

原 著

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—

大沢信二¹⁾, 網田和宏²⁾, 山田 誠¹⁾, 三島壮智¹⁾, 風早康平³⁾

(平成 22 年 1 月 7 日受付, 平成 22 年 2 月 12 日受理)

Geochemical Features and Genetic Process of Hot-spring
Waters Discharged from Deep Hot-spring Wells in
the Miyazaki Plain, Kyushu Island, Japan :
Diagenetic Dehydrated Fluid as a Source
Fluid of Hot-spring Water

Shinji OHSAWA¹⁾, Kazuhiro AMITA²⁾, Makoto YAMADA¹⁾,
Taketoshi MISHIMA¹⁾ and Kohei KAZAHAYA³⁾

Abstract

For identification of diagenetic dehydrated fluids as source fluids of hot-spring water, we conducted chemical and isotopic analyses of waters and accompanied gases collected from hot-spring wells in the Miyazaki plain in the fore-arc region of Kyushu Island, Japan. Interpretation of systematic relationships appearing among chemical and isotope data, and geochemical estimation of hydrothermal temperatures of hot spring waters revealed two hot-spring water source fluids in existing groundwaters of meteoric origin : squeezed pore water from marine sediments, and hydrothermal fluid of unidentified generation stored in sedimentary rocks. Geochemical thermodynamic evaluation of the unidentified fluids using representative hot spring waters indicated a dehydrated interlayer water from clay mineral (smectite) at around 130°C. Furthermore, comparison to

¹⁾ 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. ¹⁾ Beppu Geothermal Research Laboratory, Institute for Geothermal Sciences, Graduate School of Science, Kyoto University, Noguchibaru, Beppu, Oita 874-0903, Japan.

²⁾ 秋田大学工学資源学部地球資源学科 〒010-8502 秋田県秋田市手形学園町 1 番 1 号. ²⁾ Department of Earth Science and Technology, Faculty of Engineering and Resource Science, Akita University, 1-1 Tegatagakuen-cho, Akita 010-8502, Japan.

³⁾ 産業総合技術研究所地質調査総合センター深部地質環境研究コア地質情報部門深部流体研究グループ 〒305-8567 茨城県つくば市東 1 の 1 の 1. ³⁾ Crustal fluid research group, Institute of Geology and Geoinformation, AIST, Higashi 1-1-1, Central-7, Tsukuba, Ibaraki 305-8567, Japan.

results of a geochemical analysis of accompanied hydrocarbon gases and a geological consideration of genetic process of the source fluids of the hot spring waters implied their origin at different stages during the burial diagenesis of marine sediments. An important result obtained from comparisons of the chemical and isotopic data on some geochemical systematic diagrams is that hydrothermal fluid of hot spring waters in the Oita plain, also located in the fore-arc region of Kyushu, apparently have a different origin and genetical process from hydrothermal fluids of the Miyazaki plain.

Key words : Miyazaki plain, hot spring well, hot-spring water, geochemical feature, origin, diagenetic dehydrated fluid

要 旨

温泉起源流体としての続成脱水流体を探索するために、九州地方の前弧域に位置する宮崎平野で掘削された温泉井から温泉水や付随ガスを採取し、化学・同位体分析を行った。温泉水の化学・同位体データの間に見える系統的な関係の解釈や、地化学温度計による熱水温度の推定結果から、天水起源地下水の他に2種類の温泉起源流体の存在を認めた。1つは堆積物間隙から排出される海水で、もう一つは堆積岩に貯留される成因不明の熱水流体である。成因不明の流体を代表する温泉水について化学熱力学的解析を行ったところ、それはおよそ130°Cにおいて粘土鉱物(スメクタイト)の層間から排出された水を起源とすることが示された。さらに、付随炭化水素ガスの地球化学的解析結果との比較や、温泉起源流体の成因に関する地質学的な考察を通して、2種類の温泉起源流体は海成堆積物の埋没続成過程の異なるステージで発生したものであると推定した。同じく九州地方の前弧域に位置する大分平野の温泉起源熱水流体は、本研究で提示したいくつかの地球化学システムティック図上での比較検討から、宮崎平野の起源熱水流体とは同様な起源や成因をもつものではないことが推察された。

キーワード：宮崎平野，温泉井，温泉水，地化学特性，成因，続成脱水流体

1. はじめに

近年、新しい時代の火山活動の及ばない非火山地域において、深い井戸掘削によって得られる「大深度温泉」の開発が盛んに行われている。その開発の歴史は古く、その中には、一般地下水が普通の地温上昇率のみによって温度を得たと考えられてきた平野部の温泉も含まれており(例えば、佐藤, 1973), それらの多くが地熱開発華やかなりし頃に、「深層熱水」(例えば、茂野, 1982)と呼ばれて一時活発に研究された。そこでは、古い時代の地層中に閉じ込められた海水や地下水を起源とする伝導加熱型の“温泉水”であるとされたが、提示された成因モデルに後続の研究者を強く引きつける強いインパクトがなかったためか、あるいは、石油・天然ガスの研究や探査で存在が古くから知られていた付随塩水(かん水)に性質が通じるところがあって、新たな魅力ある研究対象には映らなかったためか、時代が進むとともに深層熱水の研究は勢いをなくし、結果として火山性温泉ほど深く理解される対象とはならなかった。また、食塩泉の一部として地球化学の研究対象に取り上げられたこともあったが(例えば、一國ら, 1974; Takamatsu *et al.*, 1986), 参照する貯留状況等に関する地質学的な情報が不足していたためと思われるが、状況を打開する決定打は放てなかった。そのように研究があまり進展しなかったこと背景には、日本が火山国であり、古い時代の火成岩体を熱源とする温泉も含め、火山性温泉が数において非火山性温泉を圧倒するということがあったであろう。同様な状況は、日本と似たテクトニック環境にあるニュージーランドにおいても言えるようで、興味深い研究対象があるにもかかわらず(例えば、Giggenbach *et al.*, 1993), その研究をフォローできる後続の研究者が少ないという実態がある。日本で言う深層熱水型温泉水のよ

うなタイプの熱水を生成させる地熱系は、諸外国では、Static geothermal system あるいは Conductive geothermal system などと呼称され、熱水は formation water (地層水) や connate water (遺留水) と呼ばれ、主として大陸地域の国々で古くからよく研究されてきた感がある (例えば, Frapé and Fritz, 1984; Motyka *et al.*, 1989; Pauwels *et al.*, 1993; Davisson *et al.*, 1994; Lodemann *et al.*, 1997; Worden *et al.*, 1999; Kloppmann *et al.*, 2002). その背景には、国土の大半が非火山地域で占められることや、水資源確保の必要性などがあるのではないかと考えられる。

以上のような状況の中にあって、日本では大分平野の深層熱水が比較的良好に研究された例の一つであると思われる (例えば, 野田・北岡, 1981; 吉川・北岡, 1985; 北岡, 1987; 北岡・川野, 1991), 私たちも研究ブームが過ぎ去った後ではあるが、溶存微量元素濃度を用いた深層熱水の起源に関する研究を行ったことがある (大沢, 1996). その研究の立脚点は、先述したような「通常の地温によって温められてきた温泉水」であり、特に目新しい成果は得られなかったが、その後に行った溶存炭酸の炭素安定同位体比 ($\delta^{13}\text{C}$) に着目した研究 (大沢, 2001) を契機に事態は急変することになる。その研究では、溶存炭酸 (以下, DIC と略記) の $\delta^{13}\text{C}$ と濃度の関係から、深層熱水の有機物起源 DIC には深部起源の CO_2 が様々な割合で混入しており、特に Na-Cl, HCO_3^- 型水質に分類される高塩分のものについては DIC のほとんどが深部由来であることが示され、深層熱水型温泉水の中には単に海水や地下水が通常の地温によって温められてきた温泉水ではないものがあることが示唆された。また、DIC のほとんどが深部起源を示唆する深層熱水の中に、水の同位体組成 (δD vs. $\delta^{18}\text{O}$) が天水や海水とは大きく異なる極めて塩分濃度の高い、有馬型熱水に地球化学的性質が良く似たものを発見し、変成脱水流体 (変成作用において含水鉱物の脱水分解で発生する熱水流体) の一つのタイプに由来すると考えた (網田ら, 2005). しかし、変成脱水流体が温泉の起源水として現存しているとしても、地表近くまで移動してくる間に様々な化学的・同位体的変化を受ける可能性があり、温泉の起源水となっていることを実証することが容易でないことは想像に難くない。同様な指摘は松葉谷 (2009) でもなされており、そのことは起源熱水流体を代表するような温泉水の地球化学的推定温度が変成温度に対応する高温を示さないことから予感できる。

そこで、私たちは、少し目先を変えて、変成作用よりもっと浅所 (200°C, 2 kbar 以浅) で発生すると予想される続成脱水流体 (堆積物・堆積岩の続成作用で発生する熱水流体) を温泉起源流体として探索し、大分平野の深層熱水との差異を明らかにし、改めて変成脱水流体起源の温泉水の存否について論じて行くという方法をとることにした。そして、その探索においては、単に温泉水の地球化学的データの起源判定図への照らし合わせで終わらせることなく、その地化学特性を吟味し、地質学的・鉱物学的諸情報を交え多角的に検討して温泉起源流体の成因について深く考察することにした。本研究は、主として、その試みの前半部 (温泉起源流体としての続成脱水流体の探索) に当たるものであり、大分平野の南方に位置し、九州太平洋岸に接する宮崎平野を研究対象地域に設定し、その地域の大深度掘削井から流出する温泉水および付随ガスの化学・同位体分析を実施し、得られたデータの諸解析、解析結果の解釈や考察から、続成脱水流体を起源とする温泉水であるとの結論を得たので、ここに報告する。また、研究過程で得たいくつかの地球化学システムティック図上で大分平野の温泉水のデータ (網田ら, 2005) を続成脱水流体起源の温泉水と比較したところ、同様な成因をもつものではないとの認識に至ったので合わせて報告する。

2. 現地の情報と研究方法

2.1 研究対象地域と調査温泉井の概要

調査対象とした温泉井がある宮崎平野は、宮崎県中部から南部にかけての日向灘沿岸の南北約 60

km の範囲に広がる九州太平洋岸で最も規模の大きい平野である。宮崎平野の表層地質 (Fig. 1) は、おおむね地形に対応し、中期中新世から前期更新世の海成層で構成される宮崎層群からなり、約 50 万年前頃から隆起しはじめ、陸地となったものが宮崎平野である。宮崎平野を取り囲むように分布する九州山地 (北西部) と鰐塚山地 (南部) は、後期白亜紀から新第三紀初頭に形成された付加コンプレックスで構成される四万十累層群よりなり、平野部では宮崎層群の下位に分布し、それにより不整合に覆われている (例えば、斎藤ら, 1998)。また、本地域のもう一つの特色は、火山前線より海溝側の前弧域と呼ばれる、第四紀に入ってから火山活動の影響やマグマ活動の痕跡が見られない地域に位置することである。

宮崎層群の分布域には水溶性天然ガス田が発達しており、その探鉱開発のために北は高鍋町付近から南は日南市にいたる各所においてこれまで数多くの坑井が掘削されてきた (鈴木ら, 1990)。特に、一ッ瀬川流域を中心とする地域 (佐土原地区) では実際に開発が進められ、天然ガスの生産が行われている。天然ガスの主要成分はメタン (CH_4) であり、高い圧力をもつ地層中で塩分濃度の高い地下水 (かん水) に溶け込んでおり、そのような高塩分濃度の地下水が天然ガス胚胎の一つの指標とされている。その高塩分を有する地下水は温泉水とみなされ、温泉水としての利用もされてきたという経緯があり (宮崎県, 1993)、今では同じ井戸から天然ガスと温泉水の両方を採取し、住民に供給しているところもある。このようなことが背景にあり、宮崎平野で井戸掘削により得られる温泉水は、どれも岩層間隙に包含される海水由来の地層水であると考えられてきたようである。その一方で、宮崎平野と霧島火山の間に位置する都城盆地周辺の四万十累層群の露出地に、炭酸水素イオンを主要成分として含む冷鉱泉の湧出の存在が知られていたが (宮崎県, 1993)、成因等は明らかにされていない。

私たちが調査した温泉 (井) は Fig. 1 に示した 18 泉源であり (Fig. 1 の ●), 現地調査等で入手し

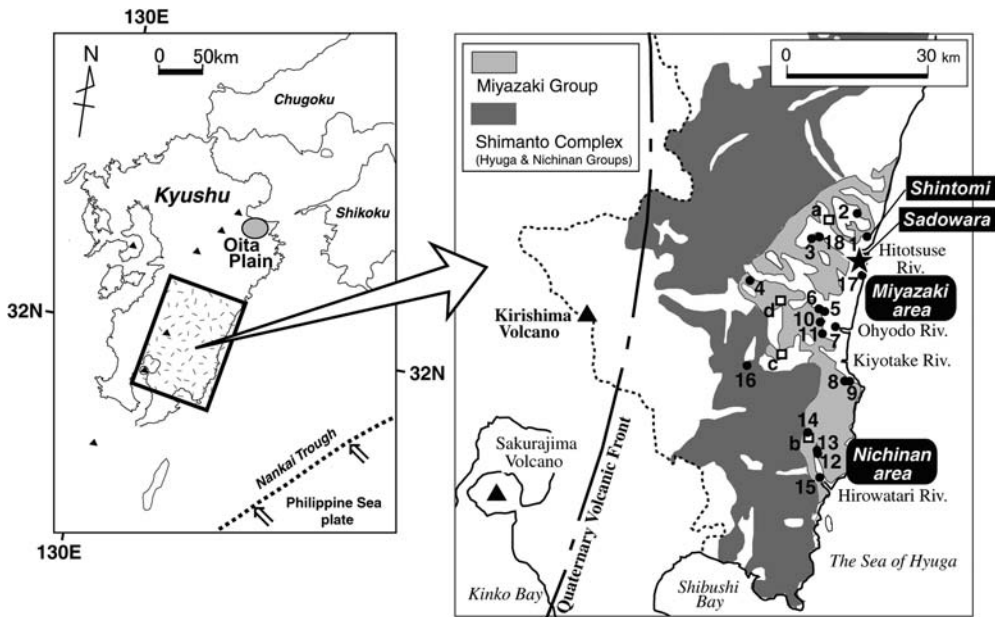


Fig. 1 Locations of investigated hot spring wells (●) and sampling sites of river waters (□) with surface distribution of concerned geologic bodies in this study: Miyazaki group and Shimanto complex, and the Quaternary volcanic front (dash-dotted line) and some active volcanoes (▲).

Table 1 Brief summary of hot spring wells

Well No.	Depth of well (m)	Depth of screen head (m)	Discharge form	Discharge rate (L/min.)*	Discharge temp. (°C)	SiO ₂ * (mg/L)
1	1700	?	pumping	250	46.3	28.2
2	1200	?	pumping	549	45.4	32.3
3	30	?	self	?	15.7	52.2
4	480	?	?	?	19.3	
5	1000	774	self	625	45.4*	95.9
6	800	711	?	380	43.4	18.5
7	1300	805	?	?	43.3	
8	750	640	self	182	35.1	31.9
9	1300	1150	pumping	410	38.5*	29.5
10	300	?	self	300	22.2	18.7
11	1600	?	pumping	104	n.m.	33.9
12	800	?	?	?	50.4	77.5
13	1200	?	?	?	49.8	64.3
14	1000	?	?	?	35.0	26.5
15	1300	?	pumping	50	43.0*	
16	1500	?	?	146	37.3	89.2
17	1200	?	?	?	16.1**	
18	7-8	?	self	?	23.7*	19.3

Remarks) *Data referred from the public data tables (Onsen-bunseki-sho), **The measuring site is far from the well. n.m.: not measured

た井戸深度、温泉水流出量などの基本情報をまとめて Table 1 に示した。井戸の平均深度は 970 m であるが、1000 m を超えるものも少なくなく、最も深い井戸は 1700 m であった。その中において掘削深度の極めて浅い温泉井 No. 3 (深度=30 m) は、元々自然湧出の鉱泉だったものが、湧出量の減少を理由に掘削によって得られたものである。また、それに隣接する No. 18 も、後述するように水質や水の同位体組成等に類似する点の多いことから、同様に以前は自然湧出であった可能性があり、この付近には地下流体の地表流出を許す地質構造の存在が示唆される。調査温泉井の掘削位置は、No. 16 を除き、宮崎層群の分布域あるいは沖積層との境界域に当たっているが、温泉井 No. 5, No. 6, No. 11, No. 12 の孔底 (深度はそれぞれ 1000 m, 800 m, 1600 m, 800 m) は四万十累層群にまで達しているとの情報を現地聞き取り調査で得ており、温泉貯留層は宮崎層群だけではなく、温泉井 No. 16 のように、四万十累層群に所在する場合もあることを示唆している。なお、温泉井 No. 1 の位置する新富町付近では、天然ガス用に掘削された井戸 (深度=1701.7 m) のコア、スライムの観察結果から、宮崎層群の下位に花崗岩類の存在が確認されている (鈴木ら, 1990)。

2.2 試料と分析

前出の 18 泉源において、流出温泉水の温度と pH を現地で測定し、化学・同位体分析用の温泉水を採取した (化学分析用はポリ瓶, 同位体分析用はガラス製の瓶)。また、参照表層水試料として、河川水を 4 地点で採取した (Fig. 1 の□)。付随ガスが採取できる状況にあった温泉井 No. 5 および No. 6 では、水上置換法でガス試料の採取も行った。ガス試料はゴム製セプタム付のガラス瓶に少量の温泉水とともに採取し、運搬・保存時にはガラス瓶を転倒させ、セプタムとの合わせ部分が温泉水でシールされるようにして外気と遮断し、試料ガスの漏出と空気汚染を防いだ。

温泉水の化学分析では, 主要成分に加え, Li と B の定量分析を実施した. HCO_3 を除く主要成分 (Na, K, Mg, Ca, Cl, SO_4) と Li はイオンクロマトグラフィーで, B は分光光度法 (アズメチン H 法) で (大沢ら, 1995), HCO_3 は pH 4.3 アルカリ度法で分析した. 分析精度は, いずれも相対誤差にして $\pm 1\%$ 程度未満である. 温泉水の同位体分析としては, 水の水素と酸素の同位体組成 (δD と $\delta^{18}\text{O}$) の測定を, The stable isotope Laboratory, GNS Science Limited (ニュージーランド) 保有の安定同位体質量分析計を用いて行った. 測定精度は, δD と $\delta^{18}\text{O}$ のそれぞれについて $\pm 1.0\%$, $\pm 0.1\%$ である. なお, 温泉水試料 No. 11 と No. 15 は, いずれも湧泉水であるが, それぞれ, 加温されたもの, 泉源より遠く離れた場所に設置された貯水タンクに溜められていたものであり, 水質変質の疑いを払拭できなかったため, Cl 濃度のみのデータ提示とした.

付随ガスの化学分析は JIS-2301 「燃料ガス及び天然ガスの試験分析法」に基づき, 石油資源開発 (株) 技術研究所保有のガスクロマトグラフを用いて, 炭化水素 ($\text{CH}_4 \sim \text{C}_3\text{H}_8$) および CO_2 , N_2 , O_2 の定量を行った. およその分析精度は, CH_4 と N_2 は $\pm 0.1\%$, O_2 と CO_2 は $\pm 0.01\%$, CH_4 以外の炭化水素は $\pm 0.001\%$ である. また, 含まれる CH_4 , C_2H_6 , CO_2 の炭素安定同位体組成 ($\delta^{13}\text{C}$) を, 同研究所保有のガスクロマトグラフ燃焼前処理装置付安定同位体質量分析計で測定した. 測定精度は $\pm 0.2\%$ 程度である.

3. 結 果

温泉水, 付随ガスおよび参照試料水 (河川水) の化学・同位体分析の結果を, Table 2~Table 4 に示す. 本章では, 分析データ (成分濃度, 成分濃度比, 化学組成, 同位体組成) に見られる系統的な関係を提示し, それらの関係の解釈を通して, 温泉起源流体の種類, 温泉水形成における起源

Table 2 Analytical results of collected hot spring waters and estimated underground temperatures of hot spring waters

Well No.	pH	Na (mg/L)	K (mg/L)	Mg (mg/L)	Ca (mg/L)	Li (mg/L)	Cl (mg/L)	HCO_3 (mg/L)	SO_4 (mg/L)	B (mg/L)	δD (‰)	$\delta^{18}\text{O}$ (‰)	$\theta_{\text{Na-K-Ca}}$ (°C)
1	7.4	4920	47.4	14.8	966	2.0	9450	49	n.d.	48.4	-12.5	0.03	98
2	7.8	3240	15.9	21.4	83.7	0.67	4690	447	18.8	41.7	-29.0	-4.01	84
3	7.4	4780	38.2	41.4	214	3.9	7650	444	20.2	1.9	-21.7	-4.00	100
4	8.6	2170	9.1	n.d.	0.4	4.4	1720	2770	n.d.	22.2	-30.7	-1.90	105
5	7.9	2950	24.7	9.3	27.2	2.5	3850	1160	n.d.	150	-17.7	0.47	109
6	8.1	2060	10.8	2.0	11.3	1.1	2200	1590	n.d.	76.7	-22.4	-1.72	92
7	7.7	4340	29.9	30.0	113	2.1	6740	467	n.d.	150	-10.7	2.97	97
8	8.4	1510	2.8	n.d.	5.6	0.67	1550	1200	n.d.	20.6	-31.6	-4.50	60
9	8.5	1640	3.9	n.d.	7.8	1.1	1790	1200	n.d.	40.7	-31.3	-4.23	66
10	7.8	9650	24.1	95.7	254	1.2	16400	156	n.d.	4.9	-4.0	-0.95	68
11	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.	2430	n.a.	n.a.	n.a.	-25.3	-2.53	—
12	7.3	3340	65.0	11.5	69.7	5.0	3590	2920	n.d.	199	-14.5	1.92	139
13	7.5	1850	28.8	1.0	29.0	2.8	1710	2020	n.d.	83.8	-25.4	-2.42	127
14	7.9	490	7.6	39.9	72.0	0.47	707	424	n.d.	9.4	-38.7	-5.97	103
15	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.	5080	n.a.	n.a.	n.a.	-9.8	3.64	—
16	7.5	3950	27.3	3.0	1.6	6.1	2330	6170	155	286	-6.2	4.03	124
17	7.3	10500	81.5	152	351	1.5	18500	223	n.d.	11.1	-6.3	-1.49	106
18	7.3	5520	42.3	64.5	243	4.2	8000	323	n.d.	4.6	-15.4	-3.37	99

Remarks) Sampling date ; Nos. 1-4 : Feb. 11, 2004, Nos. 5-11 : Feb. 12, 2004, Nos. 12-16 : Feb. 13, 2004, No. 17 : Feb. 15, 2004, No. 18 : Nov. 1, 2007, n.d. : not detected, n.a. : not analyzed, * : derived from the Na-K-Ca geochemical thermometer mentioned in Nicholson (1993)

Table 3 Results of isotopic and chemical analyses of surface waters collected from rivers

No.	Name of river	δD (‰)	$\delta^{18}O$ (‰)	Cl (mg/L)
a	Hitotsuse	-46.8	-7.37	1.8
b	Hirawatari	-41.0	-6.59	5.8
c	Kiyotake	-41.1	-6.60	29.2
d	Ohyodo	-44.7	-6.93	11.6

Remarks) Sampling date ; No. a : Feb. 11, 2004, Nos. b and c : Feb. 13, 2004, No. d : Feb. 14, 2004

Table 4 Results of chemical and isotopic analyses of gases accompanied with hot spring waters

Well No.	CO ₂ (%)	N ₂ (%)	O ₂ (%)	CH ₄ (%)	C ₂ H ₆ (%)	C ₃ H ₈ (%)	$\delta^{13}C$ CO ₂ (‰)	$\delta^{13}C$ CH ₄ (‰)	$\delta^{13}C$ C ₂ H ₆ (‰)
5	1.01	8.24	0.89	89.84	0.02	n.d.	-5.1	-45.2	-26.3
6	1.16	4.43	0.29	94.09	0.02	n.d.	-6.3	-48.4	-32.7

Remarks) Sampling date ; Nov. 1, 2007 for chemical composition and carbon isotopes, n.d. : not detected

流体の混合関係, 起源流体の温度についての情報抽出を試みる.

3.1 主要溶存化学成分

主要溶存化学成分の分析データを, 陽イオン, 陰イオンそれぞれの組成図上にプロットしたものを, Fig. 2 に示す. 温泉井 No. 1 と No. 14 にやや例外性が認められるが, 主要陽イオンはアルカリ元素 (Na, K) であることが共通する点であり, 陰イオンの組成に広がりのあることが分かる. 陰イオン組成上のひとつの特徴は現海水に比べて SO₄ に乏しいことであり (検出されないものがほとんど), 温泉水がその形成過程において相応の還元的環境下に置かれたことを示しているが, 最大の特徴は Cl に富むものから比較的 HCO₃ に富むものまで見た目にはほぼ間断なく存在することであり, 上述の陰イオン組成の多様性は HCO₃/Cl 比の違いによってもたらされている. なお, 主要陽イオンであるアルカリ元素の 98 重量% 以上を Na が占めるので, 温泉水の水質は, Na-Cl 型, Na-Cl, HCO₃ 型およびその中間型として表現される.

Fig. 3 は, 温泉水の HCO₃/Cl 比を塩分 (TDS) と関係付けて表した図である. 同図には佐土原地区 (Fig. 1 の★) の天然ガス井のかん水のデータ (福田, 1979) も示してあるが, 先の化学組成の解析で示された Na-Cl 型水質の温泉水 (No. 10 と No. 17) はそのかん水と良く似た高塩分の水であり, 海水を直接の起源とする温泉水であることを暗示させる. 一方, 比較的 HCO₃ に富む Na-Cl, HCO₃ 型水質の温泉水は, かん水的な温泉水に比べて明らかに塩分の少ない水であるということが分かる. ここで仮に, その中でも HCO₃ と Cl の比率が 1 に近い一群の温泉水を水質進化の最終段階にある地下水に類する水であると考え, 中間的な HCO₃/Cl 比・TDS 濃度を示す温泉水 (No. 1, No. 2, No. 3, No. 7, No. 18) のプロット位置を, それとかん水的な温泉水 (No. 10 と No. 17) との混合で説明しようとするとうまく説明できない (図中に表した混合線との位置関係を参照). すなわち, 「地下水起源の水と海水に由来する水の存在およびそれらの混合」では当該地域の温泉水の成り立ちを説明することができないことを示唆している. この点は, 次節で示す水の同位体組成を見るこ

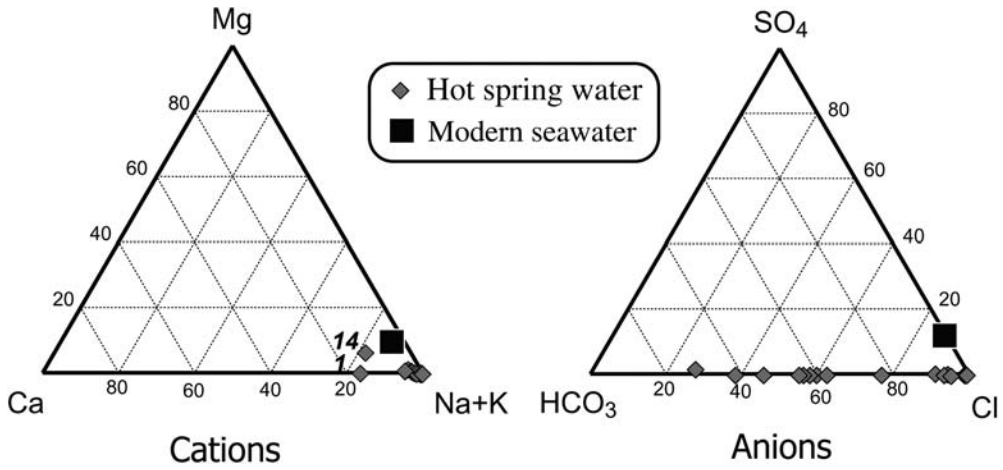


Fig. 2 Major cation and anion compositions of collected hot spring waters in Fig. 1 with modern seawater.

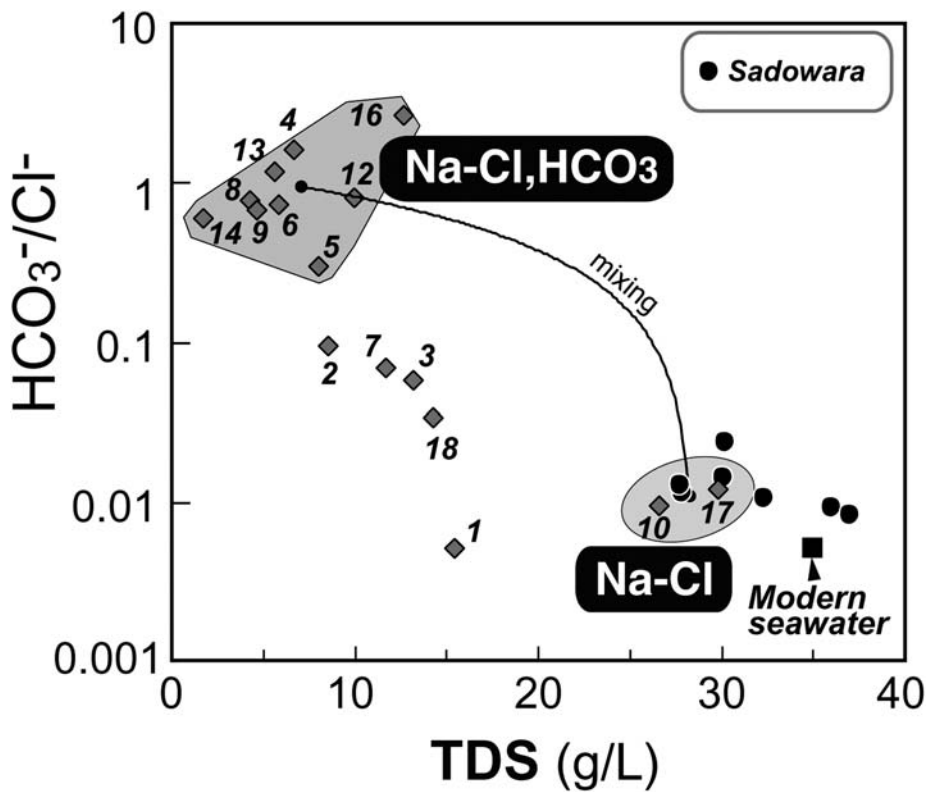


Fig. 3 Relation between TDS (total dissolved substance) and $\text{HCO}_3^-/\text{Cl}^-$ ratio of hot spring waters with brine waters at Sadowara area and modern seawater. For the location of Sadowara area, black-star (★) in Fig. 1.

とによって明確となる。

3.2 水の同位体組成

温泉水の水の同位体組成 (δD vs. $\delta^{18}O$) を河川水のそれとともに Fig. 4 の左側に示す。ここで、温泉水のデータポイントの内、先の解析で中間的な HCO_3/Cl 比・TDS 濃度を示すことが示された温泉水 (No. 1, No. 2, No. 3, No. 7, No. 18) を白抜きで示した。海水を直接の起源とするかん水的水であると考えられた温泉水 (No. 10 と No. 17) は、海底堆積物の間隙海水の組成範囲に収まり、それらが海底堆積物間隙から排出された海水であることを示唆している。

一方、問題となる比較的 HCO_3 に富む Na-Cl, HCO_3 型水質の温泉水は、中間的な HCO_3/Cl 比・TDS 濃度を示す温泉水 (No. 1, No. 2, No. 3, No. 7, No. 18) を除外して見てみると、天水起源の水を一端とする一つの直線上に分布することが判明した (図中に表した直線は最小二乗法による近似直線である)。ここに現れた直線関係は、それらの温泉水 (No. 4, No. 5, No. 6, No. 8, No. 9, No. 11, No. 12, No. 13, No. 14, No. 15, No. 16) が、天水起源地下水と現海水に比べて $\delta^{18}O$ が高く、かつ δD の低い成因不明の水との混合によって生成していること示唆しており、同様な混合関係は δD vs. Cl 濃度の関係図上 (Fig. 4 の右側) にも現れている。 δD vs. $\delta^{18}O$ 図の混合関係直線に近接する No. 2 と No. 7 の温泉水は、 δD vs. Cl 濃度図の混合関係直線上にはなく、海底堆積物間隙から排出された海水を起源とする温泉水 (No. 10 と No. 17) の側にずれていることから、それと成因不明の水あるいは天水起源地下水との混合によって生成していると見ることができる。同様な解釈は、中間的な HCO_3/Cl 比・TDS 濃度を示す温泉水 (No. 1, No. 2, No. 3, No. 7, No. 18) についても適用可能であり、当該地域の温泉水は、天水起源地下水、海底堆積物間隙から排出された海水、現海水に比べて $\delta^{18}O$ が高く、かつ δD の低い成因不明の水の 3 種類の水を起源水にしている可能性が高い。次節では、この解釈が妥当であるかどうかを、微量成分のデータを用いてさらに検討する。

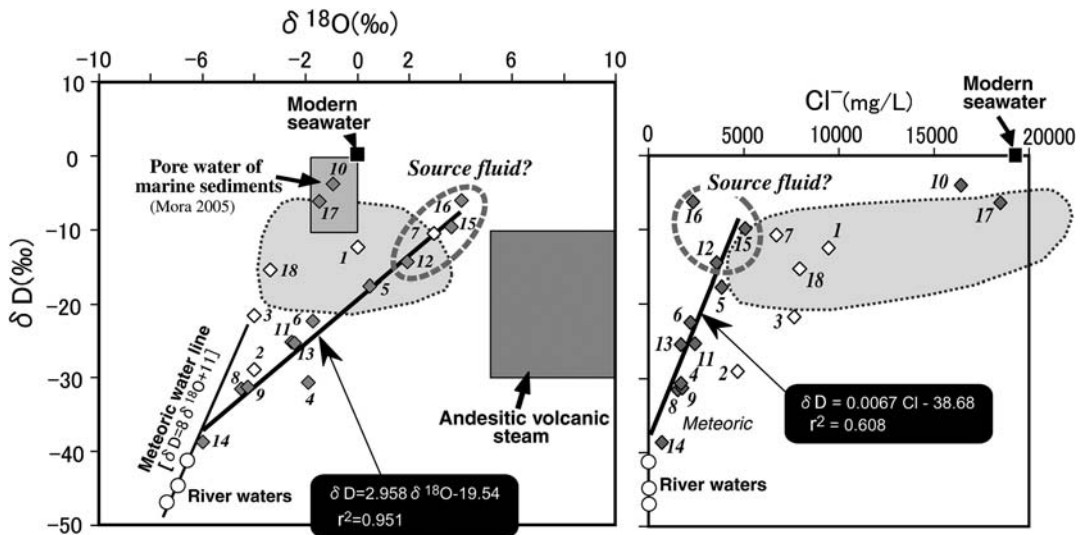


Fig. 4 Relationships of δD vs. $\delta^{18}O$ and δD vs. Cl of hot spring waters in Miyazaki with modern seawater, river waters in the study area, ranges of pore waters of marine sediments and andesitic volcanic steam. For data points shown by open diamond (Nos. 1, 2, 3, 7 and 18), see text or refer Fig. 3. Ranges circled by dotted lines indicate formation waters shown by Kato and Kajiwara (1986).

3.3 微量溶存化学成分

ここで取り上げる B と Li は、地熱地球化学分野において Cl とともに可溶性成分 (Soluble group species) に位置付けられている元素であり、水-岩石相互作用において2次的な変化を受けにくいものと認識され、Cl とともに温泉水の起源推定や混合過程の把握等に利用されている (Giggenbach and Goguel, 1989). また、B-Cl の組み合わせは、温泉水の貯留母岩の推定に有効であるとされており、地熱開発における地化学探査で良く利用される方法に組み込まれている (例えば、犬山ら, 1999). ここでは、まず初めに、温泉水の B/Cl 比について取り上げることにする。

Fig. 5 は、温泉水の B/Cl 比を δD と関係付けて表した図である。B/Cl 比は、先にも述べたように、温泉水の貯留母岩を知る指標であり、Cl 濃度が 100 mg/L を超える温泉水については、B/Cl 比 (モル比) が ≥ 0.1 の場合は堆積岩中に、0.1~0.01 の場合は火山岩中に貯留されていたもの、 ≤ 0.01 の温泉水は化石海水を含め海水を起源とするものであると診断される。この δD vs. B/Cl 比関係図上にプロットされた温泉水のデータは、先の水の同位体組成 (δD vs. $\delta^{18}O$) および δD vs. Cl 濃度の関係図を用いた解析から推定された成因不明の水が、堆積岩中に貯留されていたものであることを指し示し、合わせて、これまでの解析から強く示唆されたように、海底堆積物間隙から排出された海水が当該地域の温泉起源水の一つとして現存することが確定的であることを示している。また、 HCO_3^-/Cl 比、TDS 濃度、水の同位体組成、Cl 濃度の全てにおいて中間的な値を示した一群の温泉水 (No. 1, No. 2, No. 3, No. 7, No. 18) が、上記 2 種類の温泉起源水と天水起源地下水の混合によって生成していると見てきたことも妥当であることも示している。

Fig. 6 は温泉水の B-Li-Cl の相対組成を表したものであるが、ここでもこれまでと同様なシステムティックな関係が見て取れる。即ち、海底堆積物間隙から排出された海水を起源にすると結論された温泉水 (No. 10 と No. 17) は、それと直近に関係する現海水とともに Cl コーナー付近に分布

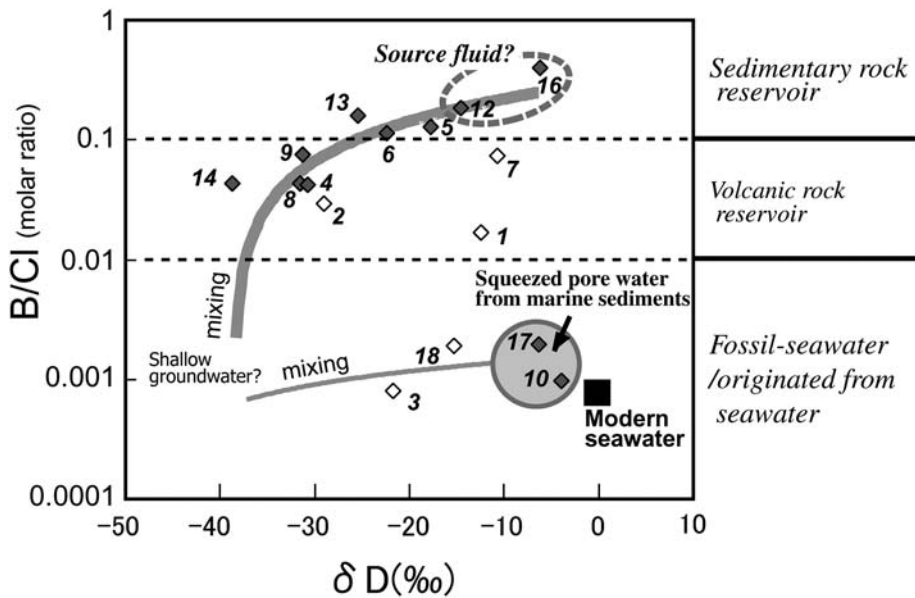


Fig. 5 Relation between δD and B/Cl ratio of hot spring waters with modern seawater. Discrimination for origins of hot spring waters by B/Cl ratio shown on Y-axis is done by means of an authorized geochemical method described in Inuyama *et al.* (1999). For data points shown by open diamond (Nos. 1, 2, 3, 7 and 18), see text or refer Figs. 3 and 4.

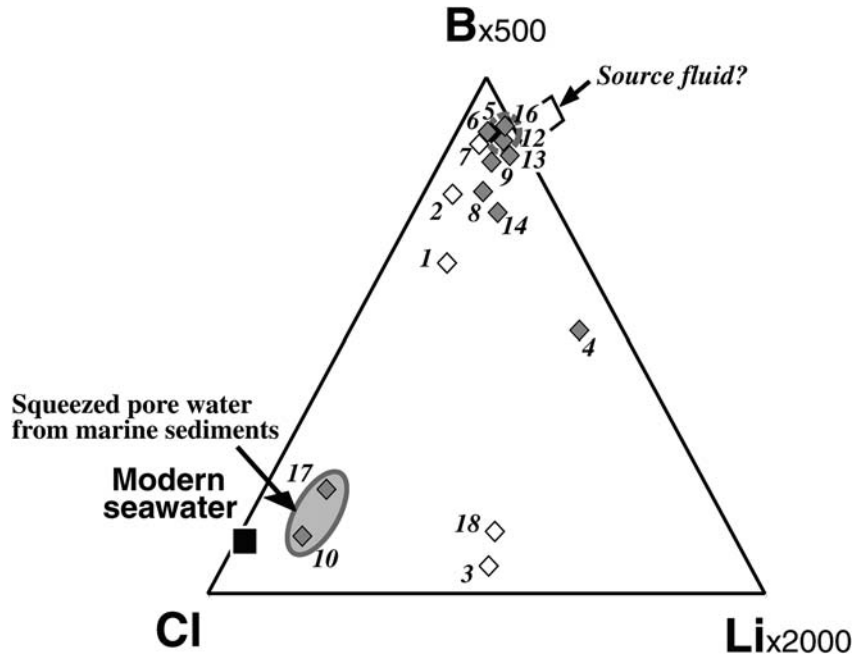


Fig. 6 Relative B-Li-Cl compositions of hot spring waters with modern seawater. These elements are classified into "Soluble group species" recognized in Geothermal geochemistry (e.g. Nicholson, 1993). For data points shown by open diamond (Nos. 1, 2, 3, 7 and 18), see text or refer Figs. 3, 4 and 5.

し、堆積岩中に貯留されていたと推定された成因不明の水に由来する温泉水 (No. 5, No. 6, No. 8, No. 9, No. 12, No. 13, No. 14, No. 16) は、一例 (No. 4) を除き、B コーナー付近に集まり、両者は本図上でも明確に区別されるということである。さらに、混合タイプの温泉水についても、Fig. 5 から示唆される成因不明の水と海底堆積物間隙から排出された海水との混合により生成するとされた No. 1, No. 2, No. 7 は、B コーナー付近に集まる成因不明の水に由来する温泉水のプロット領域から Cl コーナーへ向かうように分布し、海底堆積物間隙から排出された海水との混合によって生成するとされた No. 3 と No. 18 は、Li コーナー付近に天水起源地下水が分布するという確認が取れていないためにその混入を受けていると断定できないが、少なくとも成因不明の水との混合関係にはないことを表現できている。なお、唯一例外として表された No. 4 については、Li コーナー付近に天水起源地下水が分布するということが正しければ、成因不明の水へ天水起源地下水が相当多量に混ざってできたものとの解釈ができる。

さて、以上の一連の解析によって判明した内容をここで一度整理すると、次のようにまとめることができる。

「宮崎平野の地下には温泉の起源流体として、天水起源地下水、海底堆積物間隙から排出された海水、堆積岩中に貯留されていた成因不明の水の 3 種類の水が存在し、それらが様々な割合で混合しあって温泉水が生成している。」

そこで、次章では主として成因不明の水を取り上げ、その生成機構の解明を行って宮崎平野の温泉の起源流体を全て特定させたいと思うが、本章の最後に、地化学温度計から推定される温泉水が地下にあった時の温度 (熱水温度) に見られるシステムティックな関係について述べ、議論の足が

りにする.

3.4 地化学温度

地化学温度計にはさまざまなものが提案されているが(例えば, Nicholson, 1993), 万能なものはなく, 使用者が自身の判断のもとに運用しているというのが実状である. しかし, その中において比較的広範に適用できることが経験的に知られている地化学温度計に Na-K-Ca 温度計がある. 非火山性温泉にも適用できるという確固とした保証はないが, この温度計を使って地下における温泉水の温度(熱水温度)を計算し(Table 2), δD との関係を見てみたのが Fig. 7 である. Fig. 7 の上

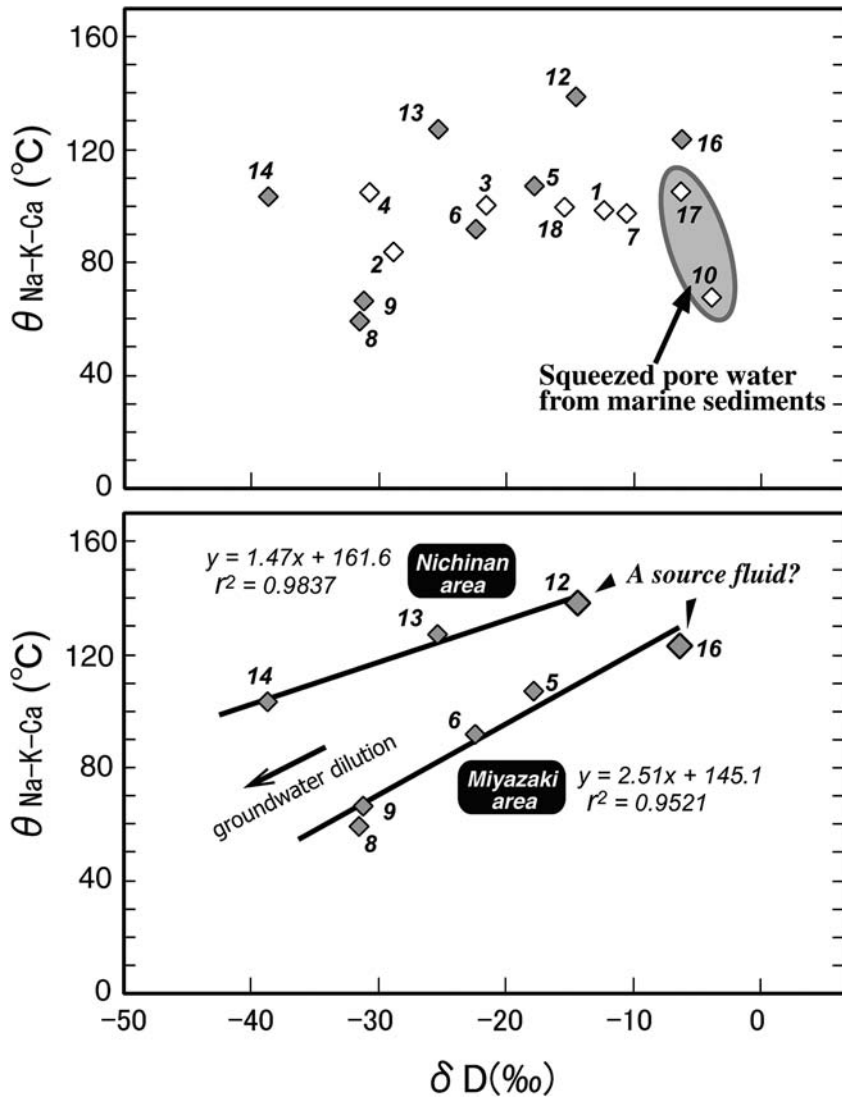


Fig. 7 Relation between δD and the Na-K-Ca geochemical temperature of whole the hot spring waters (upper) and systematical relationships between them of selected hot spring waters (Nos. 5, 6, 8, 9, 16 and Nos. 12, 13, 14) by previous data analyses in this study (lower). For the data analyses and the selection, see text.

図は、計算に必要な化学分析データのそろった温泉水全てについてのプロットであり、 δD と地化学温度の間には特に明確な関係は現れないが、成因不明の温泉起源水に関係する一群の温泉水に限ってみると、Fig. 7 の下図に表されるように明瞭な関係が認められるようになる。後述の Fig. 12 中にも図示しているが、宮崎地区と日南地区の地温勾配には差が認められることから (福田と永田, 1978; 宮崎県, 1981), 日南地区の温泉 (No. 12, No. 13, No. 14) と宮崎地区の温泉 (No. 5, No. 6, No. 8, No. 9, No. 16) に分け、それぞれのデータポイントに対して最小二乗法で関係を直線近似し、それらを図中に示した。両者ともに、 δD が大きくなるとともに温度が高くなる強い関係が認められる。このことは、これら一群の温泉水が成因不明の温泉起源水に天水起源地下水が混合して生成しているという解釈と整合的であり、成因不明の温泉起源流体の温度が 100 数十度 (130°C 程度) であることを示唆している。

4. 考 察

本章では、前章で存在が浮き彫りにされた温泉起源水の内、成因不明の熱水流体に的を絞る、それを代表する温泉水 (No. 12 と No. 16) の水質データの化学熱力学的解析によって、海底堆積物間隙海水とは由来の異なる流体であることを示し、付随ガスの地球化学解析結果や地質学的・鉱物学的知見との比較から、その妥当性について考察する。そして最後に、大分平野の温泉水の地化学特性が、宮崎平野の地下に賦存される温泉の起源熱水流体が示す特徴に符合するかどうかをチェックし、最近得られた岩石学的知見を踏まえながら、大分平野の地下に賦存される温泉の起源熱水流体の成因について予察的な議論を行う。

4.1 起源熱水流体の成因

前章 (3 章) で成因を特定できなかった温泉の起源熱水流体の地化学特性を整理すると次のようになる。

- [1] 堆積岩に貯留される熱水である。
- [2] 現海水や海底堆積物間隙海水に比べると、 ^{18}O に富み、D に乏しい。
- [3] 現海水や海底堆積物間隙海水に比べて、塩濃度が低く、B に富む。

近年、陸上、海底を問わず世界の各所で見られる泥火山 (Mud volcano) やその形成に関すると考えられている異常高圧熱水系 (Geopressured hydrothermal system) の研究において、上記特性 [2] と共通する性質をもつ水が続々と観察されており、堆積物・堆積岩を構成する主要な粘土鉱物のひとつであるスメクタイト (Smectite) からの脱水流体に由来すると考えられている (例えば, Dia *et al.*, 1999; You *et al.*, 2004; Xu *et al.*, 2006; 浜田ら, 2009; 井尻, 2009)。スメクタイトは 60~150°C においてイライト (Illite) へ相転移し (Dählmann and De Lange, 2003), Fig. 8 に表したように、構造水の一部である層間水の脱水反応によって水が排出される。この水が ^{18}O に富み、D に乏しいため、その水を起源とする熱水流体や温泉水にはそのような同位体的特徴がインプリントされると考えられている。また、スメクタイトの層間水のもうひとつの特徴は、堆積岩のボーリングコアからの間隙水の圧縮抽出実験結果 (石原と田中, 2009) から推定されるように、低塩分であるということであり、上記特性 [3] に符合し、海底下の泥火山や堆積物、陸上泥火山噴出物関連の水の一部においても同様な性質が観察されている (例えば, Brown *et al.*, 2001; Dählmann and De Lange, 2003; Haese *et al.*, 2006; You *et al.*, 2004)。なお, Dählmann and De Lange (2003) は、粘土鉱物の脱水反応以外に考えうる地球化学的諸反応 (例えば, Clay membrane ion filtration, Ash particle alteration, Bigogenic opal recrystallization, Anaerobic methane oxidation など)

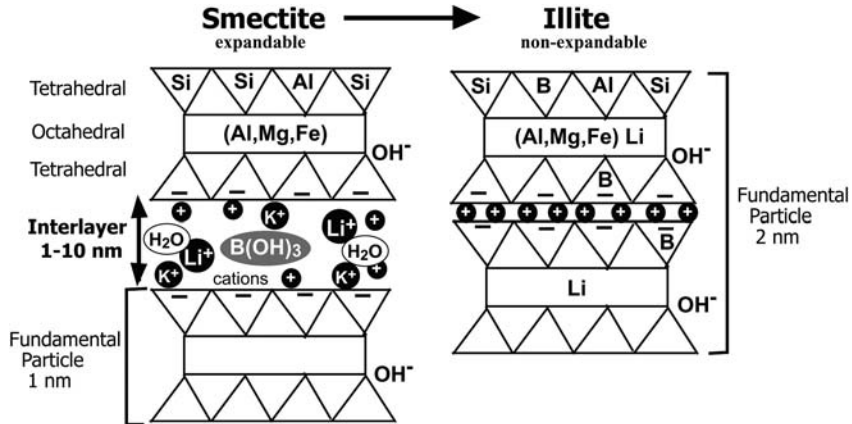
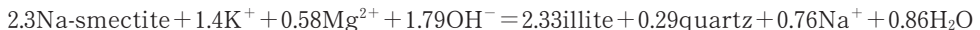


Fig. 8 A modified schematic cross-section of smectite and illite showing the crystallographic sites that hold Li, B and H₂O originally illustrated by Williams and Hervig (2005).

による同位体組成と Cl 濃度に現れる変化について考察を加えているが、¹⁸O に富み、D に乏しく、Cl 濃度（≒塩分濃度）の低い水の発生は粘土鉱物の脱水反応以外にはないことを示している。

以上のように、前章で成因を特定できなかった温泉の起源熱水流体は、地化学特性 [1] にある貯留情報も含め、スメクタイトの層間水に符合し、起源熱水流体の推定温度（100 数十℃）がスメクタイト-イライト相転移温度（60~150℃）の範囲内にあることも踏まえ、スメクタイトの層間水の脱水反応によって排出された熱水であるとするは論理的に見て妥当であると考えられる。そうであるならば、上記温度関係から見ると、まさにスメクタイト-イライト相転移が進行し、スメクタイト層間から脱水が起こっている状況の下で生じた流体であることが予想される。そこで、次に、それが化学熱力学的に妥当かどうかを検証する。

スメクタイトとイライトを含む水溶液内化学平衡（下式）を想定し、水溶液成分の活量をパラメータとするスメクタイト-イライトの安定領域を示す図（Stability diagram）を作成して、その図に起源熱水流体を代表する温泉水（No. 12 と No. 16）の水質データ（K⁺、Mg²⁺、Na⁺、H⁺の活量）をプロットすることで検討するというオーソドックスな方法を取った。



ここで、スメクタイト-イライトの安定領域境界や水溶液成分の活量を求めるために、平衡系の温度を与える必要があり、それには先に地化学温度計で推定した熱水温度の値を用いることにするが、その信憑性は結果の信頼性を大きく左右するので、まず、推定温度の信頼性評価を行った。評価の方法としては、Na-K-Ca 温度計以外の地化学温度計で熱水温度を計算し、両者を比較するという手段によった。

泥質堆積岩や珪質堆積岩の構成鉱物の中で重要なものは、スメクタイト-イライト系の粘土鉱物の他に、シリカ鉱物があり、温度上昇とともに非晶質シリカ、クリストバライト、石英の順に変化するとされている（例えば、Aoyagi and Kazama, 1980；水谷・歌田, 1987；青柳・下田, 1991）。それらの転移温度は厳密に決まっているものではないが、起源熱水流体の推定温度（100 数十℃）辺りでは石英が安定であるので（青柳・下田, 1991；Kyser and Hiatt, 2003）、石英温度計を使って熱水温度を推定し、先に求めた Na-K-Ca 温度計による温度と比較した。比較結果は Fig. 9 に示されるように、温泉水 No. 12 については Na-K-Ca 温度が 139℃ のところ、石英温度は 124℃、温泉水 No. 16 については Na-K-Ca 温度が 124℃ のところ、石英温度は 131℃ と、両者の差は 10℃ 程度で

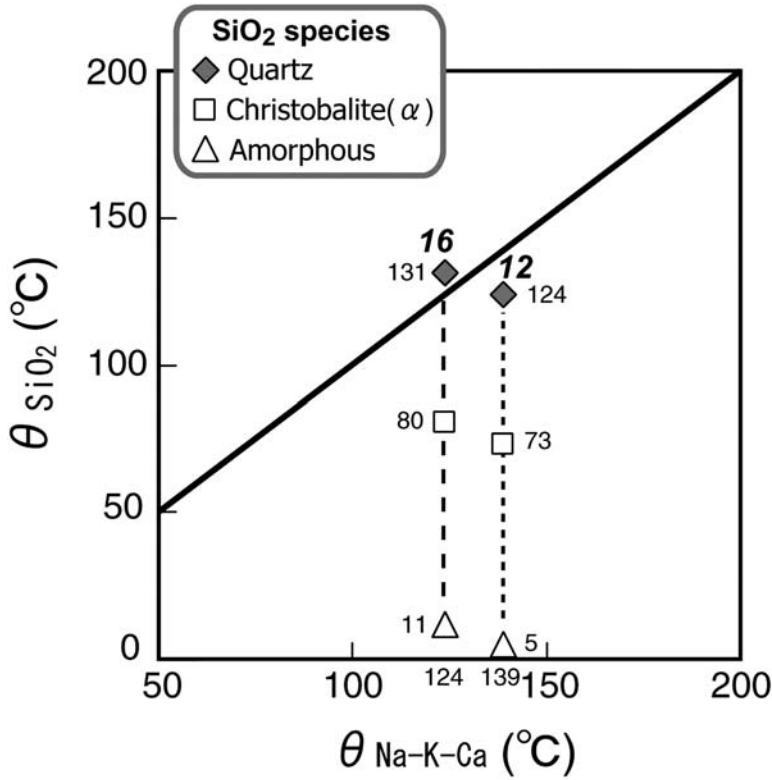


Fig. 9 Comparison between estimated hydrothermal temperatures by various geochemical thermometers using chemical data of hot spring waters (Nos. 12 and 16) closely related to a source hydrothermal fluid inferred to be derived from dehydrated inter-layer water from clay mineral (smectite).

あり、よく一致していると言える。なお、この図には石英温度計以外のシリカ温度計であるクリストバライト温度計と非晶質シリカ温度計との比較結果も合わせて示してあるが、不一致がはなはだしく、特に非晶質シリカ温度は湧出温度より低く、明らかに不合理な値となっている。

以上の比較検討により、化学熱力学的方法による検証における平衡系の温度を 100 数十°C とすることに問題はないと判断することができ、上述の地化学温度計によって得た推定温度の平均値 130°C を用いることにした。130°C におけるスメクタイト-イライトの安定領域を示す図 (Stability diagram) を Fig. 10 に示すが、スメクタイトからイライトへの移行が実際には両者の混合層鉱物 (mixed-layer clay mineral) の形成を経て段階的に進むことを考慮すれば、安定度図上に直線で表されたスメクタイト-イライトの安定領域境界はある程度の幅をもつと見ておく方が現実的に即していると考えられる。安定図上にプロットされた起源熱水流体を代表する温泉水 (No. 12 と No. 16) (活量は 130°C で計算) は、ほぼスメクタイト-イライトの安定領域境界線上に位置しており、成因不明の温泉起源熱水流体がスメクタイト層間からの脱水流体であるとするは不都合ではないという結果となった。

このように、成因不明の熱水流体がスメクタイト層間からの脱水流体であるのは濃厚であるが、そうであるならば、まだ説明していない上記地化学特性 [3] にある B-Li-Cl 組成上で相対的に B に富むという特徴をどのように説明できるかについて考察してみることは重要である。Fig. 8 に表わ

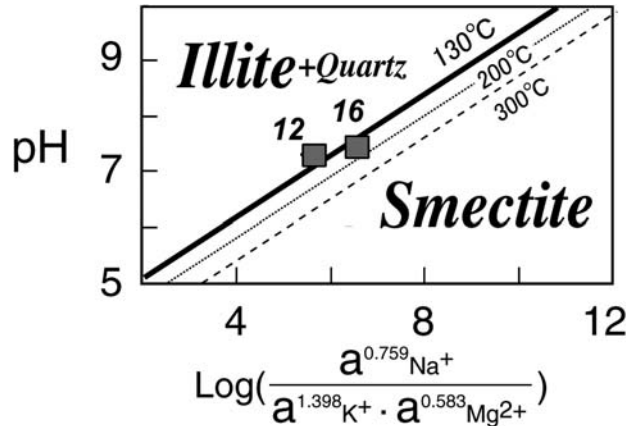


Fig. 10 An evaluation of hot spring waters (Nos. 12 and 16) closely related to a source hydrothermal fluid inferred to be derived from dehydrated inter-layer water from clay mineral (smectite) on a stability diagram of smectite and illite at the estimated hydrothermal temperature: 130°C and stability boundaries of smectite and illite at 200°C and 300°C.

されているように、Bは、スメクタイト層間に電荷を帯びない分子状態 $B(OH)_3$ で存在し、イライト化による層間水の排出にもなって水 (H_2O) と一緒に放出され、同じくスメクタイト層間にあるLiは、陽イオンであるため、イライト化に当たっても K^+ と同じように層間に留まりやすいと考えられる。一方、Clは陰イオンであるため、シートシリケート表面の負電荷の反発を受けて層間には入り込みにくく、層間における濃度は元々高くないと考えてよい。したがって、スメクタイト層間からの脱水流体がB-Li-Cl組成上で相対的にBに富むことは論理的にも予想しうることであり、内部矛盾のない説明を与えることができると考える。

4.2 付随ガスから見た起源熱水流体

温泉井No. 5とNo. 6から採取した付随ガスの化学・同位体データ (Table 4) を、有機地球化学分野で汎用されるBernard図 (CH_4 の $\delta^{13}C$ と $CH_4/(C_2H_6+C_3H_8)$ 比の関係図) 上にプロットしたものをFig. 11に示す。同図には、既往研究 (Igari and Sakata, 1989; 猪狩, 1996) に掲載されている佐土原, 新富, 日南の各地区で得られた天然ガスのデータも合わせてプロットした。このBernard図は、ガスに含まれる炭化水素の起源やその混合・移動・熟成などの物理的・化学的過程の履歴をたどることができる地球化学的判定図の一つである。

温泉井No. 5とNo. 6の温泉水は、スメクタイト層間からの脱水流体を起源とする一群のものに含まれるが、それらの付随ガス (炭化水素) は有機物の熱分解によって生成したものであり (Thermogenic)、深部で生成したものが浅所へ向けて移動してきたと解釈される。同様な化学・同位体的特徴は微生物の作用で発生したもの (Microbial) がメタン酸化を受けても生じうるが、Table 4に示されるように、共存する CO_2 の $\delta^{13}C$ が CH_4 のそれと大きく異なることから、その可能性は低い。日南地区で得られている天然ガスのデータも温泉井No. 5とNo. 6の付随ガスと同じように説明でき、日南地区の温泉水もまたスメクタイト層間からの脱水流体を起源とする温泉水であるということと整合的である。一方、海底堆積物間隙海水起源あるいはその影響を強く受けた温泉水が分布する佐土原地区や新富地区で得られる天然ガスの炭化水素は、Fig. 11のプロット位置から、主として微生物起源 (Microbial) であることが読み取れる。

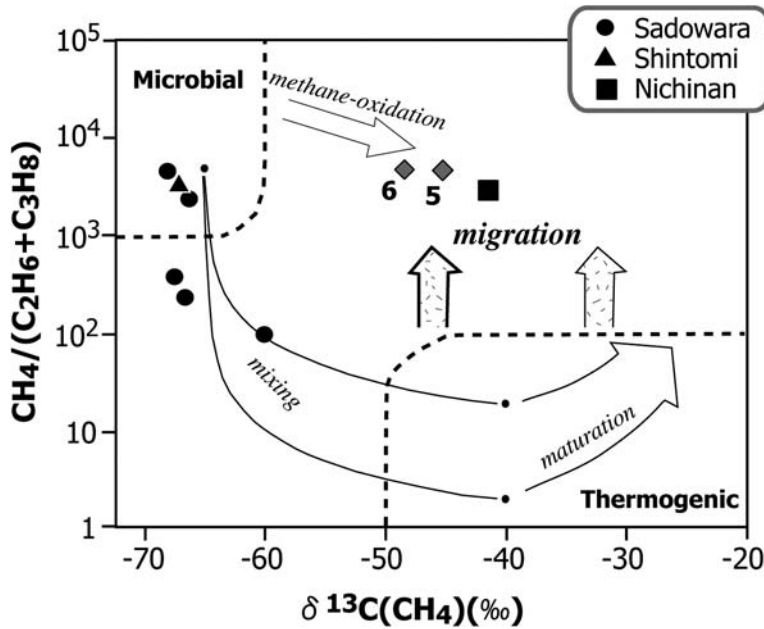


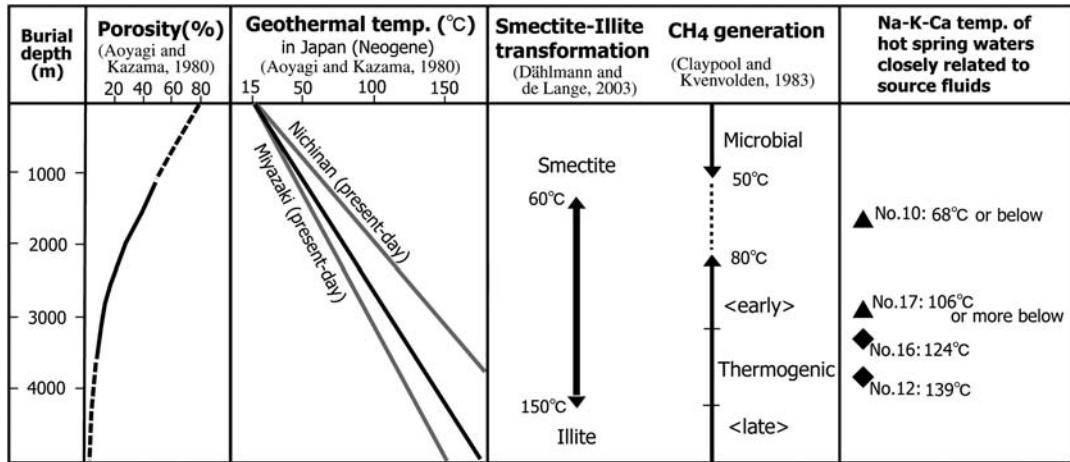
Fig. 11 Relation between $\delta^{13}\text{C}$ of CH_4 and $\text{CH}_4/(\text{C}_2\text{H}_6 + \text{C}_3\text{H}_8)$ ratio of accompanied gases of hot spring waters expressed on the Bernard plot, which is generally used for discrimination of origin of CH_4 and interpretation of undergoing physical and chemical processes of hydrocarbon gases. Data of Sadowara, Shintomi and Nichinan are cited from Igari and Sakata (1989) and Igari (1996).

以上のように、付随 CH_4 の起源の違いは、温泉起源流体の違いに対応づけられ、先の起源熱水流体特定結果の妥当性の傍証のひとつに挙げることができる。さらに、一般には、熱分解起源 CH_4 は微生物起源 CH_4 より高温・高深度で発生するとされていることから（例えば、Claypool and Kvenvolden, 1983 ; Judd, 2004）、2種類の温泉起源流体の発生深度に違いがあることが暗示され、次節の議論でもその妥当性が示される。

4.3 温泉起源流体の続成過程における位置づけ

本研究によって、宮崎平野の地下に賦存される温泉の起源流体には、(1)海底堆積物間隙より排出される海水 (squeezed pore water from marine sediments) に由来する、微生物起源 CH_4 を伴うものと、(2)粘土鉱物 (スメクタイト) 層間水の脱水に由来する (dehydrated inter-layer water from clay mineral : smectite)、熱分解起源 CH_4 を伴うものの2種類が存在すると結論された。この結果を地質学的な視点から眺めてみると、堆積盆地における埋没続成作用で岩石から解放される水 (release of water from pores and hydrous minerals ; Kyser and Hiatt, 2003) に対応づけられそうであることが予見される。そこで、ここでは、これら温泉の起源流体を埋没続成過程の中に位置づけて考察し、それらの成因について理解を深めることにする。

Fig. 12 は、2種類の温泉起源流体をそれぞれ代表する温泉水 (No. 10 と No. 17 および No. 12 と No. 16) の地下における温度 (Na-K-Ca 温度計による推定値)、スメクタイト-イライト転移の温度範囲、起源ごとに見た CH_4 生成温度範囲を、埋没深度の増加に伴う地層間隙率や地温の変化におよそ対応づけて表したものである。堆積物の埋没が進行するにつれて、次第に間隙率が低下し、それ



[Rem] Geothermal gradients of Miyazaki and Nichinan areas are referred from Miyazaki pref. (1981) and Fukuda and Nagata (1978), respectively.

Fig. 12 Estimated hydrothermal temperatures of hot spring waters of Nos. 12 and 16 (◆) and hot spring waters of Nos. 10 and 17 (▲) closely related to source fluids inferred to be derived from dehydrated inter-layer water from clay mineral (smectite) and squeezed pore water of marine sediments, respectively, roughly connected to temperature ranges of smectite-illite transformation and CH₄ generation, and average changes with burial depth on porosity and geothermal temperature in the Neogene argillaceous sediments of Japan with present-day geothermal gradients at Miyazaki and Nichinan areas.

とともに地温は上昇する。その変化の中でまず最初に見られる水の発生は堆積物間隙水の排水によるものであり、堆積物に含まれる有機物は低温下で微生物による分解を受けてCH₄が生成し、堆積物が海成であれば、発生する水は水溶性炭化水素を含む海水の性質をまだ残した高塩分の流体になるであろう。埋没深度の増加は、圧力増大を伴うので、その排水は深度増加によって促進されると考えられるが、同時に進行する温度上昇によってスメクタイト-イライト相転移が起り始め、層間水の脱水による水の発生が始まり、堆積物間隙は元の間隙水とは異なった性質の水で置き換わっていくと考えられる。さらに埋没が進行して岩層間隙がほとんどなくなる頃には、層間脱水流体が主体となり、有機物の熱分解によるCH₄の発生も受けて、海水とは全く性質の異なるCH₄を含む高温の熱水流体が堆積岩中に貯留されることになり、これが温泉水 No. 12 や No. 16 の起源地熱流体になっていると考えることができる。海底堆積物間隙より排出される海水を起源とする流体に由来するとした温泉水 (No. 10 と No. 17) の推定温度 (それぞれ 68°C, 106°C) が、スメクタイト-イライト転移や微生物起源 CH₄ の生成から予想される温度範囲より高く、この点のみが総合的でないが、実際は高々 50~60°C 程度であり、堆積物との間で十分に化学平衡に達していないため、見かけ上高い温度が得られたと考えることができる。温泉井 No. 10 と No. 17 の孔底深度 (それぞれ 300 m, 1700 m ; Table 1 参照) での温度を当該地域の地温勾配 (宮崎県, 1981) から推定すると、それぞれ 25°C, 62°C となり、そう考えるのは決して不合理であるとは思えない。

以上のように、海底堆積物間隙より排出される海水を起源とする熱水流体の温度推定に改善すべき点は残されているものの、温泉の起源熱水流体の成り立ち (成因) を堆積盆地の地下で起こる続成過程の中に位置付けて説明することができ、本研究で存在が明らかとなった 2 種類の温泉起源熱水流体が海成堆積物の続成過程の異なるステージで形成されたものである可能性が高いことを強く示唆している。前には触れなかったが、Fig. 4 (δD vs. $\delta^{18}O$ 図と δD vs. Cl 濃度の関係図) に示した点線の囲みは、加藤・榎原 (1986) が新潟堆積盆の石油・天然ガス付随水や松之山の温泉の起源

流体として認識した水のデータ範囲を表しており、地層水 (formation water) と表現したものであるが、それも続成過程の異なるステージで形成された熱水流体にさらに細分される可能性はあると思われる。

4.4 大分平野の温泉との比較

前にも述べたように、網田ら (2005) は、大分平野の大深度掘削温泉から流出する深層熱水型温泉水の地球化学的研究から、現海水より $\delta^{18}\text{O}$ に富み、D に乏しい高塩分の熱水を見出し、溶存炭酸の濃度と $\delta^{13}\text{C}$ の関係、B 濃度や Li 濃度と δD に見られる関係から、その高塩分熱水が変成脱水流体に由来するというを提案した。Fig. 13 は、その解釈の背景にある基本的な地化学特性である δD vs. $\delta^{18}\text{O}$ の関係を宮崎平野の温泉水のデータとともに示したものである。大分平野の温泉の起源熱水流体を代表するとされた温泉水の同位体組成 (破線の囲みのデータポイント) は、宮崎平野で見出した粘土鉱物層間からの脱水流体を起源とする熱水流体のそれよりも D に乏しいという特徴があり、網田ら (2005) の解釈の妥当性への傍証とすることができよう。しかし、最近、そのような見方に否定的な考えも提示されており (松葉谷, 2009), その程度の δD 値の違いは起源の違いを決定づける尺度にはなりえず、大分平野の温泉水も粘土鉱物層間からの脱水流体を起源にするとすることもできないことはない。そこで、ここでは、その線に沿って少し議論を展開してみることにする。

Fig. 14 は、大分平野と宮崎平野の温泉水を δD vs. Cl 関係図上で比較したものである。大分平野の温泉起源熱水流体を代表する温泉水 (破線の囲みのデータポイント) は、宮崎平野の粘土鉱物層間からの脱水流体を起源とする熱水流体を代表する温泉水に比べ、Cl 濃度が 5 倍近く高く、明瞭な違いとして認められる。4.1 節でも述べたように、高 Cl 濃度の粘土鉱物層間水は期待できないので、大分平野の温泉の起源熱水流体もまた粘土鉱物層間からの脱水流体に由来するとするのは無理がある。堆積物間隙海水が粘土鉱物粒子の粒間に残っており、そのような状況で層間水の脱水が起こる可能性もなくはないが、その場合、同位体組成の変化 (δD の減少と $\delta^{18}\text{O}$ の増加) は説明でき

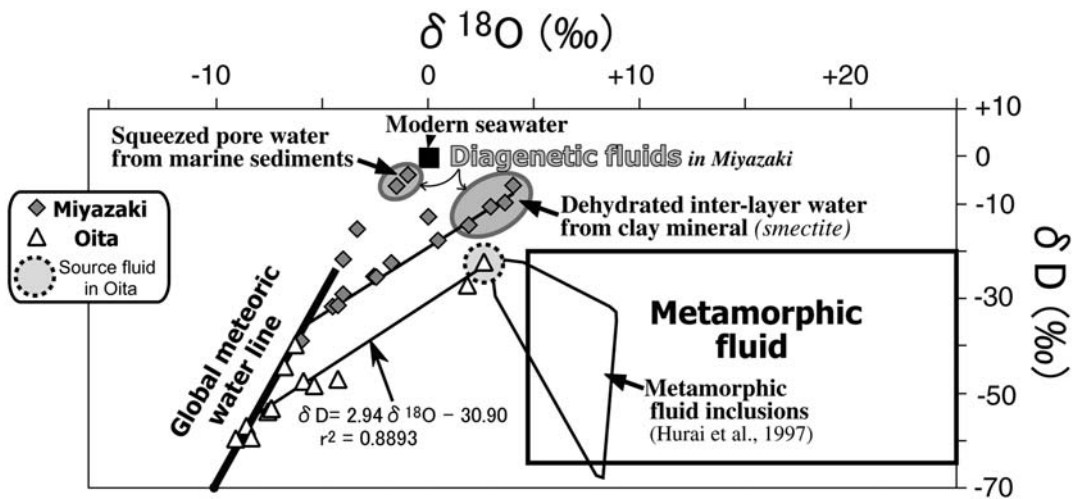


Fig. 13 Comparison between water isotope compositions (δD vs. $\delta^{18}\text{O}$) of hot spring waters in Miyazaki (in this study) and Oita plain (by Amita *et al.*, 2005) with modern seawater and ranges of source fluids of hot spring waters recognized in this study and metamorphic fluids.

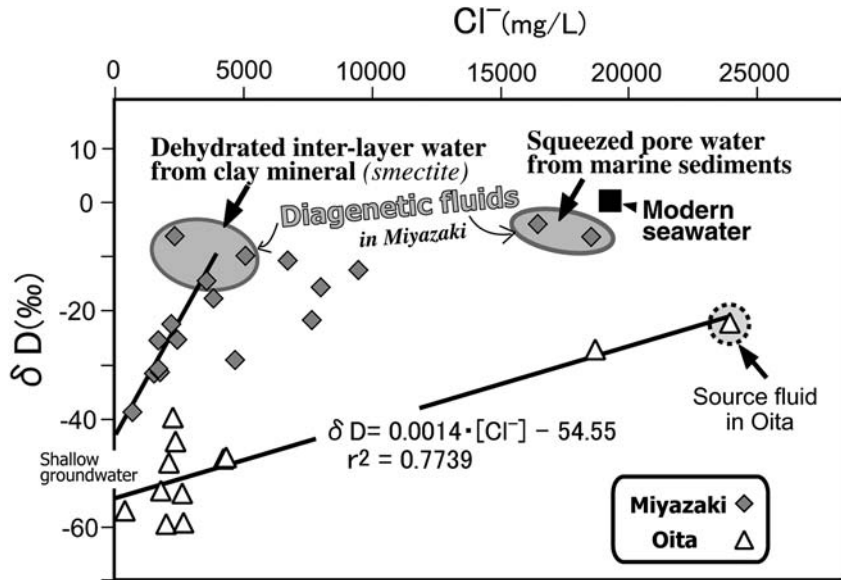


Fig. 14 Comparison between hot spring waters in Miyazaki (in this study) and Oita plain (by Amita *et al.*, 2005) on the correlation diagram of δD vs. Cl with modern seawater and ranges of source fluids of hot spring waters recognized in this study.

ても、 Cl 濃度の低い層間水が加わり Cl 濃度は低下するはずで、堆積物間隙海水より Cl 濃度が高いという実態をうまく説明できない。本論文は大分平野の温泉の起源熱水流体の成因を議論することを主要な目的としていないため、宮崎平野の温泉の起源熱水流体とは成因を異にするということに留め、あまり深く立ち入ることはしないが、最後に、 $B-Li-Cl$ 相対組成図上でも両者に違いが現れているということを紹介し、それが示唆することについて手短かに述べて議論を終えることにする。

Fig. 15 は、Fig. 6 の $B-Li-Cl$ 相対組成図上のデータポイントの内、宮崎平野の温泉起源熱水流体を代表する温泉水のものを残し、網田ら (2005) に掲載されている大分平野の温泉水の全データをプロットしたものである。大分平野の温泉水は、 $B-Li$ 軸に沿う一群と $Cl-B$ 軸に沿う一群に大きく 2 分されることが分かる。後者に属する温泉水 (網田ら, 2005) の試料番号 Oita-03, Oita-04, Oita-12) は、沖積層が分布する大野川河口付近にある温泉井から採取されたものであり、堆積物間隙海水と粘土鉱物層間脱水流体の双方に由来する混合タイプなのか、堆積物間隙海水の排水から粘土鉱物層間脱水流体の発生に変わる続成過程の途中段階で生成した遷移タイプなのかは定かではないが、続成脱水流体由来の可能性がある温泉水であることを示唆している。なお、このことを同位体組成 (Fig. 13) や δD vs. Cl 関係図 (Fig. 14) から見抜けなかったのは、これらの温泉水が天水起源地下水の混入を強く受けているからである。一方、 $B-Li$ 軸に沿う一群の温泉水には起源熱水流体を代表する温泉水が含まれているが (破線の囲みのデータポイント)、 Li/B 比に多様性が見られる。これは、添付図の Li/B 比と δD の関係に示されるように、天水起源地下水の混入の現れであると見ることができ、大分平野の高塩分の温泉起源熱水流体は埋没続成過程で発生する粘土鉱物層間脱水流体より Li に富むことが特徴であると言えそうである。最近、様々な高圧変成岩の石英脈中に包蔵されている流体包有物について、その $B-Li-Cl$ 組成が測定され (千眼ら, 2009 ; Sengen *et al.*, in prep.), $B-Li$ 軸に沿った分布をし、特に変成度の高いものの組成が大分平野の高塩分の温泉起源熱水流体のそれに類似することが分かってきた。また、網田ら (2005) では触れられていないが、 $B-Li$ 軸に沿っ

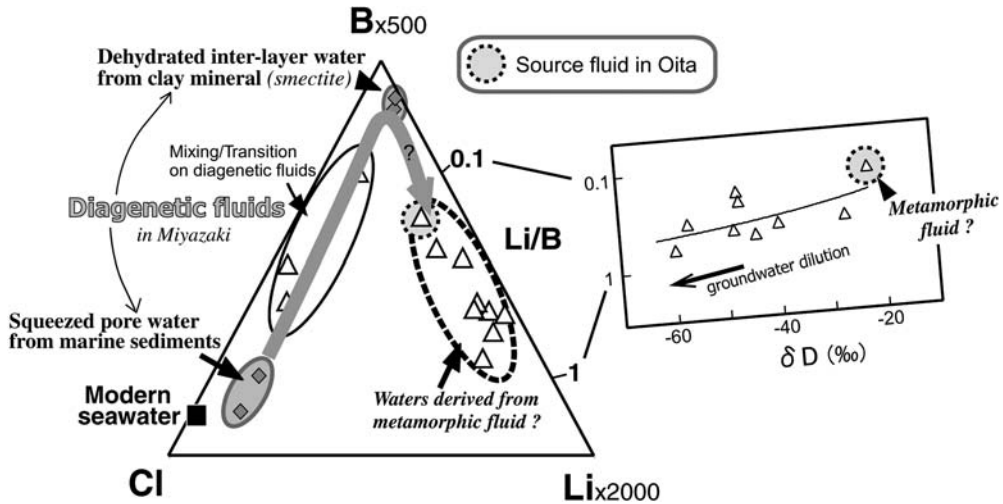


Fig. 15 Relative B-Li-Cl compositions of hot spring waters in the Oita plain (by Amita *et al.*, 2005) compared with modern seawater and ranges of source fluids of hot spring waters in the Miyazaki plain. The attached figure shows relation between δD and Li/B ratio for hot spring waters in Oita having relatively high B and Li contents. Grayish thick long allow presumably shows a compositional change path on generated fluids from diagenesis to metamorphism.

た一群の温泉水のうちいくつかは網田ら（2009）の試料番号 Oita-01 と Oita-02 で六ヶ迫鉱泉から得られたもの）三波川変成岩類を湧出母岩にしていること（神戸・寺岡，1968），大分平野付近の地下深部には同種の変成岩類の潜在が推定されることから（由佐ら，1992），大分平野の高塩分の温泉起源熱水流体は変成岩に何らかの形で関わった流体であると十分に考えることができ，今後も引き続き検討をして行く価値があると思われる。

5. おわりに

本研究により，宮崎平野の地下には，海成堆積物の埋没続成過程の異なるステージで発生する 2 種類の流体：(1) 堆積物間隙から排出される比較的低温の高塩分の熱水流体，(2) 粘土鉱物層間水を起源とする 130°C 程度の比較的低塩分の熱水流体が存在し，天水起源地下水とともに温泉の起源流体になっていることが判った。本研究で成因が特定された温泉起源流体と同様な地化学特性を有する熱水が陸上，海底を問わず世界各地に存在することを多くの研究報告を通して知ることができ，そのような続成脱水流体がメジャーな温泉起源流体の一つとして地球上に存在していることを示唆していると考えられる。日本温泉科学会誌『温泉科学』においても，近年，非火山性温泉，特に本研究で取り扱ったような平野部の大深度温泉の研究報告がよく見られるようになり（今橋ら，1996；関ら，2004；飯盛ら，2005；宮崎，2005；宮崎ら，2007；富田ら，2009；関，2009），当該分野の研究は今後さらに大きく発展するものと考えられ，本研究の成果がその一端を担うことになれば幸いである。また，本研究で行った温泉起源流体の続成過程での位置づけに関する考察の中には，今後の研究展開について示唆を与えていることが内包されていると考えている。例えば，堆積物間隙から排出された高塩分熱水流体が地層から排水されにくい状態に置かれて埋没が進むことがあった場合，粘土鉱物層間からの脱水流体の付加が岩層間隙圧を異常に増加させる原因になるとともに，中間的な地化学特性を有する熱水流体を生むことが予想される。これが泥火山やその形成に関係するとされて

いる異常高圧熱水系の成因ではないかと考えられ、未公表ではあるが、インドネシアのジャワ島東部に最近出現した泥火山 (Mazzini *et al.*, 2007) の泥水や付随ガスの地球化学的な分析から、そのような熱水流体の存在を予見させる。今後、本研究のような非火山性温泉の地球化学的研究が、泥火山の成因解明や天然ガス採掘における防災など異分野の研究にリンクしていくことも期待したい。

宮崎平野と大分平野の温泉の比較では、大分平野の深層熱水型温泉水は、少なくとも宮崎平野のそれとは同じ成因では説明できないことが分かった。粘土鉱物層間脱水が終わった後、続成過程での粘土鉱物の最終的な産物はイライトや緑泥石であり、それらはシートシリケート構造中に依然として B や Li を包蔵している (例えば、イライトについては Fig. 8 参照)。これらの鉱物は水酸基 (—OH) として構造中に“水”を含んでおり (イライト: $K_{0.65}Al_{2.0}Al_{0.65}Si_{3.35}O_{10}(OH)_2$, 緑泥石: $(Mg, Fe, Al)_6(Si, Al)_4O_{10}(OH)_8$)、さらなる脱水分解を起こし、新たな熱水流体を放出すると考えられる。例えば、緑泥石は 100 km 以浅の深さで脱水するとされていることから (例えば、小野, 2000; Schmidt and Poli, 1998), 変成脱水流体が温泉の起源熱水流体となることはあり得る。近年、変成作用における岩石中の B や Li の挙動に関する詳細な研究が進められているが (Marchall *et al.*, 2006; Bebout *et al.*, 2007), そのような異分野の研究成果を積極的に取り入れることによって、変成脱水流体を起源とする温泉水の探索は確実性を増すものとする。そして、大分平野の温泉起源熱水流体が変成脱水流体であることを立証できれば、続成作用から変成作用に至る一連の過程で発生する脱水流体には様々な地化学特性変化が伴われていること、例えば B-Li-Cl 組成図上 (Fig. 15) に示したような“進化的組成変化 (evolutional change)” (図上で相対的に、Cl に富む流体から B に富む流体を経由して Li に富む流体の発生へと段階的に移行していく) 等を論じられる土俵を準備することができ、Bebout (1995) が提案しているようなプレート収斂域における沈み込む海洋プレートに起こる元素や同位体の分別を、温泉科学の視点から検証することも可能となってくるであろう。

謝 辞

水素・酸素安定同位体分析は The stable isotope Laboratory, GNS Science Limited (ニュージーランド)、付随ガスの化学・同位体分析は石油資源開発(株) 技術研究所で行われ、付随ガスのデータ解析結果の解釈等では石油資源開発(株) 技術研究所の早稲田周氏から有益なコメントをいただいた。現地調査は、事前の宮崎県からの情報提供、泉源所有者の方々のご理解のもとに円滑に行うことができ、試料採取では京都大学大学院理学研究科附属地球熱学研究施設の山本順司氏と杜建国氏 (現在: 中国地震局地震予測研究所) の協力を得た。また、2名の匿名査読者からは、原稿の改善に際し有益なコメントをいただいた。この研究は、文部科学省による「京都大学 21 世紀 COE プログラム: 活地球圏の変動解明」の補助を受けて進めた。関係各位に感謝申し上げる。

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.
- Aoyagi, K. and Kazama, T. (1980): Transformation changes of clay minerals, zeolites and silica minerals during diagenesis. *Sedimentology*, **27**, 179-188.
- 青柳宏一, 下田 右 (1991): 泥質堆積物および泥質岩における続成作用. 粘土科学, **31**, 23-31.
- Bebout, G.E. (1995): The impact of subduction-zone metamorphism on mantle-ocean chemical cycling. *Chem. Geol.*, **126**, 191-218.
- Bebout, G.E., Bebout, A.E. and Graham, C.M. (2007): Cycling of B, Li, and LILE (K, Cs, Rb, Ba, Sr) into subduction zones: SIMS evidence from micas in high-P/T metasedimentary rocks.

- Chem. Geol., **239**, 284-304.
- Brown, K.M., Saffer, D.M. and Bekins, B.A. (2001) : Smectite diagenesis pore-water freshening and fluid flow at the toe of the Nankai wedge. *Earth Planet. Sci. Let.*, **194**, 97-109.
- Claypool, G.E. and Kvenvolden, K.A. (1983) : Methane and other hydrocarbon gases in marine sediment. *Annu. Rev. Earth Planet. Sci.*, **11**, 299-327.
- Dählmann, A. and De Lange, G.J. (2003) : Fluid-sediment interactions at Eastern Mediterranean mud volcanoes : A stable isotope study from ODP Leg 160. *Earth Planet. Sci. Let.*, **212**, 377-391.
- Davisson, M.L., Presser, T.S. and Criss, R.E. (1994) : Geochemistry of tectonically expelled fluids from the northern Coast ranges, Rumsey Hills, California, USA. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **58**, 1687-1699.
- Dia, A.N., Castrec-Rouelle, M., Boulègue, J. and Comeau, P. (1999) : Trinidad mud volcanoes : Where do the expelled fluids come from? *Geochim. Cosmochim. Acta*, **63**, 1023-1038.
- Frape, S.K. and Fritz, P. (1984) : Water-rock interaction and chemistry of groundwaters from the Canadian Shield. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **48**, 1617-1627.
- 福田 理, 永田松三 (1978) : 宮崎県日南南那珂郡北郷町 R1 号井自噴す. *地質ニュース*, **290**, 1-22.
- 福田 理 (1979) : 共水性ガスとその鉱床 (その 1). *地質ニュース*, **294**, 1-15.
- Giggenbach, W.F. and Goguel, R.L. (1989) : Collection and analysis of geothermal and volcanic water and gas discharges. Fourth Edition. Report CD2401, Chemistry Division, DSIR, 81 p., New Zealand.
- Giggenbach, W.F., Stewart, M.K., Sano, Y., Goguel, R.L. and Lyon, G.L. (1993) : Isotope and chemical composition of waters and gases from the east coast accretionary prism, New Zealand. Proceedings of the final research co-ordination meeting on the application of isotope and geothermal techniques to geothermal exploration in the Middle east, Asia, the Pacific and Africa, 209-231.
- Haese, R.R., Hensen, C. and De Lange, G.J. (2006) : Pore water geochemistry of Mediterranean mud volcanoes, Implication for fluid transport and fluid origin. *Mar. Geol.*, **225**, 191-208.
- 浜田好弘, 田中和広, 宮田雄一郎 (2009) : 台湾泥火山の地質構造と地化学特性. *地学雑誌*, **118**, 408-423.
- Hurai, V., Simon, K. and Bezak, V. (1997) : Contrasting chemistry and H, O, C isotope composition of greenschist-facies, Hercynian and Alpine metamorphic fluids (Western Carpathians). *Chem. Geol.*, **136**, 281-293.
- 一国雅巳, 鈴木勲子, 加藤武雄 (1974) : 食塩泉の化学的特徴. *温泉科学*, **25**, 18-33.
- Igari, S. and Sakata, S. (1989) : Origin of natural gas of dissolved-in-water type in Japan inferred from chemical and isotopic compositions : Occurrence of dissolved gas of thermogenic origin. *Geochem. J.*, **23**, 139-142.
- 猪狩俊一郎 (1996) : 日本の天然ガスの炭化水素比」の関係について. *地球化学*, **30**, 47-54.
- 井尻 暁 (2009) : 海底泥火山堆積物中の間隙水の起源. *地学雑誌*, **118**, 435-454.
- 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鉱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.
- 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*, **87**, 245-281.

- 飯盛和代, 田中知恵, 飯盛喜代春 (2005) : 佐賀県南部低平地の温泉の化学組成について. 温泉科学, **54**, 147-154.
- 石原朋和, 田中和広 (2009) : 泥火山周辺の地質構造と地下水の地化学特性—新潟県十日町市蒲生における検討—. 地学雑誌, **118**, 350-372.
- Judd, A.G. (2004) : Natural seabed gas seeps as sources of atmospheric methane. *Environ. Geol.*, **46**, 988-996.
- 神戸信和, 寺岡易司 (1968) : 臼杵地域の地質. 地域地質研究報告 5 万分の 1 図幅 福岡 (14) 第 88 号, 地質調査所, 63 p.
- 加藤 進, 梶原義照 (1986) : 新潟地域油・ガス田付随水の水素および酸素の同位体組成. 石油技術協会誌, **51**, 113-122.
- 北岡豪一 (1987) : 大分市における地温勾配と深層温泉源の分布. 大分県温泉調査研究会報告, **38**, 7-22.
- 北岡豪一, 川野田実夫 (1991) : 大分市温泉の化学成分の分布とその変化. 大分県温泉調査研究会報告, **42**, 1-10.
- 吉川恭三, 北岡豪一 (1985) : いわゆる深層熱水型温泉について. 大分県温泉調査研究会報告, **36**, 1-12.
- Kloppmann, W., Girard, J-P. and Négrel, P. (2002) : Exotic stable isotope compositions of saline waters and brines from the crystalline basement. *Chem. Geol.*, **184**, 49-70.
- Kyser, K. and Hiatt, E.E. (2003) : Fluids in sedimentary basins : an introduction. *J. Geochem. Explor.*, **80**, 139-149.
- Lodemann, M., Fritz, P., Wolf, M., Ivanovich, M., Hansen, B.T. and Nolte, E. (1997) : On the origin of saline fluids in the KTB (continental deep drilling project of Germany). *Appl. Geochem.*, **12**, 831-849.
- 松葉谷治 (2009) : 有馬型温泉とはいかなる定義のものか. 温泉科学, **59**, 24-35.
- Marschall, H.R., Altherr, R., Ludwing, T., Kalt, A., Gméling, K. and Kasztovszky, Z. (2006) : Partitioning and budget of Li, Be and B in high-pressure metamorphic rocks. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **70**, 4750-4769.
- Mazzini, A., Svensen, H., Akhmanov, G.G., Aloisi, G., Planke, S., Malthe-Sørenssen, A. and Istadi, B. (2007) : Triggering and dynamic evolution of the LUSI mud volcano, Indonesia. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **261**, 375-388.
- 水谷伸治郎, 歌田 実 (1987) : 続成作用. 岩波講座地球科学 5「地球表層の物質と環境 (勘米良亀 監, 水谷伸治郎, 鎮西清高編)」, p. 35-p. 49, 岩波書店, 東京.
- 宮崎県 (1981) : 宮崎県地質図及び同説明書 (宮崎県の地質と地下資源 第四版). 72 p.+30 p.
- 宮崎県 (1993) : 湯とりマップガイド 宮崎県温泉紹介. 31 p.
- 宮崎哲郎 (2005) : 濃尾平野における大深度非火山性温泉. 温泉科学, **55**, 1-12.
- 宮崎哲郎, 柴田智郎, 秋田藤夫, 高橋徹哉, 青柳直樹, 中山憲司, 内野栄治, 橋爪 清, 甘露寺泰雄 (2007) : 関東平野, 大阪平野, 石狩平野, 濃尾平野, 伊勢・志摩・鈴鹿地方における大深度温泉. 温泉科学, **57**, 99-114.
- Mora, G. (2005) : Isotope-tracking of pore water freshening in the fore-arc basin of Japan Trench. *Mar. Geol.*, **219**, 71-79.
- Motyka, R.J., Poreda, R.J. and Jeffrey, A.W.A. (1989) : Geochemistry, isotopic, and origin of fluids emanating from mud volcanoes in the Copper River basin, Alaska. *Geochim. Cos-*

- mochim. Acta, **53**, 29-41.
- Nicholson, K. (1993) : Water chemistry. In : Geothermal Fluids, 19-85, Springer-Verlag, Germany.
- 野田徹郎, 北岡豪一 (1981) : 大分川流域温泉の継続観測の総括. 大分県温泉調査研究会報告, **32**, 43-55.
- 大沢信二, 由佐悠紀, 王 雲飛 (1995) : 中国雲南省騰冲火山区における熱水系の地球化学モデル. 温泉科学, **45**, 13-25.
- 大沢信二 (1996) : 大分平野の温泉水の起源について. 大分県温泉調査研究会報告, **47**, 37-42.
- 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.
- 小野重明 (2000) : 沈み込むスラブ中の含水鉱物と水輸送 [総説]. 地学雑誌, **109**, 564-575.
- Pauwels, H., Fouillac, C. and Fouillac, A-M. (1993) : Chemistry and isotopes of deep geothermal saline fluids in the Upper Rhine Graben : Origin of compounds and water-rock interactions. Geochim. Cosmochim. Acta, **57**, 2737-2749.
- 佐藤幸二 (1973) : “非火山性” 温泉に関する研究. 温泉科学, **24**, 55-64.
- 斎藤 眞, 阪口圭一, 駒澤正夫 (1998) : 20 万分の 1 地質図幅「宮崎」. 地質ニュース, **521**, 28-30.
- Schmidt, M.W. and Poli, S. (1998) : Experimentally based water budgets for dehydration slabs and consequences for arc magma generation, Earth Planet. Sci. Lett., **163**, 361-379.
- 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.
- 関 陽児 (2009) : 関東地方における大深度温泉の地質と水質. 温泉科学, **58**, 282-293.
- 千眼喜照, 西村光史, 大沢信二, 平島崇男 (2009) : 深部流体の Li/B 比 : 深部流体の発生深度の指標になるか? 日本鉱物学会 2009 年年会講演要旨集, S1-P. 5.
- 茂野 博 (1982) : 非火山性地域の地熱資源—深層熱水—. 地質ニュース, **337**, 202-203.
- 鈴木尉元, 佐藤岱生, 金子儘行, 影山邦夫, 矢崎清貫 (1990) : 宮崎平野新富町の坑井の地質—宮崎層群の花崗岩質基盤—. 地質調査所月報, **41**, 87-92.
- Takamatsu, N., Imahashi, M., Kamimura, K. and Tsutsumi, M. (1986) : Geochemical implication of the lithium content of saline spring waters in Japan. Geochem. J., **20**, 143-151.
- 富田純平, 佐竹 洋, 佐々木圭一, 坂口 綾, 井上陸夫, 浜崎靖典, 山本政儀 (2009) : 大深度掘削井から得られた Na-Cl 型温鉱泉水中のラジウム (Ra) 同位体. 温泉科学, **58**, 241-255.
- Williams, L.B. and Hervig, R.L. (2005) : Lithium and boron isotopes in illite-smectite : The importance of crystal size. Geochim. Cosmochim. Acta, **69**, 5705-5716.
- Worden, R.H., Coleman, M.L. and Matray, J-M (1999) : Basin scale evolution of formation waters : A diagenetic and formation water study of Triassic Chaunoy Formation, Paris Basin. Geochim. Cosmochim. Acta, **63**, 2513-2528.
- Xu, H-L., Shen, J-W. and Zhou, X-W. (2006) : Geochemistry of geopressured hydrothermal waters in the Niigata sedimentary basin, Japan. Island Arc, **15**, 199-209.
- You, C-F., Gieskes, J.M., Lee, T., Yui, T-F. and Chen, H-W. (2004) : Geochemistry of mud volcano fluids in the Taiwan accretionary prism. Appl. Geochem., **19**, 695-707.
- 由佐悠紀, 竹村恵二, 北岡豪一, 神山孝吉, 堀江正治, 中川一郎, 小林芳正, 久保寺章, 須藤靖明, 井川 猛, 浅田正陽 (1992) : 反射法地震探査と重力測定による別府湾の地下構造. 地震, **45**, 199-212.