



原 著

関東平野中央部における塩化物泉の水質形成機構
—続成変質による間隙水の進化—

村松容一^{1)*}, 谷口無我²⁾, 大場 武²⁾

(平成 27 年 9 月 14 日受付, 平成 27 年 12 月 3 日受理)

Fluid Formation Mechanism of Deep Chloride Hot Spring
Waters from the Central Kanto Plain, Central Japan
—Diagenetic Evolution of Pore Water Trapped
in the Kazusa and Annaka-Awa Groups—

Yoichi MURAMATSU^{1)*}, Muga YAGUCHI²⁾ and Takeshi OBA²⁾

Abstract

Chemical and stable isotopic ($\delta^{18}\text{O}$, δD) compositions of the ten non-volcanic chloride hot spring waters in the Central Kanto Plain, Central Japan, were analyzed to clarify the diagenetic evolutions of pore water in the Kazusa and Annaka-Awa Groups. The chloride spring waters originate through mixing of fossil sea waters with local meteoric water. The fossil sea waters with lower contents of Mg^{2+} and SO_4^{2-} and higher contents of Ca^{2+} and Na^+ than those of the present sea water, have two kinds of different $\delta^{18}\text{O}$ value. B and K^+ contents in the water from the Annaka-Awa Groups are higher and lower than those of the Kazusa Group, respectively.

These chemical and $\delta^{18}\text{O}$ compositions can be reasonably explained by the following diagenetic processes: Sulphate reduction process, calcite cementation, reaction of volcanic material to form smectite, ion exchange of smectite, and smectite-illite transformation. The oxygen isotope negative shift of the fossil sea water reserved in the Kazusa Group reflects pervasive reaction of volcanic material to form smectite. Meanwhile, the oxygen isotope has positive shift of the fossil sea water reserved in the Annaka and Awa Groups, resulting from smectite-illite transformation.

Key words: Central Kanto Plain, chloride hot spring water, pore water, diagenetic evolution, Kazusa Group, Annaka and Awa Groups

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⁾東海大学理学部化学科 〒259-1292 神奈川県平塚市北金目 4-1-1. ²⁾Department of Chemistry, School of Science, Tokai University, 4-1-1 Kitakaname, Hiratsuka, Kanagawa 259-1292, Japan.

要 旨

関東平野中央部の上総層群相当層と安中・安房層群相当層を貯留母岩にする高塩泉の化学成分と酸素 ($\delta^{18}\text{O}$)・水素 (δD) 安定同位体比を分析し、埋没続成変質による海水起源の間隙水の進化の視点に立って塩化物泉の水質形成機構を検討した。本地域の塩化物泉は化石海水と $\text{Na}-\text{HCO}_3$ 型降水起源水の混合によって形成されたものであり、化学成分をみると現海水に比して Mg^{2+} と SO_4^{2-} に乏しく Ca^{2+} と Na^+ に富む特徴は両層の化石海水に共通するが、安中・安房層群相当層の化石海水の B 濃度は高く、 K^+ 濃度は低い。一方、安定同位体比をみると上総層群相当層の化石海水の $\delta^{18}\text{O}$ 値は現海水より低い、安中・安房層群相当層は高い。このような化学成分および安定同位体比の特徴は、両層に閉じ込められた海水が埋没続成変質を受けて、次のように進化することによって合理的に説明される。有機物を含む海底泥質堆積物に閉じ込められた海水は埋没過程で硫酸還元反応を受けた。さらに、陸域で地下に涵養された降水が深部を側方流動する過程で火山性物質の風化作用を受けて変質した降水起源水によって種々の程度に希釈されるとともに、方解石セメント化、海底堆積物中の火山性物質および Na -スメクタイトの Mg -スメクタイト化を受けて、現海水より Mg^{2+} と SO_4^{2-} に乏しく Ca^{2+} と Na^+ に富む間隙水に進化した。その後、上総層群相当層より貯留層温度が高い安中・安房層群相当層ではスメクタイトのイライト化が進行し、間隙水の B 濃度の上昇と K^+ 濃度の低下が進んだ。上総層群相当層を貯留母岩にする化石海水における現海水に比した $\delta^{18}\text{O}$ 値のマイナスシフトは火山性物質のスメクタイト化、安中・安房層群相当層のプラスシフトはスメクタイトのイライト化にそれぞれ起因する。

キーワード：関東平野中央部、塩化物泉、間隙水、続成変質、上総層群相当層、安中・安房層群相当層

1. はじめに

関東平野中央部（東京都、埼玉県、千葉県）の地下深部には水溶性天然ガスおよび温泉資源が豊富に賦存する。東京湾周辺から房総半島にかけて古くから天然ガス資源の開発を目的とした多数のガス井が盛んに掘削され、天然ガスおよび付随水の化学組成や胚胎層準、付随水の広域流動機構などの研究が多数行われてきた（河井，1961；楡井，1980；福田ら，1988；金子ら，2010 など）。また、温泉開発を目的とした深部温泉井の掘削も盛んに行われ、深部温泉水の主成分に関する研究成果が多数報告されてきた（福田ら，1988；関ら，2001，2004；道前ら，2003 など）。これらの研究によって水質特性はかなり明らかになってきたが、地質鉱物学的視点に立って天然ガスかん水や深部温泉水の広域的な水質形成機構を研究した報告はほとんどなされていない（杉崎ら，1963）。このような現状に鑑みて、村松ら（2008）は関東平野中央部に分布する温泉を対象に、貯留母岩別に主成分特性と地下構成鉱物を把握するとともに、地質鉱物学的視点に立ち深部温泉の形成に関与した深部流体の水質形成機構を報告している。この水質形成機構の解明には主成分とともに酸素・水素安定同位体比のデータも欠かせないが、同位体比に関する研究成果は非常に少ないのが現状であり（関ら，2001）、主成分濃度および安定同位体比を総合的に説明できる水質形成機構の解明は行われていない。

水溶性天然ガス付随水を含む深部高塩泉は化石海水と降水の混合物であり、水質は化石海水に大きく支配されている。この化石海水は関東堆積盆地の海底堆積物に閉じ込められた海水（間隙水）が続成変質過程で進化したものであり、関東平野中央部に分布する塩化物泉の水質形成機構は続成作用による間隙水の進化の視点にたつて解明することが不可欠である。このような観点から、本研究では関東平野中央部に分布する高塩泉を対象に、水質および酸素・水素安定同位体比分析を実施するとともに、地殻観測井のコアに含まれる間隙水の主成分分析値（鈴木ら，1983；鈴木・高橋，1985；鈴木，1996）を加え、埋没続成変質による海水起源の間隙水の進化の視点に立って塩化物泉

の水質形成機構を検討した。なお、本論では地表で採取された温泉水を温泉水 (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。また、各温泉の名称は所在地で表す。

2. 地質概要

関東平野中央部の地質は高橋 (2006, 2008), 林ら (2004, 2006, 2008), 鈴木 (2002) などによって報告されており、高橋 (2006) および林ら (2004) による地質図および地質断面図を Fig. 1 に示す。本地域の地表には下総層群相当層と上総層群相当層 (後期鮮新世～更新世) が分布し、これらの下位には海成の安房層群相当層と安中層群相当層 (中新世) が伏在していると推定されている。このうち、安房層群相当層は房総半島の嶺岡隆起帯以北に広く露出する前弧海盆堆積物であり、以南には海溝～海溝陸側斜面堆積盆埋積物からなる三浦層群が露出する (高橋, 2008)。安中層群相当層は海成泥質堆積物と上位に重なる海退期の粗粒碎屑物からなる弧内堆積盆埋積物であり、関東平野に広く分布するが、千葉県北東部から茨城県筑波山地周辺にかけての地域には分布していない (林ら, 2004)。安房層群相当層と安中層群相当層の境界は特定されていないので、本論では安中・安房層群相当層と呼称する (林ら, 2008)。安中・安房層群相当層は先新第三系基盤岩類あるいは中新統富岡層群相当層を不整合に覆っている。

基盤岩類は花崗岩類やそれにより熱変成を受けた砂岩や頁岩など、富岡層群相当層は砂岩やシルト岩などでそれぞれ構成される (林ら, 2006, 2008)。安中・安房層群相当層は凝灰質な部分が目立つ砂岩と泥岩の互層からなり、富岡層群相当層に庭谷不整合 (約 15 Ma) で重なる。上総層群相当層は砂岩と泥岩で構成され、安中・安房層群相当層とは黒滝不整合で基底礫岩によって接しており、基底深度は船橋で約 2,000 m と最も深く、東京都心部でも 1,500 m 以上と深く、北西に向けて次第に浅くなる (Fig. 1a)。

3. 試料採取および分析方法

安中・安房層群相当層を貯留母岩にしている 10 地点の高塩泉で 2015 年 4～6 月に採水した (Fig. 1)。現地では水温、pH をカスターニー 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 2 本に採水するとともに、Fe, Al 分析用として 100 mL ポリエチレン瓶 1 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。温泉井の湧出形態は水中ポンプによる動力揚湯であった。採水は孔口付近の分岐バルブを用いた排水口で行うことを原則としたが、バルブがない場合には貯湯槽への吐出口や浴槽で実施した。なお、現地では温泉所有者より掘削深度および孔明管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。HCO₃⁻ 濃度は硫酸滴定法 (HACH 製 AL-DT) による pH4.8 アルカリ度から換算した。Na⁺, K⁺, Ca²⁺, Mg²⁺, Fe, Al³⁺, B, Si は連続光源フレーム原子吸光分析法 (Analytik Jena 製 ContrAA 700) で分析し、Na⁺, K⁺, Fe には C₂H₂-air フレームを、Ca²⁺, Mg²⁺, Al³⁺, B, Si には C₂H₂-N₂O フレームをそれぞれ使用した。F⁻, Cl⁻, SO₄²⁻ はイオンクロマトグラフ法 (Dionex 製 ICS-900) で分析した。酸素安定同位体比 (δ¹⁸O) と水素安定同位体比 (δD) はキャビティリングダウン分光法 (PICARRO 製 L-2120-i) を使用し、標準物質からの千分率偏差 (‰) で表した。

$$\delta(\text{‰}) = [R_x/R_s - 1] \times 1000 \quad (1)$$

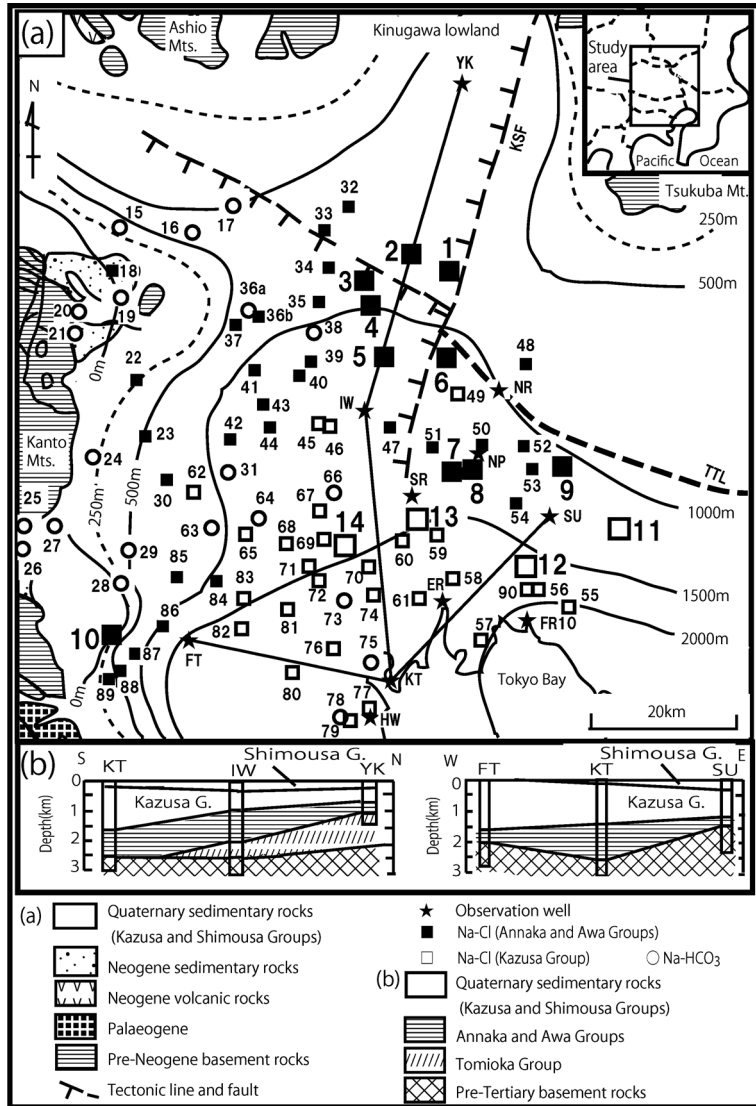


Fig. 1 Geological map of the Kanto central area (after Takahashi, 2006 ; Hayashi *et al.*, 2004 ; Suzuki, 1996 ; Suzuki and Takahashi, 1985 ; Suzuki *et al.*, 1983 ; Takahashi *et al.*, 1983 ; Tsuruta, 1994). Counters in meter indicate the depth distribution of basal boundary of the Kazusa Group from sea level (after Suzuki, 2002). TTL, Tonegawa Tectonic Line ; KSF, Karasuyama-Sugao Marsh Fault. YK, Yuki observation well ; IW, Iwatsuki observation well ; NR, Noda observation well ; NP, Nagareyama observation well ; SU, Shimousa observation well ; SR, Soka observation well ; ER, Edogawa observation well ; KT, Koto observation well ; FR, Funabashi observation well ; HW, Ohmori observation well ; FT, Fuchu observation well.

ここで、 R_x および R_s は試料および標準物質の安定同位体比をそれぞれ表す。 $^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$ 比と D/H 比の標準物質には Vienna 標準平均海水 (V-SMOW) を用い、 $\delta^{18}\text{O}$ と δD 値の測定精度はそれぞれ ± 0.05 と $\pm 0.12\text{‰}$ 程度である。

さらに, 村松ら (2008) は関東平野中央部に分布する温泉の水質組成を報告しているが, 酸素・水素安定同位体比は測定していないので, 上総層群相当層を貯留母岩にしている 4 地点の高塩泉を対象に筆者らの研究室で従来実施してきた方法で測定した. すなわち, 水試料を 0.2 μm のフィルターで濾過し, 元素分析計により酸素はガラス質炭素炉で一酸化炭素に, 水素はクロム炉で水素にそれぞれ変換した後, 質量分析計 (GV Instruments 製 Iso Prime-EA) で測定した (村松ら, 2013). $\delta^{18}\text{O}$ 値, δD 値の測定精度はそれぞれ $\pm 0.2\%$, $\pm 2.0\%$ 程度である.

本研究では, 関東平野中央部に分布する温泉の水質および酸素・水素安定同位体組成に関する多くの公表論文 (関ら, 2001, 2004; 村松ら, 2008, 2013; 道前ら, 2003 など), および入手できた温泉分析書を加えて全域を網羅した 90 地点を対象に解析を実施した (Appendix 1). さらに, 野田 (NR), 流山 (NP), 草加 (SR), 船橋 (FR), 江戸川 (ER), 大森 (HW) の各天然ガス観測井に産する付随水 (杉崎ら, 1963; 福田ら, 1988), および府中 (FT), 江東 (KT), 下総 (SU) の各地殻観測井の掘削時に回収されたコアに含まれる間隙水の主成分分析値 (鈴木ら, 1983; 鈴木・高橋, 1985; 鈴木, 1996) も検討に加えた.

4. 結果および考察

4.1 塩化物泉の起源

4.1.1 温泉水の主成分および同位体組成

温泉水の化学分析結果を村松ら (2008) の分析値と併せて Table 1 に, 入手できた温泉水および間隙水の分析値 (Appendix 1) 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. 温泉井のなかには孔底深度が 2,000 m に達するものもあるが, 1,500 m 前後がもっとも多く, 深度 800~1,000 m まで遮水管が挿入されていることから, 採水された深部流体はこれ以深の安中・安房層群相当層と上総層群相当層の層状型 (岩相規制型) 貯留層に賦存していると判断され (Fig. 1; 村松ら, 2008), 上総層群相当層では基底礫岩が貯留母岩になっている温泉が多い (Nos. 13, 58, 65, 66, 76 など). 本研究では塩化物泉の水質形成機構に大きく関わる炭酸塩泉 ($\text{Na}-\text{HCO}_3$ 型) も検討の対象に加えており (Fig. 2), このタイプは関東山地およびその周辺に主に分布している (Fig. 1). 海水と降水の混合物からなる塩化物泉の多くは海水希釈線より Na^+ に過剰であり (Fig. 3a), 塩化物泉の SO_4^{2-} 濃度は低く, 未検出のものが大半を占める (Fig. 3b). B/Cl^- モル比は貯留母岩によって異なり, 安中・安房層群相当層を貯留母岩にする塩化物泉は上総層群より大きい傾向を示している (Fig. 3c).

4.1.2 塩化物泉の起源

(1) 安中・安房層群相当層を貯留母岩にする塩化物泉

安中・安房層群相当層を貯留母岩にする塩化物泉 (Nos. 1~10) のなかで, Cl^- 濃度が高い高塩泉 (Nos. 6~8) の $\text{Mg}^{2+}/\text{Cl}^-$ 当量比 (0.044~0.068), $\text{SO}_4^{2-}/\text{Cl}^-$ 当量比 (0.000), K^+/Cl^- 当量比 (0.005~0.007) は現海水 ($\text{Mg}^{2+}/\text{Cl}^-$ 当量比 0.205, $\text{SO}_4^{2-}/\text{Cl}^-$ 当量比 0.101, K^+/Cl^- 当量比 0.018) より低い一方, $\text{Ca}^{2+}/\text{Cl}^-$ 当量比 (0.066~0.078) は現海水 (同 0.037) よりやや高く, Na^+/Cl^- 当量比 (0.831~0.911) も現海水 (同 0.859) と同程度ないしやや高い. 塩化物泉はこのような水質特性をもった変質海水 (化石海水) と降水が混合したものである.

温泉水の $\delta^{18}\text{O}$, δD 値, Cl^- 濃度間の関係を関ら (2001) のデータと併せて Fig. 4 に示す. 関東山地の基盤岩および安中・安房層群相当層を貯留母岩にする $\text{Na}-\text{HCO}_3$ 泉 (Nos. 25, 26, 36, 38; 関ら, 2001) は天水線 ($\delta\text{D}=8 \delta^{18}\text{O}+15$) 付近にプロットされ, 関東山地などの高標高域で涵養された降水を起源にしている (Fig. 4a). Nos. 1~10 地点に $\text{Na}-\text{HCO}_3$ 泉を加えた相關直線 (混合線

Table 1 Chemical composition of the spring waters.

No.	Locality	Depth (m)	Sampling date	Reservoir	WT (°C)	pH	EC (mS/cm)	Na ⁺ (mg/L)	K ⁺ (mg/L)	Ca ²⁺ (mg/L)	Mg ²⁺ (mg/L)	Al ³⁺ (mg/L)	Fe (mg/L)	Cl ⁻ (mg/L)	SO ₄ ²⁻ (mg/L)	HCO ₃ ⁻ (mg/L)	B (mg/L)	SiO ₂ (mg/L)	δ ¹⁸ O (‰)	δD (‰)	
1	Bando	1500	5/19/2015	AG	35.1	7.5	15.3	2430	56.1	183	96.7	<0.1	3.4	4950	<0.1	201	4.2	74.1	-6.58	-44.6	
2	Sakai	1454	5/19/2015	AG	50.6	7.2	30.4	6290	136	504	73.2	<0.1	0.5	11000	<0.1	105	25.1	60.8	-4.47	-31.4	
3	Satte	1500	5/11/2015	AG	38.8	7.4	29.1	6050	70.9	473	56.2	<0.1	5.2	10200	<0.1	128	31.8	36.7	-4.45	-33.3	
4	Sugito	1500	5/11/2015	AG	46.4	7.3	22.1	4080	60.6	415	135	<0.1	2.1	7450	<0.1	334	15.3	39.7	-5.71	-39.2	
5	Kasukabe	1500	5/11/2015	AG	41.4	7.4	29.5	5780	72.1	544	187	<0.1	2.8	10400	<0.1	231	18.2	43.5	-3.97	-28.6	
6	Noda	1243	4/24/2015	AG	40.3	6.8	34.3	7210	67.8	540	187	7.4	4.1	12200	2.4	161	16.8	15.9	-2.77	-21.5	
7	Misato-1	1300	5/1/2015	AG	38.4	7.4	34.4	6630	101	503	286	<0.1	3.5	12300	<0.1	244	6.7	62.5	-3.37	-21.1	
8	Misato-2	1500	4/21/2015	AG	43.3	7.3	34.9	7340	79.2	481	284	0.1	4.8	13000	<0.1	214	12.0	47.1	-1.81	-15.5	
9	Kashiwa	1800	5/8/2015	AG	40.3	7.4	32.8	7210	32.2	411	129	<0.1	1.4	11800	<0.1	199	48.4	51.8	+0.05	-8.7	
10	Hachioji	1500	6/1/2015	AG	35.7	8.0	25.2	5160	6.3	552	54.1	<0.1	0.5	8820	1.7	50.0	4.4	18.1	-2.44	-20.2	
11 ^{*1}	Imzai	1500	7/22/2005	KG	39.3	7.3	41.0	10100	629	319	212	<0.1	1.8	17600	56.5	617	-	82.2	-2.38	-5.1	
12 ^{*1}	Funabashi	1500	12/12/2005	KG	30.0	7.5	44.9	12700	799	648	137	3	1.5	21700	47.5	332	-	90.0	-2.92	-2.9	
13 ^{*1}	Adachi	1300	7/26/2005	KG	28.3	7.4	39.5	11700	498	761	131	1.2	1.1	20100	190.6	260	-	89.9	-2.84	-8.6	
14 ^{*1}	Iiabashi	1500	9/22/2005	KG	29.4	7.8	28.0	7600	249	1314	115	0.1	2.5	14900	0.0	224	-	82.2	-4.29	-11.4	
	Sea water ^{**2}					8.4		11000	391	410	1390			19800	2690	150					

WT, Water temperature ; EC, Electric conductivity ; AG, Annaka and Awa Groups ; KG, Kazusa Group. ^{*1}Data from Muramatsu *et al.* (2008), ^{**2}Data from Imahashi *et al.* (1996).

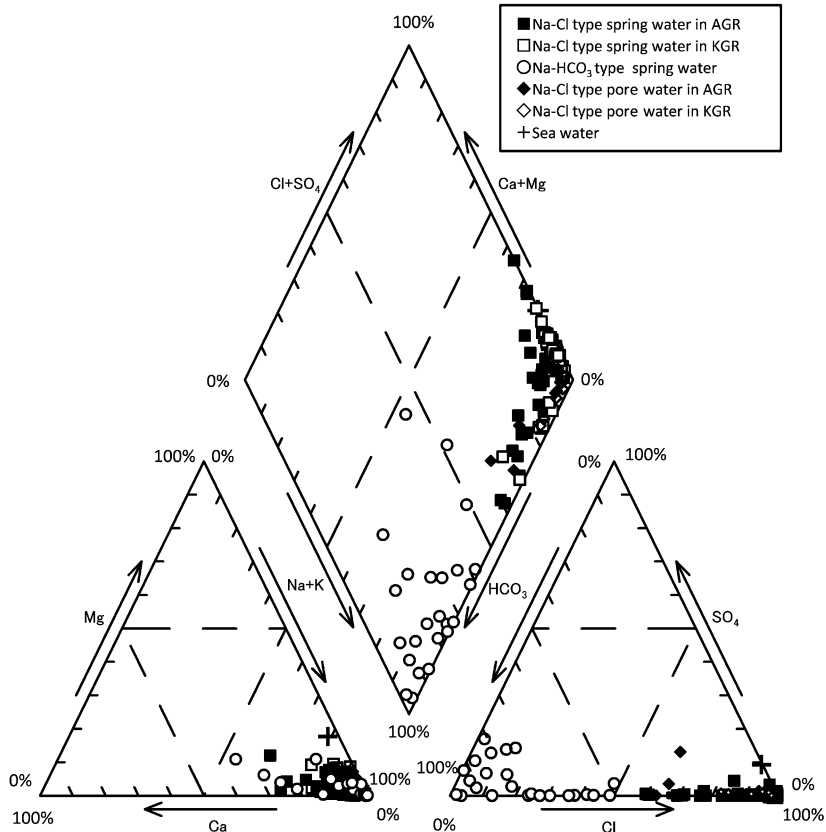


Fig. 2 Trilinear diagram for the spring waters. The sample numbers are the same as in Fig. 1. AGR, Reservoir rock in the Annaka and Awa Groups ; KGR, Reservoir rock in the Kazusa Group.

ML1)には正相関が認められ, Cl^- 濃度が現海水 (19,800 mg/L) に等しいと仮定した化石海水 (化石海水1と呼称) の $\delta^{18}\text{O}$, δD 値はそれぞれ +1.90 (Fig. 4b), +5.4‰ (図は割愛) と見積もられ, 塩化物泉の深部流体は $\delta^{18}\text{O}$ 値が現海水よりプラスシフトした化石海水1と Na- HCO_3 型降水起源水の混合によって形成されたと推察される。

(2) 上総層群相当層を貯留母岩にする塩化物泉

上総層群相当層を貯留母岩にする塩化物泉 (Nos. 11~14) のなかで, Cl^- 濃度が高い高塩泉 (Nos. 12, 13) の $\text{Mg}^{2+}/\text{Cl}^-$ 当量比 (0.018~0.019), $\text{SO}_4^{2-}/\text{Cl}^-$ 当量比 (0.002~0.007) は現海水よりかなり低い一方, $\text{Ca}^{2+}/\text{Cl}^-$ 当量比 (0.053~0.067) と Na^+/Cl^- 当量比 (0.897~0.905) は現海水よりやや高く, 化石海水1に似た成分の特徴をもった化石海水が関与しているが, K^+/Cl^- 当量比 (0.022~0.033) は現海水よりやや高い。 $\delta^{18}\text{O}$ 値と δD 値の関係図 (Fig. 4a) をみると, 上総層群相当層を貯留母岩にする Na- HCO_3 泉 (Nos. 73, 75, 78 ; 関ら, 2001) は天水線 ($\delta\text{D} = 8 \delta^{18}\text{O} + 15$) 付近にプロットされ, 関東山地などの高標高域で涵養された降水を起源にしている。 上総層群相当層を貯留母岩にする4地点 (Nos. 11~14 ; Fig. 1) に関東山地の基盤岩および上総層群相当層を貯留母岩にする Na- HCO_3 泉 (Nos. 25, 26, 73, 75, 78) を加えた相関直線 (混合線 ML2) には強い正相関が認められ, 混合線 ML1 と明瞭に区別できる (Figs. 4a, b)。 上総層群相当層を貯留母岩にする化石

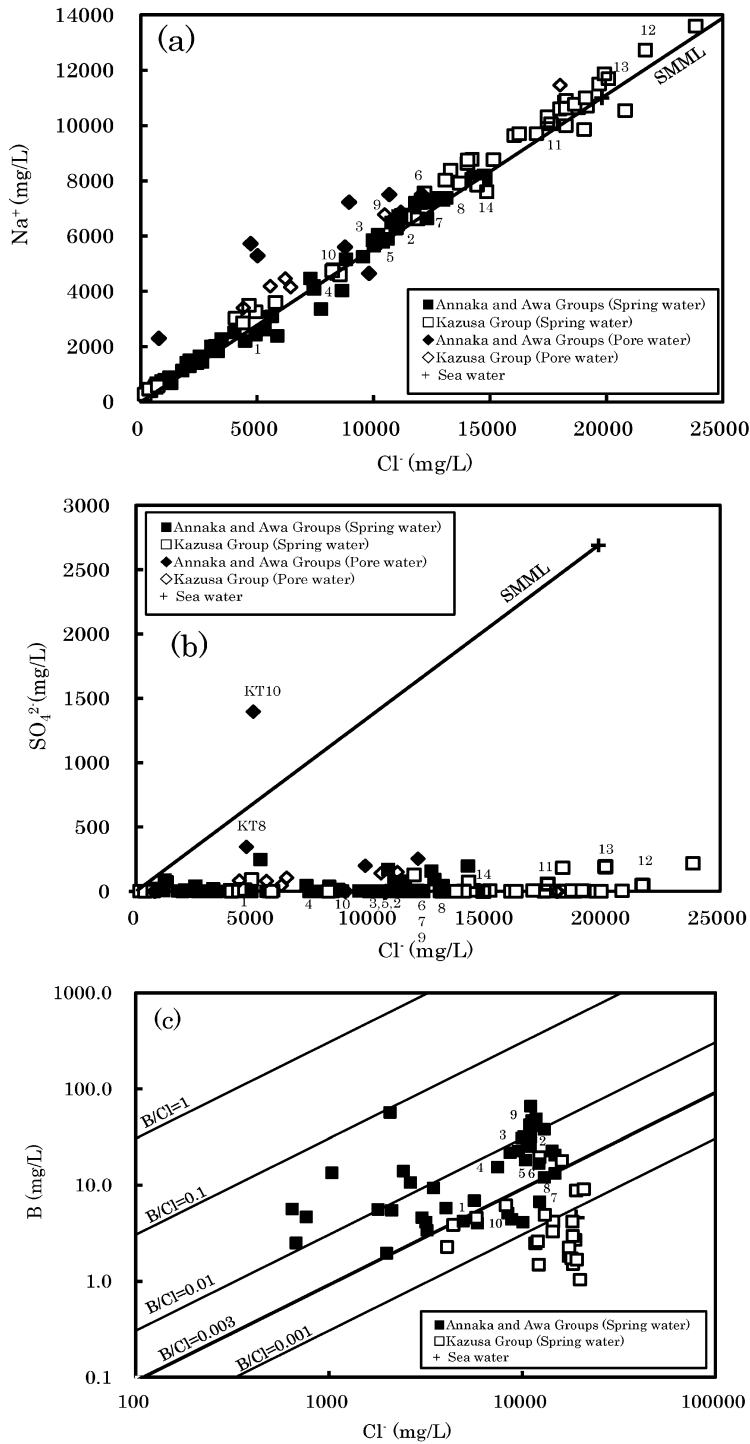


Fig. 3 Na^+ — Cl^- (a), SO_4^{2-} — Cl^- (b) and B— Cl^- (c) diagrams for the spring waters. The SMMML shows the sea water-meteoric water mixing line. The sample numbers are the same as in Fig. 1.

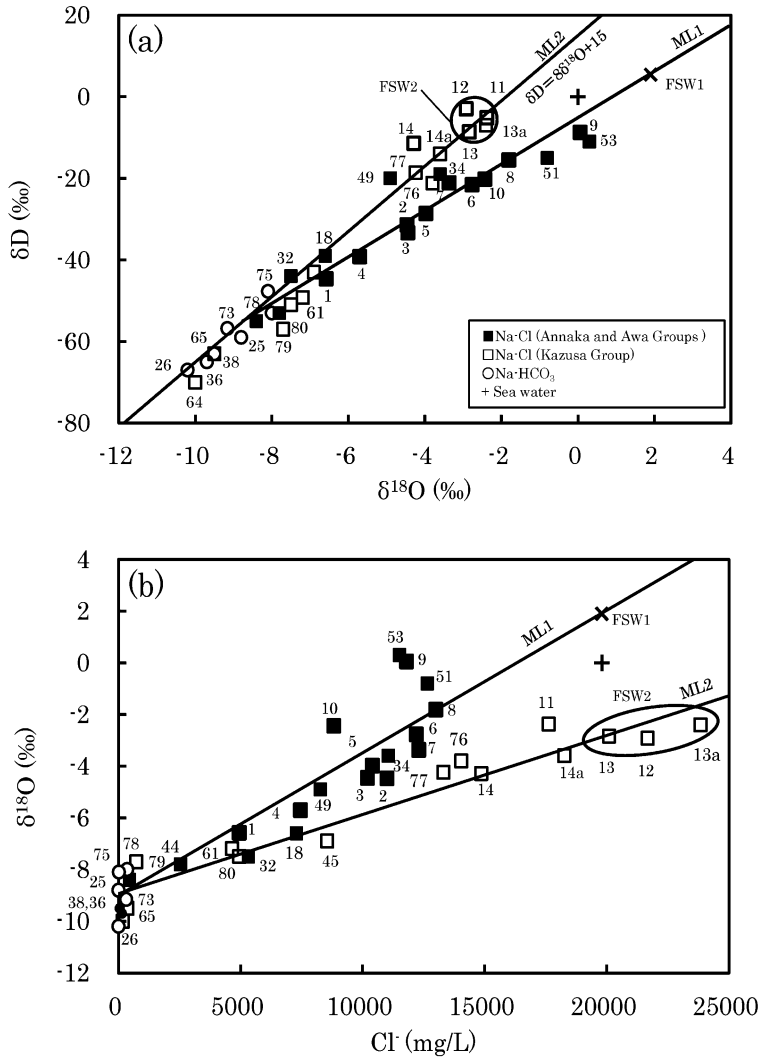


Fig. 4 $\delta^{18}\text{O}$ – δD (a) and $\delta^{18}\text{O}$ –Cl⁻ (b) diagrams for the spring waters. The sample numbers are the same as in Fig. 1. The FSW1 and FSW2 show the fossil sea waters 1 and 2, respectively. The ML1 and ML2 show the mixing lines of FSW1, 2 and meteoric water, respectively.

海水（化石海水 2 と呼称）からなる Nos. 12, 13, 13a 地点の $\delta^{18}\text{O}$, δD 値はそれぞれ $-2.40 \sim -2.92\text{‰}$ (Fig. 4b), $-2.9 \sim -8.6\text{‰}$ を示し, 深部流体は $\delta^{18}\text{O}$ 値が現海水よりマイナスシフトした化石海水 2 と Na–HCO₃ 型降水起源水の混合によって形成されたと推察される。

4.2 塩化物泉の水質形成機構

深層泥質堆積物に閉じ込められた海水（間隙水）の進化の視点に立って, 塩化物泉をもたらした深部流体の水質形成機構を考察する。塩化物泉の形成に関与した間隙水は海水起源であるにも関わらず, 府中, 江東, 下総観測井の上総層群相当層および安中・安房層群相当層に閉じ込められた間

隙水の Cl^- 濃度は現海水より低い結果が報告されており (Fig. 3a; 鈴木ら, 1983; 鈴木・高橋, 1985; 鈴木, 1996), 間隙水は埋没過程で降水起源水により種々の程度に希釈された海水が堆積物に閉じ込められたものである (楡井, 1980). このような海水より低い Cl^- 濃度をもった流体は相模トラフの海底堆積物から湧出する冷湧水などで見出されており, 海水と陸域由来の降水の混合によると解釈されている (Tsunogai *et al.*, 1996).

塩化物泉の水質形成機構には降水起源水である炭酸塩泉 ($\text{Na}-\text{HCO}_3$ 型) の水質形成機構が関係することから, 以下には炭酸塩泉の水質形成機構を述べた後に, 塩化物泉の水質形成機構を考察する. なお, 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. 試料の Cl^- がすべて海水起源であると仮定して, 次式より試料の過剰・欠損する M 成分の濃度を算出した.

$$\Delta[M] = [M] - [M/\text{Cl}]_{\text{sea}} \times [\text{Cl}] \quad (2)$$

ここで, $\Delta[M]$: 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, $[\text{Cl}]$: 試料の Cl^- 濃度.

4. 2. 1 炭酸塩泉の水質形成機構

炭酸塩泉 ($\text{Na}-\text{HCO}_3$ 型) 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る (Fig. 5a), Na^+ と HCO_3^- 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, 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, 炭酸塩泉の深部流体は Na -スメクタイトに過飽和状態にある (Fig. 6a). これらの結果に炭酸塩泉が天水線 ($\delta\text{D} = 8 \delta^{18}\text{O} + 15$) に沿ってほぼ分布している特徴を勘案すると (Fig. 4a), 関東山地などの高標高域で降水が地下浸透した後, 基盤岩, 上総層群相当層, 安中・安房層群相当層を構成する火山性物質の風化作用によって炭酸塩泉の深部流体が形成されたと判断される.

4. 2. 2 塩化物泉の水質形成機構

(1) 有機物の分解

村松ら (2010) は関東山地の北側に位置する群馬県安中・富岡地域に分布する中新統海成の安中・富岡層群を貯留母岩にする高塩化物泉が SO_4^{2-} を殆どないし全く含まない要因を解明する目的で硫酸安定同位体比を測定し, 硫酸態硫黄濃度が硫酸還元菌による硫酸還元反応によって低下したことを明らかにした. Cl^- - SO_4^{2-} 濃度相関図 (Fig. 3b) からわかるように, 関東平野中央部の上総層群相当層と安中・安房層群相当層を貯留母岩にする高塩泉の多くも SO_4^{2-} を殆どないし全く含まず, 安中・富岡地域と同様に, 埋没過程で海底堆積物に閉じ込められた間隙水は初期続成期に硫酸還元菌による硫酸還元反応を経験していると考えるのが妥当である.



さらなる埋没過程で SO_4^{2-} が消費されて硫酸還元菌の活動が終わると, メタン生成菌が活発な環境に間隙水は置かれる. メタンの炭素安定同位体比とメタン/(エタン+プロパン) 比の関係から, 上総層群相当層を貯留母岩にする温泉に産するメタンの多くは微生物起源であり, 海成層中での CO_2

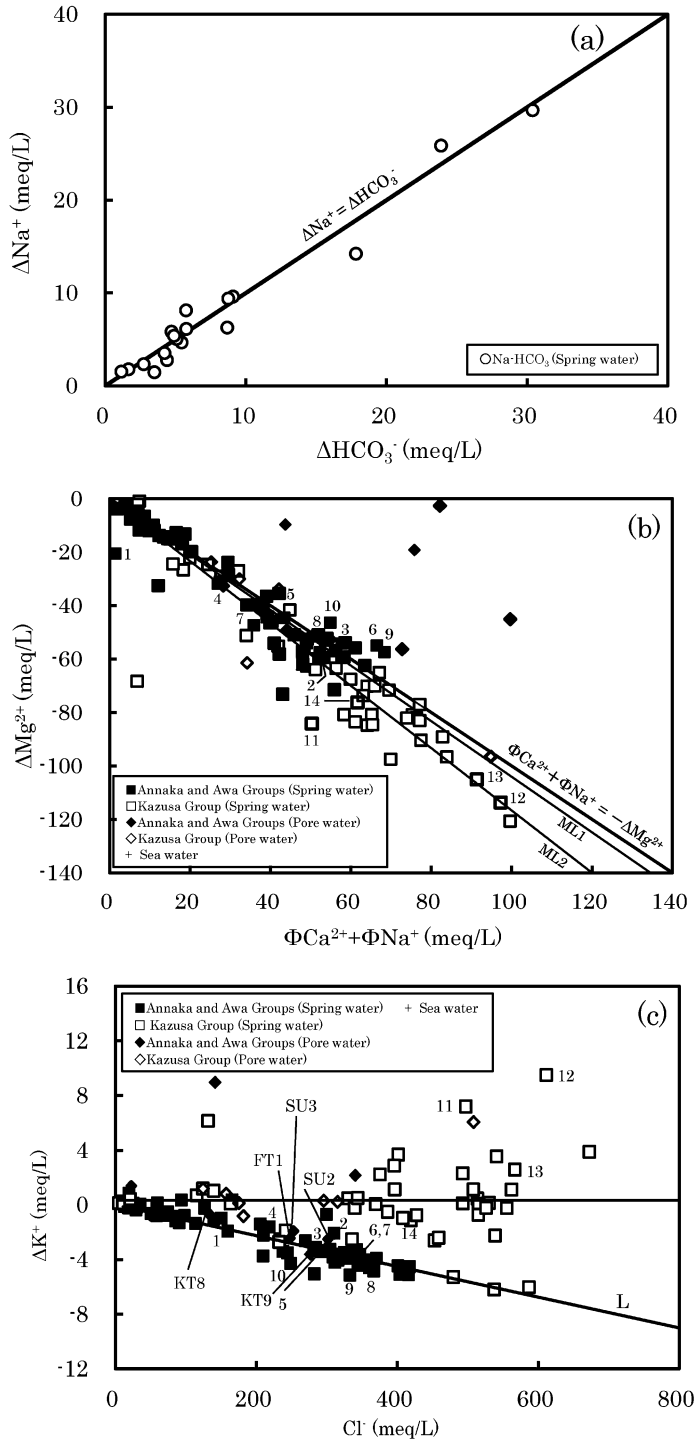


Fig. 5 $\Delta\text{Na}^+ - \Delta\text{HCO}_3^-$ (a) diagram for the Na-HCO₃ type spring waters. ($\Phi\text{Ca}^{2+} + \Phi\text{Na}^+ - \Delta\text{Mg}^{2+}$) (b) and $\Delta\text{K}^+ - \text{Cl}^-$ (c) diagrams for the Na-Cl type spring waters. The sample numbers are the same as in Fig. 1. The ML1 and ML2 show the mixing lines of FSW1, 2 and meteoric water, respectively.

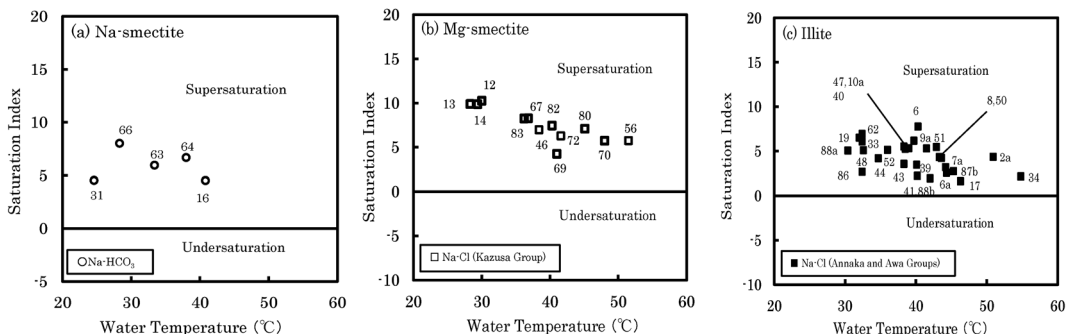


Fig. 6 Relationships between water temperature and saturation index for Na-smectite (a), Mg-smectite (b) and Illite (c). The sample numbers are the same as in Fig. 1.

還元反応で生成したと考えられている (金子ら, 2002, 2010). 本地域では, Cl^- 濃度 (13,000~17,820 mg/L) が高くて SO_4^{2-} を含まない船橋温泉水 (No. 56; 甘露寺, 2010) や, 大森, 船橋, 江戸川, 草加, 流山, 野田観測井の天然ガス付随水などでメタンガスの産出が報告されている (Fig. 3b; 杉崎ら, 1963; 福田ら, 1988).

(2) 火山性物質の Mg—スメクタイト化

安中・安房層群相当層を貯留母岩にする高塩泉 (Nos. 6~8) および上総層群相当層を貯留母岩にする高塩泉 (Nos. 12, 13) の Mg^{2+} 濃度は現海水より低い一方, Ca^{2+} 濃度は高い傾向が認められた. カリブ海での深海掘削時に海底から深度 400 m 間で採取され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+} 濃度も減少する一方, Ca^{2+} 濃度は増加する傾向が認められており, 海底堆積物中の火山性物質が Mg—スメクタイトに変質したことが一因になっていると考えられている (Lawrence *et al.*, 1975). 今回, Mg^{2+} , Ca^{2+} 濃度に同様の傾向が関東平野中央部の化石海水 1, 2 で, さらに $\delta^{18}\text{O}$ 値に同様の傾向が化石海水 2 でそれぞれ確認されている. 本研究では温泉井掘削時の回収岩石片は入手できなかったが, 下総, 岩槻, 江東観測井の上総層群相当層と安中・安房層群相当層には火山性物質が含まれるコアにスメクタイトが確認されていることから (鈴木ら, 1983; 高橋ら, 1983; 鈴木, 1996), 両層を貯留母岩にする高塩泉の深部流体は火山性物質の Mg—スメクタイト化を受けた可能性が高く, 化石海水 2 の海水に比した $\delta^{18}\text{O}$ 値のマイナスシフトはこの変質によってもたらされたと考えられる.

(3) イオン交換反応, 方解石セメント化作用

硫酸還元菌活動期に(4)式の反応で生成した間隙水中の HCO_3^- は Ca^{2+} と反応し, コンクリーションの核になる方解石 (CaCO_3) が生成すると考えられる (平, 2004).



また, 海水が堆積物の埋没過程で種々の程度に $\text{Na}-\text{HCO}_3$ 型降水起源水によって希釈された間隙水は火山性物質の Na—スメクタイト化を経験している. そこで, 硫酸還元反応および方解石生成後の過剰 Ca^{2+} 量 ($\Phi\text{Ca}^{2+} = \Delta\text{Ca}^{2+} - \Delta\text{SO}_4^{2-}$) と火山性物質の風化作用後の過剰 Na^+ 量 ($\Phi\text{Na}^+ = \Delta\text{Na}^+ - \Delta\text{HCO}_3^-$) の和 ($\Phi\text{Ca}^{2+} + \Phi\text{Na}^+$) と ΔMg^{2+} 間の相関関係を Fig. 5b に示す. 図からわかるように, 安中・安房層群相当層と上総層群相当層を貯留母岩にする塩化物泉は直線 $\Phi\text{Ca}^{2+} + \Phi\text{Na}^+ = -\Delta\text{Mg}^{2+}$ 付近にプロットされ, 高い逆相関が認められる (前者の相関直線は ML1 で $R^2 = 0.825$, 後者は ML2

で $R^2=0.815$). したがって, Na—HCO₃型降水起源水が関与した火山性物質のNa—スメクタイト化に加えて, 間隙水は硫酸還元反応, 方解石セメント化, 火山性物質のMg—スメクタイト化, 海底泥質堆積物に含まれるNa—スメクタイトの陽イオン交換反応によるMg—スメクタイト化を経験したと推察される. これらの続成作用の進行は上総層群相当層を貯留母岩にする塩化物泉がMg—スメクタイトに過飽和であることから妥当である (Fig. 6b).

Figure 5b からわかるように, 厳密には上総層群相当層を貯留母岩にする塩化物泉では直線 $\Phi\text{Ca}^{2+} + \Phi\text{Na}^+ = -\Delta\text{Mg}^{2+}$ より $(\Phi\text{Ca}^{2+} + \Phi\text{Na}^+)$ にやや欠損する傾向を示している. メタン生成帯では, 堆積物に残っている有機物は微生物による分解で出された二酸化炭素と水素から, メタン生成菌は次の反応によってメタンを生成するとともに, 残りの二酸化炭素は間隙水中のHCO₃⁻を増加させる (平, 2004).



メタンを付随する上総層群相当層の間隙水に含まれるCa²⁺は(7)式で生成したHCO₃⁻と反応して方解石のセメント化に消費され, $(\Phi\text{Ca}^{2+} + \Phi\text{Na}^+)$ 欠損分はこのCa²⁺量に相当すると考えられる. 村松ら (2008) によれば, No. 11 地点では貯留層付近の砂岩, 砂岩/泥岩互層に方解石が確認されており, 方解石のセメント化を示唆する一例であろう.

(4) スメクタイトのイライト化作用

安中・安房層群相当層を貯留母岩にする塩化物泉の形成に関与した化石海水1の $\delta^{18}\text{O}$ 値は現海水よりプラスシフト化していることが明らかとなった (Fig. 4b). 関東山地の北側に位置する群馬県富岡地域および本地域より利根川上流に位置する利根川中流低地帯で, 富岡層群と安中層群を貯留母岩にする塩化物泉の形成に関与した化石海水の $\delta^{18}\text{O}$ 値 (+6.92‰)は現海水より高く, 主にスメクタイトのイライト化によってもたらされたと考えられている (村松ら, 2013). 関東平野中央部に分布する高塩泉の深部流体の水質組成にはスメクタイトが大きな役割を果たしていることから, この再結晶作用が本地域でも進行したか検討しよう.

Toki *et al.* (2014) は南海トラフの沈み込み帯の海底堆積物に含まれる間隙水のB濃度が深くなるとともに高くなる傾向を見出し, この場の平均地温勾配 (50~60°C/km) を勘案して, 間隙水中のB濃度の増加はスメクタイト—イライトの相転移に起因すると考えている. Bはスメクタイトの層間にB(OH)₃として存在しており, イライトへ相転移する時に層間水とともに放出されると考えられる (大沢ら, 2010). 前述したように, 安中・安房層群相当層を貯留母岩にする高塩泉のB/Cl⁻モル比は上総層群相当層を貯留母岩にする高塩泉に比べて高い傾向にあり (Fig. 3c), 南海トラフの沈み込み帯と同様の解釈が可能である. イライト化にはK⁺の供給量が関係することから, 塩化物泉の ΔK^+ とCl⁻の濃度相関を Fig. 5c に示す. 上総層群相当層を貯留母岩にする塩化物泉は分散するのに対して, 安中・安房層群相当層を貯留母岩にする塩化物泉の両成分濃度間には高い逆相関 (相関直線L; $R^2=0.843$) が認められ, 府中, 江東, 下総地殻観測井における安中・安房層群相当層に閉じ込められた間隙水 (FT1, KT8, 9, SU2, 3) でも同様である. したがって, スメクタイトのイライト化は上総層群相当層に閉じ込められた間隙水では進んでいないが, 安中・安房層群相当層では行われていた可能性が高く, 当該塩化物泉はイライトに過飽和であることもこの再結晶作用の進行を支持する (Fig. 6c).

次に, 関東平野中央部の貯留母岩である安中・安房層群相当層がスメクタイト—イライトの相転

Table 2 Formation temperature obtained by temperature logging data of three wells after completion of drilling, and estimated by Horner plot.

Well	Depth (m)	Standing time	Estimated recovery temperature (°C)			Basal boundary of the Kazusa Group		Basal boundary of the Annaka and Awa Groups		References
			500m	1000m	1500m	Depth (m)	RT (°C)	Depth (m)	RT (°C)	
Reservoir in the Annaka and Awa Groups										
Fuchu (FT)	2783	6months	27	40	55	1650	58	2022	66	Suzuki et al.(1981)
Reservoir in the Kazusa Group										
Koto (KT)	3030	22days	31	41	53	1677	56	2579	72	Suzuki (1996)
Shimousa (SU)	2330	5months	25	37	50	1240	44	1514	50	Suzuki et al.(1981)
Inzai (No.11)	1500	7.8hrs,24.7hrs	-	(37)	48	(1200)	(41)	-	-	Muramatsu et al.(2008)
Itabashi (No.14)	1500	20.5hrs,21.3hrs	-	-	-	(1366)	(42)	-	-	Muramatsu et al.(2008)

RT, Estimated recovery temperature. Parenthesis in the estimated recovery temperature shows RT at the feed point, and parentheses in depth and RT of the basal boundary of the Kazusa Group show the feed point and its recovery temperature, respectively.

移温度 (58~142°C; Freed and Peacor, 1989) に達しているか検討しよう。地殻観測井および温泉井の温度検層で得られた長時間放置後の回復試験結果およびホーナー法による推定回復温度を Table 2 に示す。表中、3本の地殻観測井の検層温度は掘削を終了してから22日~6ヶ月間放置した後に測定されたものであり、ほぼ地層温度を反映している。また、複数回の温度検層が実施された印西 (No. 11) と板橋 (No. 14) 温泉井における上総層群相当層の流入深度における回復温度はホーナー法などで推定したものである (村松ら, 2008)。表からわかるように、上総層群相当層の貯留母岩域にある江東、下総観測井と印西 (No. 11)、板橋 (No. 14) 温泉井における上総層群相当層の基底深度および流入深度の推定回復温度 (37~56°C) はスメクタイト-イライトの相転移温度の下限に達していない。地下構成鉱物をもて、印西温泉井 (No. 11) の流入深度付近および下総観測井の貯留母岩である上総層群相当層の基底深度付近にスメクタイトは存在するがイライトは確認されていない (村松ら, 2008; 鈴木ら, 1983)。一方、府中観測井における安中・安房層群相当層の推定回復温度 (58~66°C) はスメクタイト-イライトの相転移の下限温度に達しており、本層にはイライトが確認されている (鈴木・高橋, 1985)。安中・安房層群相当層における推定回復温度の情報は府中観測井のみであるが、安中・安房層群相当層の貯留母岩域にある北葛飾強塩泉 (No. 34) の泉温は57°Cを示し、深部流体温度は孔内上昇流動に伴って数°C程度冷却されて地表に達している (村松ら, 2008) ことを考慮すると、相転移温度の下限値をやや上回っていると予想される。以上のことから、関東平野中央部では主として安中・安房層群相当層の凝灰岩に含まれる火山ガラスが地熱の影響を受けてスメクタイト-イライトの相転移下限温度をやや上回る温度環境下に置かれた結果、スメクタイトのイライト化によって化石海水1の $\delta^{18}\text{O}$ 値のプラスシフトがもたらされたと推察される。Figure 4b からわかるように、Nos. 9, 10, 53地点の $\delta^{18}\text{O}$ 値は混合線 ML1 より大きくプラスシフトしており、安中・安房層群相当層の貯留母岩域におけるスメクタイトのイライト化の進行度は場所によってかなり異なっていたのであろう。

最後に本節で得られた結果をまとめると、塩化物泉の形成に関与した深部流体の水質は、次のような間隙水の進化によって形成されたと推察される。有機物を含む海底泥質堆積物に閉じ込められた海水は、埋没過程で硫酸還元反応を受けた。さらに、関東山地などの高標高域で涵養された降水が深部を側方流動する過程で火山性物質の風化作用を受けて変質した降水起源水により種々の程度に希釈されるとともに、方解石セメント化、火山性物質のMg-スメクタイト化、Na-スメクタ

イトの陽イオン交換反応による Mg—スメクタイト化によって変質した結果, SO_4^{2-} と Mg^{2+} 濃度が減少し Ca^{2+} と Na^+ 濃度が増加した間隙水が誕生した. 以上の続成作用は安中・安房層群相当層と上総層群相当層の貯留母岩に閉じ込められた間隙水に共通し, 火山性物質の Mg—スメクタイト化は現海水に比した $\delta^{18}\text{O}$ 値のマイナスシフトをもたらした. その後, 上総層群相当層より貯留層温度が高い安中・安房層群相当層ではスメクタイトのイライト化が進行し, 間隙水の K^+ 濃度の低下と B 濃度の上昇が進むとともに $\delta^{18}\text{O}$ 値は現海水よりもプラスシフト化した.

5. ま と め

関東平野中央部で上総層群相当層と安中・安房層群相当層を貯留母岩にする高塩泉を対象に化学成分および酸素・水素安定同位体比分析を実施するとともに, 入手できた温泉水と間隙水の分析値を加えて, 埋没続成変質過程における海水起源の間隙水の進化の視点に立って塩化物泉の水質形成機構を検討し, 以下の結果が得られた.

(1) 本地域の塩化物泉は化石海水と降水の混合によって形成された. このうち, 化石海水の Mg^{2+} と SO_4^{2-} は現海水より乏しく Ca^{2+} と Na^+ に富み, B 濃度は安中・安房層群相当層の化石海水で高く K^+ 濃度は低い. 化石海水の $\delta^{18}\text{O}$ 値は貯留母岩によって異なり, 上総層群相当層では現海水に比してマイナスシフト, 安中・安房層群相当層ではプラスシフトしている.

(2) 一方, 降水は関東山地などの高標高域で涵養した後に, 深部を側方流動する過程で基盤岩, 上総層群相当層, 安中・安房層群相当層を構成する火山性物質の風化作用を進行させて Na— HCO_3 型降水起源水に進化した.

(3) 化石海水の化学成分および酸素・水素安定同位体比の特徴は, 以下のような海底堆積物中の間隙水の埋没続成変質過程によって合理的に説明でき, 貯留母岩の推定回復温度および地下構成鉱物と整合的である. 有機物を含む海底泥質堆積物に閉じ込められた海水は埋没過程で硫酸還元反応を受けた. さらに, Na— HCO_3 型降水起源水により種々の程度に希釈されるとともに, 方解石セメント化, 火山性物質の Mg—スメクタイト化, Na—スメクタイトの陽イオン交換反応による Mg—スメクタイト化を受けて, SO_4^{2-} と Mg^{2+} 濃度の減少と Ca^{2+} と Na^+ 濃度の増加をともなった間隙水に進化した. その後, 上総層群相当層より貯留層温度が高い安中・安房層群相当層ではスメクタイトのイライト化が進行して間隙水の B 濃度の上昇と K^+ 濃度の低下が進んだ. これらの続成変質によって進化した間隙水が塩化物泉の深部流体の起源になっている.

(4) 上総層群相当層を貯留母岩にする化石海水で推定された $\delta^{18}\text{O}$ 値の現海水に比したマイナスシフトは火山性物質のスメクタイト化, 安中・安房層群相当層のプラスシフトはスメクタイトのイライト化にそれぞれ起因する.

謝 辞

本研究を遂行するにあたり, 温泉所有者各位は温泉水の採取に便宜を図られた. また, 2名の査読者には懇切丁寧なご指摘を頂いた. 以上の方々に深甚なる謝意を表する.

引用文献

- 道前香緒里, 石賀裕明, 石川憲一, 千代延 俊, 丸岡幹男 (2003): 関東平野の温泉開発と泉質の特徴およびカッティングスの地質学的検討 (予報). 島根大地球資源環境学研報, **22**, 21-29.
- 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.

- 福田 理, 永田松三, 鈴木宏芳 (1988) : 関東平野の地下構造と地層流体. 地質学論集, **31**, 5-40.
- 林 広樹, 笠原敬司, 木村尚紀 (2006) : 関東平野の地下に分布する先新第三系基盤岩類. 地質学雑誌, **112**, 2-13.
- 林 広樹, 高橋雅紀, 笠原敬司 (2004) : 関東平野の地下における新第三系の分布. 石油技術協会誌, **69**, 574-586.
- 林 広樹, 高橋雅紀, 笠原敬司 (2008) : 5.2 ボーリング調査. 日本地方地質誌 3 関東地方. 日本地質学会編, 392-400, 朝倉書店, 東京.
- 今橋正征, 加藤尚之, 高松信樹, 相川嘉正 (1996) : 千葉県を中心とした地域の温泉水およびガス田付随水中の臭化物およびヨウ化物イオン含量. 温泉科学, **46**, 69-78.
- 金子信行, 前川竜男, 猪狩俊一郎 (2002) : アーケアによるメタンの生成と間隙水への濃集機構. 石油技術協会誌, **67**, 97-110.
- 金子信行, 猪狩俊一郎, 前川竜男, 佐脇貴幸, 代田 寧, 小田原 敬, 早稲田 周 (2010) : 関東地方地下の水溶性天然ガスと地層水の起源について. 日本地質学会第 117 年学術大会要旨 (2010 富山), O-121. (2010/9/18).
- 甘露寺泰雄 (2010) : 温泉 (深井戸) ボーリングデータ公開の課題. 地質ニュース, **667**, 39-48.
- 河井興三 (1961) : 南関東ガス田地帯についての鉍床地質学的研究. 石油技術協会誌, **26**, 212-266.
- 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.
- 村松容一, 岡崎公美, 大城恵理, 安諸正俊 (2008) : 関東平野中央部の非火山性温泉における深部流体の生成機構. 地下水学会誌, **50**, 145-162.
- 村松容一, 近藤史也, 千葉 仁, 早稲田 周, 長島秀行 (2010) : 関東山地北縁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学的解釈. 温泉科学, **60**, 4-21.
- 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.
- 楡井 久 (1980) : 地下流体資源と広域的流動. *URBAN KUBOTA*, **18**, 45-51.
- 大沢信二, 網田和宏, 山田 誠, 三島壮智, 風早康平 (2010) : 宮崎平野の大深度温泉井から流出する温泉水の地化学特性と成因—温泉起源流体としての続成脱水流体—. 温泉科学, **59**, 295-319.
- Reed, M.N. (1982) : Calculation of multicomponent chemical equilibria and reaction processes in systems involving minerals, gases, and an aqueous phase. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **46**, 513-528.
- 関 寿子, 林 武司, 丸井敦尚 (2001) : 関東平野における深層地下水の性状. 日本水文科学会誌, **3**, 11-24.
- 関 陽児, 中嶋輝允, 上岡 晃, 金井 豊, 間中光雄, 月村勝宏 (2004) : 関東地方東部における大深度温泉の特徴—水質と地質との関係—. 温泉科学, **54**, 1-24.
- 杉崎隆一, 吉本泰介, 加藤喜久雄, 杉浦 孜 (1963) : 南関東ガス田の地球化学的考察—とくにガス成分と鉍床の存在状態との関連について—. 地質学雑誌, **69**, 67-81.
- 鈴木宏芳 (1996) : 江東深層地殻活動観測井の地質と首都圏地域の地質構造. 防災科学技術研究所研究報告, **56**, 77-123.
- 鈴木宏芳 (2002) : 関東平野の地下地質構造. 防災科学技術研究所研究報告, **63**, 1-19.

- 鈴木宏芳, 高橋 博 (1985): 府中地殻活動観測井の作井と坑井地質. 防災科学技術センター研究速報, **64**, 1-84.
- 鈴木宏芳, 高橋 博, 福田 理 (1983): 下総深層地殻活動観測井の作井と地質. 防災科学技術センター研究速報, **48**, 1-61.
- 鈴木宏芳, 池田隆司, 御子柴正, 木下繁夫, 佐藤春夫, 高橋 博 (1981): 関東・東海地域における坑井検層資料集. 防災科学技術研究資料, **65**, 1-162.
- 平 朝彦 (2004): 地質学2 地層の解説. 岩波書店, 東京, 441 p.
- 高橋 博, 福田 理, 鈴木宏芳, 田中耕平 (1983): 岩槻深層地殻活動観測井の作井と坑井地質. 防災科学技術センター研究速報, **47**, 1-113.
- 高橋雅紀 (2006): 日本海拡大時の東北日本弧と西南日本弧の境界. 地質学雑誌, **112**, 14-32.
- 高橋雅紀 (2008): 3.3.1 鴨川地域. 日本地方地質誌3 関東地方. 日本地質学会編, 166-175. 朝倉書店, 東京.
- Toki, T., Higa, R., Ijiri, A., Tsunogai, U., and Ashi, J. (2014): Origin and transport of pore fluids in the Nankai accretionary prism inferred from chemical and isotopic compositions of pore water at cold seep sites off Kumano. *Earth, Planets and Space* 2014, **66**: 137 doi: 10.1186/s40623-014-0137-3 (<http://www.earth-planets-space.com/content/66/1/137>).
- Tsunogai, U., Ishibashi, J., Wakita, H., Gamo, T., Masuzawa, T., Nakatsu, T., Nojiri, Y. and Nakamura, T. (1996): Fresh water seepage and pore water recycling on the seafloor Sagami Trough subduction zone, Japan. *Earth Planet. Sci. Letters*, **138**, 157-168.
- 鶴田均二 (1994): 結城市南方における地質学的諸問題と天然ガス徴候. 石油学会誌, **7**, 401-405.

Appendix 1 Location and data source of the spring waters.

No.	Locality	Depth(m)	Type	References	No.	Locality	Depth(m)	Type	References
(1) Spring water from the spring wells					58	Katsushika	1720	Na-Cl	(4)
1	Bando	1500	Na-Cl	(1)	59	Adachi	1265	Na-Cl	(2)(4)
2	Sakai	1454	Na-Cl	(1)	60	Adachi	1500	Na-Cl	(4)
3	Satte	1500	Na-Cl	(1)	61	Sumida	650	Na-Cl	(3)
4	Sugito	1500	Na-Cl	(1)	62	Tokorozawa	1700	Na-Cl	(4)
5	Kasukabe	1500	Na-Cl	(1)	63	Tokorozawa	1100	Na-HCO ₃	(2)(5)
6	Noda	1243	Na-Cl	(1)	64	Niiza	1300	Na-Cl,Na-HCO ₃	(3)(5)
7	Misato	1300	Na-Cl	(1)	65	Niiza	1500	Na-Cl	(3)
8	Misato	1500	Na-Cl	(1)	66	Warabi	1200	Na-HCO ₃	(4)
9	Kashiwa	1800	Na-Cl	(1)	67	Toda	1500	Na-Cl	(2)
10	Hachioji	1500	Na-Cl	(1)(4)	68	Wako	1000	Na-Cl	(4)
11	Inzai	1500	Na-Cl	(1)(2)	69	Itabashi	1500	Na-Cl	(4)
12	Funabashi	1500	Na-Cl	(1)(2)	70	Sugamo	1800	Na-Cl	(4)
13	Adachi	1300	Na-Cl	(1)(2)(3)	71	Nerima	1445	Na-Cl	(4)
14	Itabashi	1500	Na-Cl	(1)(2)(3)	72	Nerima	1500	Na-Cl	(4)
15	Kumagaya	1385	Na-HCO ₃	(2)(4)	73	Shinjuku	1000	Na-HCO ₃	(3)
16	Gyoda	1500	Na-HCO ₃	(2)	74	Bunkyo	1700	Na-Cl	(5)
17	Hanyu	1600	Na-Cl	(4)	75	Shinagawa	600	Na-HCO ₃	(3)
18	Konan	1250	Na-Cl	(3)	76	Meguro	1500	Na-Cl	(3)(4)
19	Namekawa	1700	Na-HCO ₃	(4)	77	Ohta	2000	Na-Cl	(2)(3)(4)
20	Hiki	?	Na-HCO ₃	(4)	78	Ohta	300	Na-HCO ₃	(3)
21	Hiki	1700	Na-HCO ₃	(2)	79	Ohta	60	Na-Cl	(3)
22	Sakado	1500	Na-Cl	(2)	80	Setagaya	1700	Na-Cl	(3)(4)
23	Hidaka	2000	Na-Cl	(2)	81	Suginami	1500	Na-Cl	(2)
24	Hanno	1500	Na-HCO ₃	(4)	82	Chofu	1500	Na-Cl	(4)
25	Naguri	83	Na-HCO ₃	(2)(4)	83	Musashino	1500	Na-Cl	(4)
26	Okutama	600	Na-HCO ₃	(2)(4)	84	Kodaira	1500	Na-Cl	(4)
27	Ohme	1450	Na-HCO ₃	(2)(4)	85	Kodaira	1600	Na-Cl	(2)
28	Akishima	1800	Na-HCO ₃	(4)	86	Kunitachi	1800	Na-Cl	(4)
29	Musashimurayama	1500	Na-HCO ₃	(2)	87	Hino	1605	Na-Cl	(2)(4)
30	Sayama	1300	Na-Cl	(4)	88	Hachioji	1350	Na-Cl	(2)(4)
31	Iruma	1330	Na-HCO ₃	(2)	89	Machida	1381	Na-Cl	(2)
32	Koga	1307	Na-Cl	(3)	90	Funabashi	1500	Na-Cl	(4)
33	Kitasaitama	1300	Na-Cl	(2)	(2) Spring water from the observation wells				
34	Kitakatsushika	1500	Na-Cl	(2)(3)(4)	NR	NodaR1	1130	Na-Cl	(6)(7)
35	Kuki	1500	Na-Cl	(2)	NP	Nagareyama NP1	1525	Na-Cl	(6)
36	Kitamoto	1200	Na-HCO ₃ ,Na-Cl	(3)(5)	SR	Soka.SR1	1800	Na-Cl	(6)
37	Kitamoto	1000	Na-Cl	(6)	FR	Funabashi FR10	1305	Na-Cl	(7)
38	Shiraoka	1200	Na-HCO ₃	(3)	ER1	Edogawa ER10A	632	Na-Cl	(7)
39	Hasuda	1500	Na-Cl	(4)	ER2	Edogawa ER10B	1150	Na-Cl	(7)
40	Ageo	1500	Na-Cl	(4)	ER3	Edogawa ER10C	2051	Na-Cl	(7)
41	Ageo	1700	Na-Cl	(4)	HW	Ohmori	966	Na-Cl	(7)
42	Kawagoe	1700	Na-Cl	(4)	(3) Pore water from the observation wells				
43	Ohmiya	1500	Na-Cl	(4)	FT1	Fuchu	1508	Na-Cl	(10)
44	Ohmiya	1500	Na-Cl	(3)(4)	FT2	Fuchu	2020	Na-Cl	(10)
45	Ohmiya	1500	Na-Cl	(3)(4)	KT1	Koto	429	Na-Cl	(11)
46	Ohmiya	1530	Na-Cl	(4)	KT2	Koto	600	Na-Cl	(11)
47	koshigaya	1200	Na-Cl	(2)	KT3	Koto	800	Na-Cl	(11)
48	Moriya	?	Na-Cl	(4)	KT4	Koto	1000	Na-Cl	(11)
49	Noda	1140,1300	Na-Cl	(2)(3)	KT5	Koto	1215	Na-Cl	(11)
50	Nagareyama	1300	Na-Cl	(7)	KT6	Koto	1401	Na-Cl	(11)
51	Yoshikawa	1500	Na-Cl	(2)(3)	KT7	Koto	1600	Na-Cl	(11)
52	Kashiwa	≥ 1000	Na-Cl	(4)	KT8	Koto	1820	Na-Cl	(11)
53	Kashiwa	1200	Na-Cl	(2)(3)(4)	KT9	Koto	2200	Na-Cl	(11)
54	Kashiwa	1500	Na-Cl	(4)	KT10	Koto	2400	Na-Cl	(11)
55	Funabashi	1500	Na-Cl	(4)	SU1	Shimousa	1106	Na-Cl	(8)
56	Funabashi	2000	Na-Cl	(9)	SU2	Shimousa	1403	Na-Cl	(8)
57	Urayasu	1400	Na-Cl	(4)	SU3	Shimousa	1486	Na-Cl	(8)

References : (1) This study, (2) Muramatsu *et al.* (2008), (3) Seki *et al.* (2001), (4) Unpublished data, (5) Dozen *et al.* (2003), (6) Fukuda *et al.* (1988), (7) Sugisaki *et al.* (1963), (8) Suzuki *et al.* (1983), (9) Kanroji (2010), (10) Suzuki and Takahashi (1985), (11) Suzuki (1996).