

原 著

## 榛名火山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

村松容一<sup>1)\*</sup>, 片山秀雄<sup>2)</sup>, 千葉 仁<sup>3)</sup>, 奥村文章<sup>4)</sup>

(平成 25 年 7 月 17 日受付, 平成 25 年 9 月 27 日受理)

### Chemical and Stable Isotope ( $\delta D$ , $\delta^{18}O$ and $\delta^{34}S$ ) compositions of Hot Springs from the Haruna Volcano of Central Japan, and Their Geological and Mineralogical Interpretations

Yoichi MURAMATSU<sup>1)\*</sup>, Hideo KATAYAMA<sup>2)</sup>, Hitoshi CHIBA<sup>3)</sup>  
and Fumiaki OKUMURA<sup>4)</sup>

#### Abstract

Chemical and stable isotope ( $\delta^{18}O$ ,  $\delta D$ ,  $\delta^{34}S$ ) compositions of eighteen hot spring waters and seven spring waters from the Haruna volcano, Central Japan, were analyzed to constrain the flow system and formation mechanism of the fluids. These waters belong to Na-Cl, Ca-Cl, Na-SO<sub>4</sub>, Ca-SO<sub>4</sub>, Na-HCO<sub>3</sub> and Ca-HCO<sub>3</sub> types, and the chloride-type waters were formed by mixing of fossil sea water with local meteoric water. The major chemical compositions of the waters are controlled by reaction of volcanic material to form smectite, ion exchange of smectite, calcite and anhydrite dissolutions, and also by sulfate reduction process. The fluid formation mechanisms are concordant with the fluid-mineral interaction result and stable isotope ratios ( $\delta^{18}O$  and  $\delta D$ ).

The oxygen isotope ratio with weakly negative shift ( $-0.92\%$ ) of the fossil sea water reserved in the Annaka Group reflects pervasive reaction of volcanic material to form smectite. The high oxygen isotopic ratio ( $+6.92\%$ ) of the fossil sea water reserved in the

<sup>1)</sup> 東京理科大学理工学部教養科 〒278-8510 千葉県野田市山崎 2641. <sup>1)</sup> 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.

<sup>2)</sup> 東京理科大学大学院科学教育研究科科学教育専攻 〒162-8601 東京都新宿区神楽坂 1-3. <sup>2)</sup> Graduate School of Educational Science, Tokyo University of Science, 1-3 Kagurazaka, Shinjuku-ku, Tokyo 162-8601, Japan.

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

<sup>4)</sup> 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. <sup>4)</sup> Research Center, Japan Petroleum Exploration Co., Ltd., 1-2-1 Hamada, Mihama-ku, Chiba, Chiba 261-0025, Japan.

Annaka and Tomioka Groups of the Tomioka field resulted from more progressive diagenetic degrees (recrystallization effect) depend on burial depth. The sulfate-rich hot spring waters from the Ikaho and Harunako areas have a wide range of  $\delta^{34}\text{S}$  from +11.1 to +25.8‰, interpreting by dissolution of low and high  $\delta^{34}\text{S}$  rich anhydrites which had been produced from the diluted acid sulfate and volcanic solutions at the active stage of volcanism, respectively.

Key words : Haruna volcano, Hot spring waters, Anhydrite, Fluid flow system, Fluid formation mechanism, Geological and mineralogical interpretations

## 要 旨

群馬県榛名火山に分布する温泉水 (18 地点) および湧水 (7 地点) 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。温泉水・湧水は Na—Cl 型, Ca—Cl 型, Na— $\text{SO}_4$  型, Ca— $\text{SO}_4$  型, Na— $\text{HCO}_3$  型, Ca— $\text{HCO}_3$  型に属する。このうち、塩化物泉の深部流体は主に降水と化石海水の混合によって形成されたものであり、降水に卓越する。温泉水と湧水の水質は火山性物質の風化、イオン交換反応、方解石・硬石膏の溶解、硫酸還元反応によって規制されており、水—鉱物相互作用に関する化学平衡計算結果および  $\delta^{18}\text{O}$  と  $\delta\text{D}$  値より導かれた推論と整合する。

榛名火山に賦存する化石海水の  $\delta^{18}\text{O}$  値 ( $-0.92\text{‰}$ ) は現海水より若干低く、火山性物質のスメクタイト化によってもたらされた。一方、榛名火山に南接する富岡地域に賦存する化石海水の  $\delta^{18}\text{O}$  値 ( $+6.92\text{‰}$ ) は現海水より高く、スメクタイトのイライト化によってもたらされており、両地域間の  $\delta^{18}\text{O}$  値の大差は埋没深度に依存する続成作用 (再結晶作用) の進行度に起因する。榛名湖・伊香保地区の  $\text{SO}_4^{2-}$  に富む温泉水と湧水に含まれる硫酸態硫黄は硬石膏を起源にしている。両地区の温泉水の  $\delta^{34}\text{S}$  値 ( $+25.8$ ,  $+11.1\text{‰}$ ) には大きなばらつきが認められており、榛名火山の活動期に、山頂の地下では火山ガス中の  $\text{SO}_2$  の不均化による  $\text{H}_2\text{SO}_4$  が関与した流体から沈殿した  $\delta^{34}\text{S}$  値の重い硬石膏、中腹の地下では浅層  $\text{SO}_4$  型酸性水から沈殿した  $\delta^{34}\text{S}$  値の軽い硬石膏を、深部流体の主な起源である降水が地下に浸透する途中でそれぞれ溶解してきたと推察される。

キーワード：榛名火山、温泉水、硬石膏、流動機構、水質形成機構、地質鉱物学的解釈

## 1. はじめに

群馬県は赤城火山、榛名火山、浅間火山、草津白根火山、日光白根火山を有する活火山県であり、草津・万座・伊香保などの火山性温泉が多数存在する。これらの温泉を対象にした地球化学的研究はこれまで多数報告されているが (例えば、松葉谷, 1981; 松葉谷ら, 1985; 酒井, 1989, 2008; 山本ら, 1997)、地質鉱物学的視点に立った深部流体の起源 (流動機構を含む) と水質形成機構の研究は非常に少ない。そこで、著者らは第 1 報 (村松ら, 2010) で関東山地北縁の富岡地域、第 2 報 (村松ら, 2013) で足尾山地、赤城火山および利根川中流低地帯に分布する温泉の水質および安定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考察した。群馬県のほぼ中央に位置する榛名火山では、東山腹にある全国的にも有名な伊香保温泉の水質・同位体化学的および温泉地質学的研究は古くから多数行われているが (例えば、飯島, 1988; 酒井・木暮, 1988; 松葉谷, 1989; 久保, 1995)、榛名火山に分布する多数の温泉を包括し、地質鉱物学的視点で深部流体の起源と水質形成機構を詳細に研究した報告はこれまで行われていない。

本研究では、榛名火山に分布する温泉水と湧水を対象に、主成分および水素・酸素・硫黄安定同位体分析を実施し、地質鉱物学的視点で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水質形成機構を検証した。本研究によって, (1) 榛名火山に賦存する化石海水の酸素同位体的特徴を明らかにするとともに, 南接する富岡地域 (村松ら, 2010) との違いとその要因を解明すること, (2) 榛名湖および伊香保地区の  $SO_4^{2-}$  に富む温泉の成因を解明することができた。本論では, 地表で採取された温泉水, 湧水を温泉水 (hot spring water), 湧水 (spring water) とそれぞれ呼称し, 温泉水と湧水の本源である深部流体 (deep fluid) と区別する。また, 各温泉の名称は所在地で, 温泉井に関わる深度と孔底深度は地表基準でそれぞれ表す。

## 2. 地質概要

榛名火山とその周辺の地質および地質構造は野村ら (1990), 群馬県 (1999) などによって報告されている。群馬県 (1999) をもとに作成した本地域の地質図を Fig. 1 に示す。図中, 地質断面図

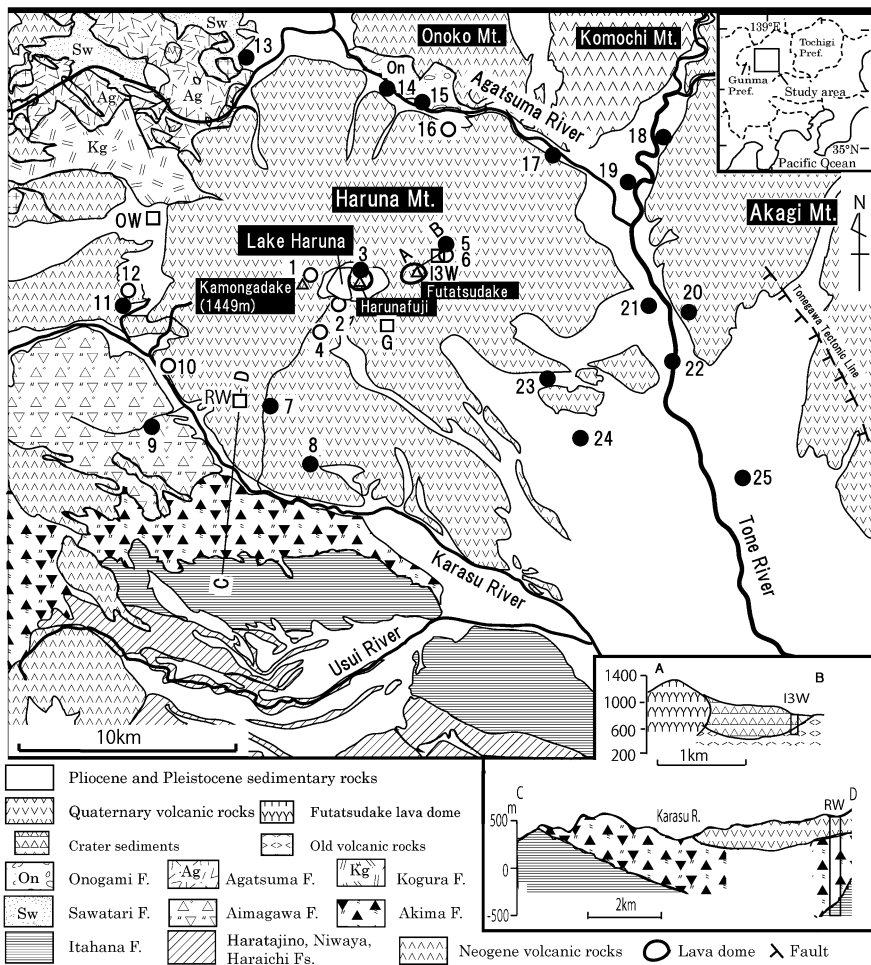


Fig. 1 Geological map and sample locations of spring waters in the Haruna volcano, Central Japan (after Gunma Prefecture, 1999 ; Iijima, 1988 ; Nomura *et al.*, 1990). Open and solid circles are shown springs and hot springs, respectively. OW, Ohdo thermal well ; RW, Ranzu survey well ; I3W, Ikaho No.3 well.

は飯島 (1988), 野村ら (1990) による。

### 1) 榛名火山中央地域

榛名湖・伊香保地区を含む榛名火山山頂付近～山腹を榛名火山中央地域と呼称する。榛名火山 (最高標高は掃部ヶ岳 1,449m) は山頂カルデラ内に溶岩円頂丘 (榛名富士) とカルデラ湖 (榛名湖) を持つ複式成層火山であり, 5 期にわたって成長している (大島, 1986)。第 1, 2 期は主成層火山形成期で輝石安山岩質マグマ, 第 4, 5 期はカルデラ (山頂カルデラ等)～溶岩円頂丘形成期でデイサイト質マグマ, 第 3 期はそれらの中間の性質をもつマグマがそれぞれ活動した。第 5 期 (約 1460 年前) に山頂では榛名富士溶岩円頂丘が形成され, また二ツ岳では火砕流や降下軽石の噴出によって爆裂火口が形成され, その内側に二ツ岳溶岩円頂丘が誕生した。その後, 榛名火山は静穏期を迎え, 現在顕著な噴気帯は見られない。しかし, 火山活動は完全には終息しておらず, 山頂には榛名富士, 東山腹には二ツ岳の活動とそれぞれ密接な関係にある榛名湖温泉と伊香保温泉が湧出している (久保, 1995)。伊香保温泉の酸素・水素同位体比によれば, たとえマグマ起源の火山性熱水を含んでいても, その割合は 1~2% 程度に過ぎないと報告されている (松葉谷, 1989)。

現在の榛名火山の大部分は主成層火山形成期の火山噴出物でできている。地質調査所が伊香保地区の旧火口堆積物分布域で掘削した第 3 号井 (孔底深度 302m; Fig. 1 の I3W) の地質調査結果によれば, 地表～深度 160m に爆裂火口を埋積した火口周辺堆積物 (角閃石安山岩), 深度 160~238m に崖錐性堆積物 (角閃石安山岩と両輝石安山岩), 238m 以深に主成層火山またはそれ以前の古期火山岩類 (両輝石安山岩) が分布している (久保, 1995)。伊香保地区の主成層火山の構造は N70°E ないし EW 方向が卓越し, 爆裂火口内にも認められており, 地表近くへの温泉の湧出は N60°~70°E 方向の構造が関係していると考えられている (久保, 1995)。伊香保地区の主源泉である 5 本の温泉井は旧火口堆積物分布域で掘削され, 古期火山岩類あるいはそれに近い上位層の基底付近に達している (Fig. 1 の A-B 地質断面図; 飯島, 1988)。

地表および孔井地質調査によれば, 榛名火山の第三系基盤は安中層群 (原市層, 板鼻層), 秋間層, 吾妻層で構成される。榛名湖の東南東 (Fig. 1 の G 地点) では, 標高 970m 付近まで陸成の吾妻層 (輝石安山岩質溶岩, 火山角礫岩, 火山礫凝灰岩) が露出しており, 榛名火山の基盤は火山の下でかなり盛り上っていると推定される (野村ら, 1990)。この吾妻層の分布は高重力異常域とほぼ一致することから, 基盤岩類が榛名火山山頂から北西山麓に露出する吾妻層の方向に存在する高重力異常域で地表付近まで分布しており, 吾妻層は NW—SE 方向の破碎構造を持っていると推定される (野村ら, 1990)。蘭津調査井 (Fig. 1 の RW) では, 地表～深度 164m に榛名火山噴出物 (輝石安山岩, かんらん石安山岩, 安山岩質凝灰角礫岩), それ以深の基盤は深度 903m まで後期中新世の秋間層 (白色軽石層, 茶白山溶結凝灰岩, 凝灰角礫岩, 凝灰岩), 深度 912m (孔底) まで後期中新世の安中層群板鼻層上部 (硬質砂岩・頁岩の亜円礫) からなる (野村ら, 1990)。また, 榛名火山南東山麓の榛東温泉井 (No. 23; 孔底深度 1,605m) は, 榛名火山噴出物, 秋間層, 安中層群板鼻層を掘り抜き, 安中層群原市層最上部に達している (久保・榛東温泉地質調査研究会, 2003)。

### 2) 榛名火山山麓地域

榛名火山の山麓を榛名火山山麓地域と呼称する。榛名火山南麓の地表には, 下位より安中層群板鼻層, 秋間層・相間川層 (両層の一部は同時異相) が分布し, さらに南方の富岡地域には富岡層群 (牛伏層, 小幡層, 原田篠層) と上位の安中層群 (庭谷層, 原市層, 板鼻層) が広く分布する。板鼻層 (層厚 1,200m 以上) は碎屑性海成堆積物 (砂岩, シルト岩, 礫岩) で構成され, 中部および上部には凝灰岩を数層挟在し, 最上部の礫岩中のものは層厚が厚く連続性に富んでいる (木崎, 1965; 野村・小坂, 1987; 高橋, 2008)。本層は北西—南東走向で, 北東に 15~20° 傾斜する。秋

間層（層厚 350 m 前後）は両輝石安山岩質の凝灰角礫岩および茶白山溶結凝灰岩からなり、板鼻層を不整合に覆う。秋間層の走向と傾斜は板鼻層と同じ（北北東に 10° 傾く単斜構造）であり、板鼻層とともに南南西側が隆起する傾動運動があったことが示唆されている（野村・秋間団体グループ, 1981）。相間川層は両輝石安山岩溶岩および同質の凝灰角礫岩からなる（野村・小坂, 1987）。地史的にみると、前期中新世に関東山地の北縁（富岡地域）に東西方向の堆積盆が形成されて海域になり、富岡層群の砂岩、シルト岩、泥岩が堆積した。中期中新世になると、浅海に火山灰層を取り込みながらシルト、砂などが堆積し、末期には関東山地が著しく隆起した結果、富岡地域は海退期を迎え、後期中新世の初期に板鼻層の粗粒砕屑物が浅海域を埋積した（高橋, 2008）。後期中新世の後期になると、地域南南西方面（荒船山～相間川流域）で生じた火山活動によって陸成の秋間層と相間川層が形成された（野村・小坂, 1987）。

一方、榛名火山北麓には、吾妻川以北に中期更新世の小野子・子持火山が聳え立っている。吾妻川下流域に分布する後期鮮新世～前期更新世の小野上層（層厚 600 m 以上）は湖沼堆積物（角礫岩、軽石凝灰岩泥岩、凝灰角礫岩、砂岩泥岩）で構成され、南に 10～50° 傾斜する。吾妻川中流域には、下位から中期中新世の沢渡層（凝灰質砂岩・泥岩）、後期中新世の根古屋溶結凝灰岩層、吾妻層（安山岩質凝灰角礫岩と同質溶岩）および小倉層（安山岩質凝灰角礫岩～火山角礫岩と同質溶岩の互層）が分布する（群馬県, 1999）。

### 3. 試料採取および分析方法

榛名火山地域の温泉水 18 地点、湧水 7 地点の計 25 地点で 2010～2012 年に採水した。現地で水温、pH、電気伝導度をカスターニー 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 3 本に採水するとともに、Fe、Al 分析用として 50 mL ポリエチレン瓶 2 本に採水して時間経過により沈殿物が生じないように、速やかに濃硝酸 1 mL を加えて pH を 1 程度に調整した。これらの水試料を実験室に持ち帰り、各種溶存化学成分を分析した。温泉は自然湧出泉ないし掘削泉（すべて水中ポンプによる動力揚湯）であった。ほとんどの源泉は温泉貯湯槽や入浴施設の近くにある。温泉水の採水場所は源泉 8 地点（Nos. 3, 7～9, 11, 13, 20, 23）、温泉貯湯槽への吐出口 3 地点（Nos. 14, 22, 25）、施設内の飲泉所・浴槽・温泉スタンド 7 地点（Nos. 5, 15, 17～19, 21, 24）である。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。

温泉水の分析項目と方法は次の通りである。HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>は容量法によって総アルカリ度として算出し、HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>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。Na<sup>+</sup>、Ca<sup>2+</sup>、Mg<sup>2+</sup>、Cl<sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、F<sup>-</sup>、Br<sup>-</sup>はイオンクロマトグラフ（島津製作所製 LC—VP）を用いた。K<sup>+</sup>、Fe、Li は原子吸光光度計（島津製作所製 AA—6200）、Al<sup>3+</sup> は簡易吸光光度計（エリオクロムシアン R（ECR）とアルミニウムイオンとの呈色反応を利用した比色法；HACH 製 DR—2800）、B は簡易吸光光度計（カルミン法；HACH 製 DR—2800）、SiO<sub>2</sub> は紫外可視分光光度計（モリブデンイエロー法；島津製作所製 UV—1650PC）でそれぞれ分析した。

酸素安定同位体比（δ<sup>18</sup>O）と水素安定同位体比（δD）は水試料を 0.45 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 1050°C に加熱したクロム炉にて水を熱分解して H<sub>2</sub> ガスに、酸素については 1,260°C に加熱したガラス質炭素の炉で CO ガス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（δ<sup>34</sup>S）は 10 地点を対象に BaSO<sub>4</sub> として沈殿させた後に

電気炉を用いて二酸化硫黄に変換し、硫黄同位体比を質量分析計 (GV Instruments 製 Iso Prime—EA) で測定した。安定同位体比は標準物質からの千分率偏差 (‰) で表した。

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

Table 1 Chemical composition of hot spring and spring waters.

No.	Locality	Elevation (m)	Depth (m)	Sampling date	Type	WT <sup>a2</sup> (°C)	TG <sup>a2</sup> (°C/100 m)	pH	EC (mS/cm)	Na <sup>+</sup> (mg/L)	K <sup>+</sup> (mg/L)	Ca <sup>2+</sup> (mg/L)	Mg <sup>2+</sup> (mg/L)
Central area of the Haruna volcano													
1	Kamogadake (S)	1094	0	12/9/2011	Ca-HCO <sub>3</sub>	13.1	—	7.3	0.07	1.71	0.849	4.60	0.386
2	Harunako (S)	1096	0	7/28/2010	Ca-SO <sub>4</sub>	13.6	—	7.0	0.08	3.09	1.32	8.69	1.40
3	Harunako	1087	303	7/28/2010	Na-Cl	35.9	6.9	6.8	2.35	245	60.4	116	72.0
4	Harunajinjya (S)	919	0	12/9/2011	Ca-HCO <sub>3</sub>	17.0	—	7.3	0.06	2.01	0.748	5.30	0.399
5	Ikaho	806	211	7/28/2010	Ca-Cl	(35.5)	9.7	5.8	1.01	58.7	46.2	126	26.2
6	Ikaho (S)	806	0	7/28/2010	Ca-SO <sub>4</sub>	17.8	—	7.5	0.14	4.29	1.15	9.00	1.03
Foot area of the Haruna volcano													
7	Harunasan	571	903	26/8/2010	Na-Cl	32.5	1.9	8.0	1.54	256	37.3	34.5	3.46
8	Takasaki-1	347	unknown	26/8/2010	Ca-HCO <sub>3</sub>	15.6	—	6.9	0.21	10.4	17.5	23.4	6.76
9	Kurabuchi-1	481	1300	26/8/2010	Na-Cl	56.6	3.2	6.6	38.0	4560	524	2470	451
10	Kannon (S)	454	0	26/8/2010	Ca-HCO <sub>3</sub>	11.4	—	7.5	0.12	3.35	1.61	13.0	4.23
11	Kurabuchi-2	593	unknown	26/8/2010	Na-Cl	41.5	—	8.1	4.75	808	31.9	143	<0.1
12	Kamezawa (S)	593	0	26/8/2010	Ca-HCO <sub>3</sub>	21.3	—	8.2	0.09	5.15	1.99	9.4	2.29
13	Agatsuma-1	415	1199	7/27/2011	Na-SO <sub>4</sub>	31.1	1.3	6.8	0.26	19.9	8.90	5.2	4.11
14	Agatsuma-2	289	700	7/28/2010	Na-Cl	(47.2)	(4.6)	8.3	3.46	580	50.3	58.7	<0.1
15	Shibukawa-1	273	500	7/27/2011	Na-Cl	(42.6)	(5.5)	8.9	2.05	307	34.1	25.8	<0.1
16	Hakoshima (S)	368	0	7/28/2010	Ca-HCO <sub>3</sub>	16.5	—	7.6	0.15	7.76	1.94	15.6	3.88
17	Shibukawa-2	215	923	7/28/2010	Ca-Cl	(32.2)	(1.9)	6.7	3.73	335	31.7	37.4	35.4
18	Akagi	208	703	5/31/2010	Na-HCO <sub>3</sub>	(43.5)	(4.1)	8.2	0.72	153	39.4	9.61	0.74
19	Shibukawa-3	219	unknown	7/27/2011	Na-Cl	(39.0)	—	8.0	1.42	184	37.3	36.9	9.55
20	Hokkitsu	191	1287	7/27/2011	Na-Cl	39.0	1.8	8.0	14.6	2300	42.5	511	<0.1
21	Shibukawa-4	154	1405	5/31/2010	Na-Cl	(56.0)	(2.9)	7.6	16.1	2520	52.2	830	<0.1
22	Yoshioka	137	1301	5/31/2010	Na-Cl	(53.7)	(3.0)	7.6	5.18	902	42.5	93.2	3.83
23	Shinto	336	1605	5/31/2010	Na-Cl	33.0	1.8	7.8	1.70	265	39.8	53.6	5.91
24	Takasaki-2	213	1215	5/31/2010	Na-Cl	(50.9)	(3.0)	7.7	3.86	757	46.8	68.9	15.5
25	Maebashi	110	1500	10/16/2012	Na-Cl	(50.7)	(2.4)	8.4	8.42	1580	38.5	94.1	12.4
	Seawater <sup>a1</sup>							8.4		11000	391	410	1390

No.	Locality	Al <sup>3+</sup> (mg/L)	Fe <sup>2+</sup> +Fe <sup>3+</sup> (mg/L)	Li (mg/L)	Cl <sup>-</sup> (mg/L)	F <sup>-</sup> (mg/L)	Br <sup>-</sup> (mg/L)	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> (mg/L)	HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup> (mg/L)	B (mg/L)	SiO <sub>2</sub> (mg/L)	δ <sup>18</sup> O (‰)	δD (‰)	δ <sup>34</sup> S (‰)
Central area of the Haruna volcano														
1	Kamogadake (S)	0.008	<0.1	<0.01	2.39	<0.1	<0.1	1.44	13.0	0.2	17.1	-9.64	-77.9	—
2	Harunako (S)	0.008	0.400	<0.01	1.25	<0.1	<0.1	16.5	21.0	<0.2	66.6	-9.14	-64.3	—
3	Harunako	0.008	2.26	0.09	469	<0.1	<0.1	284	234	3.0	154	-8.98	-60.3	+25.8
4	Harunajinjya (S)	0.000	<0.1	<0.01	1.63	<0.1	<0.1	3.01	15.0	0.1	18.1	-8.46	-58.5	—
5	Ikaho	0.006	16.8	<0.01	187	<0.1	<0.1	151	239	0.8	168	-8.68	-56.9	+11.1
6	Ikaho (S)	0.008	<0.1	<0.01	3.59	<0.1	<0.1	19.3	17.0	0.2	31.8	-8.62	-62.1	—
Foot area of the Haruna volcano														
7	Harunasan	0.007	1.10	<0.01	319	<0.1	<0.1	110	120	0.2	87.6	-9.83	-68.5	+18.4
8	Takasaki-1	0.007	0.470	<0.01	6.39	<0.1	<0.1	14.4	57.0	0.5	84.7	-8.34	-59.5	—
9	Kurabuchi-1	0.026	51.5	1.19	13400	<0.1	40.2	<0.1	71.0	52.0	116	-3.81	-31.7	—
10	Kannon (S)	0.006	0.605	<0.01	1.96	<0.1	<0.1	2.94	64.0	0.6	61.0	-8.45	-63.5	—
11	Kurabuchi-2	0.007	0.515	<0.01	1180	<0.1	<0.1	353	38.0	5.1	92.5	-9.25	-68.7	+17.1
12	Kamezawa (S)	0.007	0.489	<0.01	1.67	<0.1	<0.1	2.59	51.0	0.4	54.3	-8.91	-63.4	—
13	Agatsuma-1	0.007	6.04	<0.01	11.9	1.12	<0.1	54.5	19.0	0.5	9.9	-8.92	-65.5	+12.4
14	Agatsuma-2	0.005	0.091	<0.01	884	<0.1	<0.1	66.7	92.0	2.6	145	-10.1	-66.8	+23.1
15	Shibukawa-1	0.007	0.360	<0.01	496	<0.1	<0.1	28.3	102	1.6	122	-9.06	-64.2	+22.1
16	Hakoshima (S)	0.007	0.100	<0.01	7.34	<0.1	<0.1	11.3	59.0	<0.2	69.3	-8.84	-58.9	—
17	Shibukawa-2	0.006	2.67	<0.01	1000	<0.1	2.19	132	196	1.0	83.8	-9.12	-59.8	+21.0
18	Akagi	0.007	<0.1	<0.01	22.0	<0.1	<0.1	9.60	328	0.7	61.0	-10.4	-72.2	—
19	Shibukawa-3	0.007	0.204	<0.01	257	<0.1	<0.1	89.4	112	1.7	70.5	-9.68	-65.7	+20.0
20	Hokkitsu	0.005	1.34	0.27	4510	<0.1	11.7	13.5	112	36.5	57.5	-7.71	-55.8	—
21	Shibukawa-4	0.003	0.100	0.25	5250	<0.1	<0.1	<0.1	38.0	34.0	61.0	-8.50	-54.6	—
22	Yoshioka	0.005	0.861	0.20	1220	<0.1	<0.1	<0.1	479	14.5	72.6	-10.5	-66.1	—
23	Shinto	0.007	0.399	<0.01	287	<0.1	0.558	187	199	0.2	69.3	-9.62	-64.5	+20.2
24	Takasaki-2	0.006	0.418	<0.01	671	<0.1	<0.1	<0.1	880	7.4	49.5	-9.02	-64.5	—
25	Maebashi	0.007	0.700	—	2300	<0.1	<0.1	<0.1	502	13.8	41.4	-8.57	-63.3	—
	Seawater <sup>a1</sup>			0.18	19800			67.5	2690	150	4.5			+20.0

<sup>a1</sup>Data from Imahashi *et al.* (1996). <sup>a2</sup>Parenthesis shows water temperature measured at faucet of bathtub or entrance of reserve tank. S, Spring water; WT, Water temperature; EC, Electric conductivity.

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

#### 4. 結果および考察

##### 4.1 温泉水・湧水の主成分および安定同位体組成

温泉水・湧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 にそれぞれ示す. 温泉水・湧水の pH は 5.8~8.9, 水温は 11.4~56.6°C である. 榛名湖湧水 (No. 2) と伊香保湧水 (No. 6) は  $\text{Ca}-\text{SO}_4$  型, 残る 5 地点 (Nos. 1, 4, 10, 12, 16) の湧水は  $\text{Ca}-\text{HCO}_3$  型に属する (Fig. 2). 温泉水は  $\text{Na}-\text{Cl}$  型が 13 地点 (Nos. 3, 7, 9, 11, 14, 15, 19~25) で最も多いほか,  $\text{Ca}-\text{Cl}$  型 (Nos. 5, 17),  $\text{Na}-\text{SO}_4$  型 (No. 13),  $\text{Ca}-\text{HCO}_3$  型 (No. 8),  $\text{Na}-\text{HCO}_3$  型 (No. 18) と多様である. 温泉水の  $\delta^{34}\text{S}$  値は  $+11.1\sim+25.8\%$  でばらついており, とくに榛名火山中央地域山頂の榛名湖温泉 (No. 3) と中腹の伊香保温泉 (No. 5) で最大値と最小値を示している. 塩化物泉 (単純温泉に属する  $\text{Na}-\text{Cl}$  泉を含む) の  $\text{Na}^+$  と  $\text{Cl}^-$  濃度の関係を見ると, 多くは海水希釈線にあるが, 6 地点 (Nos. 3, 5, 9, 17, 20, 21) は海水希釈線より  $\text{Na}^+$  に欠損する (Fig. 3a).  $\text{Cl}^-$  濃度が 13,000 mg/L 以上の高塩化物泉は倉淵 1 号泉 (No. 9) のみである.

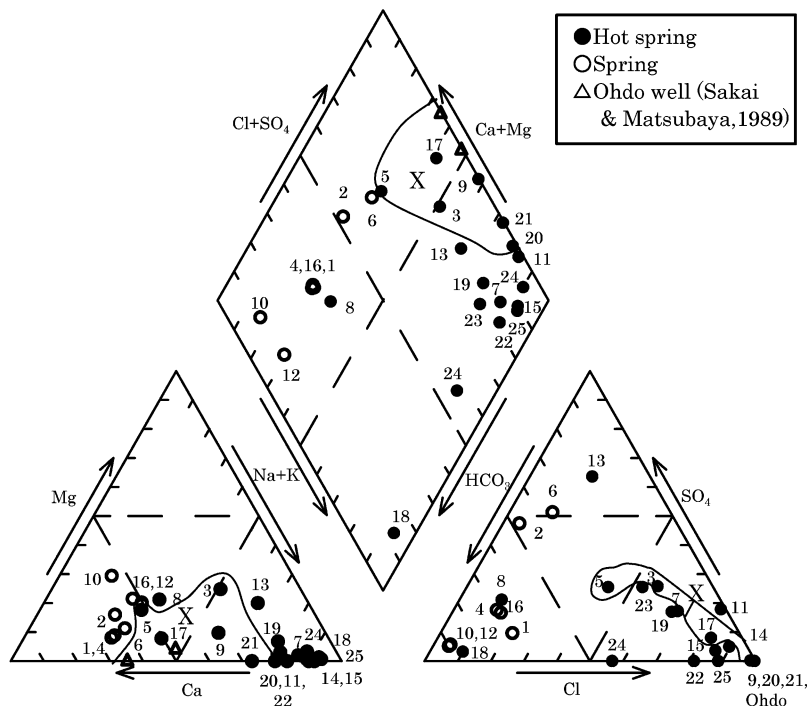


Fig. 2 Trilinear diagram for the spring waters. The sample numbers are the same as in Fig. 1. See text for the area X.

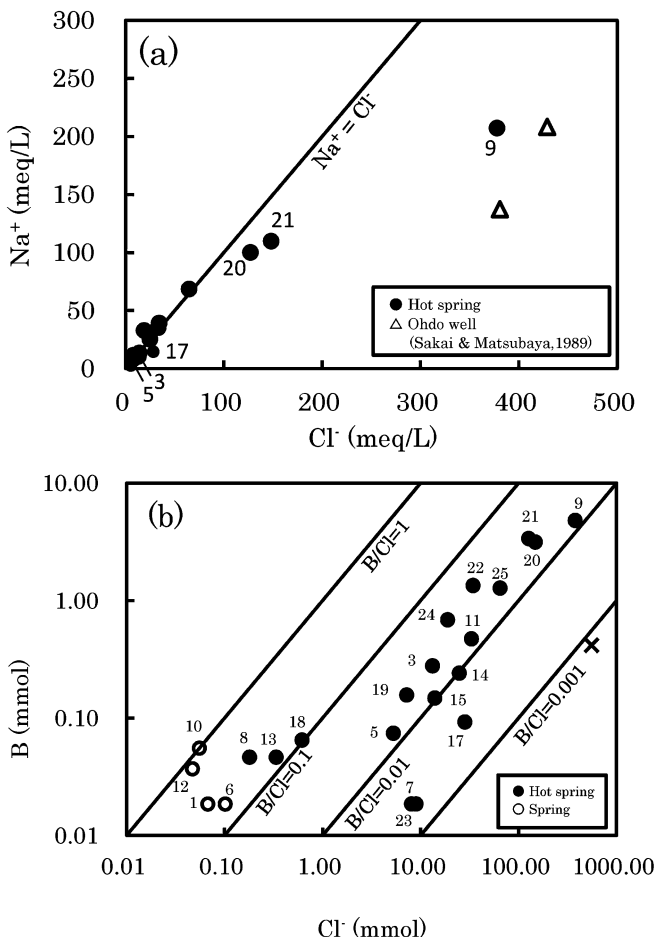


Fig. 3 Na<sup>+</sup>—Cl<sup>-</sup> diagram (a) for the chloride hot spring waters and Cl<sup>-</sup>—B diagram (b) for the spring waters. The sample numbers are the same as in Fig. 1.

## 4.2 深部流体の起源

### 1) 榛名火山中央地域

榛名火山中央地域の温泉水 (Nos. 3, 5) の B/Cl モル比 (0.01, 0.02) は火山岩類や火山砕屑岩類を貯留母岩とする範囲にある (Fig. 3b; 犬山ら, 1999). 久保 (1995) は伊香保地区の湧出機構と地質の関係を検討し, 第 1, 2 貯留層は二ツ岳の爆裂火口内 (基底深度 238 m), 第 3 貯留層は爆裂火口以深の主成層火山噴出物または基盤の火砕岩内にあると推定した. 伊香保温泉井 (No. 5) は深度 211 m を孔底にしており, B/Cl モル比 (0.014) は第 2 貯留層である爆裂火口内の崖錐性堆積物 (角閃石安山岩, 両輝石安山岩) を貯留母岩にしていることを示唆する.

榛名火山中央地域の温泉水は Cl<sup>-</sup> をあまり含まず, 天水線 ( $\delta D = 8\delta^{18}O + 10$ ) に沿ってほぼ分布することから, 深部流体はほぼ降水からなり, マグマ起源の火山性流体をほとんど含んでいないと考えられる (Fig. 4a). 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手段として広く利用されており (新エネルギー・産業技術総合開発機構, 1989), SiO<sub>2</sub> 濃度は深部流体の温度を間接的に知る手法として有効である. 榛名湖温泉井 (No.



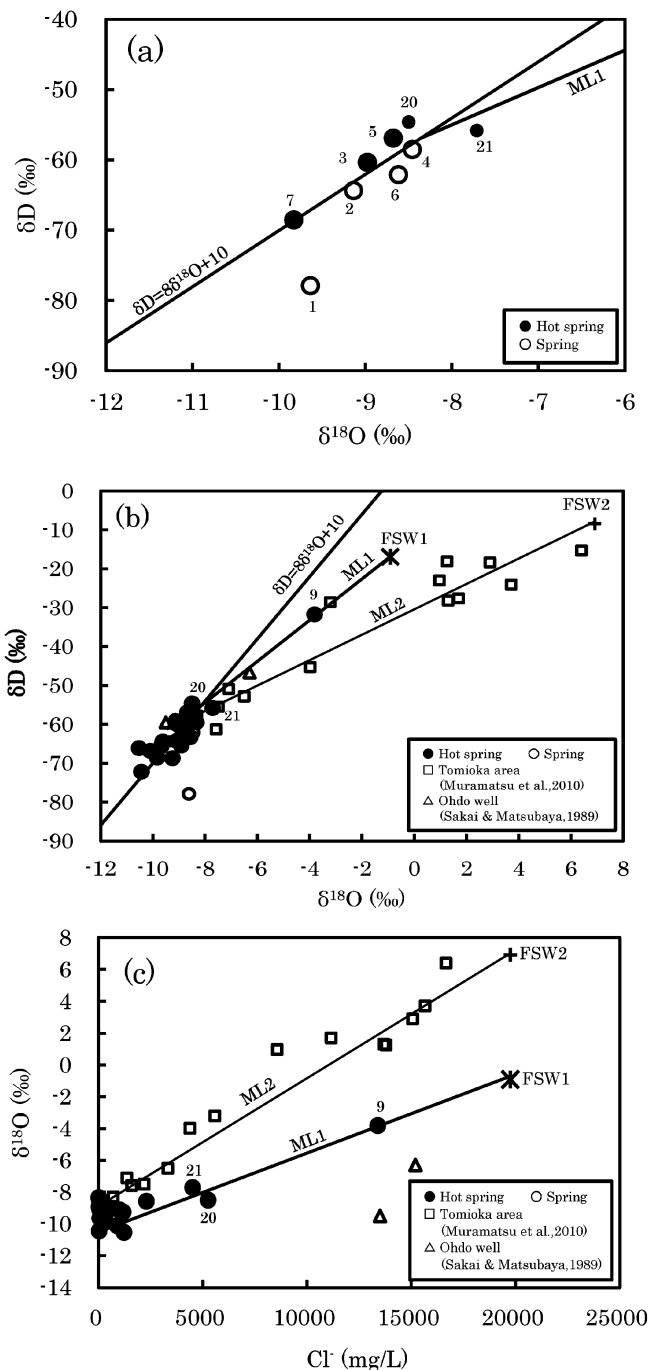


Fig. 4  $\delta^{18}O$ — $\delta D$  (a) diagram for the spring waters from the central area of the Haruna volcano,  $\delta^{18}O$ — $\delta D$  (b) and  $Cl^-$ — $\delta^{18}O$  (c) diagrams for the spring waters from the foot area of the Haruna volcano. The sample numbers are the same as in Fig. 1. The FSW1 shows the fossil sea water 1. The ML1 shows the mixing lines of fossil seawater 1 and meteoric water at the Haruna volcano. The FSW2 shows the fossil sea water 2. The ML2 shows the mixing lines of fossil seawater 2 and meteoric water at the Tomioka area.

3) と伊香保温泉井 (No. 5) の地温勾配 (地表温度を 15°C と仮定) は 6.9~9.7°C であり, 箱根・湯河原温泉なみ (5.9~8.0°C/100 m; 菊川ら, 2007) に高い.  $\text{SiO}_2$  濃度 (154~168 mg/L) も本研究で対象とした温泉のなかで最も高いことから, 両温泉の深部流体温度も同様であると判断される (Table 1).  $\text{Cl}^-$ - $\text{SiO}_2$  濃度図で, 榛名湖温泉 (No. 3) と伊香保温泉 (No. 5) は初期流体 ( $\text{Cl}^-$  濃度 469 mg/L 以上,  $\text{SiO}_2$  濃度 160 mg/L 程度) と火山熱で温められた降水 ( $\text{SiO}_2$  濃度 160 mg/L 程度) の混合線 ML1a 上にプロットされる (Fig. 5a).

以上に得られた結果から, 榛名火山中央地域の火山性温泉をもたらした深部流体の形成機構は次のようであったと推察される. 榛名火山の高標高域で涵養された降水の地下浸透によって生じた浅層地下水は湧水 (Nos. 1, 4) となった. 一部は縦型割れ目に沿って深部へ下降し温められて加熱地下水 ( $\text{SiO}_2$  濃度 160 mg/L 程度) となり, 山頂カルデラ内やニツ岳の爆裂火口内の堆積物 (Fig. 1 の A-B 地質断面図) 中に榛名湖・伊香保温水 (Nos. 2, 6) の深部流体として貯留された (久保,

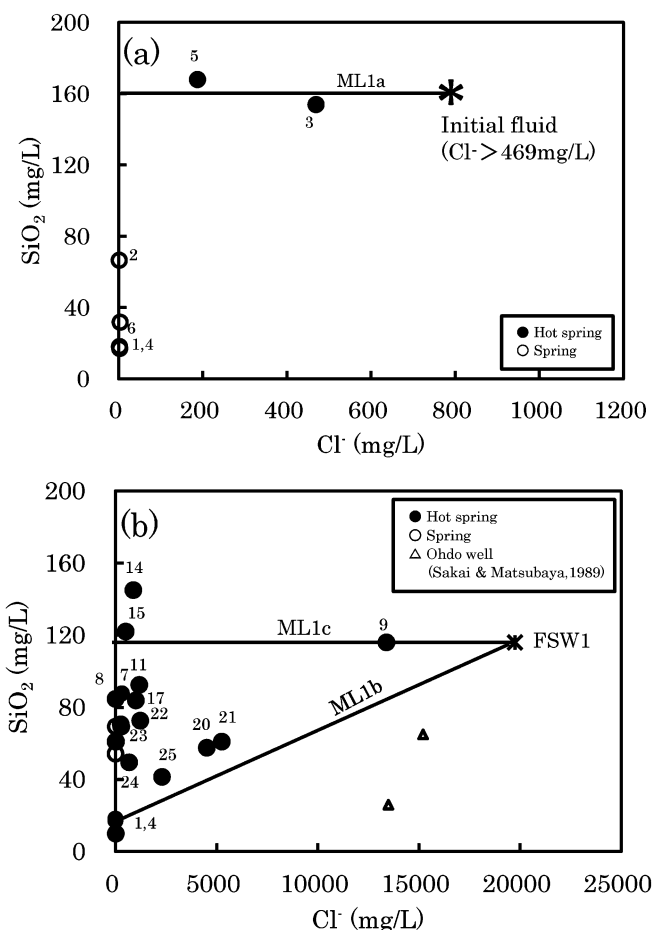


Fig. 5 Relationship between  $\text{Cl}^-$  and  $\text{SiO}_2$  concentrations in the spring waters from the central area (a) and foot area (b) of the Haruna volcano. The sample numbers are the same as in Fig. 1. The ML1a shows the mixing line of initial fluid and meteoric water at the Haruna volcano. The ML1b and ML1c show the mixing lines of fossil seawater 1 and meteoric water at the Haruna volcano.

1995). 一方, 初期流体は榛名富士やニツ岳の溶岩円頂丘の縁辺部や難透水性の主成層火山噴出物(古期火山岩類)に発達した割れ目(N70°E~EW系)を介して上昇・側方流動した後, 加熱地下水と混合して榛名湖・伊香保温泉(Nos. 3, 5)の深部流体となった. 北岡(1996)による伊香保地区の5源泉におけるトリチウム解析によれば, 低Cl<sup>-</sup>濃度・高トリチウム濃度(約12年の滞留時間)の浅層地下水と高Cl<sup>-</sup>濃度・低トリチウム濃度の初期熱水が混合することによって温泉水は形成されたと考えられており, 本研究の結果と整合的である. 箱根温泉などの火山活動が活発な地域に分布する温泉水のNa<sup>+</sup>とCl<sup>-</sup>はマグマ起源であるが(Oki and Hirano, 1970), 榛名湖温泉(No. 3)と伊香保温泉(No. 5)の形成に関与した初期流体はマグマ起源のNa<sup>+</sup>とCl<sup>-</sup>をほとんど含んでいないと推察される(4.3節で詳述).

## 2) 榛名火山山麓地域

榛名火山山麓地域のほとんどの温泉水のB/Clモル比(0.01~0.04)は火山岩類や火山砕屑岩類を貯留母岩とする範囲にある(Fig. 3b). 東麓の北橋温泉井(No. 20)では, 赤城火山噴出物(火山砕屑物, 火砕岩類)の下位に, 藪塚層(凝灰質泥岩, 凝灰岩)が深度517~907m, 板鼻層(凝灰角礫岩, 凝灰質泥岩, 砂質凝灰岩, 礫岩)が深度907~1,287m(孔底)に分布する. 温度検層による低下異常が深度1,180m付近に認められ, 板鼻層上部の礫岩中の凝灰岩が貯留母岩になっていることが示唆される. 西麓の倉測1号泉井(No. 9)では, 安山岩質溶岩や凝灰角礫岩などの火山噴出物を主体とする秋間層の下位(深度650m以深)に, 礫岩, 砂岩, シルト岩(凝灰岩を挟在), および海底噴火で形成された安山岩溶岩(深度1,190m以深)からなる板鼻層が深度1,300m(孔底)まで分布する. 温度検層による低下異常が深度816~970mに認められ, 板鼻層上部の凝灰岩が貯留母岩になっていることが示唆される. このように, 榛名火山の東・西麓では板鼻層上部の凝灰岩が貯留母岩になっている. 一方, 北麓の渋川1号泉井(No. 15)では, 泥岩(深度60m以浅), 安山岩質凝灰角礫岩(深度60~334m), 安山岩(深度334~孔底500m)からなる小野上層が分布する. 温度検層による低下異常が深度299~323mと419~497mに認められ, 小野上層の火山岩類が貯留母岩になっている可能性が高い.

利根川・烏川地域の温泉井(No. 18を除く)の伝導型地温勾配は1.8~3.2°C/100mであり, 非火山地域値(2~3°C/100m程度; 入船, 1995)を示す(Table 1).  $\delta^{18}\text{O}$ — $\delta\text{D}$ 値の関係をみると, 倉測1号泉(No. 9)の $\delta^{18}\text{O}$ 値は天水線( $\delta\text{D}=8\delta^{18}\text{O}+10$ )よりプラスシフトしている(Fig. 4b). この高塩化物泉のMg/Cl当量比(0.098)とSO<sub>4</sub>/Cl当量比(0)は現海水(Mg/Cl当量比0.205, SO<sub>4</sub>/Cl当量比0.101)より低い一方, Ca/Cl当量比(0.326)は現海水(Ca/Cl当量比0.037)より高く, 海水端成分は化石海水(化石海水1と呼称)からなる(Table 1; 柴崎・水収支研究グループ, 1976; 酒井・大木, 1978; 村松ら, 2010). Cl<sup>-</sup>濃度が4,500mg/L以上の中・高塩化物泉(Nos. 9, 20, 21)におけるCl<sup>-</sup>濃度と $\delta^{18}\text{O}$ 値間の相関曲線ML1を外挿し, Cl<sup>-</sup>濃度が現海水と同じ19,800mg/Lであると仮定すれば, 化石海水1の $\delta^{18}\text{O}$ 値は-0.92‰と見積もられる(Fig. 4c). 同様にして, Cl<sup>-</sup>濃度— $\delta\text{D}$ 値間の相関曲線ML1(図は割愛)を用いると,  $\delta\text{D}$ 値は-16.9‰と見積もられる. したがって, 地理を勘案すると, 利根川・烏川地域の温泉群の深部流体は現海水より若干低い $\delta^{18}\text{O}$ 値をもった化石海水1と降水の混合によって形成されたと判断される.

本調査地域の中・高塩化物泉(Nos. 9, 20, 21)は榛名火山山麓の烏川と利根川沿いに分散している. 榛名火山に現存する高塩化物泉は1地点に過ぎないが, 西麓の大戸で1980年に温泉井(孔底深度585m)で高塩化物泉を自噴した実績がある(酒井・松葉谷, 1989). 本温泉水の $\delta^{18}\text{O}$ ,  $\delta\text{D}$ 値, Cl<sup>-</sup>濃度は1985年に急激に減少していることから, 初期(1982年)と急減後(1986年)のデータをFigs. 4b, cにプロットした. 本温泉水の初期の $\delta^{18}\text{O}$ 値と $\delta\text{D}$ 値はほぼ混合線ML1上にあり(Fig. 4b),  $\delta^{18}\text{O}$ 値とCl<sup>-</sup>濃度も混合線ML2から大きく外れ, 混合線ML1寄りにプロットされる(Fig.

4c). したがって、現海水より低い  $\delta^{18}\text{O}$  値をもった化石海水が榛名火山の地下深部に広く分布している可能性が高い。

$\text{Cl}^-$  と  $\text{SiO}_2$  濃度の関係を見ると、ほとんどの温泉水 (吾妻川沿いの Nos. 14, 15 を除く) が化石海水 1 と火山熱で温められた降水の混合線 (ML1b と M1c) に挟まれた範囲内にプロットされる (Fig. 5b). したがって、利根川・烏川地域では、榛名火山で涵養された後に火山熱で温められた降水起源の加熱地下水が、板鼻層上部の凝灰岩に賦存する化石海水 1 と混合することによって、当該温泉群の深部流体は形成されたと推察される。

榛名火山北麓の吾妻 2 号泉 (No. 14) と渋川 1 号泉 (No. 15) の水質、同位体組成、掘削深度は似ており、深部流体は吾妻川沿いに伏在する北北西—南南東方向の断層に貯留されている可能性がある。両温泉の地温勾配 ( $4.6\sim 5.5^\circ\text{C}/100\text{m}$ ) と  $\text{SiO}_2$  濃度 ( $122\sim 145\text{mg/L}$ ) は高い。子持火山の主活動期は  $0.91\sim 0.25\text{Ma}$  (K-Ar 年代; 飯塚, 1996) で若いことから、両温泉水は子持火山からの熱の影響を受けている可能性が考えられる。今後、小野子・子持火山の北・西縁に分布する温泉水を更に採取して検討する必要がある。

### 4.3 深部流体の水質形成機構

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量や欠損量を求める必要がある。試料の  $\text{Cl}^-$  がすべて海水起源であると仮定して、次式より試料の M 成分の過剰・欠損濃度を算出した。

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

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

#### 1) 方解石の溶解作用

$\text{Ca}-\text{HCO}_3$  型 (Nos. 1, 4, 10, 12, 16) と  $\text{Ca}-\text{SO}_4$  型 (Nos. 2, 6) の湧水、および高崎 1 号泉 (No. 8; 浅部井) の  $\Delta\text{Ca}^{2+}$  と  $\Delta\text{HCO}_3^-$  濃度は  $\Delta\text{Ca}^{2+} = \Delta\text{HCO}_3^-$  に沿って概ね分布しており、方解石の溶解が  $\text{Ca}^{2+}$  と  $\text{HCO}_3^-$  の濃度を規制している (Fig. 6a)。



水—鉱物における反応の活動度積を Q, 溶解度積を K とおけば、鉱物の飽和指数 (SI) は  $\text{SI} = \log(Q/K)$  で定義される。溶液—鉱物平衡計算プログラム「SOLVEQ」(Reed, 1982) を用い、泉温における深部流体の方解石に対する飽和指数を計算した結果、これらの湧水・温泉水は方解石に不飽和であり、方解石を溶解する環境にある (Fig. 7a)。したがって、これらの温泉水と湧水の深部流体は、榛名火山で涵養された降水が榛名火山噴出物中を浸透する過程で方解石を溶解してきたと判断される。

#### 2) 風化作用

Figure 6b からわかるように、11 地点の温泉水 (Nos. 7, 11, 13~15, 18, 19, 22~25) の  $\Delta\text{Na}^+$  と  $\Delta\text{HCO}_3^-$  濃度は直線  $\Delta\text{Na}^+ = \Delta\text{HCO}_3^-$  に沿って分布しており、 $\text{Na}^+$  と  $\text{HCO}_3^-$  の濃度は火山性物質 (曹長石組成) の  $\text{Na}$ —スメクタイト化に規制されていると判断される。



当該温泉群の深部流体は  $\text{Na}$ —スメクタイトに過飽和状態であり、 $\text{Na}$ —スメクタイトを沈殿する環境にあったことがわかる (Fig. 7b)。富岡地域の地表に分布する第三紀凝灰岩の顕微鏡観察によれば、貯留母岩である板鼻層中～上部の軽石質凝灰岩には火山ガラス (火山塵およびガラス繊維) の変質によるスメクタイト化が認められている (木崎, 1965)。

#### 3) 硫酸還元反応

地下生物圏の微生物は多様な電子受容体を呼吸に用いており、やや深所では  $\text{SO}_4^{2-}$  呼吸 (硫酸還元)

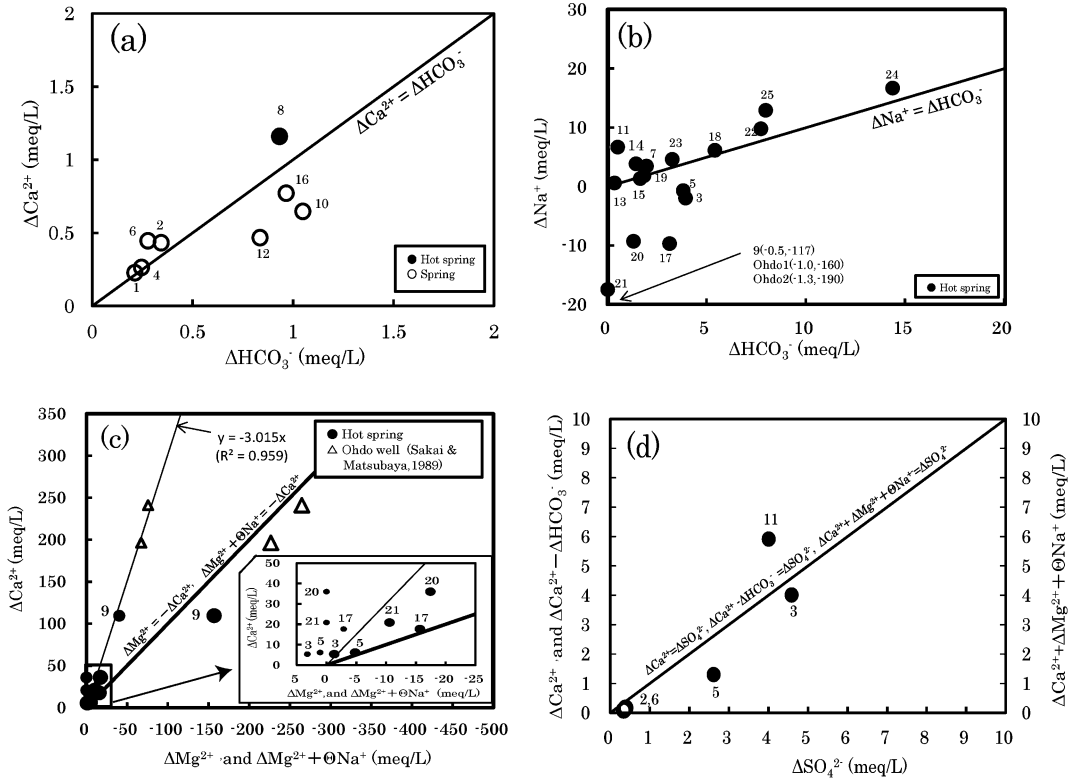


Fig. 6  $\Delta\text{HCO}_3^- - \Delta\text{Ca}^{2+}$  (a),  $\Delta\text{HCO}_3^- - \Delta\text{Na}^+$  (b),  $\Delta\text{Mg}^{2+}$  and  $(\Delta\text{Mg}^{2+} + \Theta\text{Na}^+) - \Delta\text{Ca}^{2+}$  (c), and  $\Delta\text{SO}_4^{2-} - \Delta\text{Ca}^{2+}$ ,  $(\Delta\text{Ca}^{2+} - \Delta\text{HCO}_3^-)$ , and  $(\Delta\text{Ca}^{2+} + \Delta\text{Mg}^{2+} + \Theta\text{Na}^+)$  (d) diagrams for the spring waters. The sample numbers are the same as in Fig. 1. Small and large symbols in Fig. 7c represent the data for  $\Delta\text{Mg}^{2+} - \Delta\text{Ca}^{2+}$  and  $(\Delta\text{Mg}^{2+} + \Theta\text{Na}^+) - \Delta\text{Ca}^{2+}$  diagrams, respectively.

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  $\text{SO}_4^{2-}$  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,  $\text{SO}_4^{2-}$  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). 榛名火山山麓と周辺地域の温泉水 (Nos. 7, 11, 14, 15, 17, 19, 23) における  $\text{SO}_4^{2-}$  濃度の対数と  $\delta^{34}\text{S}$  値間に逆相関が認められ, 倉測 2 号泉 (No. 11) から吾妻 2 号泉 (No. 14)・渋川 1 号泉 (No. 15) へ向けて  $\text{SO}_4^{2-}$  濃度の低下に伴って  $\delta^{34}\text{S}$  値は高くなり, 硫酸還元反応の進行が示唆される (Fig. 8).  $\text{SO}_4^{2-}$  濃度が検出限界以下である倉測 1 号泉 (No. 9) では, 硫酸還元菌が  $\text{SO}_4^{2-}$  を完全に消費し尽くしたのであろう (Table 1).

#### 4) イオン交換反応

海水希釈線より  $\text{Na}^+$  に欠損する塩化物泉 (Nos. 3, 5, 9, 17, 20, 21) と大戸高塩化物泉 (酒井・松葉谷, 1989) は  $\text{Ca}$  に富む特徴を有する (Fig. 2 の X). このうち, 採水試料のなかで唯一の高塩化物泉である倉測 1 号泉 (No. 9) の  $\text{Mg}/\text{Cl}$  当量比 (0.098) は現海水 (0.205) より著しく低い一方,  $\text{Ca}/\text{Cl}$  当量比 (0.326) は現海水 (0.037) より著しく高いことから, これらの温泉の  $\Delta\text{Mg}^{2+}$  と  $\Delta\text{Ca}^{2+}$  濃度の関係を検討した結果, 両成分濃度間に高い逆相関 ( $R^2=0.959$ ) が認められる (Fig. 6c). アメリカの深海掘削計画 (DSDP) により太平洋赤道とカリブ海で深海掘削時に回収された海底面～深度 400 m 間のコアに含まれる間隙水の分析結果によれば, 深くなると  $\delta^{18}\text{O}$  値は -3‰ 程度低くな

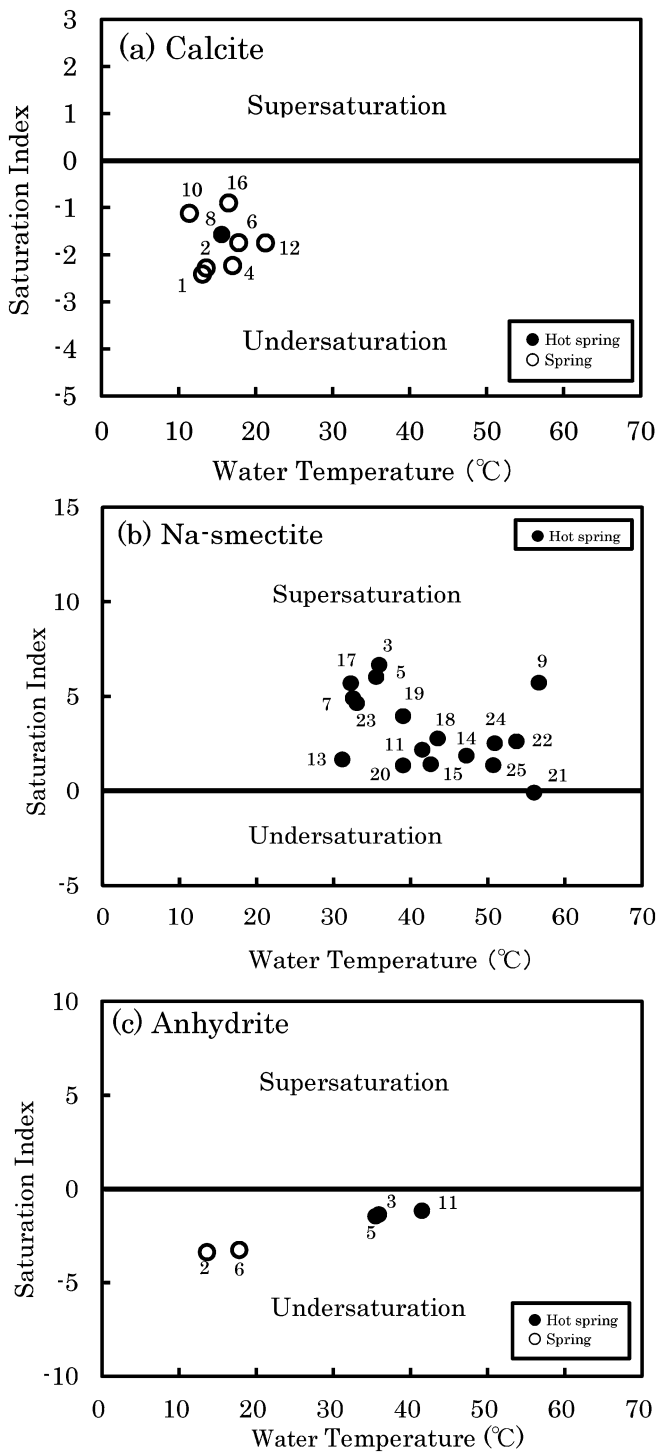


Fig. 7 Water temperature versus saturation index for the deep fluids. (a) Calcite (b) Na-smectite (c) Anhydrite. The sample numbers are the same as in Fig. 1.

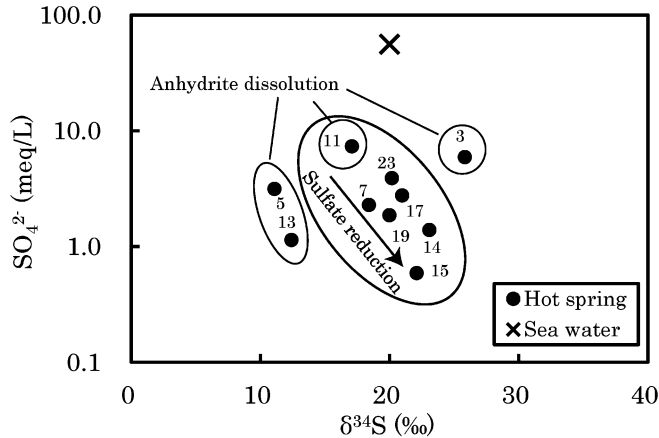


Fig. 8 Relationship between  $\delta^{34}\text{S}$  values and  $\text{SO}_4^{2-}$  concentration for the hot spring waters. The sample numbers are the same as in Fig. 1.

り  $\text{Mg}^{2+}$  濃度も減少する一方,  $\text{Ca}^{2+}$  濃度は逆に増加する傾向が認められており, この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). 榛名火山で海水希釈線より  $\text{Na}^+$  に欠損する塩化物泉に關与した化石海水 1 も同様の傾向を示しており, 板鼻層に閉じ込められた海水と火山性物質の反応による  $^{18}\text{O}$  に富む Mg—スメクタイトの形成が, 化石海水 1 の発生源である間隙水の  $\delta^{18}\text{O}$  値 ( $-0.92\%$ ) を海水より低くさせた要因であると推察される (Lawrence *et al.*, 1975; Matsuhisa and Matsumoto, 1985).

村松ら (2010) によれば, 本調査地域に南接する富岡地域の温泉は天水線 ( $\delta\text{D} = 8\delta^{18}\text{O} + 10$ ) 上の降水と化石海水 ( $\delta^{18}\text{O}$  値  $+6.92\%$ ,  $\delta\text{D}$  値  $-8.4\%$ ; 化石海水 2 と呼称) の混合 (ML2) によって形成されたものであり, 化石海水 2 の  $\delta^{18}\text{O}$  値は現海水より高い. この要因として, 貯留母岩である中期中新世の安中層群 (庭谷層) や前期中新世の富岡層群 (小幡層) に含まれるスメクタイトがイライト化する際に,  $^{18}\text{O}$  に富む層間水が脱水反応を起こしたことが推察されている (村松ら, 2013). Figures 4b, c からわかるように, 榛名火山山麓地域の化石海水 1 と富岡地域の化石海水 2 は明瞭に区別される. 榛名火山の化石海水 1 は後期中新世の安中層群 (板鼻層) に貯留されており, 榛名火山と富岡地域の化石海水に認められる  $\delta^{18}\text{O}$  値の大差は, 埋没深度に依存する続成作用 (再結晶作用) の進行度に起因しているであろう.

榛名火山の海水希釈線より  $\text{Na}^+$  に欠損する塩化物泉と大戸高塩化物泉の  $\text{Ca}^{2+}$  濃度は火山性物質の Mg—スメクタイト化によってもたらされた量 ( $\Delta\text{Mg}^{2+} = -\Delta\text{Ca}^{2+}$ ) よりかなりの過剰である (Fig. 6c). 今回 11 地点の温泉水で示唆された火山性物質 (曹長石組成) のスメクタイト化は当該温泉群でも行われた可能性が高いことから, この  $\text{Na}^+$  欠損量 ( $\Theta\text{Na}^+$ ) を  $\Delta\text{Mg}^{2+}$  に加えた値 ( $\Delta\text{Mg}^{2+} + \Theta\text{Na}^+$ ) と  $\Delta\text{Ca}^{2+}$  濃度の関係を検討した. その結果,  $\Delta\text{Mg}^{2+} + \Theta\text{Na}^+ = -\Delta\text{Ca}^{2+}$  に近い逆相関が認められ, 当該温泉群では Ca—スメクタイトと  $\text{Na}^+$  に富む海水間の陽イオン交換反応も進行したことが示唆される (Fig. 6c).



これらの温泉は Na—スメクタイトに過飽和または飽和である (Fig. 7b).

池田 (1985) による海水と堆積物・岩石の相互作用に関する実験によれば,  $\text{Cl}^-$  濃度が増加するとき, すなわち海水が浸入してくる時は, 粘土層中の  $\text{Ca}^{2+}$  に富むイオン交換体と海水がイオン交換反応を行って,  $\text{Ca}^{2+}$  に富む塩水地下水と  $\text{Na}^+$  に富むイオン交換体が形成される. Ca—スメク

タイトと  $\text{Na}^+$  に富む海水間での陽イオン交換反応は伊豆半島の海岸地域 (甘露寺, 1987) や鶴巻温泉 (石坂ら, 1986; Muramatsu *et al.*, 2011) の  $\text{Ca}-\text{Cl}$  泉で報告されている. この実験結果を踏まえれば, 榛名火山の海水希釈線より  $\text{Na}^+$  に欠損する塩化物泉と大戸強塩泉の深部流体の形成機構は次のようであったと推察される. 降水の浸透により陸成板鼻層上部の火山ガラスが変質し  $\text{Ca}$ -スメクタイトが形成された. その後, 海成板鼻層中~上部に閉じ込められた化石海水 1 が陸成板鼻層上部に移動した後,  $\text{Ca}$ -スメクタイトとイオン交換が行われた結果,  $\text{Na}$ -スメクタイトが形成されるとともに, 降水と化石海水 1 の混合からなる深部流体は  $\text{Ca}^{2+}$  に富むようになった.

### 5) 硬石膏の溶解作用

$\text{SO}_4^{2-}$  濃度の対数と  $\delta^{34}\text{S}$  値間に逆相関が認められた温泉群のなかで, 榛名火山山麓の倉測 2 号泉 (No. 11) は最も  $\text{SO}_4^{2-}$  濃度が大きく  $\delta^{34}\text{S}$  値が低い (Fig. 8). 本温泉の  $\delta^{34}\text{S}$  値 (+17.1‰) は硬石膏 (含石膏) の溶解を起源とする富岡地域の温泉の  $\delta^{34}\text{S}$  値 (+17.8~+18.0‰) に等しい (村松ら, 2010). 本温泉は  $\Delta\text{Ca}^{2+}$  と  $\Delta\text{SO}_4^{2-}$  濃度の比が 1:1 に近く, 硬石膏に不飽和であることから, 硫酸態硫黄は硬石膏を起源にしていると判断される (Figs. 6d, 7c). したがって, 倉測 2 号泉 (No. 11) より硫酸還元反応が進行した 6 地点の温泉 (Nos. 7, 14, 15, 17, 19, 23) の硫酸態硫黄も硬石膏を起源にしていることがわかる.

榛名火山中央地域の  $\text{Ca}-\text{SO}_4$  型湧水 (Nos. 2, 6) と温泉水 (Nos. 3, 5) は  $\text{SO}_4^{2-}$  に富んでおり,  $\Delta\text{SO}_4^{2-}$  濃度はプラス値を示す (Table 1; Fig. 2). これらのうち, 湧水は方解石の溶解による寄与分を差し引いた値 ( $\Delta\text{Ca}^{2+}-\Delta\text{HCO}_3^-$ ), 温泉水は火山性物質の風化とイオン交換反応による寄与分を差し引いた値 ( $\Delta\text{Ca}^{2+}+\Delta\text{Mg}^{2+}+\Theta\text{Na}^+$ ) と  $\Delta\text{SO}_4^{2-}$  濃度の関係を Fig. 6d に示す. 図からわかるように, 両者間には正相関が認められ, これらの温泉水と湧水は硬石膏に不飽和であることから (Fig. 7c), 深部流体の主体である降水が地下へ浸透する過程で硬石膏の溶解を経験したと考えられる. 硬石膏の産出は榛名火山で今日まで報告されていないが, 同じ活火山である九重火山 (清崎ら, 2002), 草津白根山 (曾屋ら, 1983), 箱根火山 (松村・藤本, 2008) では, 火山活動に伴う変質鉱物として硬石膏が火山灰などに産出しており, 榛名火山の地下にも硬石膏が存在していると予想される.

以上からわかるように, 榛名火山中央地域の榛名湖温泉 (No. 3) と伊香保温泉 (No. 5) は  $\text{Cl}^-$  をすべて海水起源と仮定すると,  $\text{Na}^+$  濃度は火山性物質の風化, イオン交換, 硬石膏の溶解によって説明できることから, マグマ起源の  $\text{Na}^+$  と  $\text{Cl}^-$  は両温泉の深部流体の形成に関与した初期流体にほとんど含まれていないであろう.

最後に, 榛名湖温泉 (No. 3) と伊香保温泉 (No. 5) の  $\delta^{34}\text{S}$  値 (+25.8 と +11.1‰) が大きくばらつく原因を検討しよう. 清崎ら (2006) は九重火山にある八丁原地熱帯の地表および地下に分布する酸性変質帯の明礬石 ( $\text{KAl}_3(\text{SO}_4)_2(\text{OH})_6$ ) に大きくばらつく  $\delta^{34}\text{S}$  値を見出し, 次のような異種流体が関与していると推察している. すなわち, 深度 1,238 m (最深) に産する明礬石の  $\delta^{34}\text{S}$  値は重く (+23.7‰), 高温のマグマ性流体を起源とする火山ガスの  $\text{SO}_2$  の不均化反応で発生した  $\text{H}_2\text{SO}_4$  が関与した.



一方, 地下約 100 m 以浅に産する明礬石の  $\delta^{34}\text{S}$  値は軽く (+0.5‰程度), 酸素に富む地表水が硫化水素ガスを酸化してできた硫酸酸性の蒸気加熱水の影響下で生成した. 八丁原地熱帯では明礬石と同じ硫酸塩鉱物である硬石膏の  $\delta^{34}\text{S}$  値も +12.0~+23.7‰と大きなばらつきを示している (清崎ら, 2002). 榛名火山の北西約 35 km にある草津白根火山東麓の酸性泉においても,  $\delta^{34}\text{S}$  値に大きなばらつき (+11.0~+27.5‰) が認められており, その硫酸態硫黄は同様の異種流体を起源にしている (山本ら, 1997).

これらの研究事例に, ①榛名湖温泉 (No. 3) と伊香保温泉 (No. 5) は天水線 ( $\delta\text{D}=8\delta^{18}\text{O}+10$ ) 上



にはほあり, 火山ガスの寄与がほとんど認められない (Fig. 4a) ⑥地表に噴気活動や酸性泉が存在しないことを勘案すると, 両温泉間に認められた  $\delta^{34}\text{S}$  値の大差は, 榛名火山の活動期に次の異種流体から生成した  $\delta^{34}\text{S}$  値の大きく異なる硬石膏を溶解して, 深部流体が形成されたことに起因する: ①火山ガス中の  $\text{SO}_2$  の不均化による  $\delta^{34}\text{S}$  値 (+25.8‰) の重い  $\text{H}_2\text{SO}_4$  が関与した熱水②地下深部から上昇する蒸気中に含まれる  $\delta^{34}\text{S}$  値 (+11.1‰) の軽い硫化水素ガスの空気酸化による浅層  $\text{SO}_4$  型酸性水. したがって, 榛名火山中央地域の地下には  $\delta^{34}\text{S}$  値に大きな変動幅をもつ硬石膏が存在しており,  $\text{Cl}^-$  濃度が高い榛名湖温泉 (No. 3) では山頂に存在する起源①の硬石膏を, また  $\text{Cl}^-$  濃度が低い伊香保温泉 (No. 5) では中腹に存在する起源②の硬石膏を, 深部流体の主な起源である降水が地下に浸透する途中でそれぞれ溶解してきたと推察される. 吾妻1号泉 (No. 13) の  $\delta^{34}\text{S}$  値 (+12.4‰) は伊香保温泉 (No. 5) の値に近く, 硫酸態硫黄の起源は伊香保温泉 (No. 5) と同様であると考えられる. 吾妻1号泉 (No. 13) は榛名火山の山頂付近で地表に露出する吾妻層 (基盤岩) 分布域にあり (Fig. 1), NW—SE 方向の破碎構造を持っていると推定されていることを勘案すると (野村ら, 1990), 深部流体の主な起源である降水が榛名火山中央地域の高標高部で涵養される途中で, 起源②の硬石膏を溶解しながら吾妻層に発達した北西方向の割れ目を介して流動し, 吾妻1号泉 (No. 13) の深部流体になったのであろう.

## 5. ま と め

群馬県の榛名火山に分布する温泉水・湧水を対象に, 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, 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し, 水—鉱物相互作用の化学平衡論により検証した. 得られた結果は以下のとおりである.

1) 温泉水・湧水の温度は 11.4~56.6°C, pH は 5.8~8.9 であり, 水質は Na—Cl 型, Ca—Cl 型, Na— $\text{SO}_4$  型, Ca— $\text{SO}_4$  型, Na— $\text{HCO}_3$  型, Ca— $\text{HCO}_3$  型に属する. このうち, 塩化物泉の深部流体は主に降水と化石海水の混合によって形成されたものであり, そのほとんどは降水に卓越する.

2) 温泉水と湧水の水質は, Na—Cl 型が火山性物質 (曹長石組成) の風化・イオン交換反応・硬石膏の溶解・硫酸還元反応 (一部の温泉), Ca—Cl 型が火山性物質の風化・イオン交換反応・硫酸還元反応 (一部の温泉)・硬石膏の溶解 (一部の温泉), Na— $\text{SO}_4$  型が硬石膏の溶解・火山性物質の風化, Ca— $\text{SO}_4$  型が硬石膏と方解石の溶解, 火山性物質の風化, Na— $\text{HCO}_3$  型が火山性物質の風化, Ca— $\text{HCO}_3$  型が方解石の溶解にそれぞれ規制される. これらの水質形成機構は水—鉱物相互作用に関する化学平衡計算結果, および  $\delta^{18}\text{O}$  と  $\delta\text{D}$  値より導かれた推論と整合する.

3) 榛名火山に賦存する化石海水 1 の  $\delta^{18}\text{O}$  値 (-0.92‰) は現海水より若干低く, 火山性物質のスメクタイト化によってもたらされた. 一方, 富岡地域に賦存する化石海水 2 の  $\delta^{18}\text{O}$  値 (+6.92‰) は現海水より高く, スメクタイトのイライト化によってもたらされており, 両地域間の  $\delta^{18}\text{O}$  値の大差は埋没深度に依存する続成作用 (再結晶作用) の進行度に起因する.

4) 榛名湖・伊香保地区の  $\text{SO}_4^{2-}$  に富む温泉水と湧水に含まれる硫酸態硫黄は硬石膏を起源にしている. 両地区の温泉水の  $\delta^{34}\text{S}$  値 (+25.8, +11.1‰) は大きくばらついており, 榛名火山の活動期に, 山頂の地下では火山ガス中の  $\text{SO}_2$  の不均化による  $\text{H}_2\text{SO}_4$  が関与した流体から沈殿した  $\delta^{34}\text{S}$  値の重い硬石膏, 中腹の地下では浅層  $\text{SO}_4$  型酸性水から沈殿した  $\delta^{34}\text{S}$  値の軽い硬石膏を, 深部流体の主な起源である降水が地下に浸透する途中でそれぞれ溶解してきたと推察される.

## 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, 匿名の 2

名の査読者および編集委員会委員長井上源喜先生には、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。

### 引用文献

- 群馬県 (1999) : 群馬県 10 万分の 1 地質図解説書. 群馬県地質図作成委員会. 114 p. 内外地図株式会社.
- 飯島静男 (1988) : 伊香保温泉の温泉地質. 学術調査研究調査報告, 15-20, 群馬県温泉協会, 前橋.
- 飯塚義之 (1996) : 子持火山の地質と活動年代. 岩鉱, **91**, 73-85.
- 池田喜代治 (1985) : 海岸平野における塩水化地下水の水・堆積物相互作用と化学組成. 陸水学雑誌, **46**, 303-314.
- 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, 鵜田洋行, 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.
- 入船徹男 (1995) : マントルと核の物性. 地学団体研究会編, 「新版地学教育講座 5 巻 地球内部の構造と運動」, 75-96, 東海大学出版会, 神奈川.
- 石坂信之, 粟屋 徹, 平野富雄 (1986) : 鶴巻温泉の化学成分の経年変化. 神奈川県温泉地学研究所報告, **17**, 115-126.
- 甘露寺泰雄 (1987) : 伊豆半島の海岸地域に分布する塩化物泉の化学組成と海水—岩石相互作用に関する研究. 温泉工学会誌, **21**, 70-80.
- 菊川城司, 小田原 啓, 板寺一洋 (2007) : 坑底温度からみた神奈川県の地温勾配. 神奈川県温泉地学研究所報告, **39**, 79-84.
- 北岡豪一 (1996) : 伊香保温泉におけるトリチウム解析. 学術調査研究調査報告, 群馬県温泉協会, 2-41.
- 清崎淳子, 田中佳奈, 及川和彦, 田口幸洋, 千葉 仁, 常川耕治, 長濱順浩 (2002) : 八丁原地熱帯の熱水変質鉱物の硫黄同位体比について. 2002 年度日本地熱学会年次大会講演要旨, B09.
- 清崎淳子, 田中佳奈, 田口幸洋, 千葉 仁, 武内浩一, 本村慶信 (2006) : 八丁原地熱帯のハイパージン酸性変質帯—明礬石変質からの解明—. 日本地熱学会誌, **28**, 287-297.
- 木崎喜雄 (1965) : 群馬県南部の第三紀凝灰岩の続成作用による変質. 群馬大紀要 自然科学編, **13**, 153-203.
- 久保誠二 (1995) : 伊香保温泉地質図・説明書. 学術調査研究調査報告, 13-29, 群馬県温泉協会, 前橋.
- 久保誠二, 榛東温泉地質調査研究会 (2003) : 榛東温泉ボーリング柱状図・説明書. 学術調査研究調査報告, 温泉地質図 (榛東温泉), 1-10 (含付図), 群馬県温泉協会, 前橋.
- 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.
- 松葉谷 治 (1981) : 水素および酸素からみた温泉水の起源. 温泉科学, **31**, 47-56.
- 松葉谷 治 (1989) : 同位体比からみた群馬県の温泉. 温泉科学, **39**, 23-28.
- 松葉谷 治, 酒井幸子, 越中 浩 (1985) : 群馬県の温泉水の水素および酸素同位体比. 温泉科学, **36**, 1-11.
- Matsuhisa, Y. and Matsumoto, R. (1985) : Oxygen isotope ratios of interstitial waters from the Nankai trough and the Japan trench, Leg 87. In Kagami, H., Karig, D.E. Coulbourn, W. C., *et*

*al.*, *Init. Repts. DSDP*, **87**, 853-856.

- 松村昌紀, 藤本光一郎 (2008): 箱根火山カルデラ内基盤岩の熱水変質. 東京学芸大学紀要, 自然科学系, **60**, 111-119.
- 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.
- 村松容一, 大平 孟, 片山秀雄, 千葉 仁, 早稲田 周 (2013): 足尾山地, 赤城火山, 利根川中流低地帯における温泉の水質および安定同位体比とその地質鉱物学的解釈. 温泉科学, **63**, 118-140.
- 長沼 毅 (2003): 地下生物圏の自然史. 資源地質学会編「資源環境地質学—地球史と環境汚染を読む—」, 239-246, 資源地質学会, 東京.
- 永田 俊, 宮島利宏 (2008): 流域環境評価と安定同位体—水循環から生態系まで—. 207-230, 京都大学学術出版社, 京都.
- 野村 哲, 小坂共栄 (1987): 群馬県南西部の新第三系の地質構造発達史. 群大教養部紀要, **21**, 51-68.
- 野村 哲, 秋間団体グループ (1981): 関東平野北西縁の地質. 地質学論集, **20**, 161-167.
- 野村 哲, 小林 豊, 渡辺将哲, 海老原 充 (1990): 群馬県榛名火山の基盤. 群大教養部紀要, **24**, 79-92.
- Oki, Y. and Hirano, T. (1970): Geothermal system of Hakone Volcano. *Geothermics*, Special Issue 2, 1157-1166.
- 大島 治 (1986): 榛名火山. 日本の地質 3, 関東地方. 日本の地質編集委員会. pp. 222-224, 共立出版, 東京.
- 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.
- 酒井 均, 大木靖衛 (1978): 日本の温泉. 科学, **48**, 41-52.
- 酒井幸子 (1989): 群馬県の温泉の化学成分. 温泉科学, **39**, 48-56.
- 酒井幸子 (2008): 群馬県南部から西部域にある大深度掘削泉の成分比較. 群馬県温泉協会, 42 p.
- 酒井幸子, 木暮 敬 (1988): 伊香保温泉の化学成分. 学術調査研究調査報告, 群馬県温泉協会, 3-12.
- 酒井幸子, 松葉谷 治 (1989): 群馬県大戸の Ca・Na-Cl 型塩水について. 地球化学, **23**, 45-52.
- 柴崎達雄, 水取支研究グループ (1976): 地下水盆の管理. 32-46, 東海大出版会, 秦野.
- 新エネルギー・産業技術総合開発機構 (1989): 地質貯留層評価手法マニュアル. 171 p.
- 曾屋龍典, 宇都浩三, 下谷昌幸 (1983): 草津白根火山 1982年10月26日の水蒸気爆発. 地質ニュース, **341**, 7-16.
- 高橋雅紀 (2008): 富岡地域. 日本地質学会編「日本地方地質誌 3 関東地方」, 135-143. 朝倉書店, 東京.
- 山本雅弘, 小池孝治, 榊井文人, 塩田敦士, 釣田英利, 大塚晃弘, 野上健治, 小坂丈予 (1997): 草津白根山東麓の温泉の同位体地球化学. 温泉科学, **47**, 68-75.