吸収率は H, D, ^{16}O , ^{18}O 量に関係するため, レーザー減衰率から同位体量を測定した. なお, 水試料の測定に先立ち, 筆者らの研究室で従来実施した安定同位体質量分析計 (村松ら, 2012) とキャビティリングダウン分光法で, Cl^- 濃度が高い温泉水 3 試料 (Nos. 15, 17, 群馬県の前橋 3 号泉; 村松ら, 2013) の $\delta^{18}\text{O}$ と δD 値を測定・比較した結果, ほぼ等しいことが確認されている. 安定同位体比は標準物質からの千分率偏差 (‰) で表した.

$$\delta(\text{‰}) = [\text{R}_x/\text{R}_s - 1] \times 1000 \quad (1)$$

ここで, R_x および R_s は試料および標準物質の同位体比をそれぞれ表す. $^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$ 比と D/H 比は Vienna 標準平均海水 (VSMOW), $^{34}\text{S}/^{32}\text{S}$ 比は Canyon Diablo Troilite (CDT) を標準物質に用い, $\delta^{18}\text{O}$, δD , $\delta^{34}\text{S}$ 値の測定精度はそれぞれ ± 0.3 , ± 2.0 , $\pm 0.2\text{‰}$ 程度である.

本研究では, 南房総 2 号泉 (No. 2; 村松ら, 2012), 南房総 1 号泉 (No. 8; 同), 館山 3 号泉 (No. 9; 同), 館山 2 号泉 (No. 11; 同), 館山 1 号泉 (No. 13; 同, No. 13*; 未公表), 古原屋の湯温泉 (Tk; 佐藤, 1997), 平砂浦温泉 (Th; 同), 相生の湯白浜 (Sa; 未公表), 吉祥龍神の湯 (Tr; 同), 白

亀温泉 (Ts; 同) の水質化学分析値を加えて検討した。また, 複数の源泉をもつ千倉温泉では今回採水した b 源泉の No. 1 に, a 源泉の 1a (相川ら, 1981), b 源泉の 1b₁ (佐藤, 1997), 1b₂ (相川ら, 1981), 1b₃ (相川, 1991) を加え, また白浜温泉では今回採水した No. 7 に, A 地区の 7a₁ (佐藤, 1997) と 7a₂ (相川, 1991), B 地区の 7b₁ (佐藤, 1997) と 7b₂ (相川, 1991), 湯元 C 地区の 7c (佐藤, 1997) の水質化学分析値を加えて検討した。

4. 結果と考察

4.1 温泉水の化学組成および安定同位体比

4.1.1 温泉水の化学組成

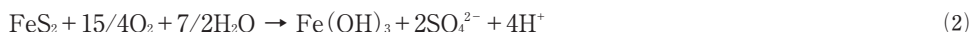
温泉水の分析結果を村松ら (2012) のデータと併せて Table 1 に, 公表・未公表の分析データを加えたトリリニアダイアグラムを Fig. 2 にそれぞれ示す。pH は 6.8~9.0, 泉温は 17.5~34.0°C にあり, 泉質は Na—Cl 泉 (厳密には Na—Cl·HCO₃·SO₄ 型の Tk と Na—Cl·HCO₃ 型の No. 18, Ts を含む) が大半を占めるほか, Na—SO₄ 泉 (厳密には Na—SO₄·Cl·HCO₃ 型の No. 11), Na—HCO₃ 泉 (厳密には Na—HCO₃·Cl·SO₄ 型の Nos. 5, 6, 9, Tr を含む), Ca—HCO₃ 泉 (厳密には Ca·Na—HCO₃ 型の No. 16 を含む) に属し, 館山地域は Na—Cl 泉, 白浜地域は Na—HCO₃ 泉にそれぞれ卓越する (Fig. 1b)。温泉水の Na⁺ と Cl⁻ 濃度は海水と降水を結ぶ混合線上にあり, 深部流体は海水と降水の混合物からなる (Fig. 3a)。

Cl⁻ 濃度と B/Cl モル比による分類 (犬山ら, 1999) に従えば, Cl⁻ 濃度が 50~100 mg/L 以上で B/Cl モル比が 0.01 以下の温泉水は海水起源であることから, Na—Cl 泉は海水を主な起源にしている (Fig. 3b)。一方, Cl⁻ 濃度が 50~100 mg/L 以下で B/Cl モル比が 0.1 以下の温泉水は浅部で熱伝導により加熱されたものであり, Na—HCO₃ 泉 (No. 9 を除く) がほぼあてはまる。本地域の地質・地質構造によれば, 温泉貯留層は断層規制型に属すると判断され (村松ら, 2012), 主に温泉と断層の位置関係から推定した貯留断層を Table 1 に示した。Figure 1b からわかるように, 西川名地区 (a 地点) に分布する西岬層には西北西—東南東走向の地層面にほぼ平行な衝上断層 (Thrust unit) による地層の繰り返しが発達しており, この地層面は東方では東西走向に変化する (Yamamoto *et al.*, 2005; Yamamoto, 2006)。館山地域の多くの温泉 (Nos. 13~17, Tk) はこの西岬層の走向方向に配列しており, 三浦層群西岬層を貯留母岩とし, 東西走向の推定衝上断層 (館山断層と呼称) が温泉貯留層になっていると考えられる (Fig. 1)。西川名地区の西岬層にはほぼ東西走向で垂直の断層とその派生小断層群からなる断層帯が発達しており (道口, 2008), ここでも東西走向の推定衝上断層 (西川名断層と呼称) が Nos. 11, 12, Th の温泉貯留層になっている可能性が高い。

4.1.2 温泉水の安定同位体比

ほとんどの温泉 (No. 13 を除く) は δ¹⁸O—δD 値相関図の天水線 (δD = 8 δ¹⁸O + 17) に沿ってほぼ分布するが, Cl⁻ 濃度が現海水をかなり上回る No. 13 の δ¹⁸O 値 (-5.68‰) と δD 値 (-10.5‰) は天水線の左側にプロットされる同位体異常を示す (Fig. 4a)。

白浜地域の温泉 (Nos. 2~5, 9) は比較的低い δ³⁴S 値 (-0.2~+11.2‰) を示し (Table 1), 本地域が陸化した後に堆積岩中の黄鉄鉱が酸素供給の多い地表付近で酸化されて硫酸酸性泉が生成したと考えられる (Appelo and Postma, 2005; 永田・宮島, 2008; 村松ら, 2012)。



これらの温泉の pH は 8.1~9.0 を示しており, 千倉層群に豊富に含まれる底生有孔虫化石 (小竹, 1997) や白間津層の基底部に多数伴われるシロウリガイ化石 (間嶋ら, 1992) などの方解石の溶解によって, (2) 式で生成したプロトンは中和されたのであろう。

Table 1 Chemical composition of the hot spring water from the Southern Boso accretionary prism.

No.	Sampling date	Type	Reservoir	Depth ¹⁾ (m)	WT (°C)	pH	Na ⁺ (mg/L)	K ⁺ (mg/L)	Ca ²⁺ (mg/L)	Mg ²⁺ (mg/L)	Al ³⁺ (mg/L)	Fe (mg/L)	Cl ⁻ (mg/L)	F ⁻ (mg/L)	Br ⁻ (mg/L)	SO ₄ ²⁻ (mg/L)	HCO ₃ ⁻ (mg/L)	B (mg/L)	SiO ₂ (mg/L)	δ ¹⁸ O (‰)	δD (‰)	δ ³⁴ S (‰)
1	27/07/2012	Na-Cl	Ooikura F.	8	28.3	7.9	570	24.8	59.4	26.1	0.006	<0.1	944	<0.1	<0.1	35.8	205	0.0	43.2	-5.99	-31.8	-
2 ¹⁾	13/09/2005	Na-HCO ₃	Kawaguchi F.	10	18.0	9.0	164	17.0	24.1	7.00	0.150	<0.1	118	1.6	5.8	57.9	350	1.3	51.0	-6.35	-35.8	-0.2
3	27/07/2012	Na-Cl	Kawaguchi F.	Unknown	28.6	8.1	528	44.1	24.1	30.2	0.006	<0.1	691	<0.1	<0.1	230	243	0.0	30.7	-5.89	-33.1	+9.5
4	09/10/2012	Na-HCO ₃	Ooikura F.	100	25.3	8.6	243	8.60	11.3	1.60	0.006	<0.1	73.8	<0.1	<0.1	56.1	430	0.7	40.4	-5.63	-31.7	+2.9
5	09/10/2012	Na-HCO ₃	Komatsu F.	100	18.0	8.8	227	8.80	10.3	1.10	0.006	<0.1	118	<0.1	<0.1	134	270	0.8	48.5	-6.09	-34.7	+11.2
6	09/10/2012	Na-HCO ₃	Ooikura F.	5	20.4	7.4	122	10.1	28.8	5.70	0.010	0.05	101	<0.1	<0.1	30.1	190	0.3	44.4	-5.86	-32.4	-
7	27/07/2012	Na-Cl	WNW-ESE F.	98	22.9	7.5	784	11.0	17.2	<0.1	0.007	<0.1	1130	<0.1	<0.1	15.1	59.0	0.0	11.8	-6.45	-36.3	-
8 ¹⁾	14/09/2005	Na-Cl	Kawaguchi F.	20	20.6	8.1	1920	111	69.5	31.1	0.010	<0.1	3030	<0.1	7.6	29.5	757	2.2	69.1	-6.73	-38.2	-
9 ¹⁾	14/09/2005	Na-HCO ₃	Kawaguchi F.	485	24.0	8.8	161	10.0	78.4	12.1	0.200	<0.1	195	1.9	1.9	83.5	277	0.8	57.2	-7.66	-42.3	+7.1
10	07/09/2012	Ca-HCO ₃	Ooikura F.	60	29.5	7.8	12.1	5.40	64.9	5.30	0.006	<0.1	23.6	<0.1	<0.1	17.8	183	0.0	45.4	-6.83	-38.9	-
11 ¹⁾	13/09/2005	Na-SO ₄	Nishikawana F.	250	23.7	8.9	557	23.2	15.8	5.40	0.240	<0.1	277	1.3	1.5	636	431	3.8	66.7	-6.95	-42.3	+41.0
12	09/10/2012	Na-Cl	Nishikawana F.	600	23.7	8.5	576	9.81	22.3	7.30	0.006	<0.1	748	<0.1	<0.1	152	190	1.9	42.6	-6.75	-38.5	+23.2
13 ¹⁾	12/09/2005	Na-Cl	Tateyama F.	1300	26.1	7.4	14800	539	2580	453	0.000	<0.1	28500	<0.1	196	<0.1	80.0	-	69.1	-5.68	-10.5	-
14	07/09/2012	Na-Cl	Tateyama F.	250	21.1	7.3	468	32.7	72.5	4.90	0.006	<0.1	711	<0.1	<0.1	90.6	169	0.0	52.4	-6.27	-35.6	-
15	27/07/2012	Na-Cl	Tateyama F.	150	34.0	6.8	2900	104	461	140	0.004	<0.1	5250	<0.1	<0.1	85.4	98.0	0.0	28.7	-5.91	-29.3	-
16	27/07/2012	Ca-HCO ₃	Tateyama F.	10	24.1	7.3	27.7	7.90	40.6	10.2	0.007	<0.1	27.2	<0.1	<0.1	45.1	154	0.0	30.6	-6.33	-35.5	-
17	07/09/2012	Na-Cl	Tateyama F.	200	27.7	7.5	6990	169	441	175	0.000	0.45	12200	<0.1	45	38.6	257	3.2	50.6	-3.86	-16.2	+30.2
18	09/10/2012	Na-Cl	Ishido F.	65	17.5	8.8	656	17.6	11.9	3.40	0.004	<0.1	546	<0.1	<0.1	18.0	835	2.6	58.9	-6.51	-37.2	-
19	09/10/2012	Na-Cl	Kutsumi F.	120	20.8	7.8	1320	76.6	111	89.7	0.008	<0.1	2070	<0.1	<0.1	300	330	2.3	30.5	-5.25	-31.2	-
Sea water ²⁾	04/03/1998			-	-	8.1	10500	380	400	1270	-	-	19000	<0.1	65.0	2650	130	4.5 ⁴⁾	-	0	0	+21.5

WT: Water temperature. ¹⁾Data from Muramatsu et al. (2012); ²⁾Data from Kondo (1991); ³⁾Drilling depth; ⁴⁾Data from Kamei (2001).

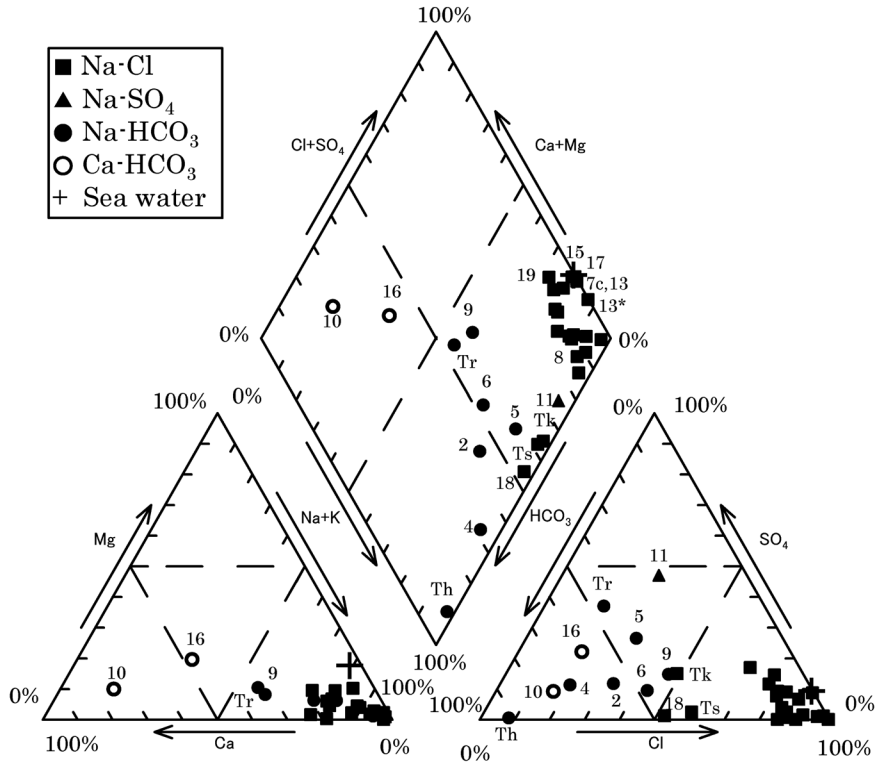


Fig. 2 Trilinear diagram for the hot spring water. The sample numbers are the same as in Fig. 1.

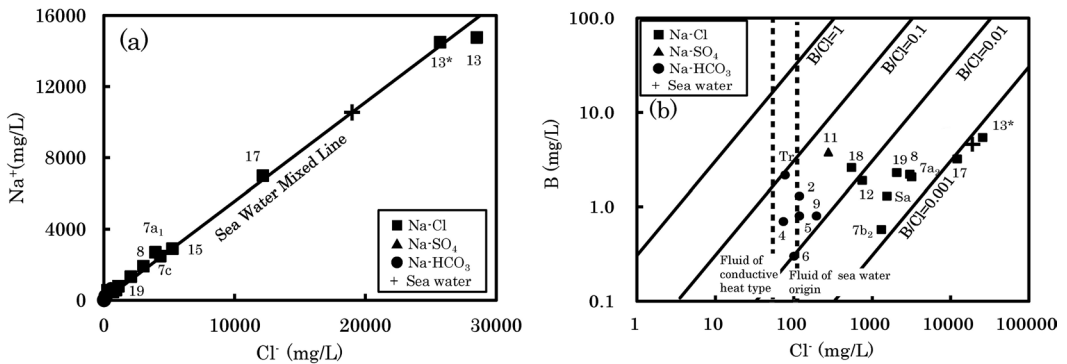


Fig. 3 Cl—Na⁺ (a) and Cl—B (b) diagrams for the hot spring water. The sample numbers are the same as in Fig. 1.



一方、館山地域の温泉 (Nos. 11, 12, 17) の $\delta^{34}\text{S}$ 値 (+23.2~+41.0‰) は高い. このうち, Na—Cl 泉 (No. 12) の $\delta^{34}\text{S}$ 値 (+23.2‰) は硬石膏 (含石膏) の溶解に由来する現海水に含まれる硫酸態硫黄の値 (+21.5‰; 酒井・大木, 1978) に近く, 硫酸態硫黄は海水に溶解した硬石膏を起源にしている. 地下生物圏の微生物は多様な電子受容体を呼吸に用いており, やや深所では SO_4^{2-} 呼吸 (硫

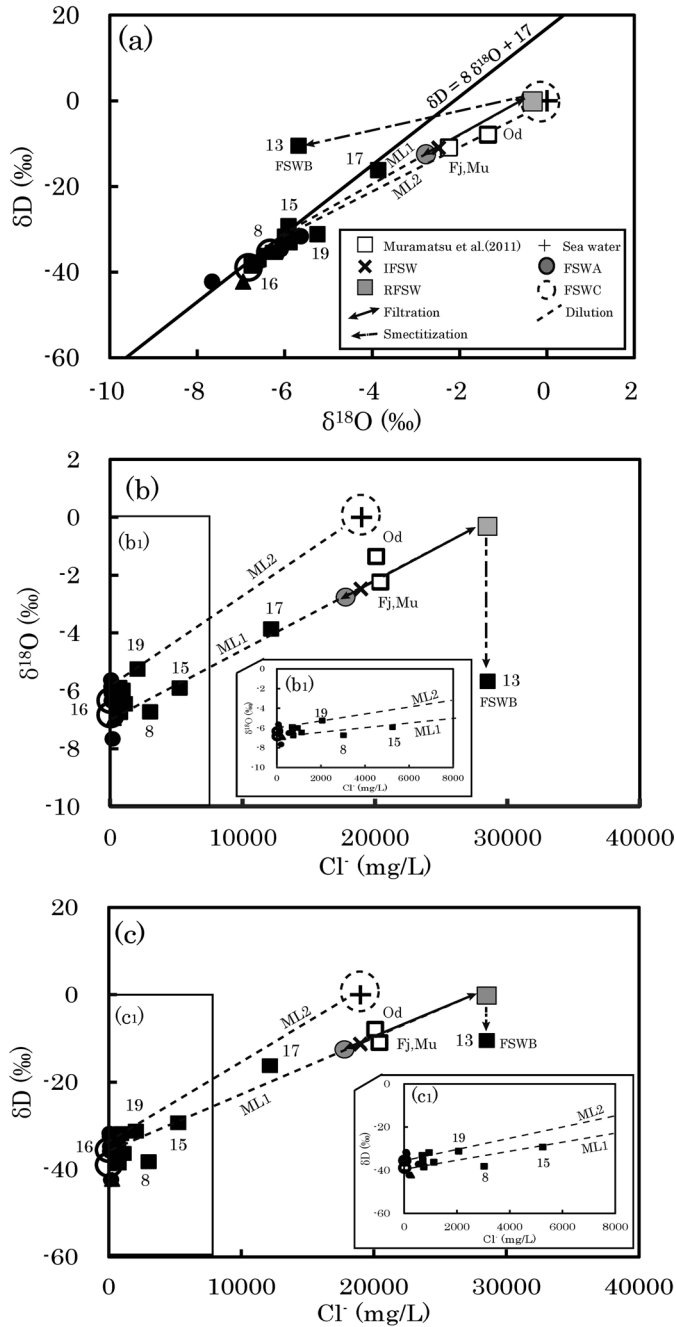


Fig. 4 $\delta^{18}O$ — δD (a), Cl^- — $\delta^{18}O$ (b) and Cl^- — δD (c) diagrams for the hot spring water. The sample numbers are the same as in Fig. 1. The FSWA, FSWB, FSWC, IFSW, RFSW show the fossil sea water of A, B, C, Initial and Residual, respectively. The ML1 and ML2 show the mixing lines of FSWA, sea water (FSWC) and meteoric water, respectively.

酸還元)が行われる(長沼, 2003). 硫酸還元菌による硫酸還元が進行すると, 温泉水に残留する SO_4^{2-} の $\delta^{34}\text{S}$ 値は次第に高くなる一方, SO_4^{2-} 濃度は低下する(永田・宮島, 2008). したがって, No. 17 では硫酸還元反応が進行し, SO_4^{2-} 濃度が検出限界以下の No. 13 では硫酸還元反応によって同イオンが消費し尽くされていることが示唆される. 以上からわかるように, 館山地域の硫酸態硫黄は硬石膏の溶解作用, 白浜地域は黄鉄鉱の酸化作用にそれぞれ主に由来している.

4.2 付加体堆積物中の間隙水の進化

4.2.1 化石海水の多様性

(1) 続成作用による化石海水の生成

海底表層付近の酸化帯では溶存酸素を用いた好気性菌による有機物の酸化が起これ, 硫酸還元帯では硫酸還元菌による分解が行われるようになる. さらに埋没が進むと, 嫌氣的硫酸還元メタン酸化によって間隙水の SO_4^{2-} が消費し尽くされた後, メタン生成菌が活発に活動するメタン生成帯に入る(長沼, 2003; 平, 2004; 藤永, 2005). このような海底堆積物中で進行する微生物による有機物の段階的酸化分解過程の検討には Cl^- — SO_4^{2-} 濃度相関図が有効である. 本地域と同じフィリピン海プレートの三浦一房総付加体(三浦層群三崎層)を貯留層にしている三浦1号泉, および前弧海盆堆積物(三浦層群池子層)および礫層をそれぞれ貯留層にしている藤沢温泉と小田原温泉の水質および安定同位体比は Muramatsu *et al.* (2011) によって報告されている. これらの強塩泉を加えた Cl^- 濃度, $\delta^{18}\text{O}$, δD 値間の相関図 (Fig. 4) および Cl^- — SO_4^{2-} 濃度相関図 (Fig. 5) を用いると, 房総半島南部の三浦一房総付加体地域に分布する Na—Cl 泉の本源流体である海底堆積物中の間隙水は, 次の化石海水に分けられる.

化石海水 A Figure 5 からわかるように, $\text{SO}_4^{2-}/\text{Cl}^-$ 当量比が 0.046 以下 (ゼロを含まない) の Na—Cl 泉群 (Nos. 1, 1b₁₋₃, 7, 7a_{1,2}, 8, 15, 17) は海水の Cl^- 濃度を下回る. Cl^- 濃度— $\delta^{18}\text{O}$, δD 値相関図をみると, 当該温泉群は本地域の隆起後に地下に涵養された降水を主とする No.16 (Ca— HCO_3 泉) と Nos. 15, 17 を結ぶ混合線 ML1 (Figs. 4b, c) 付近に分布しており, 深部流体は化石海水 (化石海水 A; FSWA と呼称) と降水起源水 (No. 16 に近い) の混合によって形成されたことが示唆される. $\text{Mg}^{2+}/\text{Cl}^-$ 当量比は 0.000~0.081 (現海水 0.195), Na^+/Cl^- 当量比は 0.850~1.097 (1 地点を除けば現海水 0.857 を上回る), $\text{Ca}^{2+}/\text{Cl}^-$ 当量比は 0.019~0.241 (当該温泉の約 7 割が現海水 0.037 を上回る) にあり, 化石海水 A は現海水より低い $\text{Mg}^{2+}/\text{Cl}^-$ 当量比と高い Na^+/Cl^- , $\text{Ca}^{2+}/\text{Cl}^-$ 当量比を概ね特徴

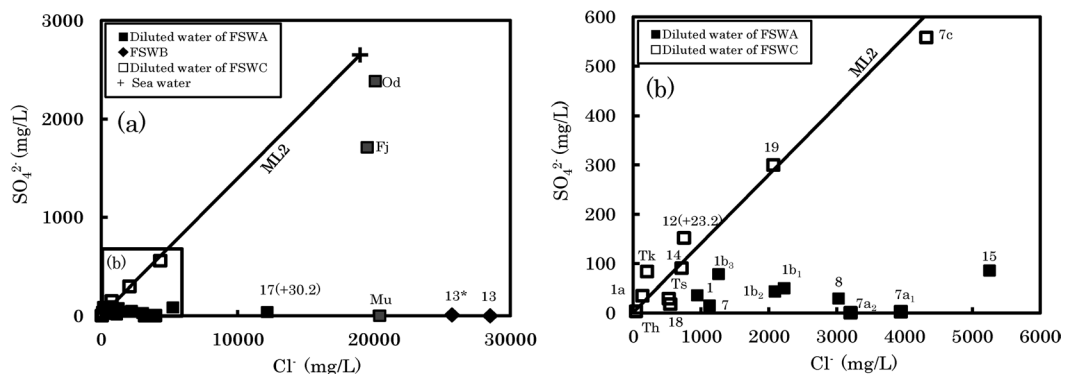


Fig. 5 Relationship between Cl^- and SO_4^{2-} concentrations in the hot spring water. The sample numbers and ML2 are the same as in Figs. 1 and 4, respectively. Od, Odawara hot spring; Fj, Fujisawa hot spring; Mu, Miura hot spring. Parenthesis shows $\delta^{34}\text{S}$ value of the water.

としている。このうち、最高 Cl^- 濃度 (12,200 mg/L) を有する No. 17 の $\delta^{34}\text{S}$ 値 (+30.2‰) は現海水 (+21.5‰) より高く SO_4^{2-} 濃度は現海水より著しく低く、化石海水 A は最下部硫酸還元帯および嫌氣的硫酸還元メタン酸化帯における深層泥質堆積物 (三浦層群西岬層塊状シルト岩の先駆物質) 中の間隙水 (海水) に由来する。

化石海水 B 海水の Cl^- 濃度をかなり上回る Nos. 13, 13* の $\text{SO}_4^{2-}/\text{Cl}^-$ 当量比はゼロを示しており (Fig. 5a), 本源の化石海水 (化石海水 B; FSWB と呼称) はメタン生成菌が活発なメタン生成帯における深層泥質堆積物の間隙水に由来する。化石海水 B (Nos. 13, 13*) の $\text{Mg}^{2+}/\text{Cl}^-$ 当量比 (0.022~0.046; 現海水 0.195) は現海水より低い一方, $\text{Ca}^{2+}/\text{Cl}^-$ 当量比 (0.105~0.160; 同 0.037) は高い。No. 13 は $\delta^{18}\text{O}-\delta\text{D}$ 値相関図で天水線の左側にプロットされる同位体異常を示し (Fig. 4a), Cl^- 濃度- $\delta^{18}\text{O}$ 値相関図で $\delta^{18}\text{O}$ 値は混合線 ML1 の外挿線から大きくマイナスシフトしている (Fig. 4b)。

(2) 後続成作用による化石海水の生成

Cl^- - SO_4^{2-} 濃度相関図によれば, Na-Cl 泉 (Nos. 7c, 12, 14, 18, 19, Tk, Ts, Od) は現海水 ($\text{SO}_4^{2-}/\text{Cl}^-$ 当量比 0.103) と降水 (原点) を結ぶ混合線 ML2 付近にプロットされ (Figs. 5), No. 12 の $\delta^{34}\text{S}$ 値 (+23.2‰) は現海水 (+21.5‰; 酒井・大木, 1978) に近いことから, これらの温泉は硫酸還元反応をほとんど経験していない。 $\text{Mg}^{2+}/\text{Cl}^-$ 当量比は 0.003~0.127 (現海水 0.195), Na^+/Cl^- 当量比は 0.887~1.948 (同 0.857), $\text{Ca}^{2+}/\text{Cl}^-$ 当量比は 0.021~0.205 (当該温泉の約 8 割が現海水 0.037 を上回る) にあり, 化石海水 (化石海水 C; FSWC と呼称) は現海水より低い $\text{Mg}^{2+}/\text{Cl}^-$ 当量比と高い Na^+/Cl^- , $\text{Ca}^{2+}/\text{Cl}^-$ 当量比を概ね有する。当該温泉群は天水線 ($\delta\text{D}=8\delta^{18}\text{O}+17$) 付近にプロットされ, 岩石との反応による酸素同位体交換は経験していても僅かに過ぎない (Fig. 4a)。当該温泉群のなかで Cl^- 濃度が高い No. 19 は Cl^- 濃度- $\delta^{18}\text{O}$ 値相関図で降水起源水 (No. 16) と現海水を結ぶ混合線 ML2 沿いに分布することを勘案すると (Fig. 4b), 化石海水 C は現海水に近い $\delta^{18}\text{O}$, δD 値を示し, 化石海水のなかで最も若い時期に貯留層に蓄えられたと推察される。

当該温泉群のなかで最高 Cl^- 濃度 (No. 7c) は 4,320 mg/L に過ぎないが, 小田原強塩泉の $\text{SO}_4^{2-}/\text{Cl}^-$ 当量比も現海水に近い (Fig. 5a; Muramatsu *et al.*, 2011)。本温泉は裸孔部の深度 403~孔底 804m 間を貯留層にしており (板寺ら, 2004), 透水性の良好な礫層を主体とする地層が地表から孔底まで分布する。温度検層曲線は下降流を示しており, 溶存酸素が深部まで礫層を通じて供給されたために本温泉の硫酸還元反応はあまり進行しなかったであろう。三浦層群西岬層が破碎構造に富むことを勘案すると (道口, 2008), 付加体形成後に基盤が隆起し, 溶存酸素が貯留層深度まで供給される衝上断層 (例えば, No. 7c は西北西-東南東性断層, No. 12 は西川名断層, No. 19 は杳見断層; Fig. 1) に海水が破碎帯を介して貯留された後に化石海水 C に変質したものと考えられる。

4.2.2 メタン生成帯における間隙水の進化

(1) スメクタイトのイオン濾過作用

圧密作用はメタン生成帯でもっとも活発に起こり, 泥岩から間隙水の大部分が抜け出す (平, 2004)。そこで, 間隙水 (初期化石海水; IFSW と呼称) が本帯の深層泥質堆積物から抜け出して, No. 13 に認められた現海水をかなり上回る Cl^- 濃度を獲得する要因を検討しよう。

Cl^- 濃度が海水よりも高くなる要因として, ①海水の蒸発濃縮 ②マグマ水 ③粘土鉱物の脱水 ④粘土鉱物の濾過効果などがあげられる (松葉谷, 1991)。このうち, 日本は乾燥ではなく多湿気候であること, および本地域の地質から, ①と②の可能性は考え難い。間隙水を封じ込める三浦層群西岬層シルト岩に含まれる主な粘土鉱物はスメクタイト (60~70%) に富むスメクタイト-イライト混合層鉱物であること (Kameda *et al.*, 2010), また加熱期間を 10 Ma, 1 Ma と仮定したビトリナイト反射率から推定された最高古地温 (それぞれ 40, 52°C; Yamamoto *et al.*, 2005) はスメクタ

イトーイライトの相転移温度 (58~142°C ; Freed and Peacor, 1989) に達していないことから, ③のスメクタイトのイライト化に伴う脱水に起因する可能性も考え難い。

三浦層群西岬層シルト岩はスメクタイトに卓越しており, 深層泥質堆積物の埋没に伴う圧力の増加に伴って, ④のスメクタイトによるイオン濾過が行われた可能性が高い。圧力が高く間隙率が低下した地下深部では負に帯電した粘土鉱物が濾材の役割を果たし, その間を流体が通過する際に Cl^- が反発を受けて濾液の Cl^- 濃度は低くなる一方, 堆積物の間隙に留まる残液の Cl^- 濃度は高くなる (Phillips and Bentley, 1987)。加圧下における NaCl 水溶液のスメクタイトによる濾過実験によれば, 残液に対して濾液の ^{18}O と D 値は乏しくなり, $\delta^{18}\text{O}$ — δD 値相関図における相関直線の傾きは 3.1 を示す (Coplen and Hanshaw, 1973)。館山断層を貯留層とする Cl^- 濃度が比較的高い Nos. 15, 17 と三浦強塩泉は $\delta^{18}\text{O}$ — δD 値, Cl^- 濃度— $\delta^{18}\text{O}$ 値, Cl^- 濃度— δD 値の相関図でほぼ直線 ML1 に沿って分布する (Fig. 4)。このうち, $\delta^{18}\text{O}$ — δD 値相関図における直線 ML1 の傾き (5.0) は濾過実験値に比較的近く (Fig. 4a), No. 13 の Cl^- 濃度はスメクタイトの濾過によって現海水を大きく上回ったと推察される。 Cl^- 濃度が現海水 (19,000 mg/L) に等しいと仮定すると, 初期化石海水の $\delta^{18}\text{O}$ 値は -2.48‰, δD 値は -11.1‰ と見積もられる (Fig. 4)。

したがって, メタン生成帯で間隙水は次のように進化すると纏められる (Fig. 4)。10 Ma 前よりフィリピン海プレート沈み込み部である海溝の南側の深海底 (約 2 km) に深層泥質堆積物が堆積する過程で海水 (初期化石海水) が間隙に封じ込められた。その後, この堆積物の埋没による圧力増加に伴いスメクタイトによる濾過作用が働き, 濾過された大部分の流体 (化石海水 A) は初期化石海水より低い Cl^- 濃度, $\delta^{18}\text{O}$, δD 値となる一方, 残渣側の間隙水 (残渣化石海水; RFSW と呼称) の Cl^- 濃度は No. 13 まで高まった。 Cl^- 濃度と $\delta^{18}\text{O}$, δD 値間の直線 ML1 の外挿線を用いると, 残渣化石海水 (Cl^- 濃度 28,500 mg/L) の $\delta^{18}\text{O}$ 値は -0.32‰, δD 値は -0.2‰ と見積もられる (Figs. 4b, c)。

(2) 異常間隙水圧の発生要因

No. 13 のような海水をかなり上回る Cl^- 濃度の残渣化石海水が, スメクタイトの濾過後も泥質堆積物の間隙に残留している。次に, この残渣化石海水を間隙から解放させるのに必要な異常間隙水圧の発生要因を考察しよう。

泥質堆積物における異常間隙水圧の発生は, 堆積物の厚い場所やプレートの収束地域に多く分布する泥火山で知られており, ①粘土鉱物などの相転移による脱水作用 ②急激な堆積作用による下位の未固結層の圧縮 ③衝上断層の発達による構造的な圧縮 ④泥質堆積物中の有機物からのガスの発生などが要因にあげられる (山縣・小川, 1989)。これらのうち, ①はスメクタイト—イライトの相転移温度に達していない (前述の③) ことから考え難く, スメクタイトの濾過が行われた後も引き続き深層泥質堆積物の埋没に伴う圧縮 (②), またはプレートの沈み込みに伴う圧縮応力場における衝上断層系の発達に伴う構造的な圧縮 (③) によって異常間隙水圧が発生した結果, 残渣化石海水は深層泥質堆積物の間隙から解放されて主要な割れ目であるデコルマンに移流したと考えるのが妥当であろう。三浦層群西岬層の泥岩層には脈状構造が発達しており, この微小変形構造はフィリピン海プレートの沈み込みに伴う大きな圧縮応力による間隙水圧の上昇によって形成された脱水構造であると考えられており (小竹, 1997), ③を支持する。

4.3 温泉の形成機構

4.3.1 深部流体の成因

深層泥質堆積物の間隙水が進化して, 多様な化石海水が形成されたことが推察された。ここでは, 約 60°C 以下にある深部流体の温度は温泉水の SiO_2 濃度によって概略把握できることから (村松ら,

2014), 温度情報を取り入れた Cl^- — SiO_2 濃度相関図を用いて, 続成期~後続成期における深部流体の形成機構を館山地域 (Fig. 1b の Nos. 11~19) と白浜地域 (Nos. 1~10) に分けて考察しよう.

(1) 館山地域

Figure 6 からわかるように, Nos. 8, 11, 13 は房総半島南部地域で最も高い SiO_2 濃度 (66.7~69.1 mg/L) を示しており, その他の温泉はこのような温度が高い深部流体と降水起源水の混合によって形成されたと考えられる. Cl^- 濃度— $\delta^{18}\text{O}$, δD 値相関図で, Cl^- 濃度がやや高い Nos. 15, 17 は降水起源水 (No. 16) と化石海水 A の混合線 ML1 付近にプロットされる (Figs. 4b, c). 化石海水 A が No. 13 の深部流体と同じ SiO_2 濃度をもつと仮定すると, この Nos. 15, 17 を結ぶ混合線 ML1 の高 SiO_2 濃度側の外挿線と Nos. 8, 11, 13 を結ぶ等 SiO_2 濃度線の交点から化石海水 A の Cl^- 濃度は 17,800 mg/L (Fig. 6a) と求められ, その時の $\delta^{18}\text{O}$, δD 値はそれぞれ -2.76%, -12.5% と見積もられる (Fig. 4). その他の温泉 (Nos. 11, 12, 14, 16, 18, 19, Ts) の Cl^- 濃度は低く SiO_2 濃度は大きく変動する (Fig. 6a).

これらの特徴に間隙水の進化を勘案すると, 館山地域の温泉をもたらしした深部流体の形成機構は次のようであったと推察される. 続成期に深層泥質堆積物中でスメクタイトによって濾過された間隙水の大部分は砂質堆積物や割れ目に化石海水 A として貯留された後, プレートの沈み込みにより形成された中・浅部館山断層に移流した. そして, 基盤隆起後の後続成期になると降水起源水による希釈が進み, Cl^- 濃度が比較的高い Na—Cl 泉の深部流体になった (Fig. 1d). 一方, 残渣化石海水は化石海水 B に進化した後に異常間隙水圧の発生によって間隙から解放され, デコルマンを経て深部館山断層に移流した. 後続成期には, 衝上断層に貯留された若い海水に由来する化石海水 C に伝導加熱した多量の降水起源水が混入することによって, Cl^- 濃度が低い温泉の深部流体が形成された.

(2) 白浜地域

Cl^- — SiO_2 濃度相関図で, Na—Cl 泉 (Nos. 1, 1a, 1b₂, 3, 7b₂, Sa) は化石海水 A の希釈が進んだ流体 (図中の X) と加熱降水起源水の混合線 ML3 ($R^2=0.826$) 付近にプロットされる (Fig. 6b). また, 炭酸塩泉 (Nos. 2, 4~6, 9) には高い正相関 (相関直線 ML4: $R^2=0.908$) が認められ, 化石海水 A の希釈流体 (図中の Y) と加熱降水起源水の混合線 ML4 付近にプロットされる. これらの特徴に間隙水の進化を勘案すると, 白浜地域の温泉をもたらしした深部流体の形成機構は次のよう

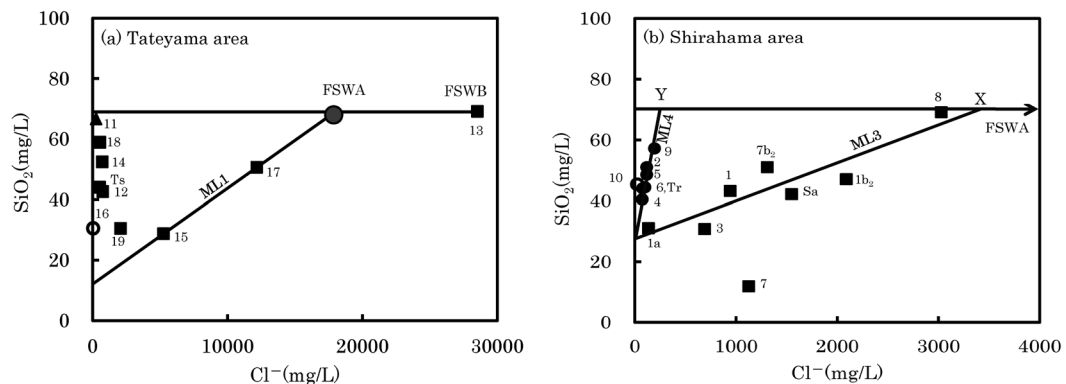


Fig. 6 Relationship between Cl^- and SiO_2 concentrations in the hot spring water. The sample numbers are the same as in Fig. 1. The ML1 is the same as in Fig. 4. The ML3 and ML4 show the mixing lines of the deep fluid of point X, Y and meteoric water, respectively.

あったと推察される。深層泥質堆積物の埋没による圧力増加に伴いスメクタイトで濾過された化石海水 A は川口断層, 大井倉断層, 川口断層南側の伏在断層などに貯留された後 (Fig. 1d), 後続成期に加熱降水起源水で希釈されて Na—Cl 泉の深部流体になった。また, 伝導加熱した降水起源水と少量の化石海水 A の混合によって炭酸塩泉の深部流体が形成された。

4.3.2 深部流体の水質形成機構

黄鉄鉱の酸化作用, 硬石膏の溶解作用と硫酸還元反応 (第 4.1 節で詳述) を除く深部流体の水質形成機構を検討しよう。温泉水に含まれる化学成分の起源を検討するにあたっては, 海水の当該成分に対する過剰・欠損量を求める必要がある。そこで, 試料の Cl^- がすべて海水起源であるとして, 次式により試料の過剰・欠損する M 成分の濃度を算出した。

$$\Delta[M] = [M] - [M/\text{Cl}]_{\text{sea}} \times [\text{Cl}] \quad (4)$$

ただし, $\Delta[M]$: 試料の過剰・欠損する M 成分量, $[M]$: 試料の M 成分の濃度, $[M/\text{Cl}]_{\text{sea}}$: 海水の Cl^- に対する M 成分の濃度比, $[\text{Cl}]$: 試料の Cl^- 濃度。

(1) 火山性物質の風化作用

白浜地域に多く分布する Na— HCO_3^- 泉の ΔNa^+ と ΔHCO_3^- 濃度は直線 $\Delta\text{Na}^+ = \Delta\text{HCO}_3^-$ 付近にプロットされ (Fig. 7a), Na^+ と HCO_3^- の濃度は火山性物質 (曹長石組成) の Na—スメクタイト化に規制される。



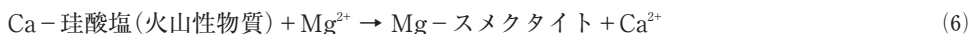
水—鉱物平衡計算プログラム「SOLVEQ」(Reed, 1982) を用いて, 泉温における深部流体の Na—スメクタイトに対する飽和指数を計算した結果, 当該温泉群の深部流体は Na—スメクタイトに過飽和状態にある (Fig. 8a)。白間津層 (Fig. 1b の No. 2 付近) の砂岩・シルト岩互層にスメクタイトが, また同層最下部のテフラ層には多量の未変質な火山ガラス中に極く少量のスメクタイトがそれぞれ確認されている (井上ら, 2002)。

(2) 火山性物質の風化作用, イオン交換反応

Na— SO_4 泉 (No. 11) は直線 $\Delta\text{Na}^+ = \Delta\text{HCO}_3^-$ より Na^+ にかなり過剰であり (Fig. 7a), この Na^+ 過剰量 ($\Phi\text{Na}^+ = 10.5 \text{ meq/L}$) は直線 $\Delta\text{Ca}^{2+} = \Delta\text{SO}_4^{2-}$ より欠損する Ca^{2+} 量 ($\Theta\text{Ca}^{2+} = -11.9 \text{ meq/L}$) の絶対値にほぼ等しい。したがって, 硬石膏の溶解と火山性物質の風化作用に加えて, 風化生成物である Na—スメクタイトと深部流体の Ca^{2+} 間に陽イオン交換反応が行われたと推察される。

(3) 火山性物質の風化作用, イオン交換反応, 方解石セメント化作用

アメリカの深海掘削計画 (DSDP) による太平洋赤道とカリブ海における深海掘削時に, 海底から深度 400 m にかけて回収したコアに含まれる間隙水の $\delta^{18}\text{O}$ 値は -3% 程度低くなり Mg^{2+} 濃度が減少する一方, Ca^{2+} 濃度が増加する傾向が認められており, 海底玄武岩の変質および海底堆積物の火山性物質の Mg—スメクタイト化に起因すると考えられている (Lawrence *et al.*, 1975)。



化石海水 A を本源流体にする Na—Cl 泉群 (Nos. 1, 1b_{1,3}, 7, 7a_{1,2}, 15, 17) および化石海水 C を本源流体にする Na—Cl 泉群 (Nos. 7c, 12, 14, 18, 19, Tk, Ts) の ΔNa^+ と ΔHCO_3^- 濃度間には正相関が認められ (Fig. 7a), Na^+ と HCO_3^- 濃度は火山性物質の Na—スメクタイト化に規制されていることがわかる。Nos. 13, 13* (化石海水 B) の ΔHCO_3^- 濃度は負 (-1.89 ~ -1.42 mg/L) を示す。これらの温泉の直線 $\Delta\text{Na}^+ = \Delta\text{HCO}_3^-$ より過剰な ΔNa^+ 量 (ΦNa^+) と ΔCa^{2+} の和 ($\Phi\text{Na}^+ + \Delta\text{Ca}^{2+}$) と ΔMg^{2+} 間に逆相関が認められる (Figs. 7b, c)。したがって, 火山性物質の Mg—スメクタイト化と Na—スメクタイト化に加えて, 風化生成物である Na—スメクタイトと間隙水の Mg^{2+} 間の陽イオン交換反応が行われた結果, Mg—スメクタイトが形成されるとともに, 深部流体の Ca^{2+} と Na^+ 濃度は増加したと推察される。当該温泉群の深部流体は Mg—スメクタイトに過飽和である (Fig. 8b)。

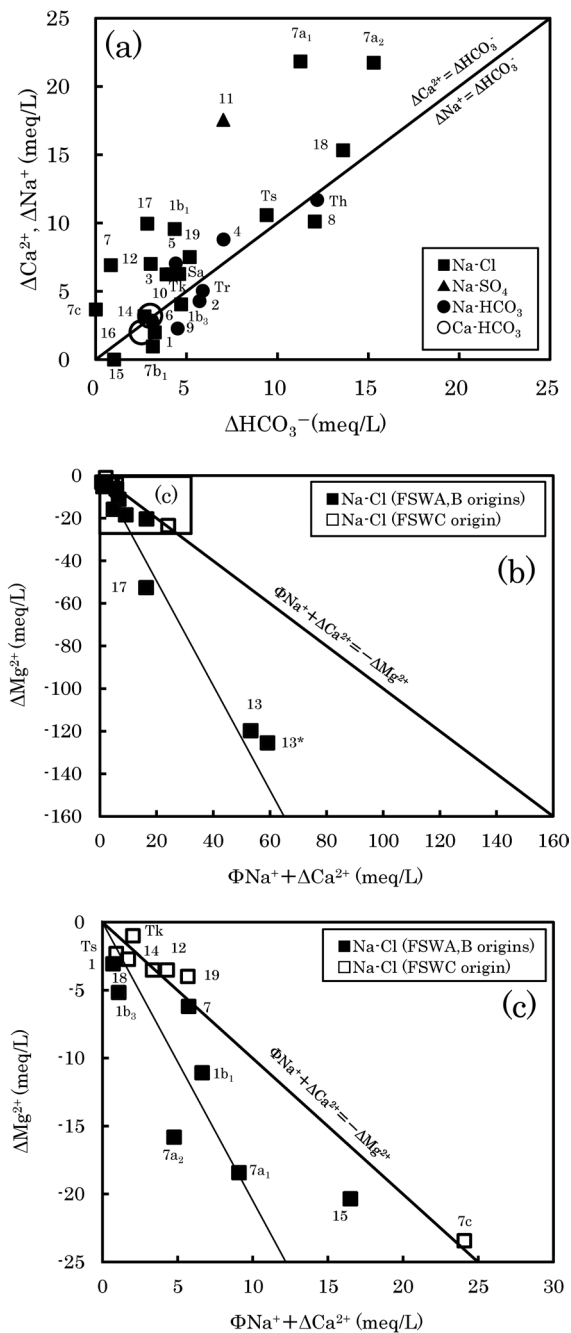


Fig. 7 $\Delta\text{HCO}_3^- - \Delta\text{Ca}^{2+}, \Delta\text{Na}^+$ (a) and $(\Phi\text{Na}^+ + \Delta\text{Ca}^{2+}) - \Delta\text{Mg}^{2+}$ (b), (c) diagrams for the hot spring water. The sample numbers are the same as in Fig. 1.

Figures 7b, c からわかるように、化石海水 A, B を本源流体にする Na—Cl 泉群 (No. 7 を除く) は直線 $\Phi\text{Na}^+ + \Delta\text{Ca}^{2+} = -\Delta\text{Mg}^{2+}$ より $\Phi\text{Na}^+ + \Delta\text{Ca}^{2+}$ にかなり欠損する。この欠損は、メタン生成帯で微生物による有機物の分解によって高められた深層泥質堆積物中の間隙水の HCO_3^- (平, 2004)

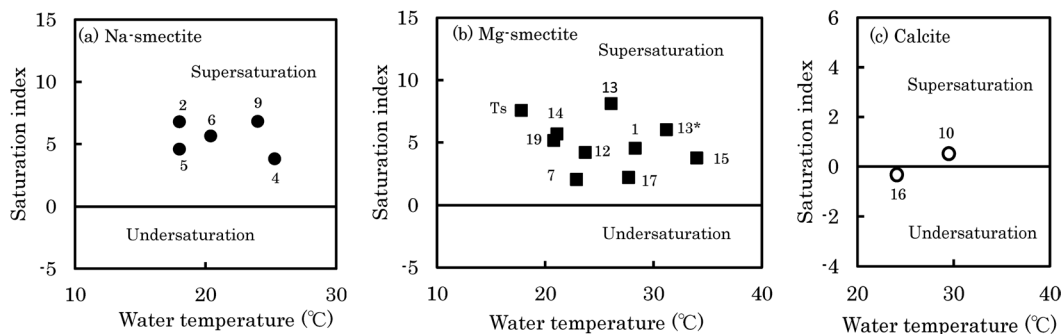


Fig. 8 Water temperature versus saturation index for the deep fluids. (a) Na-smectite (b) Mg-smectite (c) Calcite. The sample numbers are the same as in Fig. 1.

が Ca^{2+} と反応して方解石セメントが析出したことにより生じたと考えられる。三浦層群は深海底で堆積したにもかかわらず、淘汰の著しく悪い凝灰質砂岩を基質とした礫岩層を挟む場合がある。泥岩の角礫・亜角礫を主体とする礫は炭酸塩鉱物（方解石・ドロマイト・菱鉄鉱）で置換されて著しく固化していることが多く（小竹, 1997）、この炭酸塩鉱物はメタン生成帯の泥岩におけるセメント析出の類似例であろう。これらの結果から、深層泥質堆積物の間隙水は次のプロセスで化石海水 A, B に進化したと推察される。間隙水は火山性物質の Mg-ス멕タイト化に伴って海水に比して Ca^{2+} 濃度に過剰となった。その後、火山性物質の海底風化生成物である Na-ス멕タイトと間隙水の Mg^{2+} の陽イオン交換反応が進んだ結果、間隙水の Ca^{2+} と Na^+ 濃度は増加し、そのうち Ca^{2+} の一部が間隙水の HCO_3^- と反応して方解石セメントを析出した。したがって、当該温泉群の本源流体である間隙水は、堆積物が埋没する過程で有機物の酸化分解、圧密、セメント化作用を受けて化石海水 A, B に進化していることがわかる。

一方、Fig. 7c からわかるように、化石海水 C を本源流体にする Na-Cl 泉群（Ts を除く）はほぼ直線 $\Phi\text{Na}^+ + \Delta\text{Ca}^{2+} = -\Delta\text{Mg}^{2+}$ 付近にプロットされる。当該温泉群の深部流体は基盤隆起後に、三浦層群西岬層シルト岩に発達した衝上断層に貯留された化石海水 C が降水で希釈されて形成されたものである（第 4.2 節）。

No. 13 は $\delta^{18}\text{O}$ — δD 値相関図で天水線の左側にプロットされる同位体異常を示している（Fig. 4a）。メタン生成帯におけるス멕タイトの濾過で深層泥質堆積物の間隙に留まった残渣化石海水の Cl^- 濃度 (28,500 mg/L) は No. 13 まで高められており、 $\delta^{18}\text{O}$ 値は -0.32% と見積もられた (Figs. 4a, b)。No. 13 の $\delta^{18}\text{O}$ 値 (-5.68%) はこの値より大きくマイナスシフトしており、間隙水が火山性物質と反応して多量の Mg-ス멕タイトを生成した結果、 Mg^{2+} に乏しく Ca^{2+} に富む化石海水 B が形成されたと推察される (Fig. 4b)。したがって、No. 13 の同位体異常は、 $\delta^{18}\text{O}$ に富む Mg-ス멕タイトの形成に伴って残渣化石海水の $\delta^{18}\text{O}$ 値がマイナスシフト化したことに起因する (Laurence *et al.*, 1975 ; Matsuhisa and Matsumoto, 1985)。初期化石海水の $\delta^{18}\text{O}$ 値 (-2.48%) が現海水よりマイナスシフトしている理由も同様であろう (Fig. 4)。

(4) 方解石の溶解作用

掘削深度が浅い Ca- HCO_3 泉 (Nos. 10, 16) の ΔCa^{2+} と ΔHCO_3^- 濃度は直線 $\Delta\text{Ca}^{2+} = \Delta\text{HCO}_3^-$ 付近に分布しており (Fig. 7a)、 Ca^{2+} と HCO_3^- 濃度は方解石の溶解反応によって規制されている。



両温泉の深部流体は方解石にほぼ飽和している (Fig. 8c)。本地域の陸化後に降水が地下に浸透し

ていく過程で、三浦層群西岬層シルト岩中の方解石 (Kameda *et al.*, 2010) や千倉層群・豊房層群の石灰質ナノ化石・浮遊性有孔虫化石 (小竹ら, 1995) などを溶解して深部流体になったと考えられる。

5. ま と め

千葉県房総半島南部のフィリピン海プレートの沈み込みに伴って形成された三浦一房総付加体地域に分布する温泉水の主成分と安定同位体比を分析し、地質構造・地史を踏まえて、続成期における付加体堆積物中の間隙水の進化および基盤隆起後の後続成期における温泉の形成機構を検討し、以下の結果が得られた。

(1) 泉質は Na—Cl 型が過半を占める。ほとんどの温泉は天水線に沿ってほぼ分布するが、Cl⁻濃度が海水をかなり上回る強塩泉 (No. 13) は天水線の左側にプロットされる同位体異常を示す。SO₄²⁻に富む温泉水の δ³⁴S 値は -0.2~+41.0‰ を示し、硫酸態硫黄が硬石膏 (含石膏) の溶解作用と黄鉄鉱の酸化作用に由来するとともに、硫酸還元反応の進行を示唆する。三浦層群西岬層には東西走向の衝上断層 (館山断層) が推定され、Na—Cl 型深部流体の主要貯留層になっている。

(2) SO₄²⁻/Cl⁻当量比と δ¹⁸O, δD 値によれば、Na—Cl 泉の本源である化石海水は 3 種からなる。化石海水 A (SO₄²⁻/Cl⁻当量比が 0.046 以下) は最下部硫酸還元帯・嫌氣的硫酸還元メタン酸化帯、化石海水 B (同比がゼロ) はメタン生成帯における深層泥質堆積物の間隙水にそれぞれ由来する。さらに、基盤隆起後に三浦層群西岬層の衝上断層に貯留された若い化石海水 C (現海水に近い同比) が混在する。

(3) 高 Cl⁻濃度・同位体異常を示す強塩泉 (No. 13) をもたらした化石海水 B の生成は、次のような続成期における間隙水の進化によって説明される。メタン生成帯にある深層泥質堆積物中の間隙水 (初期化石海水) は埋没深度の増加に伴う加重圧によりスメクタイトの濾過を受けて Cl⁻濃度、δ¹⁸O, δD 値が初期化石海水より低い化石海水 A となり、館山断層に移流した。一方、堆積物の間隙に残留した Cl⁻濃度、δ¹⁸O, δD 値が初期化石海水を上回る残渣化石海水は多量の火山性物質の Mg—スメクタイト化に伴い Ca²⁺に富む化石海水 B に進化した後、最終的に異常間隙水圧の発生によって解放されてデコルマンを経て館山断層に移流した。したがって、No. 13 の同位体異常は、多量の δ¹⁸O に富む Mg—スメクタイトの形成に伴う残渣化石海水の δ¹⁸O 値の著しいマイナスシフト化に起因する。

(4) 続成期～後続成期に、化石海水 A は館山地域では館山断層、白浜地域では川口断層などを上昇した後にそれぞれ降水起源水と混合し、Na—Cl 泉の深部流体になった。後続成期には、海水が館山地域の三浦層群西岬層の衝上断層に貯留された後に変質した若い化石海水 C が降水起源水に混入し、炭酸塩泉などの低 Cl⁻濃度の深部流体が形成された。

(5) Na—Cl 泉は火山性物質の風化作用、硬石膏の溶解作用、硫酸還元反応、イオン交換反応、方解石セメント化作用 (化石海水 C 関与の温泉を除く)、Na—SO₄ 泉は硬石膏の溶解作用、イオン交換反応、火山性物質の風化作用、Na—HCO₃ 泉は火山性物質の風化作用、黄鉄鉱の酸化作用、方解石の溶解作用、Ca—HCO₃ 泉は方解石の溶解作用にそれぞれ規制される。

謝 辞

本研究を遂行するにあたり、温泉所有者各位には温泉水の採取に便宜を図られた。2 名の査読者には懇切丁寧なご指摘を頂き、また東京理科大学の片山秀雄氏、山野 恭氏、谷口無我氏には安定同位体分析などにご協力頂いた。以上の方々に深甚なる謝意を表する。

引用文献

- 相川嘉正 (1991) : 千葉県の温泉の化学—温泉およびガス田付随水の化学成分—. 温泉科学, **42**, 22-34.
- 相川嘉正, 加藤尚之, 塚本邦子 (1981) : 千葉県内温泉, 鉱泉の地球化学的研究. 東邦大学教養紀要, **13**, 112-121.
- Appelo, C.A.J. and Postma, D. (2005) : *Geochemistry, groundwater and pollution*. 2nd edition, p. 649, Balkema, Leiden.
- Chester, F.M., Rowe, C., Ujiie, K., Kirkpatrick, J., Regalla, C., Remitti, F., Moore, J.C., Toy, V., Wolfson-Schwehr, M., Bose, S., Kameda, J., Mori, J., Brodsky, E.E., Eguchi, N., Toczko, S., Expedition 343 and 343T Scientists (2013) : Structure and composition of the plate-boundary slip zone for the 2011 Tohoku-Oki earthquake. *Science*, **342**, 1208-1211.
- Coplen, T.B. and Hanshaw, B.B. (1973) : Ultrafiltration by a compacted clay membrane-I. Oxygen and hydrogen isotopic fractionation. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **37**, 2295-2310.
- Freed, R.L. and Peacor, D.R. (1989) : Variability in temperature of the smectite/illite reaction in Gulf Coast sediments. *Clay Minerals*, **24**, 171-180.
- 藤永太一郎 (2005) : 海と湖の化学 微量元素で探る. p. 560. 京都大学術出版会, 京都.
- Fulton, P.M., Brodsky, E.E., Kano, Y., Mori, J., Chester, F.M., Ishikawa, T., Harris, R.N., Lin, W., Eguchi, N., Toczko, S., Expedition 343, 343T, and KR13-08 Scientists (2013) : Low coseismic friction on the Tohoku-Oki fault determined from temperature measurements. *Science*, **342**, 1214-1217.
- 古屋 裕, 伊藤谷生, 佐藤比呂志, 平田 直, 駒田希充, 津村紀子, 浅尾一巳, 荒井良祐, 半場康弘 (2009) : 反射法地震探査による房総半島南西部内房沿岸の浅部地下構造. 地震研究所彙報, **84**, 307-329.
- 犬山文孝, 島田寛一, 鴫田洋行, 横井浩一 (1999) : 地熱発電所環境保全実証調査 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.
- 板寺一洋, 菊川城司, 代田 寧 (2004) : 足柄平野沿岸部の深部塩水の酸素・水素同位体比と水質組成. 神奈川県温地研報告, **36**, 43-46.
- 井上厚行, 小竹信宏, 坂庭康友, 今井 亮 (2002) : 千葉県房総半島南端の千倉層群白浜層 (上部鮮新統) に発達するゼオライト脈. 地質学雑誌, **108**, 465-473.
- 地震調査研究推進本部 (2014) : 「相模トラフ沿いの地震活動の長期評価 (第二版) について」. 地震調査会, 83 p. http://www.jishin.go.jp/main/chousa/kaikou_pdf/sagami_2.pdf (2014.7.23 閲覧).
- Kameda, J., Yamamoto, Y. and Kimura, G. (2010) : Smectite swelling in the Miura-Boso accretionary prism : Possible cause for incipient décollement zone formation. *Tectonophysics*, **494**, 75-84.
- 亀井玄人 (2001) : 茂原ガス田の地下水に含まれるヨウ素の起源と挙動. 資源地質, **51**, 145-151.
- 川上俊介 (2001) : 房総半島南部の上部中新統西岬層および石堂層群から産出する放散虫化石とその地質学的意義. 大阪微化石研究会誌, 特別号, **12**, 343-358.
- 近藤精造 (1991) : 千葉県の温泉と地質. 温泉科学, **42**, 35-40.
- 小竹信宏 (1988) : 房総半島南端地域の海成上部新生界. 地質学雑誌, **94**, 187-206.
- 小竹信宏 (1997) : 安房地域の地質. 千葉県史料研究財団編「千葉県の自然誌 本編2 千葉県の大地 県史シリーズ41」, 101-127. 千葉県, 千葉.

- 小竹信宏, 井上厚行 (2004): 房総半島南端の鮮新統トラフ充填堆積物とゼオライト脈. 日本地質学会第 111 年学術大会見学旅行案内書, 93-108.
- 小竹信宏, 小山真人, 亀尾浩司 (1995): 房総半島南端地域に分布する千倉・豊房層群 (鮮新—更新統) の古地磁気および微化石層序. 地質学雑誌, **101**, 515-531.
- Lawrence, J.R., Gieskes, J.M., and Broecker, W.S. (1975): Oxygen isotope and cation composition of DSDP pore waters and the alteration of layer II basalts. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **27**, 1-10.
- 間嶋隆一, 棚瀬節子, 内村竜一, 本目貴史 (1992): 房総半島南端新第三系からシロウリガイ (*Calyptogena* sp.) の発見. 地質学雑誌, **98**, 373-376.
- 松葉谷 治 (1991): 熱水の地球化学. p. 139. 裳華房, 東京.
- Matsuhisa, Y and Matsumoto, R. (1985): Oxygen isotope ratios of interstitial waters from the Nankai trough and the Japan trench, Leg 87. In Kagami, H., Karig, D.E. Coulbourn, W. C., *et al.*, *Init. Repts. DSDP*, **87**, 853-856.
- 道口陽子 (2008): 房総半島南部, 西岬層で観察される混在岩体の形成プロセスとメカニズム. 地質学雑誌, **114**, 461-473.
- 三ヶ田 均, 家長将典, 後藤忠徳, 笠谷貴史 (2006): 南海トラフにおける間隙水挙動に関する研究の現状と間隙水圧観測の意義. 地学雑誌, **115**, 367-382.
- Muramatsu Y., Nakamura, Y., Sasaki J. and Waseda A. (2011): Hydrochemistry of the groundwaters in the Izu collision zone and its adjacent eastern area, central Japan. *Geochem. J.*, **45**, 309-321.
- 村松容一, 山野 恭, 千葉 仁, 奥村文章 (2014): 糸魚川—静岡構造線活断層帯中部 (牛伏寺断層付近) における温泉の水質および安定同位体比とその地質鉱物学的解釈. 温泉科学, **64**, 4-23.
- 村松容一, 濱井昂弥, 山野 恭, 千葉 仁, 早稲田 周 (2012): 千葉県房総半島および茨城県南東部における非火山性温泉の水質および安定同位体比とその地質鉱物学的解釈. 温泉科学, **62**, 112-134.
- 村松容一, 大平 孟, 片山秀雄, 千葉 仁, 早稲田 周 (2013): 足尾山地, 赤城火山, 利根川中流低地帯における温泉の水質および安定同位体比とその地質鉱物学的解釈. 温泉科学, **63**, 118-140.
- 長沼 毅 (2003): 地下生物圏の自然史. 資源地質学会編「資源環境地質学—地球史と環境汚染を読む—」, 239-246. 資源地質学会, 東京.
- 永田 俊, 宮島利宏 (2008): 流域環境評価と安定同位体—水循環から生態系まで—. 207-230. 京都大学学術出版会, 京都.
- 中尾誠司, 小竹信宏, 新妻信明 (1986): 房総半島南部石堂地域の地質. 静岡大地球科学研報, **12**, 209-238.
- 成瀬 洋, 杉村 新, 小池 清 (1951): 房総半島南端—新第三紀層—. 地質学雑誌, **57**, 511-525.
- Phillips, F.M. and Bentley, H.W. (1987): Isotopic fractionation during ion filtration: I. Theory. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **51**, 683-695.
- Reed, M.H. (1982): Calculation of multicomponent chemical equilibria and reaction processes in systems involving minerals, gases, and an aqueous phase. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **46**, 513-528.
- 斎藤敬二, 岡田 誠, 亀尾浩二, 小竹信宏 (1997): 房総半島南端千倉層群の古地磁気層序. 日本地質学会学術大会講演要旨 104, p. 112.

- 斎藤実篤 (1992) : 房総半島南部の新生界の層位学的研究. 東北大地質古生物研報, **93**, 1-37.
- 酒井 均, 大木靖衛 (1978) : 日本の温泉. 科学, **48**, 41-52.
- 佐藤賢司 (1997) : 温泉. 千葉県史料研究財団編「千葉県の自然誌 本編2 千葉県の大地 県史シリーズ41」, 597-611. 千葉県, 千葉.
- 平 朝彦 (2004) : 地層の解説. p. 441, 地質学2, 岩波書店, 東京.
- 高橋雅紀 (2008) : 南房総地域. 日本地質学会編「日本地方地質誌3 関東地方」, 175-187. 朝倉書店, 東京.
- Ujiiie, K., Tanaka, H., Saito, T., Tsutsumi, A., Mori, J., Kameda, J., Brodsky, E.E., Chester, F.M., Eguchi, N., Toczko, S., Expedition 343 and 343T Scientists (2013) : Low coseismic shear stress on the Tohoku-Oki megathrust determined from laboratory experiments. *Science*, **342**, 1211-1214.
- 山縣 毅, 小川勇二郎 (1989) : 混在岩の形成における泥ダイアピリズムの役割. 地質雑, **95**, 297-310.
- Yamamoto, Y. (2006) : Systematic variation of shear-induced physical properties and fabrics in the Miura-Boso accretionary prism : The earliest processes during off-scraping. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **244**, 270-284.
- Yamamoto, Y., Mukoyoshi, H. and Ogawa, Y. (2005) : Structural characteristics of shallowly buried accretionary prism: Rapidly uplifted Neogene accreted sediments on the Miura-Boso Peninsula, central Japan. *Tectonics*, **24**, TC5008.
- 吉村尚久編著 (2001) : 粘土鉱物と変質作用. p. 293, 地学双書32, 地学団体研究会, 東京.