

原 著

有馬型熱水と水質のよく似た同位体的性質の異なる高塩分温泉—兵庫県の吉川温泉の例

大沢信二^{1)*}, 網田和宏²⁾, 大上和敏³⁾, 酒井拓哉⁴⁾, 三島壮智¹⁾

(平成 26 年 12 月 15 日受付, 平成 27 年 1 月 22 日受理)

Hypersaline Hot-spring Water with Similar Hydrochemical Facies but Different Isotopic Characteristics from Arima-type Thermal Water—Yokawa Hot Spring, Hyogo Prefecture, Japan

Shinji OHSAWA^{1)*}, Kazuhiro AMITA²⁾, Kazutoshi OUE³⁾, Takuya SAKAI⁴⁾
and Taketoshi MISHIMA¹⁾

Abstract

Saline hot spring water and its associated gases were sampled from some hot springs in Arima and surrounding areas in southwestern Hyogo Prefecture. Results show the discharge of hypersaline hot spring water with similar hydrochemical facies but different isotopic characteristics from Arima-type thermal water (e.g., δD - $\delta^{18}O$ of water, He isotopic composition) at Yokawa Hot Spring. Deep-seated saline water beneath Yokawa Hot Spring has many similarities to diagenetic fluid under plain areas in the sedimentary basin, but the water has different HCO_3 concentrations and major components of associated gases. Its hydrochemical facies has become Na-Cl · HCO_3 type. Elucidating the origin of carbonate components of the Yokawa Hot Spring water is expected to be important to ascertain why differences exist in hydrochemical facies and gas composition. For the Yokawa Hot Spring water, estimates of the origin of CO_2 and He in associated gases using isotope data suggest

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. *Corresponding author : E-mail ohsawa@bep.vgs.kyoto-u.ac.jp, TEL : 0977-22-0713, FAX : 0977-22-0965.

²⁾ 秋田大学大学院工学資源学研究科附属理工学研究センター 〒010-8502 秋田市手形学園町 1-1. ²⁾ Research Center for Engineering Science, Graduate School of Engineering and Resource Science, Akita University, 1-1 Tegata-Gakuen-machi, Akita-shi, Akita 010-8502, Japan.

³⁾ 大分大学教育福祉科学部 〒870-1192 大分県大分市大字旦野原 700 番地. ³⁾ Faculty of Education and Welfare Science, Oita University, 700 Danoharu, Oita-shi, Oita 870-1192, Japan.

⁴⁾ 日鉄鉱業株式会社資源開発部地熱開発課 〒100-8377 東京都千代田区丸の内二丁目 3 番 2 号 (郵船ビル 6F). ⁴⁾ Geothermal Development Section, Resources Development Dept., Nittetsu Mining Co., Ltd., Yusen Building 6F, 3-2 Marunouchi 2-Chome, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8377, Japan.

that the source of these gas components is not deeper than the crust.

Key words : Yokawa Hot Spring, Hypersaline, Arima-type thermal water, Hydrochemical facies, Isotopic nature

要 旨

兵庫県 の南西部に位置する有馬温泉およびその周辺地域のいくつかの温泉（泉源）から採取してきた比較的塩分濃度の高い温泉水、ならびに、付随する遊離ガスの化学・同位体分析を行ったところ、有馬型熱水と水質のよく似た同位体的性質（水の δD - $\delta^{18}O$, He 同位体組成など）の異なる高塩分の温泉水（鉱泉水）が吉川温泉に流出していることを認めた。吉川温泉の地下深部流体は、平野の地下に賦存されると考えられている統成流体と似ている点が多いが、付随ガスの主成分が CO_2 であること、温泉水の HCO_3^- 濃度が高いために $Na-Cl \cdot HCO_3^-$ 型の水質となっていることが異なる。吉川温泉の炭酸成分の成因の理解が、水質・ガス組成に見かけの違いが生じる理由を知る上で重要であるが、同位体を用いた吉川温泉の付随ガスの CO_2 や He の起源の推定結果は、少なくとも、これら温泉のガス成分の供給源が地殻より深いところにはないことを示唆している。

キーワード：吉川温泉、高塩分、有馬型熱水、水質、同位体的性質

1. はじめに

近年、プレートの沈み込みにともなう深部流体の生成と温泉との関連に関する研究が盛んになっている（例えば、大沢ほか, 2010; 風早ほか, 2014; 網田ほか, 2014; Kusuda *et al.*, 2014）。一方で、プレートの沈み込みによって生成すると考えられる深部流体（「プレート脱水流体」, 「スラブ脱水流体」, 「沈み込む海洋プレート由来の変成脱水流体」など研究者により呼び方が異なるが、基本的には同じものを指す。）は、岩石学や地震学といった地球科学の多くの分野で共通の興味深い研究対象となっている。また、沈み込み帯に産する各種地質試料に包蔵される微小な流体である「流体包有物」の研究からプレート脱水流体の実態を探る研究も行われており（例えば、Nishimura *et al.*, 2008; Yoshida *et al.*, 2011）、マントル捕獲岩中の流体包有物の研究からは、プレート脱水流体は CO_2 に富んだ $Na-Cl$ 組成の高塩分水流体であり（Kawamoto *et al.*, 2013; Kumagai *et al.*, 2014）、有馬温泉の高塩分温泉水の主要化学組成（この論文では特に断わらないかぎり、以後簡便に「水質」と呼ぶことにする）との類似性から、有馬温泉の起源流体をプレート脱水流体に関係づけようとする解説も世に出はじめている（例えば、川本, 2013）。

私たちは、中央構造線沿いの高塩分温泉とプレート脱水流体の関連性を追求してきたが（網田ほか, 2005; 網田ほか, 2014）、有馬温泉および周辺地域で高塩分温泉の調査をする機会を得て水質と同位体のデータを入手したところ、有馬温泉の高塩分温泉水と水質がよく似た同位体的性質の異なる高塩分温泉水を見出した。これは、 CO_2 に富んだ $Na-Cl$ 組成の高塩分温泉水であってもプレート脱水流体とは無関係であるものが存在することを示唆し、地質学的研究から見た地下深部流体と温泉とを水質（主要化学組成）の類似性だけによって結びつけることに警鐘を鳴らす情報（データ）である可能性がある。本論文では、そのデータを提示し、既存データとの比較検討やデータの地球化学的解析の結果にもとづいた議論によって、その可能性が高いことを報告する。

2. 研究の方法

2011年9月9日、Fig. 1 に表した兵庫県の南西部に位置する有馬温泉およびその周辺地域において、比較的塩分濃度の高い温泉水・鉱泉水を求めて有馬温泉、吉川温泉、宝塚温泉、東条温泉を現

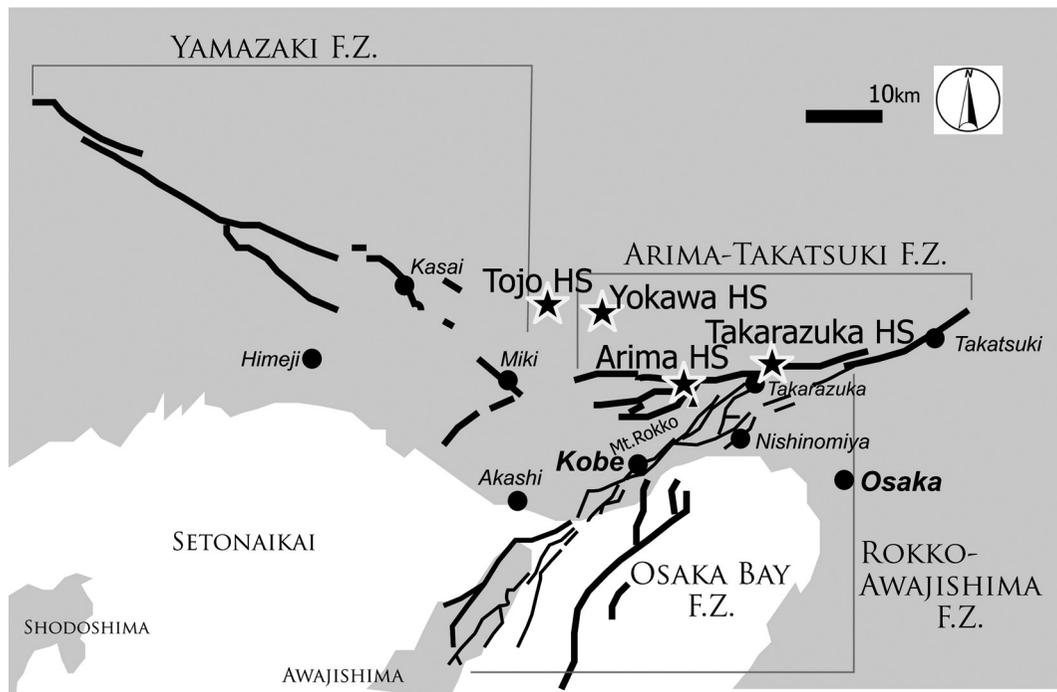


Fig. 1 Map showing locations of the researched hot springs in this study (Yokawa, Arima, Takarazuka and Tojo). F.Z. is a shortened form of Fault Zone.

地調査し、化学・同位体分析用の温泉水試料を採取した。温泉水の水素・酸素同位体比 (δD と $\delta^{18}O$) 分析用には、保存中に水の蒸発が起こらないように、ガラスバイアルに採取・保存した。溶解全炭酸 ($DIC = CO_{2(aq)} + HCO_3^- + CO_3^{2-}$: Dissolved Inorganic Carbon) の化学・同位体分析用の試料水は、容器壁からの CO_2 逃散を回避するために、ガスバリア性に優れたニッコー製テクノボトル (BAREX[®]) に採取し、冷蔵庫内に保管した。その他の成分の分析用には一括して汎用的なポリ瓶に採取し、分析まで冷蔵庫内に保存した。また、有馬温泉では、揚湯用の塩化ビニル管の内壁に析出・付着した温泉沈殿物を得る機会があったので、実験室に持ち帰り、リガク製デスクトップ X 線回折装置 Miniflex を用いて、含まれる鉱物種の同定を行った。実験室に持ち帰った温泉水試料は、イオンクロマトグラフによって Na, K, Mg, Ca, Cl, SO_4 を分析した。また、全溶解炭酸 (DIC) 濃度を、試料水を硫酸酸性にして水中の炭酸成分 ($CO_{2(aq)}$, HCO_3^- , CO_3^{2-}) をすべて $CO_{2(aq)}$ に変換し、イオンメーターに接続した二酸化炭素電極を用いて絶対検量線法により測定した。 HCO_3^- 濃度は、この DIC 濃度の測定値と水温、pH の値を用いて化学平衡の計算から求めた。水の水素・酸素の同位体比 (δD と $\delta^{18}O$) の測定は、安定同位体質量分析計 Geo 20-20 model を使い、それぞれ金属亜鉛を用いた還元法、二酸化炭素平衡法により行った。測定精度は δD , $\delta^{18}O$ のそれぞれについて $\pm 1.0\%$, $\pm 0.1\%$ である。DIC の炭素安定同位体比 ($\delta^{13}C$) は、プラスチック製ディスポシリンジ内で $Sr(OH)_2$ 溶液 (溶液内に共存する不純 $SrCO_3$ をメンブレンフィルターで除いた後のもの) を試料水に加え、加温して沈殿した $SrCO_3$ をろ別し風乾した後、これに濃リン酸を滴下して発生する CO_2 を上記と同じタイプの安定同位体質量分析計に導入し測定した。測定精度は $\pm 0.2\%$ である。

吉川温泉では温泉水とともに噴出するガス (温泉付随遊離ガス) を採取した。温泉付随遊離ガス

は、湧出口で温泉水とともに噴出する泡状のガスを、次の2通りの方法で採取した。【1】多数の泡となって温泉水とともに湧出するガスを、ロートを使ってコック付きのビニール袋に集めた後、現地で直ちにアルカリ溶液 (5M KOH) を含むガス採取容器 (大型ガラス浣腸器) に移した。容積の大半を CO₂ が占める場合は、この操作を繰り返すことによってアルカリ溶液に吸収されない残留ガス (以下、R ガス) の容積を十分に確保して実験室に持ち帰ることができる。【2】同じく気泡状のガスを、ロートを用いて両端にストップコックの付いたパイレックスガラス製採気ビンに採取した。ガス試料の1から、二酸化炭素 (CO₂)、窒素 (N₂)、アルゴン (Ar)、ヘリウム (He)、水素 (H₂)、メタン (CH₄) および酸素 (O₂) の化学組成データを得た。CO₂ はアルカリ吸収液から CO₂ 電極法によって分析した。N₂, Ar, He, H₂, CH₄ は酸素ガスをキャリアーガスとしたガスクロマトグラフで分析し、O₂ はそれらの分析値、R ガスの容積、実験室内の気温・気圧データを用いて気体の状態方程式から計算によって求めた。また、CO₂ の炭素安定同位体組成 ($\delta^{13}\text{C}$) を求めるため、アルカリ吸収液中の全炭酸の $\delta^{13}\text{C}$ を前述の安定同位体質量分析計 Geo 20-20 model を用いて測定した。測定精度は $\pm 0.2\%$ である。ガス試料の2については、磁場型質量分析計 modified-VG5400 (MS-III) により、希ガス同位体比 (³He/⁴He 比と ⁴He/²⁰Ne 比) の測定を行った。測定精度は ³He/⁴He 比、⁴He/²⁰Ne 比のそれぞれについて 1%、10% である。

3. 結果と議論

3-1. 温泉水

採取温泉水の化学および同位体分析データを、水温、pH の現地測定データおよび温泉井の掘削深度とともに Table 1 の上段に示し、以下で水質 (化学分析データ)、水の同位体組成の順に議論を行う。なお、主要成分の分析結果は、電荷バランスが 5% 以下であり、分析データの信頼性は十分である。

3-1-1. 水質

吉川温泉、宝塚温泉、東条温泉、有馬温泉の温泉水の溶存化学成分のうち陽イオン、陰イオンそれぞれで卓越するものは、比較的低塩分の東条温泉を除外するといずれも Na と Cl で、いわゆる食塩型水質を示し (後述するように天水性地下水の混入率の高い東条温泉の陽イオンは Ca が Na と同じくらい含まれ、Na, Ca-Cl 型水質となっている。), この大雑把に見た水質は化学分析データをパイパーダイアグラム上にプロットすることで明瞭に表現される (Fig. 2)。しかしながら、陰イオンについては詳しく見ると、HCO₃⁻ を無視できないほどに含む温泉水のあることが見て取れ、吉川温泉と宝塚温泉の HCO₃⁻/Cl 比 (重量比) はそれぞれ 0.64, 0.38 であり、大分平野や和歌山県の中央構造線沿いで見いだされたスラブ脱水流体 (沈み込む海洋プレート由来の変成脱水流体) を起源にすると推定された高塩分温泉水 (網田ほか, 2014) と同様な Na-Cl・HCO₃⁻ 型水質である。

有馬温泉の高温泉は、温泉水とともに多量のガスが噴出している。ある高温泉では 1L の揚湯につき 2~3L の CO₂ を噴出させており、高温泉は炭酸泉より高濃度の CO₂ を地下において溶存させているという考えがある (鶴巻, 1993)。本研究で調査した有馬温泉の源泉は、その考えが当てはまるケースで、水の沸騰に伴う CO₂ の脱ガスのために温泉水は低い HCO₃⁻/Cl 比 (0.003) をもつに至ったと考えられ、揚湯用の塩化ビニル管の内壁に多量に析出・付着している温泉沈殿物が CaCO₃ (アラゴナイト) から成るという測定結果 (Fig. 3 の A) はその脱ガスの証拠 (産物) であると考ええる。なお、アラゴナイトの石灰華は多くの場合、高温の温泉水が急速に噴出したときに生成しているとされ (一国, 1980)、噴出の実状と合っている。本源泉のように有馬温泉の高塩分温泉水が地表へ湧出する (汲み出される) 前に地下で経た物理・化学現象を図としてまとめたのが Fig. 3 の

Table 1 Chemical and isotopic data of sampled hot spring waters with information on depth of well and water temperature [A] and those of sampled gases associated with water at Yokawa Hot Spring (HS) [B]. YKT : Yokatan, KMP : Kanponoyado, TKY : Takaranoyu, TDR : Todorokiso

[A] Water				
Name of Hot Spring area	Yokawa	Arima	Takarazuka	Tojo
ID of reserached hot spring	YKT	KMP	TKY	TDR
Sampling date	2011/9/9	2011/9/9	2011/9/9	2011/9/9
Depth of well (m)	1500	300	800	600
AT(°C)	31.6	25.7	33.1	30.6
WT(°C)	35.9	98.7	35.8	29.5
pH	7.00	6.69	6.74	7.82
Na ⁺ (mg/L)	14800	17000	7610	2330
K ⁺ (mg/L)	400	2630	443	18.3
Mg ²⁺ (mg/L)	212	23.7	141	0.9
Ca ²⁺ (mg/L)	263	2590	755	1810
Σ Fe (mg/L)	2.7	43.6	16.4	0.02
Cl ⁻ (mg/L)	17000	36000	11100	6330
SO ₄ ²⁻ (mg/L)	19.8	1.0	0.2	0.1
HCO ₃ ⁻ (mg/L)	10800	110	4200	26.9
DIC (mg/L)	8270	128	3460	9.4
δD(‰) of H ₂ O	-4.4	-36.0	-41.9	-48.9
δ ¹⁸ O(‰) of H ₂ O	1.99	3.82	-2.33	-6.88
δ ¹³ C(‰) of DIC	-1.71	-19.29	-2.18	not analyzed

[B] Gas	
Name of Hot Spring area	Yokawa
ID of reserached hot spring	YKT
Sampling date	2011/9/9
CO ₂ (%)	99.8
Total gas excluding CO ₂ (%)	0.16
CH ₄ (%)	56.9
N ₂ (%)	42.0
Ar(%)	0.55
He (%)	0.038
H ₂ (%)	0.007
O ₂ (%)	0.56
³ He/ ⁴ He	0.00000106
⁴ He/ ²⁰ Ne	34
δ ¹³ C(‰) of CO ₂	-7.44

Bであるが、この図の最下部に示したように、高塩分温泉水の起源流体（有馬型熱水）の水質はNa-Cl・HCO₃型であるとするのが妥当である。前出のように、Na-Cl・HCO₃型の水質はスラブ脱水流体（沈み込む海洋プレート由来の変成脱水流体）を起源にすると考えられる温泉水が示す水質であるが、有馬温泉の起源流体をスラブ脱水流体であるとする研究（例えば、Kusuda *et al.*, 2014）とも整合的であり、好都合である。

3-1-2. 水の同位体組成

温泉水の水の同位体組成（δD-δ¹⁸O）を、現海水、凡地球的天水線（global meteoric water line : δD=8×δ¹⁸O+10）、変成岩と平衡にある流体（metamorphic fluid）が示す同位体比の範囲（例えば、佐々木, 1977）および有馬地域の地下水の既存データ（Masuda *et al.*, 1985）とともに Fig. 4 の上段図に示す。東条温泉、宝塚温泉のデータポイントは、有馬温泉と地下水を結ぶ混合関係を示す直線上にプロットされており、それら温泉の地下深部起源流体を有馬型熱水に求めることができる。

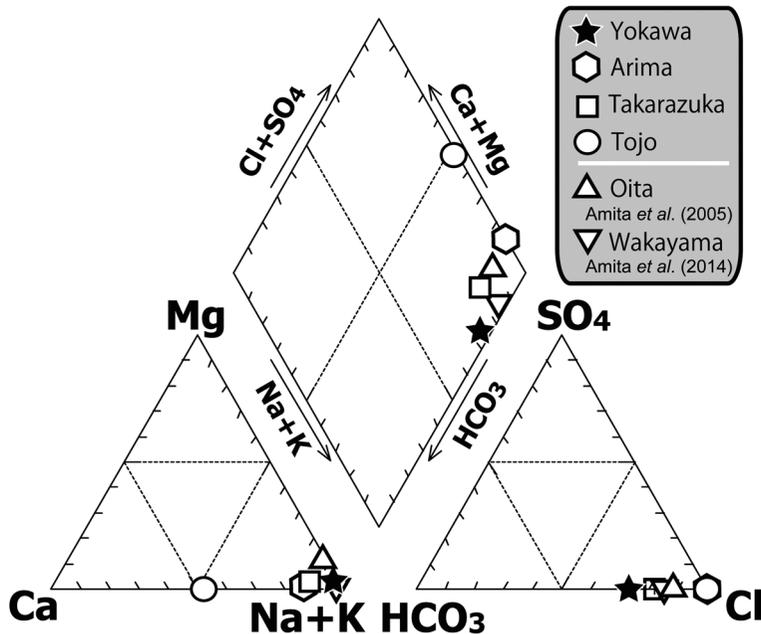


Fig. 2 Piper diagram of waters from Yokawa and Arima Hot Springs (this study) and those from hot springs in Oita and Wakayama areas, whose geochemical characteristics are similar to Arima-type thermal water and which are inferred to be derived from dehydrated fluid of subducting oceanic plate (Amita *et al.*, 2005 ; Amita *et al.*, 2014).

さらに、この混合関係は Cl- δ D 関係図上にも表れており (Fig. 4 の下段図)、その解釈の妥当性を示している。

それと対照的に、吉川温泉は現海水に近いところにデータポイントがあり、上記の有馬型熱水と地下水の混合関係上にはなく、宮崎平野で認識された続成脱水流体的な温泉水の特徴 (大沢ほか, 2010) を有している。ところが、宮崎平野の温泉水は、「高塩分のは Na-Cl 型で、Na-Cl · HCO₃ 型のは塩分が低い」という性質をもち、吉川温泉の温泉水は高塩分かつ Na-Cl · HCO₃ 型という、先述の中央構造線沿いで見いだされたスラブ脱水流体起源の高塩分温泉水と同じ化学的特徴をもつ。3-1-1 での議論から、有馬温泉の地下深部起源流体の水質は Na-Cl · HCO₃ 型であるとするのが妥当であるから、吉川温泉は「有馬型熱水と水質がよく似た同位体的性質の異なる高塩分温泉水」と言えるわけである。同様な関係は温泉付随ガスにも見られたので、以下に続けて示す。

3-2. 温泉付随遊離ガス

吉川温泉の付随遊離ガス試料のガス組成分析と成分の同位体測定の結果を、Table 1 の下段に示す。以下では、ガス組成、He 同位体組成、CO₂ の炭素同位体比の順に分析・解析の結果を示しながら議論を行う。

3-2-1. ガス組成

ガス組成データを見ると、付随遊離ガスのほとんどが CO₂ からなり (99.8%)、残りの部分の大半は CH₄ (CO₂ を除く部分 ; 0.16% の 56.9%) と N₂ (同様に 42.0%) で占められるが、He や Ar といっ

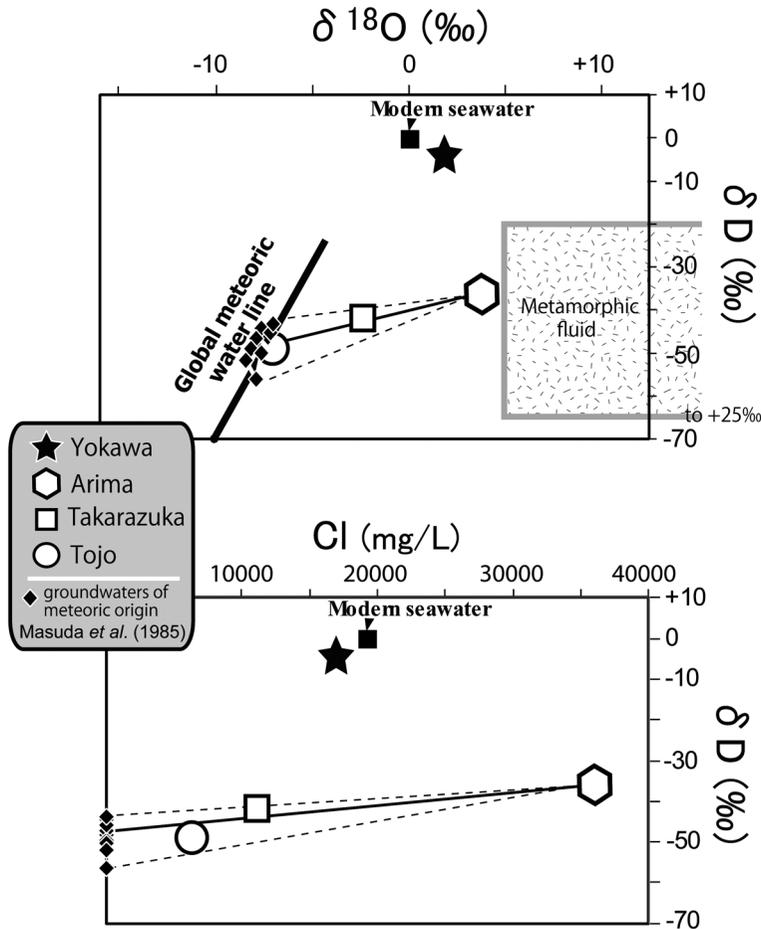


Fig. 4 Plots of δD vs. $\delta^{18}O$ [A] and δD vs. Cl concentration [B] of collected water samples with global meteoric water line, the range of metamorphic fluid (e.g., Sasaki, 1977) and modern seawater. Data of groundwaters are cited from Masuda *et al.* (1993).

温泉の付随ガスの He は、有馬温泉や宝塚温泉のそれに比べてマンテル成分に乏しいことが視覚的にも明らかで、Shimizu *et al.* (2005) に準じ、吉川温泉の起源ヘリウム（マンテル起源、地殻起源、大気起源の3成分）の混合割合を推定すると、マンテル起源 He の寄与はわずか9%にとどまること（地殻起源 He は90%；大気起源 He は1%）が示される。比較対象とした有馬温泉と宝塚温泉の付随ガスの He の起源は、有馬がマンテル起源82%、地殻起源17%、大気1%、宝塚がマンテル起源77%、地殻起源22%、大気1%と計算され、吉川温泉との違いが際立つ結果となっている。

3-2-3. CO₂の炭素同位体比

温泉の炭酸成分の起源を探る場合、その炭素安定同位体 ($\delta^{13}C$) は有用な情報源であるが、起源炭素のひとつであるマンテル CO₂ の $\delta^{13}C$ 値 (-10‰~-4‰) と同じ値を同じく起源炭素である海成炭酸塩起源の CO₂ ($\delta^{13}C$ = 約 0‰) と堆積性有機物起源の CO₂ ($\delta^{13}C$ = 約 -25‰) の混合で作り出せ、 $\delta^{13}C$ だけでは両者を区別できないという欠点がある（例えば、酒井ほか, 2011）。その不都合を解消する方法として ³He を併用した方法が Sano and Marty (1995) によって提案され、これま

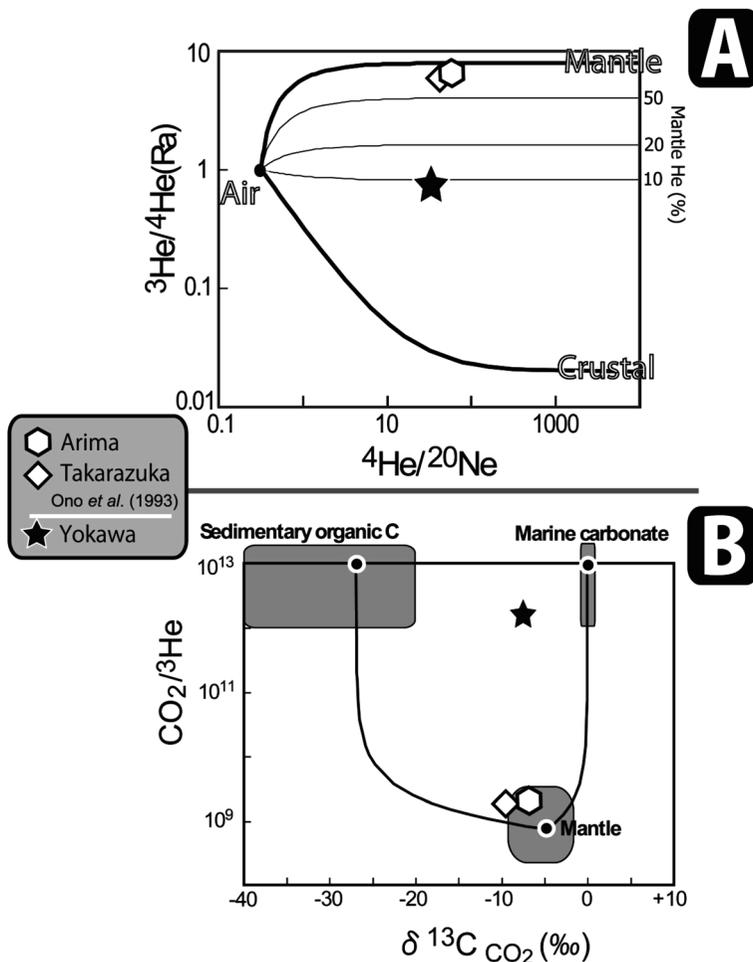


Fig. 5 $^3\text{He}/^4\text{He}$ vs. $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ plot for bubble gas associated by water of Yokawa Hot Spring with those of Arima and Takarazuka Hot Springs cited from existing data in Ono *et al.* (1993). [B] Correlation between $\text{CO}_2/^3\text{He}$ and $\delta^{13}\text{C}$ of CO_2 for bubble gas of the Yokawa Hot Spring water with those of the Arima and the Takarazuka Hot Spring waters (data cited from Ono *et al.*, 1993).

でに私たちが頻繁に使ってきた (例えば, Ohsawa *et al.*, 2011; 網田ほか, 2014). ここでも, その解析法を利用する.

吉川温泉のデータを解析図である $\delta^{13}\text{C}_{\text{CO}_2}$ - $\text{CO}_2/^3\text{He}$ 比図上 (Sano and Marty, 1995) に, 有馬温泉および宝塚温泉の既存データ (Ono *et al.*, 1993) とともにプロットしたのが, Fig. 5 の下段の図である. 吉川温泉の付随 CO_2 のデータポイントは, 有馬温泉や宝塚温泉のそれと全く異なる位置にプロットされ, マントル成分に乏しいことが見て取れる. どの程度に乏しいかをみるために, 質量および同位体の保存則から CO_2 の各起源炭素の構成比率を算出してみたところ (例えば, 酒井ほか, 2011), 吉川温泉の付随 CO_2 の起源炭素の構成比率は, 海成炭酸塩が 72%, 堆積性有機物は 28% となり, マントル CO_2 はわずかに 0.0004% にすぎないことが示される. 比較のために, 有馬温泉と宝塚温泉についても計算してみると, 有馬について, 海成炭酸塩 45%, 堆積性有機物 19%,

マントル CO₂ 36%, 宝塚は海成炭酸塩 31%, 堆積性有機物 27%, マントル CO₂ 42% となり, He と同様に (3-2-2 を参照), 吉川温泉との違いを際立たせる.

4. おわりに

本研究で, 有馬型熱水と水質 (Na-Cl・HCO₃ 型) がよく似た同位体的性質 (水の δD-δ¹⁸O, He 同位体組成など) の異なる高塩分温泉が吉川温泉に流出していることをデータの提示によって示すことができた. 吉川温泉の地下深部流体は, 宮崎平野の地下に賦存されると考えられている続成流体 (大沢ほか, 2010; 網田ほか, 2014) と似ている点が多いが, 水質とガス組成に生じた見かけ上の違いから有馬型熱水起源の温泉に分類されるように見える.

吉川温泉は, 付随ガスの主成分が CO₂ であること, 温泉水の HCO₃ 濃度が高く水質が Na-Cl・HCO₃ 型となっていることが宮崎平野の続成流体起源の温泉と異なった点であると整理でき, 吉川温泉の炭酸成分の成因の理解が, 水質・ガス組成に見かけの違いが生じる理由を知る上で重要であると考えますが, 同位体を用いた付随ガスの CO₂ や He の起源の推定結果は, これら温泉ガス成分の供給源が地殻より深いところにはないことを示唆している. 今後, 吉川温泉と同様な化学的・同位体的性質の温泉を探し出し, 今回のデータも加えて詳細な地球化学的検討を加え, 有馬型熱水と水質がよく似た同位体的性質の異なる高塩分温泉と有馬温泉に代表されるプレート脱水流体由来であるとされる温泉を区別する地球化学的指標を明確に示すことで, 適切な温泉水試料の取得を可能とし, 有馬型熱水の成因の理解の深化に貢献したいと考える.

謝 辞

現地調査と試料採取は, 源泉所有者の方々のご理解によって円滑に行うことができた. 水素, 酸素, 炭素の安定同位体測定はニュージーランド地質核科学研究所の安定同位体研究室 (Stable Isotope Laboratory, GNS Science Limited) からの協力を, 付随ガスの希ガス同位体測定に際しては九電産業株式会社環境部からの支援をいただいた. また, 原稿の改善に際して, 2名の匿名査読者から有益なご意見・ご助言をいただいた. ここに記して感謝申し上げる.

引用文献

網田和宏, 大沢信二, 西村光史, 山田 誠, 三島壮智, 風早康平, 森川徳敏, 平島崇男 (2014): 中央構造線沿いに湧出する高塩分泉の起源—プレート脱水流体起源の可能性についての水文化学的検討—. 日本水文科学会誌, **44**, 17-38.

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.

一国雅巳 (1980): 石灰華と温泉水の間の微量成分の分配. 温泉科学, **30**, 168-175.

Kawamoto, T., Yoshikawa, M., Kumagai, Y., Mirabueno, M.H.T., Okuno, M., Kobayashi, T. (2013): Mantle wedge infiltrated with saline fluids from dehydration and decarbonation of subducting slab. Proceedings of the National Academy of Sciences, **110** (24), 9663-9668.

川本竜彦 (2013): 海と火山をつなぐマントルウェッジ流体. 科学, **83** (12), 1366-1372; http://www.kyoto-u.ac.jp/static/en/news_data/h/h1/news6/2013/130528_1.htm (2013年5月28日掲載)

風早康平, 高橋正明, 安原正也, 西尾嘉朗, 稲村明彦, 森川徳敏, 佐藤 努, 高橋 浩, 北岡豪一, 大沢信二, 尾山洋一, 大和田道子, 塚本 齊, 堀口桂香, 戸崎裕貴, 切田 司 (2014): 西南

- 日本におけるスラブ起源深部流体の分布と特徴. 日本水文科学会誌, **44**, 3-16.
- Kumagai, Y., Kawamoto, T., Yamamoto, J. (2014) : Evolution of carbon dioxide-bearing saline fluids in the mantle wedge beneath the Northeast Japan arc. *Contrib. Mineral. Petrol.*, **168**, 1056, doi:10.1007/s00419-0140105609.
- Kusuda, C., Iwamori, H., Nakamura, H., Kazahaya, K., and Morikawa, N. (2014) : Arima hot spring waters as a deep-seated brine from subducting slab. *Earth, Planets and Space*, **66**, 119 ; <http://www.earth-planets-space.com/content/66/1/119>
- Masuda, H., Sakai, H., Chiba, H., Tsurumaki, M. (1985) : Geochemical characteristics of Na-Ca-Cl-HCO₃ type waters in Arima and its vicinity in the western Kinki district, Japan. *Geochemical J.*, **19**, 149-162.
- Nishimura, K., Amita, K., Ohsawa, S., Kobayashi, T., Takao Hirajima, T. (2008) : Chemical characteristics and trapping P-T conditions of fluid inclusions in quartz veins from the Sanbagawa metamorphic belt, SW Japan. *J. Mineralogical and Petrological Sciences*, **103**, 94-99.
- Ohsawa, S., Sakai, T., Yamada, M., Mishima, T., Yoshikawa, S., Kagiya, T. (2011) : Dissolved inorganic carbon rich in mantle component of hot spring waters from the Hitoyoshi basin in a non-volcanic region of Central Kyushu, Japan. *J. Hot Spring Sciences*, **60**, 410-417.
- 大沢信二, 網田和宏, 山田 誠, 三島壮智・風早康平 (2010) : 宮崎平野の大深度温泉井から流出する温泉水の地化学特性と成因—温泉起源流体としての続成脱水流体—, *温泉科学*, **59**, 295-319.
- Ono, A., Sano, Y., Wakita, H., Giggenbach, W.F. (1993) : Carbon isotopes of methane and carbon dioxide in hydrothermal gases of Japan. *Geochemical J.*, **27**, 287-295.
- 酒井拓哉, 大沢信二, 山田 誠, 三島壮智, 吉川 慎, 鍵山恒臣, 大上和敏 (2011) : 九州中央部の非火山地域に湧出する温泉の炭酸成分の起源. *温泉科学*, **60**, 418-433.
- Sano, Y. and Marty, B. (1995) : Origin of carbon in fumarolic gas from island arcs. *Chem. Geol.*, **119**, 265-274.
- Shimizu, A., Sumino, H., Nagao, K., Notsu, K. and Mitropoulos, P. (2005) : Variation in noble gas isotopic composition of gas samples from the Aegean arc, Greece. *J. Volcanol. Geotherm. Res.*, **140**, 321-339.
- 佐々木昭 (1977) : 安定同位体と鉱床. 立見辰夫編, 「現代鉱床学の基礎」, 東京大学出版会, 東京, 77-95.
- 鶴巻道二 (1993) : 有馬温泉 温泉今昔物語その 15. *地熱エネルギー*, **62**, 146-158.
- Yoshida, K., Sengen, Y., Tsuchiya, S., Minagawa, K., Kobayashi, T., Mishima, T., Ohsawa, S., Hirajima, T. (2011) : Fluid inclusions with high Li/B ratio in a quartz vein from the Besshi area of the Sambagawa metamorphic belt : implications for deep geofluid evolution. *J. Mineralogical and Petrological Sciences*, **106**, 164-168.