

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

村松容一^{1)*}, 濱井昂弥²⁾, 山野 恭³⁾, 千葉 仁⁴⁾, 早稻田周⁵⁾

(平成 24 年 3 月 7 日受付, 平成 24 年 6 月 22 日受理)

Hydrochemistry, Its Geological and Mineralogical Interpretations of Non-Volcanic Hot Springs in Boso Peninsula and Southeastern Ibaraki Prefecture, Central Japan

Yoichi MURAMATSU^{1)*}, Takaya HAMAI²⁾, Takashi YAMANO³⁾,
Hitoshi CHIBA⁴⁾ and Amane WASEDA⁵⁾

Abstract

Chemical and stable isotopic ($\delta^{18}\text{O}$, δD , $\delta^{34}\text{S}$) compositions of the non-volcanic hot spring waters from twenty seven wells of the Boso Peninsula, eastern Chiba and southeastern Ibaraki Prefectures, central Japan, additionally rock samples from one well for mineral constituents, were analyzed to constrain the deep fluid-mineral interactions and flow systems of the fluids.

The Na—Cl water from the deep reservoir, and Na— HCO_3 , Na—Cl, Ca— SO_4 and Na · Ca— HCO_3 waters from the shallow reservoir in the field, originate through mixing of fossil sea water with meteoric water. The $\delta^{34}\text{S}$ values of the sulfate-rich waters range between -2.7 and $+51.2$ ‰, interpreting that sulfur is originated by pyrite oxidation and

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 Prefecture 278-8510, Japan. *Corresponding author : E-mail muramatu@rs.noda.tus.ac.jp, TEL 04-7122-9209, FAX 04-7122-1560.

²⁾ 東京理科大学理工学部工業化学科 〒278-8510 千葉県野田市山崎 2641. ²⁾ Department of Pure and Industrial Chemistry, Faculty of Science and Technology, Tokyo University of Science, 2641 Yamazaki, Noda, Chiba Prefecture 278-8510, Japan.

³⁾ 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. ³⁾ Faculty of Science, Tokyo University of Science, 1-3 Kagurazaka, Shinjuku-ku, Tokyo 162-8601, Japan.

⁴⁾ 岡山大学理学部地球科学科 〒700-8530 岡山県岡山市津島中 3-1-1. ⁴⁾ Department of Earth Science, Faculty of Science, Okayama University, 3-1-1 Tsushima, Okayama, Okayama Prefecture 700-8530, Japan.

⁵⁾ 石油資源開発(株)技術研究所 〒261-0025 千葉県千葉市美浜区浜田 1-2-1. ⁵⁾ Research Center, Japan Petroleum Exploration Co., Ltd., 1-2-1 Hamada, Mihama-ku, Chiba, Chiba Prefecture 261-0025, Japan.

sulfate reduction processes. The major chemical compositions of all of the waters from the shallow reservoirs, and most of the waters from the deep reservoirs are controlled by formation of smectite by weathering of plagioclase, and the Na—Cl waters from the deep reservoir in the Kanto tectonic basin area also by ion exchange of smectite. While, the major chemical compositions of Na—Cl waters from the deep reservoir in the Awa and Oarai areas are controlled by reaction of volcanic material to form smectite, and those in the Choshi and Mineoka belt areas by smectite—illite transformation. There are five different fossil sea waters with different $\delta^{18}\text{O}$ value. The oxygen isotope negative shifts of end member fluids from the Awa, Oarai and Kanto tectonic basin areas indicating -5.68 , -3.28 and -1.95% , respectively, reflect pervasive reaction of volcanic material to form smectite with the sedimentary sequence. The oxygen isotope positive shifts of the other end member fluids are found to be $+10.55$ and $+2.45\%$ in the Mineoka belt and Choshi areas, respectively, resulting from smectite—illite transformation. The fluid formation mechanisms are concordant with the mineral assemblage of the reservoir, and fluid-mineral interaction calculation results that most deep fluids in the field are supersaturated with smectite and illite.

Key words : Southeastern Chiba Prefecture, Southeastern Ibaraki Prefecture, Non-volcanic hot spring waters, Deep fluid-mineral interaction, Fluid formation mechanism, Geological and mineralogical interpretations

要 旨

千葉県房総半島, および千葉県東部から茨城県南東部にかけて分布する非火山性温泉を対象に, 主成分および水素・酸素・硫黄同位体分析を実施し, 地質鉱物学的視点に立って深部流体の起源と水質形成機構を検討するとともに, 水—鉱物相互作用の化学平衡論により検証した。深部温泉は Na—Cl 型を主とするが, 浅部温泉は Na—HCO₃ 型, Na—Cl 型, Ca—SO₄ 型, Na・Ca—HCO₃ 型と多様であり, これらの温泉は化石海水と天水の混合によって形成されたものである。温泉水の硫酸態硫黄濃度は, 浅層を中心とする黄鉄鉱の酸化作用のほか, 多くの Na—Cl 型深部温泉では硫酸還元反応に規制される。すべての浅部温泉と多くの深部温泉の水質は斜長石の風化作用, 関東構造盆地地域のほとんどの Na—Cl 型深部温泉は陽イオン交換反応にも規制される。安房・大洗地域の一部の Na—Cl 型深部温泉は火山性物質の風化作用, 銚子・嶺岡隆起帯地域の Na—Cl 型深部温泉は続成作用に規制される。本地域には 5 種類の化石海水が賦存する。安房・大洗・関東構造盆地地域には, $\delta^{18}\text{O}$ 値が海水よりマイナス側へシフトする化石海水が 3 種賦存し, このシフトは火山性物質の Mg—スメクタイト化に起因しており, 反応時間が長くなるほどスメクタイト化は一層進行している。一方, 嶺岡隆起帯・銚子地域には $\delta^{18}\text{O}$ 値が海水よりプラス側へシフトする化石海水が 2 種賦存し, このシフトは海底堆積物を構成するスメクタイトのイライト化の際に生じる ¹⁸O に富む層間水の脱水反応によってもたらされた。これらの水質形成機構は地下構成鉱物および水—鉱物相互作用に関する化学平衡計算結果と整合する。

キーワード : 千葉県南東部, 茨城県南東部, 非火山性温泉, 水—鉱物相互作用, 水質形成機構, 地質鉱物学的解釈

1. はじめに

関東平野の中央部に分布する非火山性温泉を対象にした, 地質鉱物学的視点に立った深部流体の流動機構と水質形成機構に関する研究は村松ら (2008, 2010), Muramatsu *et al.* (2011) などによって行われている。それらによれば, 当該温泉は化石海水と天水の混合からなり, 大まかな泉質は化石海水によってもたらされ, この化石海水の特徴は強塩泉の研究によって概略把握することができる。

千葉県房総半島には古くから 50 カ所以上の非火山性温泉が分布し、現在も温泉開発が盛んに進められており、化学成分から温泉水や溶存物質の起源などを考察する地球化学的研究は多数報告されている(相川ら, 1981; 相川, 1991; 今橋ら, 1996; Kashiwagi *et al.*, 2006). とくに、強塩泉(化石海水)を付随する南関東ガス田は我が国の水溶性天然ガスの 9 割を占めるとともに、全世界の約 4 割を生産するほどに豊富なヨウ素が含まれることから(千葉県史料研究財団, 1998), このガス田付随水に関する地球化学的、鉱床地質学的研究は多数行われている(例えば、河井, 1961; 杉崎ら, 1963; Maekawa *et al.*, 2006). 一方、千葉県東部から茨城県南東部の太平洋沿岸に点在する強塩泉を含む非火山性温泉の地球化学的研究は、主成分および酸素・水素安定同位体組成の特性、坑井地質との関係や温泉水の起源に関する概括的研究に留まる(関 寿子ら, 2001; 関 陽児ら, 2004). このような先行研究からわかるように、これらの地域に多数分布する非火山性温泉を対象にした、地質鉱物学的視点に立った深部流体の流動機構と水質形成機構に関する詳細な研究はこれまでほとんど報告されていない。

本研究では、千葉県房総半島、および千葉県東部から茨城県南東部の太平洋沿岸に分布する強塩泉を主として採取し、とくに房総半島では塩化物泉を含む多様な温泉を満遍なく採取した。これらの温泉水の主成分および水素・酸素・硫黄同位体分析を実施するとともに、温泉井の掘削時に回収された岩石片の X 線回折分析を実施した。得られた結果をもとに、地質鉱物学的視点に立って深部流体の起源と水質形成機構を考察するとともに、水-鉱物相互作用の化学平衡論により検証した。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、深部流体(deep fluid)と区別する。また、各温泉の名称は所在地名で表す。

2. 地質概要

千葉県房総半島、および千葉県東部から茨城県南東部における地形、地下地質、地質構造は千葉県史料研究財団(1998)、大森ら(1986)、近藤(1991)、鈴木(2002)、高橋(2008)、高橋・高橋(2008)などによって報告されている。調査地域の標高は、100 m 以下が全体の約 85% を占める。近藤(1991)、千葉県史料研究財団(1998)、高橋(2008)、高橋・高橋(2008)をもとに編纂した、本地域の地質図および地質断面図を Fig. 1 に示す。房総半島の地質と地質構造は三浦半島の葉山から房総半島の鴨川にかけて東西方向に続く葉山-嶺岡隆起帯によって二分され、北側と南側(海溝側)で堆積盆地の発達様式や地層の変形度が著しく異なることから、南から安房、嶺岡隆起帯および関東構造盆地地域に 3 分割する(Fig. 1 の凡例)。

1) 安房地域

館山平野と館山丘陵(最高標高は高塚山 216 m)からなり、フィリピン海プレートの沈み込みに伴って 15 Ma 以降に形成された付加体堆積物である保田層群と三浦層群(中新世)、およびその上位の海溝陸側斜面堆積物である千倉層群と豊房層群(鮮新世~更新世, 約 3 Ma 以降)が分布する(高橋, 2008)。これらの地層はほぼ東西性の衝上断層群で境され、北から南へ向けて新しくなる。保田層群は下位より緑色凝灰岩、礫岩、砂岩、砂岩泥岩互層、泥岩、凝灰岩泥岩互層、砂質泥岩からなり、これを不整合に覆う三浦層群は泥岩を主体とし多数の凝灰岩を挟在する。三浦層群を不整合に覆う千倉層群は主に泥岩、砂岩泥岩互層からなり、凝灰岩薄層を頻繁に挟む。豊房層群は三浦層群と千倉層群を不整合に覆い、凝灰質砂岩、凝灰質砂岩泥岩互層、泥岩からなる。

2) 嶺岡隆起帯地域

鋸山・富山山塊(同富山 350 m)、嶺岡・御殿山山塊(同愛宕山 408 m)、清澄山山塊(同清澄山 377 m)からなる地域を嶺岡隆起帯地域と呼称する。このうち、嶺岡隆起帯は南北縁を活断層(鴨川

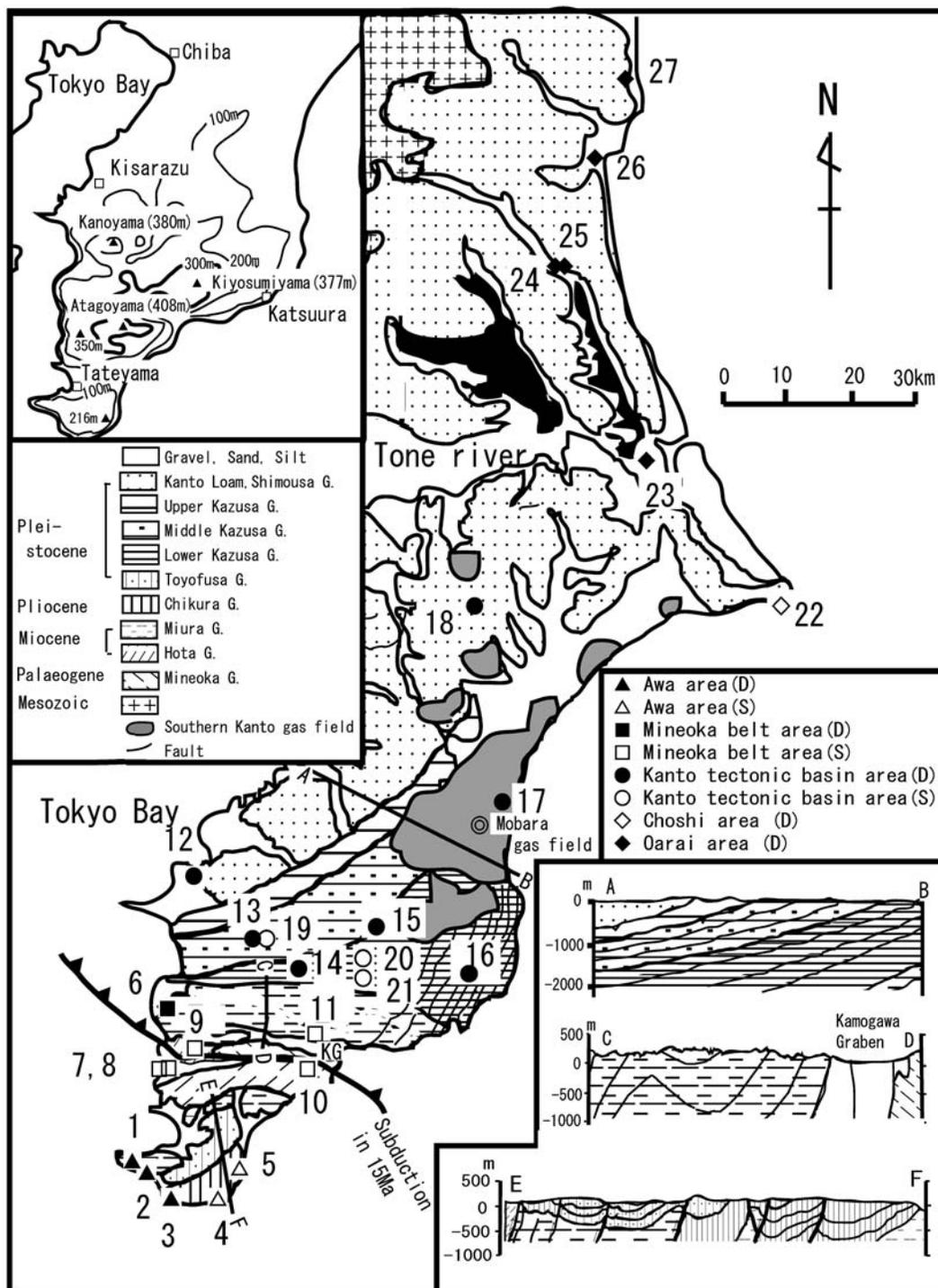


Fig. 1 Geological map and sample locations of the hot spring waters in the Boso peninsula, eastern Chiba and southeastern Ibaraki Prefectures. Numbers indicate sample numbers.

地溝帯北断層および南断層)で境された幅6~7kmの鴨川地溝帯にあたる(活断層研究会, 1991)。鴨川地溝帯中軸部の隆起によって形成された嶺岡山系は嶺岡層群(始新世~中新世), 保田層群, 佐久間層群(中新世)で構成され, これらの地層を東西方向に点々と嶺岡火成岩類(蛇紋岩, 斑糲岩, 玄武岩)が貫入する。嶺岡層群は頁岩, 砂岩頁岩互層, 保田層群は凝灰質砂岩, 泥岩, 砂岩, 佐久間層群(嶺岡隆起帯西部に偏在)は礫岩, 砂岩, 泥岩からなり, これらの地層はプレートの沈み込みに伴って形成された付加体と考えられる(高橋・高橋, 2008)。嶺岡隆起帯の北側に位置する清澄山山塊には, 佐久間層群の上位の三浦層群が分布する。三浦層群はフィリピン海プレートの沈み込みに伴って嶺岡隆起帯が外縁隆起帯として機能し, その陸側に成長した15~13Maの前弧海盆堆積物である(高橋, 2008)。三浦層群は砂岩泥岩互層からなり, 東西方向に軸をもつ緩い背斜・向斜構造をなして分布し, 基底部は千葉市周辺で最も深くほぼ同心円状に周囲へ向けて浅くなる。

3) 関東構造盆地地域

鹿野山・富士山山塊(同鹿野山380m), 上総・夷隅丘陵(清澄山山塊の北側), さらに北部に下総台地と東京湾岸低地, 東部に九十九里沖積低地がそれぞれ分布する。地質は関東構造盆地の海底堆積物からなり, 上総層群(鮮新世~更新世), 下総層群(更新世)が下位より順次単斜構造をなして堆積する。上総層群は房総半島中央部以北に広く露出し, 走向はほぼ北東-南西で北西へ10°以下で傾斜するが上位に向けて緩くなり, 三浦層群とは房総半島を東西に横断する黒滝不整合で接する。上総層群は砂岩泥岩互層からなり, 九十九里周辺を中心に分布する南関東水溶性天然ガス田付随水の貯留層として重要である。上総層群下部が広く分布する房総半島東部には, 地層の走向が北東-南西を示し, 南北性の正断層と横ずれ断層が顕著に発達している。下総層群は上総層群以北に分布し, 泥層, 砂層, 火山灰質粘土層からなる。下総層群基底部の砂礫層は三浦層群基底部の形状と似ており, 千葉市周辺で最も深く周辺へ向けて同心円状に浅くなり, 南東部へ向けて浅くなる。

4) 銚子・大洗地域

関東平野北東端の本地域には, 白亜系~古第三系の地層群(銚子層群, 那珂湊層群, 大洗層)が新第三系~第四系の地層群に孤立して分布する。銚子地域は関東構造盆地の東縁にあたり, ジュラ紀付加体と考えられる愛宕山層群と浅海成の白亜紀銚子層群(層厚900m)を中新統が不整合に覆う(高橋ら, 2006)。本地域で唯一の採水地点(No. 22)である犬吠埼付近の地表には礫岩, 砂岩, 砂岩泥岩互層, 砂岩などからなる銚子層群(犬吠埼層)が露出し, その約3km北方の銚子中観測井(標高海拔2m, 掘削深度528m)の坑井地質調査によれば, この銚子層群(砂岩, 頁岩; 深度144~402m)の下位に, 愛宕山層群(礫質泥岩)が深度402~528m(坑底)に分布する(林ら, 2006)。

大洗地域を含む茨城県南部一帯を占める常陸台地は利根川南部の下総台地に対比され, 下総層群相当層(見和層)とこれを覆う常総粘土層相当層(茨城粘土層, 常総層), 関東ローム層で構成される。銚田2号泉(No. 24)の坑井地質調査によれば, 下総層群相当層(深度300mまで)の下位には, 深度300~560mに上総層群相当層, 深度560~900mに三浦層群相当層が分布し, 先新第三系基盤岩(白亜紀の領家花崗岩; 関 陽児ら, 2004)は深度900~1,250m(坑底)に分布する(林ら, 2004a; 高橋ら, 2006)。先新第三系基盤岩(白亜紀泥岩, 砂岩)の出現深度はこの北東方向の地点No. 26と27の中間付近で掘削されたひたちなか観測井(標高海拔17m, 掘削深度507m)では深度341mとかなり浅い(林ら, 2006)。

3. 試料採取および分析方法

千葉県房総半島, および千葉県東部から茨城県南東部にかけて分布する27地点で2005年9月と2010年9月に採水した(Fig. 1)。なお, 安房1号現地は安房1a号泉(No. 7; 掘削深度10m)と安

房 1b 号泉 (No. 8; 掘削深度 6m), 君津 2 号現地は君津 2a 号泉 (No. 13; 掘削深度 500m) と君津 2b 号泉 (No. 19; 掘削深度 50m) の各 2 地点で採取した。現地では水温, pH, 電気伝導度を測定した後, 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 ポリエチレン瓶に採水して速やかに濃硝酸 1 mL を加えて酸性に保った。これらの水試料を持ち帰り, 実験室で各種溶存化学成分を分析した。なお, 現地では温泉所有者より温泉貯留層の深度に関する聞き取り調査を実施した。すべての温泉が掘削泉であり, 掘削深度 50 m 以浅の温泉 (浅部温泉と呼称) が 10 本, 残りは深度 50 m より深い温泉 (深部温泉と呼称) である (Fig. 1 の凡例)。湧出形態をみると, 11 地点 (Nos. 4, 7, 9~13, 15, 19~21) が掘削自噴泉, 残りは動力揚湯泉である。

温泉水の分析項目と方法は次の通りである。水温, pH, 電気伝導度はカスターニー ACT pH メータ (堀場製作所製 D-24) を用いた。HCO₃⁻ は容量法によって総アルカリ度として算出し, HCO₃⁻ 濃度に換算した。その際, アルカリ度は pH 4.8 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 (日本分析化学会北海道支部, 2005a)。Na⁺, K⁺, Ca²⁺, Mg²⁺, Cl⁻, SO₄²⁻, 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 (日本分析化学会北海道支部, 2005b)。Al, SiO₂, Fe 分析用試料は 0.2 μm のフィルターで濾過した後, Al は簡易吸光度計 (エリオクロムシアン R 法; HACH 製 DR-2800) (Eaton *et al.*, 2005), SiO₂ 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, 環境省自然環境局, 2002), Fe は原子吸光度計 (島津製作所製 AA-6200) でそれぞれ分析した。酸素安定同位体比 (δ¹⁸O 値) と水素安定同位体比 (δD 値) は水試料を 0.2 μm のフィルターで濾過した後, 元素分析計と直結した安定同位体質量分析計 (GV Instruments 製 Iso Prime-EA) で測定した。元素分析計により, 水素についてはクロム炉を用いて水素に, 酸素についてはガラス質炭素炉を用いて一酸化炭素にそれぞれ変換した後, 質量分析計に導入した。また, 硫黄安定同位体比 (δ³⁴S 値) は 13 地点を対象に BaSO₄ として沈殿させた後に熱分解させて, 回収した二酸化硫黄の硫黄同位体比を質量分析計 (GV Instruments 製 Iso Prime-EA) で測定した (Yanagisawa and Sakai, 1983)。安定同位体比 (δ 値) は標準物質からの千分率偏差 (‰) で表した。

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

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。¹⁸O/¹⁶O 比と D/H は Vienna 標準海水 (VSMOW), ³⁴S/³²S 比は Canyon Diablo Troilite (CDT) を標準物質に用い, δ¹⁸O 値, δD 値, δ³⁴S 値の測定精度はそれぞれ ±0.2‰, ±2.0‰, ±0.3‰ 程度である。

さらに, 東茨城温泉井 (No. 26) を掘削した時に採取された岩石片を対象に, 粉末 X 線回折法を用いて約 20 m 間隔で地層構成鉱物を同定した。なお, スメクタイトの同定はエチレンジグリコール処理を用いた。

4. 結果および考察

4.1 温泉水の主成分および安定同位体組成

温泉水の化学分析結果を Table 1 に, トリリニアダイアグラムを Fig. 2 に示す。Table 1 中, 括弧付きの泉温は浴槽や貯湯槽への吐出口で測定したために, 坑口付近よりやや低下している。温泉水の pH は 7.4~9.0, 泉温は 18.0~37.4℃ であり, 神栖温泉 (No. 23) が最も高い。鴨川 1 号泉 (No. 10) は硫化水素臭を有する。トリリニアダイアグラムに基づけば, 深部温泉の殆どの泉質は Na-Cl 型であるが, 浅部温泉は Na-HCO₃ 型 (Nos. 5, 9~11), Na-Cl 型 (Nos. 4, 20, 21), Ca-SO₄ 型 (Nos. 7, 8), Na·Ca-HCO₃ 型 (No. 19) と多様である。館山 1 号泉 (No. 1), 長生温泉 (No. 17), 富里温泉 (No. 18), 銚子温泉 (No. 22), 銚田 2 号泉 (No. 24), 東茨城温泉 (No. 26), ひたちなか

Table 1 Chemical composition of the hot spring waters from the Boso peninsula, eastern Chiba and southeastern Ibaraki Prefectures. The abbreviations of S and D in parenthesis show shallower and deeper wells, respectively.

No.	Locality	Depth (m)	Sampling date	Type	WT ^{ec} (°C)	pH	EC (mS/cm)	Na ⁺ (mg/L)	K ⁺ (mg/L)	Ca ²⁺ (mg/L)	Mg ²⁺ (mg/L)	Fe ²⁺ / Fe ³⁺ (mg/L)	Al ³⁺ (mg/L)	Cl ⁻ (mg/L)	SO ₄ ²⁻ (mg/L)	HCO ₃ ⁻ (mg/L)	F ⁻ (mg/L)	Br ⁻ (mg/L)	B (mg/L)	SiO ₂ (mg/L)	δ ¹⁸ O (‰)	δD (‰)	δ ³⁴ S (‰)
Awa area (D)																							
No. 1	Tateyama-1	1300	12/9/2005	Na—Cl	26.1	7.4	75.0	14800	539	2580	453	<0.1	0.000	28500	<0.1	80.0	<0.1	196	—	69.1	-5.68	-10.5	—
No. 2	Tateyama-2	250	13/9/2005	Na—Cl	23.7	8.9	91.0	557	23.2	15.8	5.4	<0.1	0.240	277	636	431	1.3	1.5	3.8	66.7	-6.95	-42.3	+41.0
No. 3	Tateyama-3	485	14/9/2005	Na—Cl	24.0	8.8	121.0	161	10.0	78.4	12.1	<0.1	0.200	195	83.5	277	1.9	1.9	0.8	57.2	-7.66	-42.3	+7.1
Awa area (S)																							
No. 4	Minamiboso-1	20	14/9/2005	Na—Cl	(206)	8.1	108.0	1920	111	69.5	31.1	<0.1	0.010	3030	29.5	757	<0.1	7.6	2.2	69.1	-6.73	-38.2	—
No. 5	Minamiboso-2	—	13/9/2005	Na—HCO ₃	(18.0)	9.0	111.0	164	17.0	24.1	7.0	0.1	0.150	118	57.9	350	1.6	5.8	1.3	51.0	-6.35	-35.8	-0.2
Mineoka belt area (D)																							
No. 6	Futtsu	500	12/9/2005	Na—Cl	25.3	8.6	34.0	1390	76.1	19.1	12.0	0.1	0.200	2000	1.9	729	<0.1	4.0	18.2	69.1	-4.69	-36.2	—
Mineoka belt area (S)																							
No. 7	Awa-1a	10	15/9/2005	Ca—SO ₄	24.1	8.0	87.0	104	10.5	14.0	55.7	0.3	0.070	89.2	446	232	3.2	<0.1	0.7	62.5	-6.47	-43.0	+6.1
No. 8	Awa-1b	6	15/9/2005	Ca—SO ₄	20.0	7.6	91.0	47.3	6.3	77.3	24.2	0.1	0.100	63.5	182	100	<0.1	8.0	0.7	49.9	-6.88	-44.9	+5.9
No. 9	Awa-2	5	12/9/2005	Na—HCO ₃	24.5	8.3	59.0	142	4.6	37.9	18.6	0.1	0.120	129	37.1	361	2.3	<0.1	1.2	58.3	-7.09	-43.8	+10.6
No. 10	Kamogawa-1	6	14/9/2005	Na—HCO ₃	27.5	8.9	67.0	654	32.7	6.5	1.4	<0.1	0.140	413	118	847	5.2	<0.1	3.3	72.5	-6.88	-38.8	-0.1
No. 11	Kamogawa-2	20	14/9/2005	Na—HCO ₃	26.3	8.9	114.0	201	0.6	6.0	2.0	<0.1	0.170	115	17.3	365	<0.1	0.3	3.4	64.3	-6.43	-39.8	—
Kanto tectonic basin area (D)																							
No. 12	Kimitsu-1	800	13/9/2005	Na—Cl	25.6	8.2	95.0	4520	231	55.4	89.8	<0.1	0.190	6790	193	822	12.7	62.5	—	54.3	-5.18	-28.5	—
No. 13	Kimitsu-2a	500	13/9/2005	Na—HCO ₃	21.6	8.5	116.0	741	56.6	16.4	11.1	0.2	0.260	618	<0.1	1220	2.7	2.6	2.2	58.3	-7.42	-47.1	—
No. 14	Kimitsu-3	2000	12/9/2005	Na—Cl	22.9	8.7	100.0	797	45.9	17.6	8.4	<0.1	0.270	834	11.7	672	<0.1	2.2	0.8	62.7	-6.90	-40.1	—
No. 15	Kimitsu-4	270	12/9/2005	Na—Cl	18.5	8.8	105.0	705	39.8	15.9	5.6	0.1	0.230	619	91.6	622	8.0	1.3	2.2	47.5	-6.95	-44.6	—
No. 16	Isumi	1500	14/9/2005	Na—Cl	(205)	8.5	89.0	1570	7.8	47.7	7.4	0.1	0.150	2210	14.7	197	<0.1	4.1	4.3	44.7	-5.75	-31.4	—
No. 17	Chosei	1200	10/9/2010	Na—Cl	29.8	8.0	51.1	11800	540	540	465	1.8	0.001	19600	9.1	671	<0.1	180	17.6	92.0	-1.80	-1.0	—
No. 18	Tomiseto	1400	10/9/2010	Na—Cl	32.1	8.0	50.4	11700	493	727	477	6.7	0.003	18700	2.8	265	<0.1	309	5.5	83.7	-2.10	-2.7	—
Kanto tectonic basin area (S)																							
No. 19	Kimitsu-2b	50	14/9/2005	Na·Ca—HCO ₃	(28.2)	8.6	31.0	42.9	8.4	38.7	14.9	0.1	0.180	51.2	40.3	144	2.7	<0.1	0.7	46.8	-7.11	-41.6	+10.2
No. 20	Kamogawa-3	—	13/9/2005	Na—Cl	(26.7)	8.6	103.0	101	9.0	25.4	6.1	<0.1	0.220	82.7	86.7	156	<0.1	<0.1	1.8	44.7	-7.11	-41.3	+0.2
No. 21	Kimitsu-5	10	13/9/2005	Na—Cl	(23.4)	8.6	95.0	128	12.3	26.4	11.9	<0.1	0.180	147	35.3	220	<0.1	0.3	1.6	46.0	-6.93	-44.0	-2.7
Choshi area (D)																							
No. 22	Choshi	1500	10/9/2010	Na—Cl	24.7	7.6	36.9	7350	116	1720	197	8.0	0.008	13600	1.0	640	<0.1	224	2.9	89.9	-0.30	-10.1	—
Oarai area (D)																							
No. 23	Kamisu	500	6/9/2010	Na—Cl	37.4	8.3	18.5	4800	243	325	279	<0.1	0.007	5570	1830	641	<0.1	0.8	3.3	—	-5.12	-28.7	—
No. 24	Hokota-2	1250	6/9/2010	Na—Cl	25.2	8.5	4.2	7480	100	1780	485	1.3	0.000	15300	617	13.0	<0.1	<0.1	2.1	79.5	-3.70	-20.3	+35.9
No. 25	Hokota-1	300	6/9/2010	Na—Cl	27.8	7.3	39.4	926	91.1	57.5	68.1	<0.1	0.006	793	846	1060	<0.1	2.3	3.0	—	-6.48	-45.8	—
No. 26	Higashibaraki	503	6/9/2010	Na—Cl	27.7	8.3	33.1	6930	207	641	159	6.2	0.002	11700	59.7	83.0	<0.1	<0.1	4.7	89.0	-4.80	-26.1	+51.2
No. 27	Hitachinaka	1504	6/9/2010	Na—Cl	29.5	8.0	43.1	9150	192	734	599	3.6	0.000	15900	1190	135	<0.1	<0.1	4.5	88.0	-2.60	-6.4	+26.8
	Sea water ^{ec}	0	4/3/1998		—	8.1	—	10500	380	400	1270	—	—	19000	2650	130	—	65.0	4.5 ^{ec}	—	0	0	+21.5

^{ec}: Data from Kondo (1991). ^{ec}: Parenthesis shows water temperature measured at faucet of bathtub or entrance of reserve tank. WT: water temperature. EC: Electric conductivity. ^{ec}: Data from Kamei (2001).

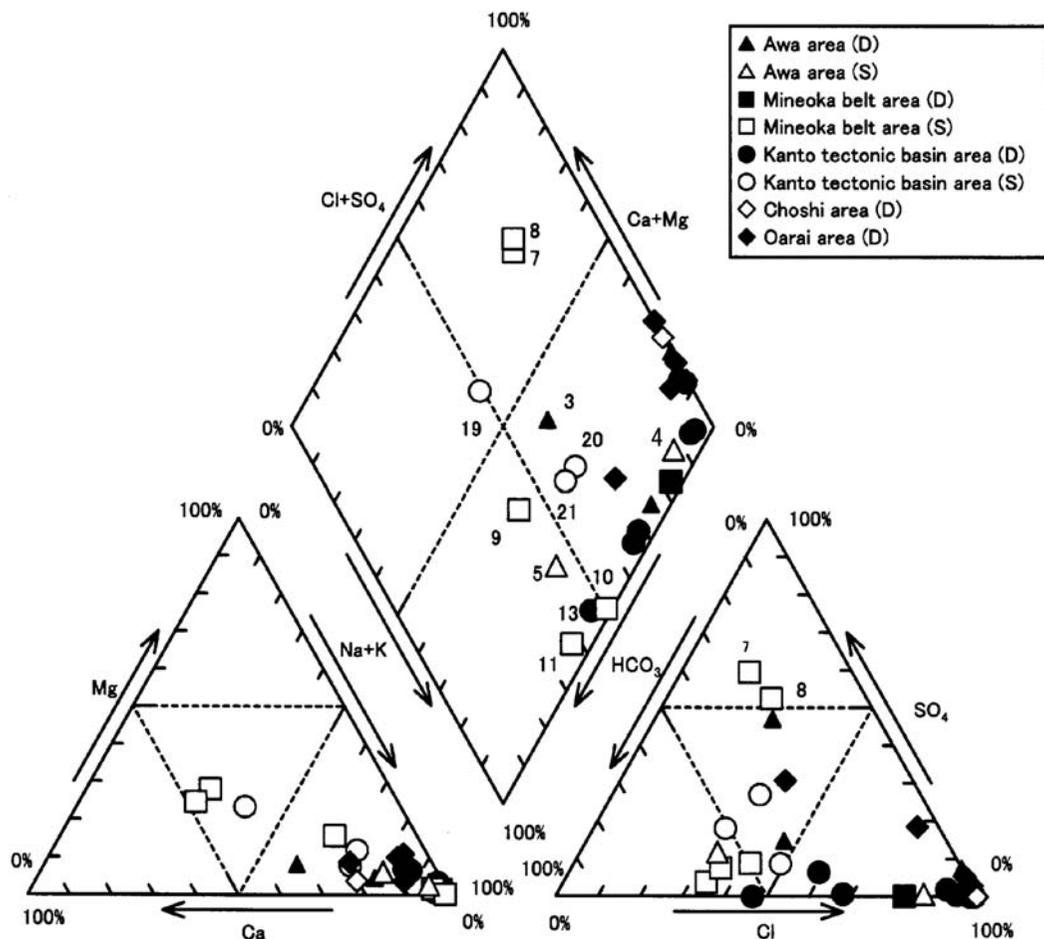


Fig. 2 Trilinear diagram for the hot spring waters. Numbers indicate sample numbers.

温泉 (No. 27) は強塩泉である。温泉水の Na^+ と Cl^- 濃度間に正相関が認められることから (Fig. 3a), Na^+ と Cl^- は海水を主な起源とし、温泉水は海水の天水による希釈によって形成されたことがわかる。上記 7 箇所の強塩泉の Ca^{2+} 濃度は現在の海水より高い一方 Mg^{2+} と SO_4^{2-} 濃度は低く、化石海水の特徴を有している (Fig. 3b; 大森ら, 1986; 柴崎・水収支研究グループ, 1976)。温泉水の B と SiO_2 濃度はそれぞれ $0.7\sim 18.2\text{mg/L}$, $44.7\sim 92.0\text{mg/L}$, また $\delta^{18}O$ 値と δD 値はそれぞれ $-7.66\sim -0.30\text{‰}$, $-47.1\sim -1.0\text{‰}$ の範囲にある。 $\delta^{34}S$ 値は $-2.7\sim +51.2\text{‰}$ と幅広く、浅部温泉で軽い傾向が認められる ($-2.7\sim +10.6\text{‰}$)。

4.2 深部流体の起源

1) 安房地域

安房地域の強塩泉である館山 1 号泉 (No. 1) の $\delta^{18}O$ 値 (-5.68‰) と δD 値 (-10.5‰) は海水より低く (化石海水 A1 と呼称; Table 1, Fig. 4a), このような化石海水は、フィリピン海プレートの沈み込みに伴って形成された中新統の付加体堆積物である三浦層群 (石堂層) に当時の海水が

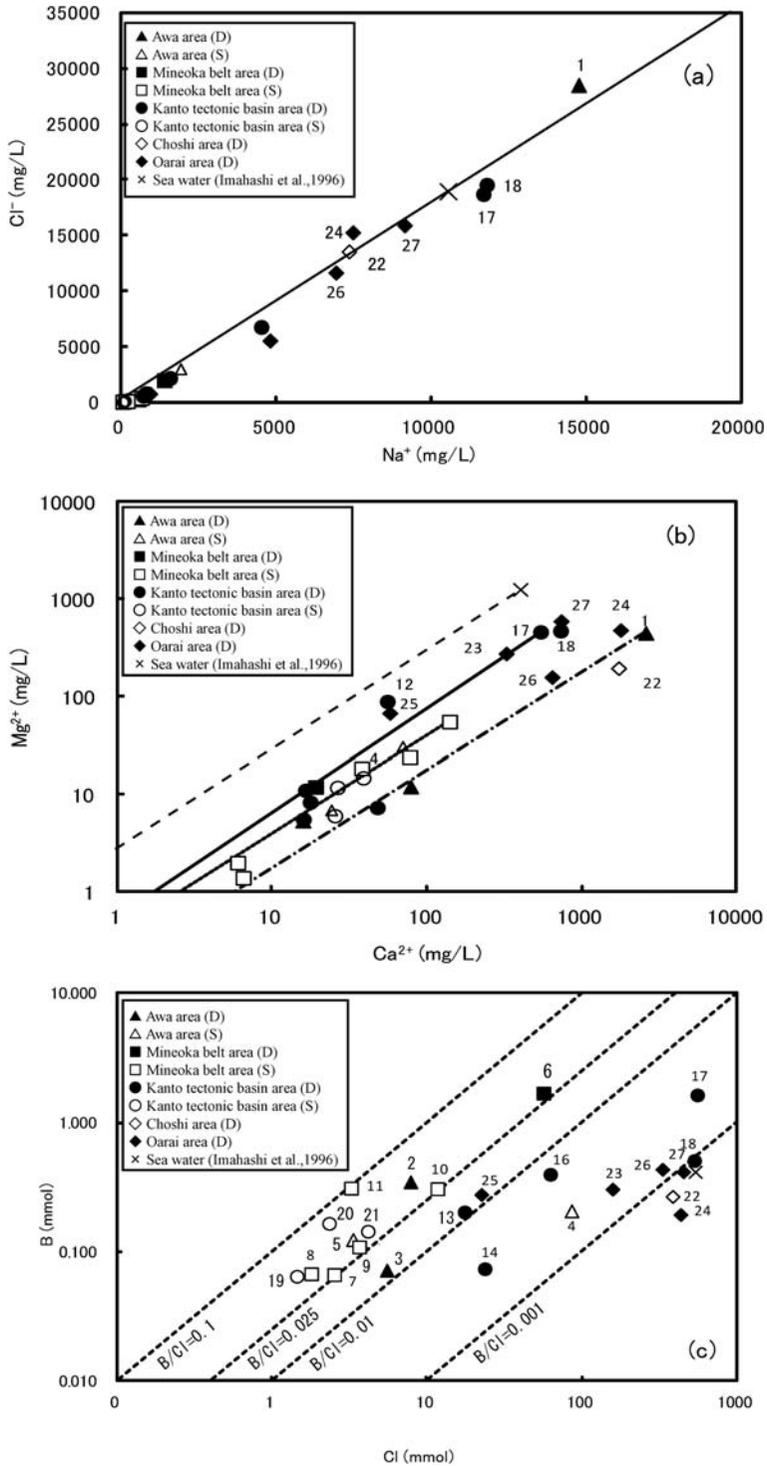


Fig. 3 Na⁺—Cl⁻ (a), Ca²⁺—Mg²⁺ (b) and Cl—B (c) diagrams for the hot spring waters. Numbers indicate sample numbers.

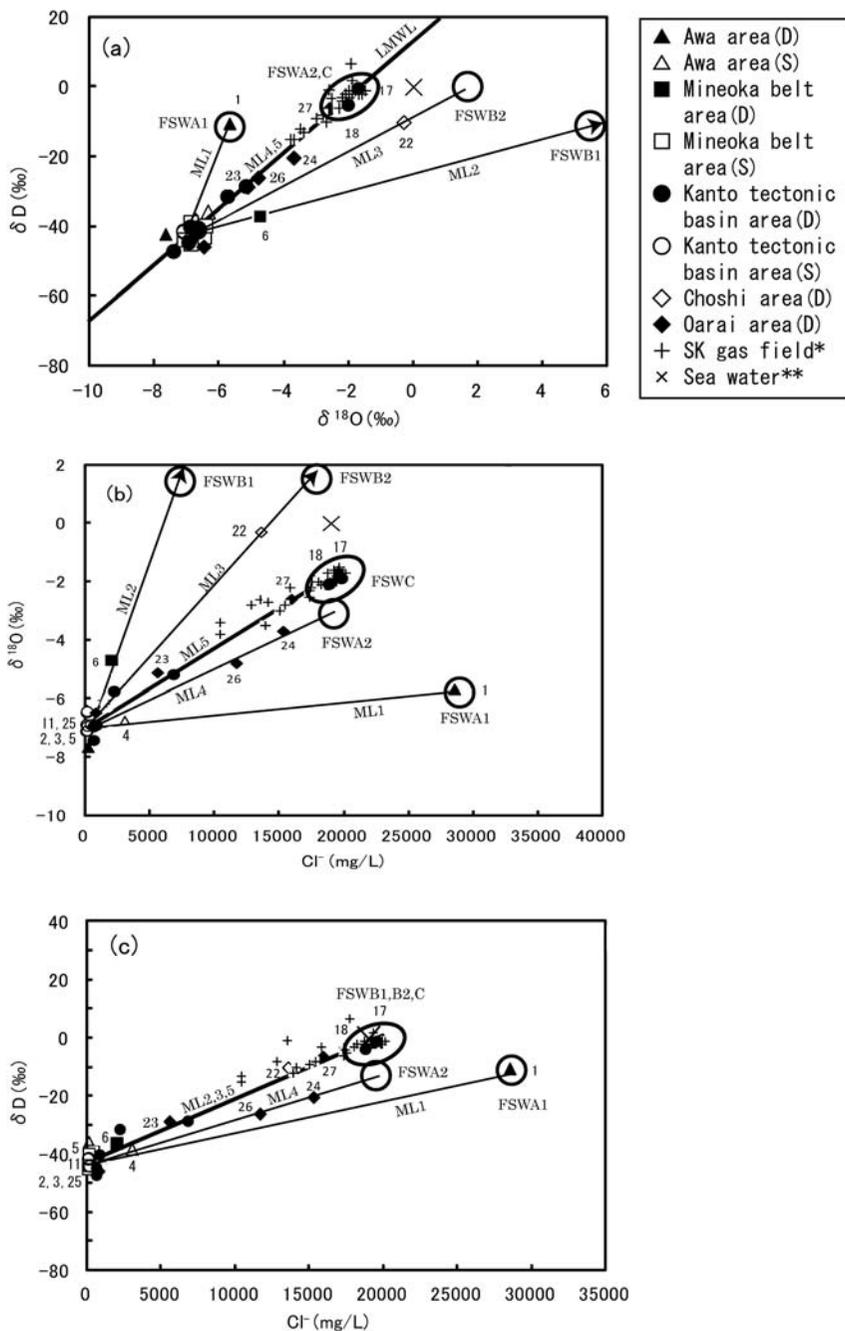


Fig. 4 $\delta^{18}\text{O}$ — δD (a), Cl^- — $\delta^{18}\text{O}$ (b) and Cl^- — δD (c) diagrams for the hot spring waters. Numbers indicate sample numbers. The LMWL line is the Local Meteoric Water line, $\delta\text{D} = 8\delta^{18}\text{O} + 13$. FSWA, FSWB and FSWC show the fossil sea water A, B and C, respectively. The abbreviation of SK shows Southern Kanto. ML1, ML2, ML3, ML4 and ML5 show the mixing lines of fossil sea water and meteoric water of the Awa, Mineoka belt, Choshi, Oarai and Kanto tectonic basin areas, respectively. Hypothetical FSWB1 has +10.5‰ in $\delta^{18}\text{O}$ value and -4.0‰ in δD value. *: Data from Kamei (2001) and Maekawa *et al.* (2006), **: Data from Kondo (1991).

封じ込められたと推察される。本地域の温泉群の $\delta^{18}\text{O}$ 値 - Cl^- 濃度 (Fig. 4b) および δD 値 - Cl^- 濃度 (Fig. 4c) 間に直線関係 (ML1) が認められ, Cl^- 濃度が海水を上回る館山 1 号泉 (No. 1) は化石海水 A1 の端成分に相当すると考えられ, 低溶存成分濃度の館山 2 号泉 (No. 2), 館山 3 号泉 (No. 3), 南房総 2 号泉 (No. 5) は天水端成分に卓越し, 南房総 1 号泉 (No. 4) は両者の混合よりなり天水にかなり卓越する。

シリカ鉱物の熱水 (0~250°C の範囲) への溶解度は, 深部流体温度の上昇に伴って高まる。この溶解度曲線および深部流体がシリカ鉱物と溶解平衡にある特性を活かしたシリカ温度計が, 地熱地域の深部流体温度を推定する常套手段として利用されており (新エネルギー産業技術総合開発機構, 1989), 岩手県葛根田地熱発電所では SiO_2 濃度の経年変化をモニタリングすることによって貯留層の温度変化を管理している (笠井, 1998)。温泉水の Cl^- と SiO_2 濃度の関係を Fig. 5 に示す。Figure 5a からわかるように, 館山 1 号泉 (No. 1), 館山 2 号泉 (No. 2), 南房総 1 号泉 (No. 4) の SiO_2 濃度 (66.7~69.1 mg/L) はほぼ等しいが Cl^- 濃度は大きく異なり, 南房総 1 号泉 (No. 4) の掘削深度 (20 m) は浅いにも拘わらず, Cl^- 濃度 (3,030 mg/L) は館山 1 号泉に次ぐ。この化学的特徴から, 最も本源的な館山 1 号泉 (No. 1) の深部流体が館山 2 号泉 (No. 2) の深部流体と混合することによって, 南房総 1 号泉 (No. 4) の深部流体が形成されたことが示唆される。南房総 1 号泉 (No. 4) の位置が地質構造上, 千倉層群 (畑層) の根本背斜軸部付近にあることを踏まえれば, 下位の三浦層群 (高橋, 2008) に胚胎する化石海水 A1 (No. 1 の深部流体) が同軸部付近に発達する縦型割れ目に沿って上昇する過程で, 地熱によって暖められた地下浸透降水 (No. 2 の深部流体) によって希釈された結果, 南房総 1 号泉 (No. 4) の深部流体が形成されたと推察される。

一方, Cl^- 濃度 (118.0~277.2 mg/L) が低い温泉群の SiO_2 濃度は南房総 2 号泉 (No. 5), 館山 3 号泉 (No. 3), 館山 2 号泉 (No. 2) の順に高く, 伝導型の地温勾配を有する本地域の温泉貯留層深度はこの順に深くなると予想されるが (Fig. 5a), 現実には館山 3 号泉 (No. 3) の掘削深度が館山 2 号泉 (No. 2) より深い。この矛盾は, 館山 3 号泉 (No. 3) の深部流体が坑底付近に貯留されていると仮定すると, 館山 2 号泉 (No. 2) の深部流体は館山 3 号泉 (No. 3) の坑底より深部から上昇してきていると考えることによって解決できる。地質構造上, 基盤となる中新統の付加体に発達する東西性の衝上断層群 (千葉県史料研究財団, 1998) がこの深部流体の通路になっているのであろう。

2) 嶺岡隆起帯地域

嶺岡隆起帯地域の温泉 (Nos. 6~11) は, 海成の泥岩層, 凝灰質砂岩泥岩互層からなる三浦層群 (天津層) の縁辺部に分布する。これらの温泉の B/Cl モル比 (0.025~0.096) は今回研究した温泉のなかでも大きく, 火山岩類を貯留母岩とする範囲にあることから, 天津層の凝灰質な岩石が貯留母岩になっている可能性が大きい (Fig. 3c)。本地域の温泉群のなかで最も Cl^- 濃度が高い, 鋸山金谷地区の富津温泉 (No. 6) の Cl^- 濃度は 1,996 mg/L であるが, 1970 年当時に同地区の温泉の Cl^- 濃度は 3,900 mg/L (千葉県史料研究財団, 1998) と高かったことから, この地域にも化石海水 (化石海水 B1 と呼称) の存在が示唆される。この化石海水 B1 の Cl^- 濃度を海水 (19,000 mg/L) に等しいとすれば, Figs. 4b, c で富津温泉 (No. 6) と鴨川 2 号泉 (No. 11) を結ぶ直線 ML2 より, 化石海水の $\delta^{18}\text{O}$ と δD 値としてそれぞれ +10.55, -4.0‰ が得られ, 化石海水 B1 は海水に比して $\delta^{18}\text{O}$ 値は高く δD 値は低い特徴をもっている。

Figure 3c および Figure 5b より, 次のような深部流体の形成機構が推察される。富津温泉 (No. 6) の深部流体が地熱によって加熱された地下浸透降水と混合することによって鴨川 1 号泉 (No. 10) の深部流体が形成され, この流体が降水に卓越する安房 1b 号泉 (No. 8) の深部流体と混合することによって, 安房 2 号泉 (No. 9), 安房 1a 号泉 (No. 7), 鴨川 2 号泉 (No. 11) の深部流体が

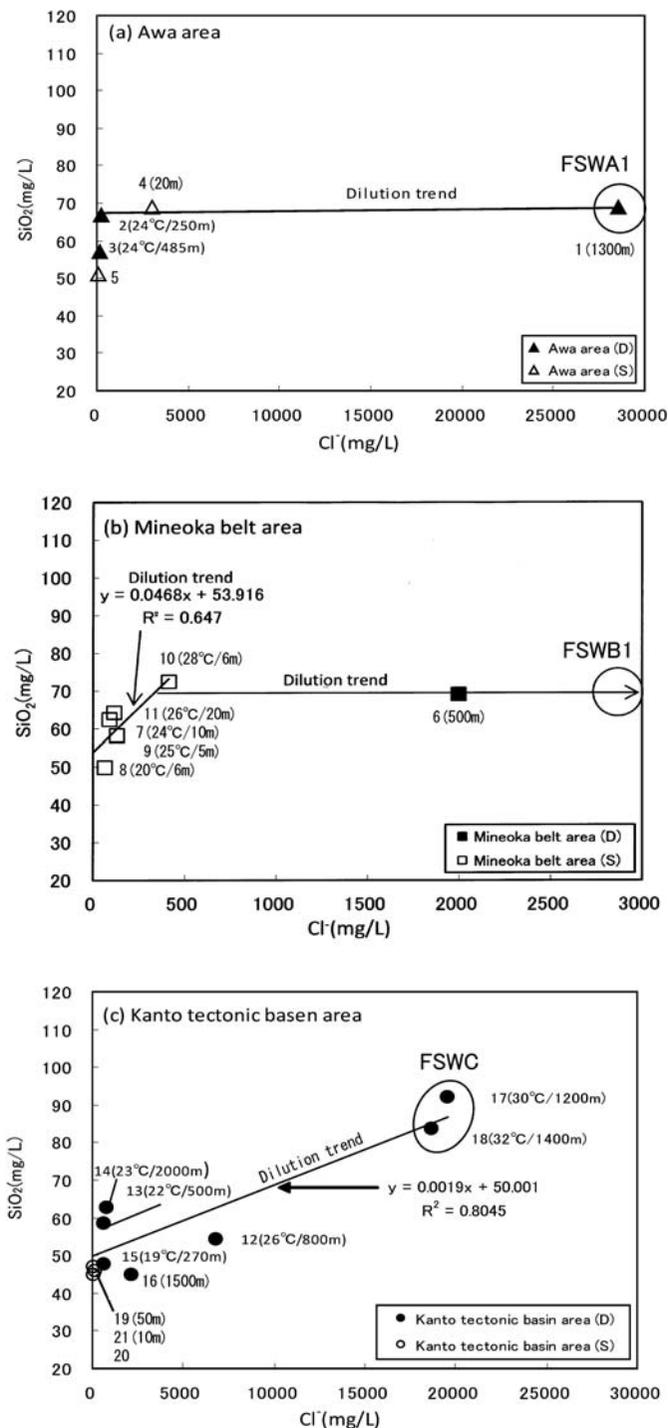


Fig. 5 Relationship between Cl⁻ and SiO₂ concentrations in the hot spring waters. Numbers indicate sample numbers. Figures in parenthesis show water temperature and depth of a well. The water temperature measured at faucet of bathtub or entrance of reserve tank is not shown in the figure.

形成された。このような深部流体の形成に関わる流動機構を地質構造的視点で見ると、鴨川地溝帯に発達する断層（近藤, 1991）が大きな役割を果たしていると判断される。すなわち、本源的な深部流体は富津温泉（No. 6）の深部に存在し、この深部流体は鴨川地溝帯北断層を介して鴨川2号泉（No. 11）の深部流体と繋がり、また同帯南断層を介して繋がる安房1a号泉（No. 7）、安房1b号泉（No. 8）、安房2号泉（No. 9）、鴨川1号泉（No. 10）の深部流体とは多数の東西および南北性の断層群（大森ら, 1986）によって水理構造上繋がっているのであろう。

3) 関東構造盆地地域

関東構造盆地地域の温泉は優良ガス層である上総層群（砂岩泥岩互層）に貯留されていることから（近藤, 1991）、Fig. 4には上総層群に閉じ込められた化石海水起源の南関東ガス田付随水の分析値（亀井, 2001; Maekawa *et al.*, 2006）も併せて示した。Cl⁻濃度が海水（Table 1; 近藤, 1991）にほぼ等しい長生温泉（No. 17）と富里温泉（No. 18）の主成分組成および酸素・水素同位体組成は非常に似ている。これらの強塩泉の化学組成は南関東天然ガス付随水の特徴をよく示しており（河井・福田, 1973; 大森ら, 1986; 柴崎・水取支研究グループ, 1976）、平均 $\delta^{18}\text{O}$ 値（-1.95‰）と平均 δD 値（-1.9‰）は海水よりやや低く、このような化石海水が上総層群（砂岩泥岩互層）に貯留されている（化石海水Cと呼称; Table 1）。

本地域の温泉群の $\delta^{18}\text{O}-\delta\text{D}$ 値はほぼ天水線（ $\delta\text{D}=8\delta^{18}\text{O}+13$; Fig. 4a）沿いに分布しており、地下に涵養された降水が化石海水Cと種々の割合で混合することによって、深部流体は形成されたと判断される（加藤・梶原, 1986）。長生温泉（No. 17）と富里温泉（No. 18）のB/Clモル比（それぞれ0.003, 0.001）は海水（0.0008）に近く（Fig. 3c）、BとClは海水を主な起源にしている（新エネルギー財団, 1988; 茂野・阿部, 1987）。一方、浅部温泉群（Nos. 19~21）のB/Clモル比（0.035~0.071）はこれらより大きく、粘土鉱物に吸着されやすいB（石川・中村, 1989）は上総層群を構成する砂岩泥岩互層中の泥岩に由来すると考えられる。

温泉のCl⁻とSiO₂濃度に着目すると、掘削深度が深い長生温泉（No. 17）と富里温泉（No. 18）で高く、君津1号泉（No. 12）、君津4号泉（No. 15）の順に掘削深度が浅くなるとともに両成分濃度も低くなり、浅部温泉群（Nos. 19~21）でさらに低い（Fig. 5c）。掘削深度（1,500~2,000m）が深い君津3号泉（No. 14）と夷隅温泉（No. 16）は、房総丘陵全体の面積の約20%を占める清澄山山塊に分布する（Fig. 1）。このうち、地表温度を15℃とし、泉温が坑底温度に等しいと仮定して求めた君津3号泉（No. 14）の地温勾配（0.4℃/100m）は低く、清澄山山塊が降水の涵養域になっていると考えられ、両温泉のSiO₂濃度（それぞれ44.7, 62.7mg/L）は掘削深度のやや浅い長生温泉（No. 17; 92.0mg/L）よりかなり小さいこともこの説を支持している。

以上に述べた結果に地質構造を勘案すると、次のような深部流体の形成・流動機構が推察される。高標高の清澄山山塊で上総層群下部に発達する南北性の断層を介して地下に浸透した降水の一部は深部まで下降し、低温低Cl濃度の深部流体（Nos. 14, 16）を形成させた。地下に浸透した降水の一部は下降過程で上総層群の砂岩泥岩互層へと水平流動に転じ、そこに胚胎する化石海水Cをさまざまな割合で希釈した結果、概ね深部になるほど温度が高く化石海水に富んだ深部流体が形成された。

4) 銚子・大洗地域

銚子・大洗地域のほとんどの温泉のB/Clモル比は0.001前後であり、BとClは海水に由来すると判断される（Fig. 3c）。銚子地域の銚子温泉（No. 22）の深部流体は化石海水と天水の混合によって形成されたものである。このうち、化石海水（化石海水B2と呼称）の $\delta^{18}\text{O}$ 値は海水より高く δD 値は海水よりやや低く（Fig. 4）、このような化石海水がジュラ系愛宕山層群ないし白亜系銚子層群に閉じ込められているのであろう。

一方、大洗地域の鉾田 1 号泉 (No. 25)、東茨城温泉 (No. 26)、鉾田 2 号泉 (No. 24) はほぼ直線 ML4 上にあり、化石海水 (化石海水 A2 と呼称) の $\delta^{18}\text{O}$ と δD 値としてそれぞれ -3.28 、 -14.9% が得られ (Figs. 4b, c), $\delta^{18}\text{O}$ 値は化石海水 A1 ほどではないが現在の海水より低く δD 値も海水より低い化石海水の存在が示唆される。Figure 4b からわかるように、鉾田 1 号泉 (No. 25)、東茨城温泉 (No. 26)、鉾田 2 号泉 (No. 24) の Cl^- 濃度と $\delta^{18}\text{O}$ 値はこの順に上昇する傾向にある。掘削深度もこの順に深くなることを勘案すると、先第三系基盤岩上面付近に胚胎すると予想される化石海水 A2 は、地下に涵養された降水によってさまざまな割合で希釈され、深部ほど希釈度の低い深部流体が形成されたと推察される。なお、これらの温泉から離れた神栖温泉 (No. 23) とひたちなか温泉 (No. 27) は直線 ML4 にのらず、水理構造は異なるのであろう。

4.3 深部流体の水質形成機構

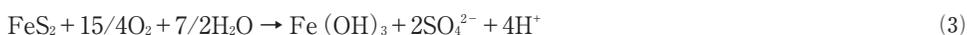
温泉水の各種化学成分の起源を検討するに当たっては、海水の当該成分濃度に対する過剰量、例えば海水に対する温泉水の Na^+ 過剰量を求める必要がある (Fig. 3a)。温泉水の Cl^- は海水起源であることから、過剰な M 成分の濃度は次式で求められる。

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

$\Delta[\text{M}]$: 試料の過剰な M 成分の濃度, $[\text{M}]$: 試料の M 成分の濃度, $[\text{M}/\text{Cl}]$: 海水の Cl に対する M 成分の濃度比, $[\text{Cl}]$: 試料の Cl 濃度。

1) 黄鉄鉱の酸化作用

海成粘土層に多く含まれる硫黄分は海水中の SO_4^{2-} が還元的な雰囲気中で硫化鉄となって堆積したものであり (市原, 1993)、嶺岡隆起帯地域の温泉水に含まれる硫黄分も海成粘土層中の硫化鉄が起源になっていると考えられる (千葉県史料研究財団, 1998)。本地域に分布する浅部温泉 (Nos. 7, 8, 10) の SO_4^{2-} 濃度は高いが、深部温泉 (No. 6) では微量含まれるに過ぎないことから、堆積岩中の黄鉄鉱が大気中の酸素によって酸化されて SO_4^{2-} が生成した可能性が大きい (永田・宮島, 2008)。黄鉄鉱が酸素供給の多い地表近くで酸化されると、次の反応が進行する (Appelo and Postma, 2005)。



この式で生成したプロトンは方解石の溶解を引き起こして中和される。防災科学技術研究所が掘削した鴨川観測井 (掘削深度 2,038 m) の坑井地質調査結果によれば、鴨川地溝帯西縁付近の地下にはフランボイダルパイライト (顆粒状黄鉄鉱) が広く分布する (林ら, 2004b)。本地溝帯の地表に分布する佐久間層群 (神川層) は有孔虫化石や石灰質ナンノ化石、二枚貝化石などを伴っており (林ら, 2004b)、また、安房 1a 号泉 (No. 7)、安房 1b 号泉 (No. 8)、鴨川 1 号泉 (No. 10) は遊離 CO_2 を伴っていることから (相川ら, 1981)、次のような反応が進行したと考えられる。



堆積物中の硫黄同位体比の変化は二次的な続成作用だけでなく、堆積と同時に起こる初期続成作用も起因する。この初期続成作用で形成されるフランボイダルパイライトは一般に ^{32}S を選択的に取り込み、この鉱物が形成された後の続成作用で結晶形態が変化する時、 ^{34}S に富むようになる (Hoefs, 1973)。この選択的取り込みによって、鴨川地溝帯南断層付近に分布する浅部温泉 (Nos. 7~10) の $\delta^{34}\text{S}$ は比較的軽い値 ($-0.1 \sim +10.6\%$) を示すようになったと判断される。安房地域および関東構造盆地地域南部の浅部温泉 (Nos. 5, 19~21) も比較的軽い $\delta^{34}\text{S}$ 値 ($-2.7 \sim +10.2\%$) を示し、同様の現象が進行したと推察される (Fig. 6)。これらの浅部温泉 (No. 10 を除く) に加えて、一部の深部温泉 (Nos. 3, 15; 掘削深度 485 m, 270 m) でも ΔSO_4^{2-} と ΔCa^{2+} 濃度間に正相関が認められることから (Fig. 7a; $R^2 = 0.7451$)、黄鉄鉱の酸化作用が浅層を中心に、やや深部でも進行した

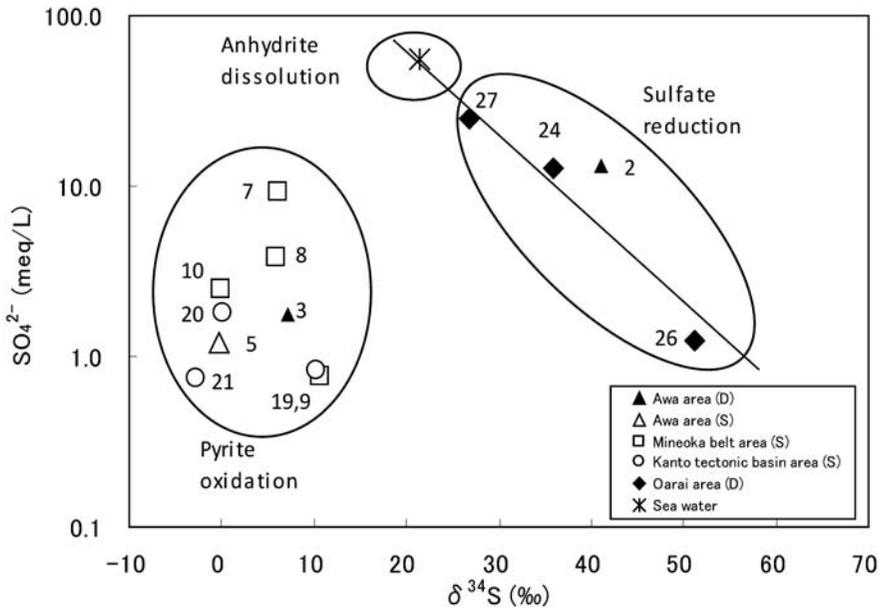


Fig. 6 Relationship between $\delta^{34}\text{S}$ values and SO_4^{2-} concentrations for the hot spring waters. Numbers indicate sample numbers.

と推察される。

2) 有機物の分解

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、浅所の酸化還元境界付近では NO_3^- , Fe^{3+} , Mn^{4+} などが用いられるが、やや深所では SO_4^{2-} 呼吸 (硫酸還元) が行われるようになる (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 $\delta^{34}\text{S}$ 値は次第に高くなり、硫酸還元に伴う硫黄同位体分別が一定であれば、 SO_4^{2-} 濃度の対数に対して $\delta^{34}\text{S}$ 値をプロットすると直線関係になる (永田・宮島, 2008)。海水の硫酸態硫黄の $\delta^{34}\text{S}$ 値は約 +20‰ であり、ひたちなか温泉 (No. 27)、鉦田 2 号泉 (No. 24) および館山 2 号泉 (No. 2)、東茨城温泉 (No. 26) の順に SO_4^{2-} 濃度は概ね減少し $\delta^{34}\text{S}$ 値は高くなる傾向が認められることから、硫酸還元反応の進行が示唆される (Fig. 6)。強塩泉 (Nos. 1, 17, 18, 22) が SO_4^{2-} を殆ど含まない理由は、同イオンを硫酸還元菌が完全に消費し尽くしたことによると判断される (Sakai and Matsubaya, 1974; 村松ら, 2010)。

3) 斜長石の風化作用およびイオン交換反応

斜長石は嶺岡層群 (榎畑層) に初生鉱物として石英とともに普遍的に分布することが報告されている (中嶋ら, 1981)。斜長石は曹長石と灰長石を端成分とした固溶体を形成するが、ここでは本研究の対象地域に分布する斜長石は端成分からなると仮定する。すべての浅部温泉と安房・嶺岡隆起帯・大洗地域の一部の深部温泉 (Nos. 3, 6, 13, 25) では、 ΔNa^+ と ΔHCO_3^- 濃度間に高い正相関が認められることから (Fig. 7b; $R^2=0.9172$)、過剰な Na^+ は曹長石の Na-スメクタイト化によってもたらされたと推察される。



同様に、関東構造盆地地域に分布する Na-Cl 型深部温泉 (Nos. 12, 14~18) の過剰 Na^+ の一部も、曹長石の Na-スメクタイト化によってもたらされたと考えられる。ここで、深部流体の温度を反

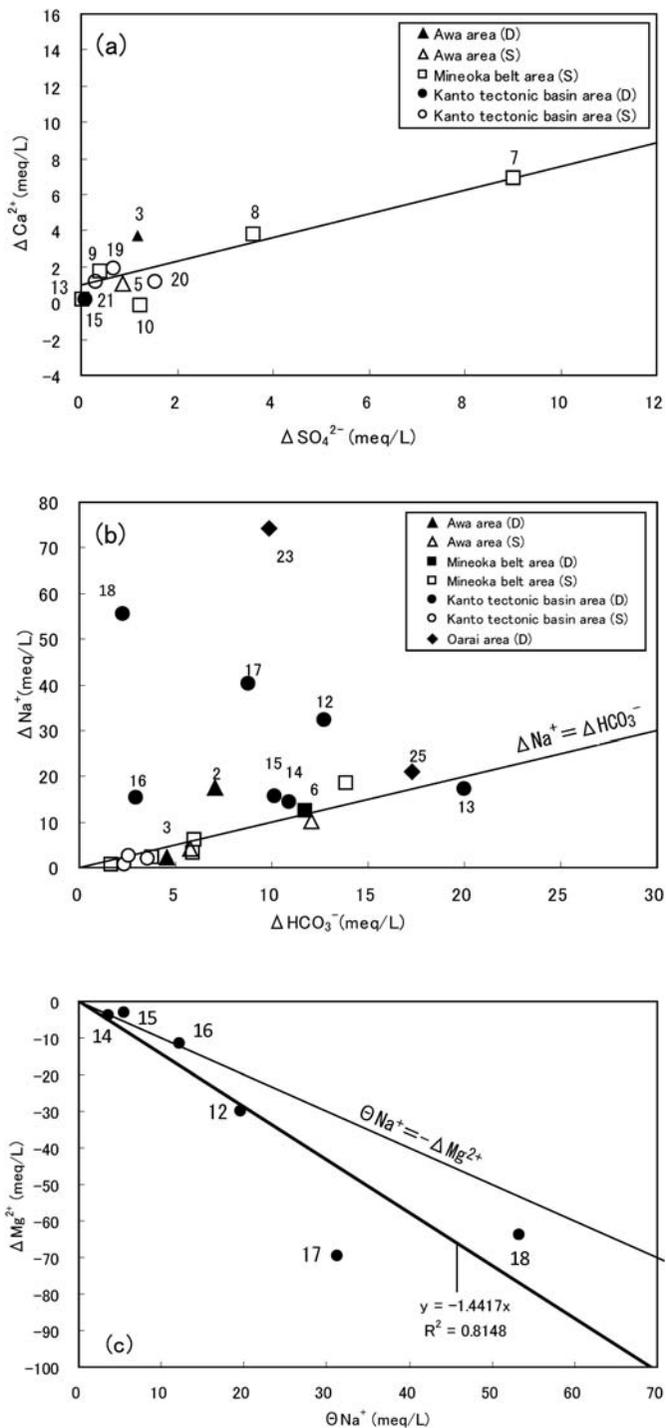


Fig. 7 ΔSO_4^{2-} — ΔCa^{2+} (a), ΔHCO_3^- — ΔNa^+ (b) and θNa^+ — ΔMg^{2+} (c) diagrams for the hot spring waters.

Numbers indicate sample numbers. ΔM is the difference between the M concentration measured in hot spring water and that expected from calculation based on the sea water M/Cl ratio. θNa^+ is the difference between ΔNa^+ and ΔHCO_3^- .

映している泉温(村松ら, 2008)を利用して, 溶液—鉱物平衡計算プログラム「SOLVEQ」(Reed, 1982)で深部流体のNa—スメクタイトに対する飽和指数を計算した結果, 全温泉の深部流体はNa—スメクタイトに対してかなりの過飽和状態にある(Fig. 8a). したがって, 化石海水Cからなる長生温泉(No. 17)や富里温泉(No. 18)の $\delta^{18}\text{O}$ 値が海水よりやや低い理由は, 曹長石の風化によって ^{18}O に富むNa—スメクタイトが形成された結果, 間隙水の $\delta^{18}\text{O}$ 値が低くなったことに起因すると判断される(Fig. 4b).

このNa—スメクタイトは安房地域南端の白浜町野島崎(地点No. 4の南西海岸)の千倉層群(白浜層)に, 方解石, ヒューランダイト, アポフィライトなどの脈鉱物とともに露出する(井上ら, 2002; 小竹・井上, 2004). 井上ら(2002)によれば, 白浜層に限って発達する当該脈, および母岩中に晶出しているゼオライト類は埋没続成作用の過程で形成されたものではなく, 白浜層の固結がある程度進んだ後, フィリピン海プレートの沈み込みに伴う圧縮応力によって形成された小規模な断層や割れ目に沿って流動し, 堆積物中の間隙水とは温度と組成を異にする溶液から沈澱したと考えられる. 溶液—鉱物平衡計算プログラム「SOLVEQ」(Reed, 1982)を用いた計算結果によれば, 白浜町野島崎に近い浅部温泉群(Nos. 4, 5)の深部流体はNa—スメクタイト(Fig. 8a), 方解石, ヒューランダイトに過飽和であり, これらの鉱化流体である可能性が大きい.

Figure 7bからわかるように, 関東構造盆地地域に分布するNa—Cl型深部温泉(No. 13を除く)の Na^+ 濃度は曹長石のNa—スメクタイト化によってもたらされた量よりかなり過剰である. この Na^+ 過剰量(ΘNa^+)と ΔMg^{2+} 濃度間に負の相関が認められ, 過剰 Na^+ 量が増すにつれて Mg^{2+} 濃度は減少する(Fig. 7c). 粘土鉱物に対する主要な陽イオンの吸着力の大きさは $\text{Ca}^{2+} > \text{Mg}^{2+} > \text{K}^+ > \text{Na}^+$ であることから(藤貫ら, 1967), Mg^{2+} と Na^+ についてみると, Na—スメクタイトが地層に閉じ込められた Mg^{2+} を含む化石海水と, 次のような陽イオン交換反応が進行する.



したがって, Fig. 7cに認められた傾向はこの反応によって主にもたらされたと考えられ, 全温泉の深部流体がMg—スメクタイトに対してかなりの過飽和状態にあること(Fig. 8b), および茂原ガス田(南関東ガス田の一部)の上総層群泥質岩(帯水層)にスメクタイトが二次鉱物として存在する事実(亀井, 2001)と整合的である. このようなNa—スメクタイトのMgイオン交換反応は関東構造盆地と同じ上総層群を温泉貯留層とする関東平野中央部や関東山地北縁でも認められる広範な自然現象である(村松ら, 2008, 2010).

安房・銚子・大洗地域に分布するNa—Cl型深部温泉(Nos. 1, 22, 24, 26, 27)の HCO_3^- 濃度は小さく(Table 1), 曹長石のNa—スメクタイト化は顕著ではなかったと判断される. 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の回収コアに含まれる間隙水の分析結果によれば, 海底面から深さ400mにかけて $\delta^{18}\text{O}$ 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. このような傾向は海底玄武岩の変質および海底堆積物中の火山性物質の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).



同様の傾向は, 日本海の海底堆積物に含まれる間隙水にも認められ, 間隙水の $\delta^{18}\text{O}$ 値(-0.49~-4.36‰)は海底面から深さ435mにかけて次第に低くなる. 物質収支計算によれば, この特徴は主として海底玄武岩や安山岩の低温変質に起因すると考えられる(Matsumoto, 1992; Hoefs, 1973).

大洗・安房地域で化石海水(A2, A1)に卓越する強塩泉(Nos. 24, 1)の Ca^{2+} 濃度は海水より高い一方 Mg^{2+} 濃度と $\delta^{18}\text{O}$ 値は低く(Table 1, Fig. 3b, Fig. 4b), 上記の海底玄武岩の変質および海底堆積物の間隙水の結果とよく一致する. 両地域の深部温泉の深部流体はMg—スメクタイトに対してかなりの過飽和状態にあり, 整合的である(Fig. 8b). 大洗地域の東茨城温泉(No. 26)では,

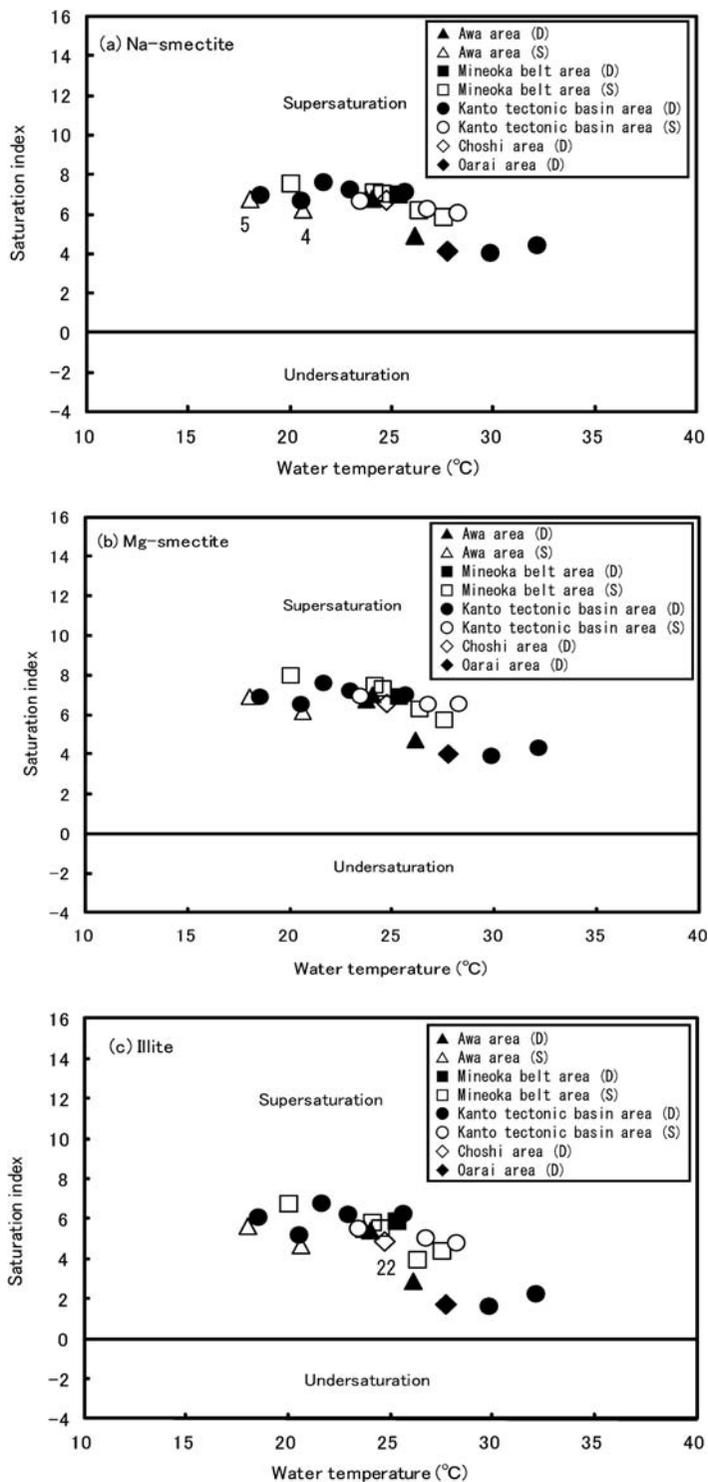


Fig. 8 Water temperature versus saturation index for the deep fluids. (a) Na-smectite (b) Mg-smectite (c) Illite. Numbers indicate sample numbers.

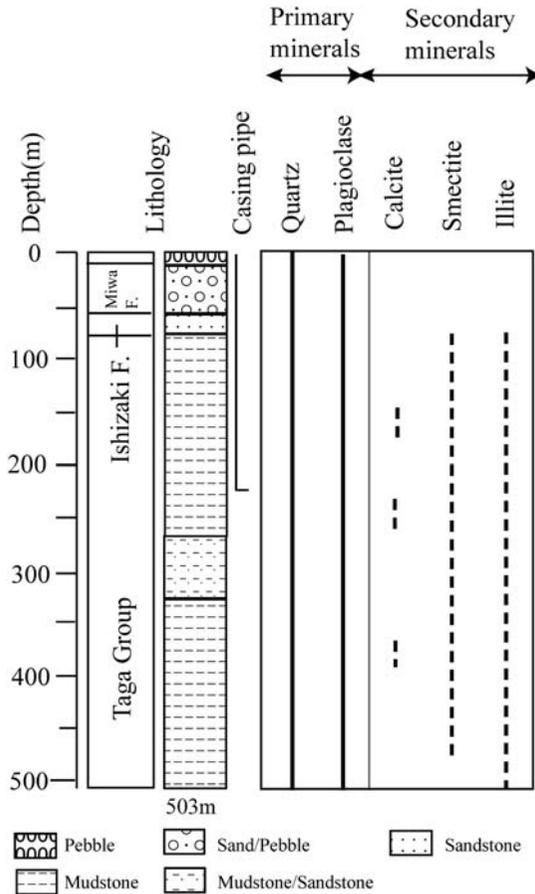


Fig. 9 Stratigraphy and distribution of minerals in the Higashiibaraki well (No.26).

掘削時に回収された岩石片を用いて地層構成鉱物を同定することができた。Figure 9 からわかるように、地表から深度 55 m は下総層群相当層（見和層）、深度 55~75 m は下総層群相当層（石崎層）、深度 75~503 m（坑底）は中新世の多賀層群からなり、温泉貯留層である多賀層群の泥岩にはスメクタイトがほぼ普遍的に確認される。一方、安房地域では、温泉井の掘削時に回収された岩石片が入手できなかったため、大洗地域のようにスメクタイトの確認はできなかったが、次のような地質構造発達過程で火山性物質は Mg—スメクタイト化したと推察される。10 Ma 前頃よりフィリピン海プレートの沈み込み部である海溝の南側の深海底（2~3 km）に三浦層群が堆積を開始しており（千葉県史料研究財団，1998），この時期に三浦層群に封じ込められた海水はその後堆積物中の火山性物質の Mg—スメクタイト化に伴って変質する。この変質海水が館山 1 号泉（No. 1）の深部流体となり、三浦層群泥岩の間に貯留された。

$\delta^{18}\text{O}$ 値が海水より低い化石海水 A1 と C を比較すると、化石海水 A1 の $\delta^{18}\text{O}$ 値は化石海水 C より低い (Fig. 4b)。化石海水 C と A1 の温泉貯留層はそれぞれ上総層群と三浦層群である故、古い地層に閉じ込められた化石海水ほど $\delta^{18}\text{O}$ 値は低くなる傾向にあり、反応時間が長くなるほど火山性物質のスメクタイト化は一層進行している。

4) 続成作用

銚子地域には海水より ^{18}O に富み D にやや乏しい化石海水 B2 が胚胎すると推察された。本地域の強塩泉である銚子温泉 (No. 22) はイライトに対してかなりの過飽和状態にあり (Fig. 8c), 化石海水はジュラ系愛宕山層群ないし白亜系銚子層群の付加体堆積物を構成するスメクタイトのイライト化の際に ^{18}O に富み D に乏しい層間水の脱水反応によってもたらされたと考えられる (大沢ら, 2010; 浜田ら, 2009; 井尻, 2009)。スメクタイトがイライト化する際に層間水の脱水反応によって生じた水が海水に付加されることから (大沢ら, 2010), 化石海水 B2 の Cl^- 濃度は元々海水より低く, 銚子温泉 (No. 22) の Cl^- 濃度 (13,600 mg/L) が海水より低い要因になっている可能性がある。嶺岡隆起帯地域に胚胎する化石海水 B1 も, 同様の続成作用に伴う層間水の脱水反応によってもたらされたのであろう。嶺岡隆起帯地域の温泉もイライトに対して過飽和状態にあり, この推論と整合する (Fig. 8c)。

非火山地域の深部流体の温度は大局的には地温勾配に依存している。スメクタイトのイライト化作用は $60\sim 150^\circ\text{C}$ で起こることから (Dahlmann and De Lange, 2003), 地表温度を 15°C と仮定し, 地下水データと深部坑井の孔底温度の比較から求めた関東平野の地温勾配 ($2.0\sim 2.2^\circ\text{C}/100\text{m}$; 内田ら, 2002) を用いると, 深度 2,045~2,250 m でスメクタイトがイライト化する下限温度 60°C に達する。したがって, 銚子・嶺岡隆起帯地域の海底堆積物に貯留された海水が続成変質した場合は, このような深度よりも深かったと予想される。

5. ま と め

千葉県房総半島, および千葉県東部から茨城県南東部にかけて分布する非火山性温泉を対象に, 主成分および水素・酸素・硫黄同位体分析を実施し, 地質鉱物学的視点に立って深部流体の起源と水質形成機構を検討するとともに, 水—鉱物相互作用の化学平衡論を用いて検証した。得られた結果は以下のとおりである。

(1) 深部温泉の殆どは Na—Cl 型に属するが, 浅部温泉は Na— HCO_3 型, Na—Cl 型, Ca— SO_4 型, Na・Ca— HCO_3 型と多様であり, これらの温泉は化石海水と天水の混合によって形成された。関東構造盆地地域では, 房総丘陵から涵養された降水が地下へ浸透し, 化石海水と様々な割合で混合されることによって深部流体は形成された。安房地域の温泉は一つの水理系にあり, また嶺岡隆起帯地域の温泉は鴨川地溝帯を挟む北断層と南断層およびその他の東西性と南北性の断層群で繋がり一つの水理系をなしている。

(2) 温泉水の硫酸態硫黄濃度は, 浅層を中心に進行した黄鉄鉱の酸化作用のほか, 多くの Na—Cl 型深部温泉では硫酸還元反応に規制される。

(3) すべての浅部温泉と多くの深部温泉の水質は斜長石の風化作用に規制される。関東構造盆地地域のほとんどの Na—Cl 型深部温泉は陽イオン交換反応にも規制される。安房・大洗地域の一部の Na—Cl 型深部温泉は火山性物質の風化作用, 銚子・嶺岡隆起帯地域の Na—Cl 型深部温泉は続成作用に規制される。

(4) 本地域には 5 種類の化石海水が賦存する。安房・大洗・関東構造盆地地域には, $\delta^{18}\text{O}$ 値が海水よりマイナス側へシフトする化石海水 (A1, A2, C) が賦存する。このマイナスシフトは火山性物質のスメクタイト化に起因し, 反応時間が長くなるほど火山性物質のスメクタイト化は一層進行している。一方, 嶺岡隆起帯・銚子地域には $\delta^{18}\text{O}$ 値が海水よりプラス側へシフトする化石海水 (B1, B2) が賦存し, このプラスシフトは海底堆積物を構成するスメクタイトのイライト化の際に生じる ^{18}O に富む層間水の脱水反応によってもたらされたと推察される。

(5) これらの水質形成機構は地下構成鉱物および水—鉱物相互作用に関する化学平衡計算結果と整合する。

謝 辞

本研究を遂行するにあたり、温泉の現地調査では若月 聡氏にご協力頂くとともに貴重なご教示を賜り、温泉所有者各位には温泉水の採取に便宜を図られた。東京理科大学の大平 孟氏、谷口無我氏、片山秀雄氏には安定同位体分析にご協力いただいた。また、匿名の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

- 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. 649 p., Balkema, Leiden.
- 千葉県史料研究財団 (1998) : 千葉県の自然誌。千葉県, 823 p, 千葉。
- Dähmann, 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. Lett.*, **212**, 377-391.
- Eaton, A.D., Clesceri, L.S., Rice, E.W., Greenberg, A.E. and Franson, M.H. (2005) : *Standard Methods for Examination of Water and Wastewater*, 21st edition. 1200 p., American Public Health Association, Washington.
- 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.
- 林 広樹, 笠原啓司, 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, 笠原啓司 (2004a) : 関東平野の地下における先新第三系の分布。石油技術協会誌, **69**, 574-586.
- 林 広樹, 高橋雅紀, 柳沢幸夫, 山水史生, 渡辺真人, 堀内誠示, 長谷川四郎, 笠原敬司 (2004b) : 千葉県南部鴨川中深層観測井の坑井地質と地質年代。防災科学技術研究所研究報告, **65**, 97-118.
- Hoefs, J. (1973) : *Stable Isotope Geochemistry*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg. 同位体地球化学の基礎。和田秀樹, 服部陽子訳。383 p., シュプリンガー・ジャパン, 東京。
- 市原優子 (1993) : 大阪層群の泥質堆積物中の有機物と硫黄。市原 実 (編) 大阪層群, 340 p., 創元社, 大阪。
- 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.
- 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.
- 石川剛志, 中村栄三 (1989) : ホウ素の同位体地球・宇宙化学。地球化学, **23**, 23-34.

- 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.
- 環境省自然環境局 (2002) : 鉱泉分析法指針 (改訂). 79 p.
- 笠井加一郎 (1998) : 6. 地化学データによる地熱貯留層管理. セミナー 地熱発電所の維持管理における地化学の活用について, 日本地熱調査会, 100-113.
- Kashiwagi, H., Shikazono, N., Ogawa, Y., Higuchi, Y., Takahashi, M. and Tanaka, Y. (2006) : Mineralogical and biological influences on groundwater chemistry of the Boso Peninsula, Chiba, central Japan. Implications for origin of groundwater in sedimentary basins. *Geochem. J.*, **40**, 345-361.
- 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.
- 活断層研究会編 (1991) : 新編日本の活断層—分布図と資料—, 437 p., 東京大学出版会, 東京.
- 河井興三 (1961) : 南関東ガス田地帯についての鉱床地質学的研究. 石油技術協会誌, **26**, 212-266.
- 河井興三, 福田 理 (1973) : 可燃性天然ガス. 日本地方鉱産誌「関東地方」, 352-416. 朝倉書店, 東京.
- 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, 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 (2004 千葉) 見学旅行案内書, pp. 93-108.
- 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.
- Maekawa, T., Igari S. and Kaneko, N. (2006) : Chemical and isotopic compositions of brines from dissolved-in-water type natural gas fields in Chiba, Japan. *Geochem. J.*, **40**, 475-484.
- Matsumoto, R. (1992) : 40. Causes of the oxygen isotopic depletion of interstitial waters from sites 798 and 799, Japan Sea, Leg 128. *Proc. Ocean Drilling Programs, Scientific Results*, 127/128, Pt. 1, 697-703.
- 村松容一, 岡崎公美, 大城恵理, 安諸政俊 (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.
- 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.
- 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, 京都大学学術出版社, 京都.
- 中嶋輝允, 牧本 博, 平山次郎, 徳橋秀一 (1981) : 鴨川地域の地質. 地域地質研究報告 (5 万分の 1 図幅), 107 p, 地質調査所, 茨城.
- 日本分析化学会北海道支部編 (2005a) : 水の分析 第 5 版. 472 p., 化学同人, 京都.
- 日本分析化学会北海道支部編 (2005b) : 環境の化学分析. 357 p., 三共出版, 東京.
- 大森昌衛, 端山好和, 堀口万吉 (1986) : 日本の地質 3 関東地方. 日本の地質『関東地方』編集委員会編, 335 p. 共立出版, 東京.
- 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, **29**, 295-319.
- 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.
- Sakai, H. and Matsubaya, O. (1974) : Isotopic geochemistry of the thermal waters of Japan and its bearing on the Kuroko ore solutions. *Econ. Geol.*, **69**, 974-991.
- 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.
- 柴崎達雄, 水収支研究グループ (1976) : 地下水盆の管理. pp. 32-46, 東海大出版会, 秦野.
- 茂野 博, 阿部喜久男 (1987) : 温泉・噴気の化学に基づく仙岩地域熱水系の概念的モデル. 地質調査所報告, **266**, 251-283.
- 新エネルギー, 産業技術総合開発機構 (1989) : 地熱貯留層評価手法マニュアル. 171 p.
- 新エネルギー財団 (1988) : 昭和 62 年度地熱発電所環境影響保全技術調査報告書—温泉影響予測技術調査. 82 p.
- 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—とくにガス成分と鉱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 (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.
- 高橋雅紀 (2008) : 新第三系の分布と対比. 日本地質学会編「日本地方地質誌 3 関東地方」, 26-37. 朝倉書店, 東京.
- 高橋雅紀, 林 広樹, 笠原敬司, 木村尚紀 (2006) : 関東平野西縁の反射法地震探査記録の地質学的解釈—とくに吉見変成岩の露出と利根川構造線の西方延長—. 地質学雑誌, **112**, 33-52.
- 高橋直樹, 高橋雅紀 (2008) : 房総・三浦半島の嶺岡帯. 日本地質学会編「日本地方地質誌 3 関東地方」, 130-132. 朝倉書店, 東京.
- 内田洋平, 大久保泰邦, 宮越昭暢 (2002) : 地下水データと深部孔井データの孔底温度の比較から求めた関東平野の地温勾配. 物理探査, **55**, 191-198.
- Yanagisawa, F. and Sakai, H. (1983) : Preparation of SO₂ for sulfur isotope ratio measurements by thermal decomposition of BaSO₄-V₂O₅-SiO₂ mixtures. *Analytical Chemistry*, **55**, 985-987.