



原 著

山梨県増富温泉の水質形成機構

村松容一^{1)*}, 谷口無我²⁾

(令和2年7月14日受付, 令和2年8月31日受理)

Formation Mechanism of the Masutomi hot spring waters, Yamanashi Prefecture, Japan

Yoichi MURAMATSU^{1)*} and Muga YAGUCHI²⁾

Abstract

The chemical and stable isotopic ($\delta^{18}\text{O}$, δD , $\delta^{34}\text{S}$) compositional data analyzed presently and reported previously for the Masutomi, Akeno and Izumi hot spring waters, Yamanashi prefecture, Japan, were used to constrain the formation mechanism of the waters. The Masutomi and Akeno hot spring waters belong to Na—Cl type, and the Izumi hot spring water Na— HCO_3 type. The Akeno and Izumi hot spring waters, and the Masutomi hot spring water were formed by mixing of fossil sea water and Na— HCO_3 type meteoric water, and mixing of fossil sea water and Na · K— HCO_3 type meteoric water, respectively. The fossil sea water was formed as pore water by sulphate reduction process, calcite cementation, reaction of volcanic material to form Mg-smectite, and smectite-illite transition for the Masutomi hot spring in the marine muddy sediment as an original material of the Cretaceous Kobotoke Group on an oceanic plate. The Na— HCO_3 type and Na · K— HCO_3 type meteoric waters were formed by reaction of volcanic material to form Na-smectite, and reaction of albite and K-feldspar to form Na- and K-smectites in local meteoric water origins, respectively.

The Izumi hot spring water was mainly occurred by formation mechanism of the Na— HCO_3 type meteoric water infiltrated into the underground from the Yatsugatake volcano. In the Akeno hot spring, the Na— HCO_3 type meteoric water from the Kayagatake volcano mixed with the fossil sea water in the reservoir such as sandstone of the Kobotoke Group or fault. In the Masutomi hot spring, the Na · K— HCO_3 type meteoric water from high levels of the Shosenkyo granite mass was altered the quality by sulphide mineral oxidations, albite and K-feldspar neutralizations, and ion exchange, then mixed with the fossil sea water in the

¹⁾東京理科大学名誉教授 〒278-8510 千葉県野田市山崎 2641. ¹⁾Professor Emeritus, Tokyo University of Science, 2641 Yamazaki, Noda, Chiba 278-8510, Japan. *Corresponding author : E-mail muramatu@rs.noda.tus.ac.jp, TEL & FAX 047-347-0621.

²⁾気象庁気象研究所火山研究部 〒305-0032 茨城県つくば市長峰 1-1. ²⁾Department of Volcanology Research, Meteorological Research Institute, Japan Meteorological Agency, 1-1 Nagamine, Tsukuba, Ibaraki 305-0052, Japan.

fractured boundary zone between the granite mass and the Kobotoke Group.

Key words : Masutomi hot springs, Pore water, Marine muddy sediment, fossil sea water, Na · K—HCO₃ type meteoric water, Fluid formation mechanism

要 旨

山梨県増富温泉とその周辺の明野・泉温泉を対象に、主要化学成分および安定同位体比を分析し、公表分析値も加えて水質形成機構を検討した。増富・明野温泉はNa—Cl型、泉温泉はNa—HCO₃型に属し、明野・泉温泉は化石海水とNa—HCO₃型降水起源水、増富温泉は化石海水とNa·K—HCO₃型降水起源水がそれぞれ混合したものである。このうち、化石海水は白亜紀に海洋プレート上における埋没過程で有機物を含む海底泥質堆積物（小仏層群泥岩・頁岩の起源物質）に閉じ込められた間隙水が硫酸還元反応と方解石の生成、火山性物質のMg-スメクタイト化、スメクタイトのイライト化（増富温泉）を受けたものであり、この間隙水（化石海水）を含む堆積物がアジア大陸東縁に付加された。また、Na—HCO₃型降水起源水は火山性物質（曹長石組成）のNa-スメクタイト化を、Na·K—HCO₃型降水起源水は曹長石のNa-スメクタイト化とカリ長石のK-スメクタイト化を地下に涵養された降水がそれぞれ受けて形成された。

泉温泉は八ヶ岳の降水に由来するNa—HCO₃型降水起源水に化石海水が僅かに混入したものである。明野温泉では、上述した間隙水（化石海水）が貯留層（小仏層群砂岩または断層）に移動した後、茅ヶ岳の降水に由来するNa—HCO₃型降水起源水により著しく希釈されて深部流体は形成された。増富温泉では、間隙水（化石海水）は中新世中期の昇仙峡型黒雲母花崗岩の貫入に伴って発達した境界部の破碎帯に移動した。また、花崗岩の高標高域から地下に浸透した降水に由来するNa·K—HCO₃型降水起源水は硫化鉱物（主に黄鉄鉱）の酸化作用と曹長石・カリ長石の溶解による中和作用を受けながら破碎帯に移動した。そして、両者が破碎帯で混合するとともにイオン交換反応を受けて深部流体は形成された。

キーワード：増富温泉、間隙水、海底泥質堆積物、化石海水、Na·K—HCO₃型降水起源水、水質形成機構

1. はじめに

山梨県北部の増富温泉は日本の中新世花崗岩体のなかで最大規模を有する甲府花崗岩体の西縁に位置する。本温泉はCO₂を多量に伴って湧出し、地表には赤褐色の石灰華（CaCO₃）が温泉沈殿物として多量に析出しており、この沈殿物の特徴、化学組成、流下に伴う組成変化、温泉水と沈殿物の関係、各源泉と沈殿物に含まれるゲルマニウム濃度等の研究が多数報告されている（伏見・秋山, 1955; 秋山, 1960; 金井, 1989; 相川, 1995; 佐々木ら, 2009）。また、地表に広く分布するバイオマットに高濃度に存在する砒素の分布や挙動、微生物による砒素の生体鉱物化作用の研究も報告されている（永井ら, 2001）。一方、増富温泉の化学成分に関しては、我が国で最高のラドン濃度をもつ放射能泉として世界的にも有名な温泉であることから、ウラン・ラドン・ラジウム等の研究が多数報告されている（Kuroda, 1944; 杉原, 1972; Kanai, 1988; 望月ら, 2016）。また、主要化学成分の特徴、温泉の成因と起源は矢板ら（1991）、相川（1995）、佐々木ら（2009）等によって報告されており、矢板ら（1991）は高濃度（5000 mg/L）の塩化物イオンが海水起源であることを推察している。しかしながら、このような化学成分を取り扱った研究は少なく、主要化学成分および安定同位体組成を用いた地質鉱物学的視点による増富温泉の水質形成機構はこれまでほとんど報告されていない。

本研究では、増富温泉および周辺の明野・泉温泉を対象に、温泉水を採取して主要化学成分および酸素・水素・硫黄安定同位体分析を実施するとともに、公表分析値も加えて水質形成機構を検討

したので、ここに報告する。なお、本論では地表で採取された温泉水を温泉水 (Hot spring water), 地下に賦存する本源的な温泉水を深部流体 (Deep fluid) とそれぞれ呼称する。

2. 地質概要

増富温泉および周辺地域には白亜紀の四万十帯 (小仏層群, 小河内層群) と新第三紀中新世中期の甲府花崗岩体が分布し, 四万十層群と甲府花崗岩体の一部は中新世後期以降の火山岩類に不整合に覆われる (Fig. 1a; 尾崎ら, 2002). 増富温泉の西側に分布する小仏層群は四国四万十帯のタービダイト帯とメランジュ帯に相当する付加堆積物, その北側に分布する小河内層群は海洋プレート

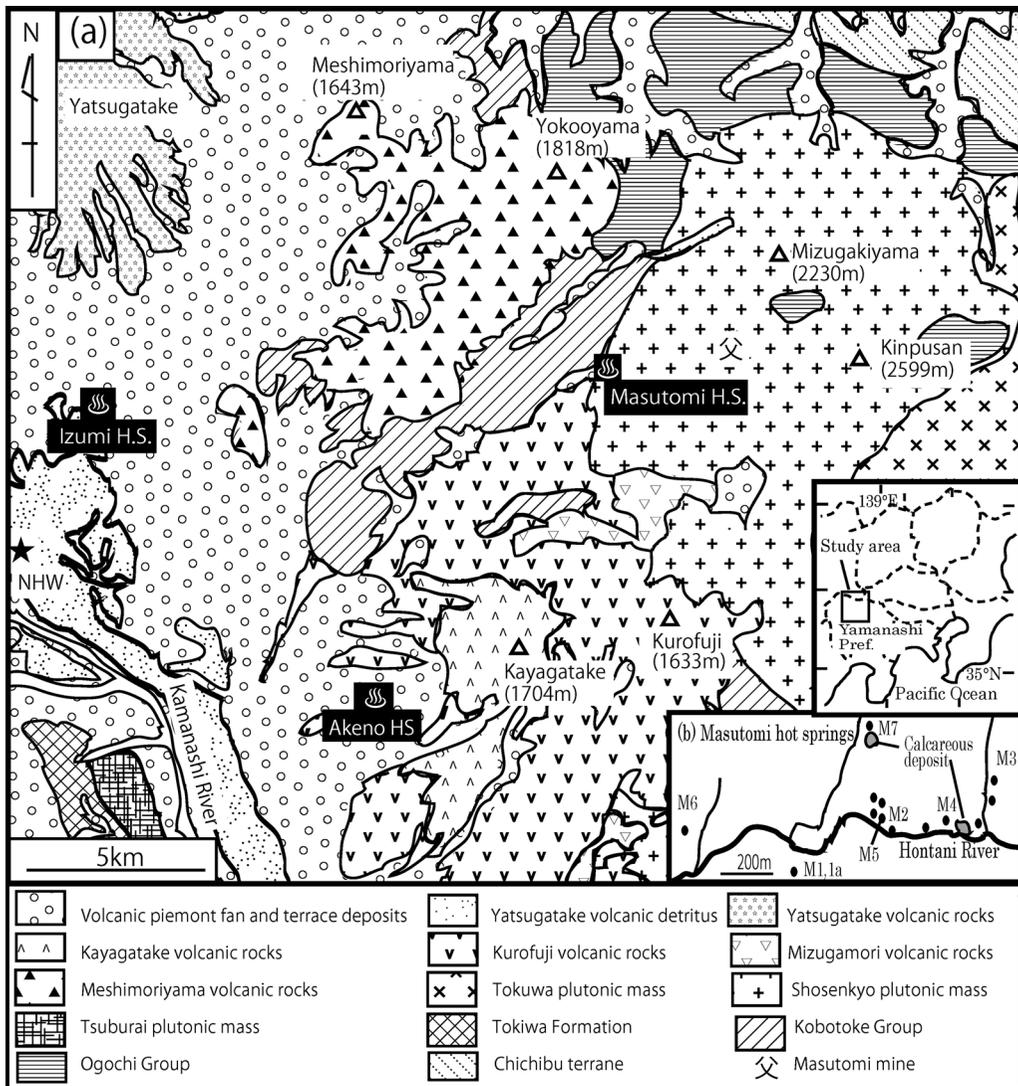


Fig. 1 Geological map and location of the hot springs in the Masutomi hot spring field (After Ozaki *et al.*, 2002). The sampling point numbers in Fig. 1b are after Sasaki *et al.* (2009). See in the text for the NHW.

収東域の海溝堆積物と考えられる(鎌田ら, 1991). 増富温泉周辺には甲府花崗岩体のなかで最も古い昇仙峡型黒雲母花崗岩(14~11 Ma; 角田ら, 1992)が分布し, 東側には徳和型花崗閃緑岩(10~9 Ma; 松本ら, 2007)が昇仙峡岩体と四万十層群に貫入する(尾崎ら, 2002).

増富温泉は塩川の支流本谷川周辺にあり, 昇仙峡型黒雲母花崗岩と小仏層群(砂岩, 砂岩泥岩互層), 黒富士火山岩類の境界付近に位置する(Fig. 1). 昇仙峡型黒雲母花崗岩は石英, カリ長石, 斜長石, 黒雲母等で構成され, とくに石英とカリ長石でモード組成70%に達し, 水晶やカリ長石を伴う晶洞も発達する(清水・角田, 1987; 角田・清水, 1988). 増富温泉の東北東方には昇仙峡型黒雲母花崗岩の貫入に伴って形成された含金銅鉱脈鉱床型の増富鉱山が分布する(清水・角田, 1987). 本鉱山は花崗岩体の基盤目状節理を充填するレンズ状鉱体からなり, 銅-石英脈からは主として銅藍(CuS), 黄銅鉱(CuFeS₂), 硫砒銅鉱(Cu₃AsS₄), 黄鉄鉱(FeS₂), 重晶石(BaSO₄)などを産出し, 鉱山一帯の花崗岩は著しく変質し, 黄鉄鉱・絹雲母が生成している(清水・角田, 1987; 葉師・円城寺, 2004). 不老閣(Fig. 1bのM5)で掘削された試錐井(孔底深度60m)の地下地質は, 深度0~8mの砂礫層の下位に, 深度9mまで風化花崗岩(斜長石はカリ長石に比して僅少), 深度16mまで砂岩, 深度46mまで花崗岩が分布する(伏見・秋山, 1955). 増富温泉は花崗岩の割れ目, および花崗岩と凝灰角礫岩(黒富士火山岩類; 三村, 1967)の境界付近よりCO₂を伴って湧出する(杉原, 1972; 相川, 1995).

明野温泉は茅ヶ岳(1,704m)の西南西方, 増富温泉の南西方にあたる北杜市明野町に位置し, 地表地質は中~後期更新世の火山麓扇状地堆積物からなる(尾崎ら, 2002). 本研究対象の明野温泉井(AK)の地下地質は, 段丘堆積物(黒沢礫層), 茅ヶ岳火山岩類(前期~中期更新世安山岩溶岩・火砕流堆積物; 三村, 1988)の下位に, 黒富士火山岩類(前期更新世デイサイト火砕流堆積物; 三村, 1967)が深度640mまで, それ以深は基盤岩の小仏層群(砂岩, 頁岩)からなり, 深度765mまで砂岩・頁岩互層, 深度1,015mまで砂岩(頁岩を含む), 孔底深度1,500mまで頁岩が分布する(小坂, 2008). 泉温泉は八ヶ岳(玄武岩・安山岩溶岩)の南麓, 北杜市大泉町に位置し, 地表地質は火山麓扇状地堆積物からなる(尾崎ら, 2002). 本温泉の南西方約5kmの釜無川流域沿いにおける2本の深層掘削井(Fig. 1aのNHW)の地下地質は, 深度300mおよび360mまで古八ヶ岳火山岩類(火山岩屑), それ以深は孔底深度1,050mおよび1,260mまで基盤岩の小仏層群(砂岩・頁岩互層)が分布する(滝沢, 1994).

3. 研究方法

増富温泉(増富の湯), 明野温泉, 泉温泉で温泉水を採取し, 主要化学成分および酸素・水素安定同位体比($\delta^{18}\text{O}$, δD)を, 増富の湯では硫黄安定同位体比($\delta^{34}\text{S}$)も分析した. 現地で水温とpHをカスニーACT pHメータ(堀場製作所製D-24)で測定した後に採水し, 次の方法で分析した. HCO_3^- は容量法によって総アルカリ度として算出し, HCO_3^- 濃度に換算した. その際, アルカリ度はpH4.8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(HACH製AL-DT). Na^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} , Cl^- , SO_4^{2-} はイオンクロマトグラフ(島津製作所製LC-VP)を用いた. K^+ , Fe , Li は原子吸光度計(島津製作所製AA-6200), Al^{3+} は簡易吸光度計(エリオクロムシアンR(ECR)とアルミニウムイオンの呈色反応を利用した比色法; HACH製DR-2800), B は簡易吸光度計(カルミン法; HACH製DR-2800), SiO_2 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. $\delta^{18}\text{O}$ と δD 値は元素分析計に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は1050°Cに加熱したクロム炉で水を熱分解して H_2 ガスに, 酸素は1,260°Cに加熱したガラス

質炭素炉で CO ガスにそれぞれ変換し、質量分析計に導入した。また、 $\delta^{34}\text{S}$ 値は BaSO_4 として沈殿させた後に電気炉で二酸化硫黄に変換し、質量分析計 (GV Instruments 製 Iso Prime—EA) で測定した。

$$\delta(\%) = [R_x/R_s - 1] \times 1000 \quad (1)$$

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。 $^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$ 比と D/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、 $\delta^{18}\text{O}$, δD , $\delta^{34}\text{S}$ 値の測定精度はそれぞれ ± 0.2 , ± 2.0 , $\pm 0.3\%$ 程度である。

本研究では、増富温泉の公表分析値 (佐々木ら, 2009) を加えて検討した。

4. 結果および考察

4.1 温泉水の主要化学成分および安定同位体組成

増富温泉 (M1), 明野温泉 (AK), 泉温泉 (IZ) の主要化学成分と安定同位体比, および佐々木ら (2009) による増富温泉 (M1a, 2~7) の主要化学成分の分析結果を Table 1 に, 増富温泉 (M1~7) の源泉の位置を Fig. 1b にそれぞれ示す。増富温泉では, 増富の湯 (M1, 1a) が掘削井 (孔底深度 300 m) であるのを除けば, 他の源泉 (M2~7) は自然湧出する。明野温泉 (AK) と泉温泉 (IZ) は掘削井 (同 1,500 m と 1,300 m) で動力揚湯している。Table 1 からわかるように, 増富の湯 (M1a) の多くの成分の濃度は同じ源泉 (M1) よりかなり低く, これは湯量調整中に採水したために浅層地下水が混入して希釈されたためと推定されている (佐々木ら, 2009)。増富の湯 (M1) の $\delta^{34}\text{S}$ 値は +14.2‰ を示し, 現海水よりやや軽い。

トリリニアダイアグラムによれば, 増富・明野温泉 (M1~7, AK) の水型は Na-Cl 型, 泉温泉 (IZ) は Na— HCO_3 型に属し, いずれも化石海水と降水起源水の混合からなる (Fig. 2)。増富温泉では, 増富の湯 (M1, 1a) が HCO_3^- に富む傾向にあるのを除けば, 他の源泉 (M2~7) の水質は非常によく似ている。Na-Cl 型温泉のなかで, 明野温泉の K^+/Cl^- 濃度比 (0.02) は海水の値にほぼ等しいのに対して, 増富温泉 (0.09~0.11) は大きく, K^+ にかなり富んでいる (Table 1)。

4.2 水質形成機構

上述したように, 温泉水は化石海水と降水起源水の混合からなるので, 化学成分の起源を検討するにあたっては, 海水の当該成分に対する過剰・欠損量を求める必要がある。試料の Cl^- は海水起源であることから, 次式より試料の過剰・欠損する M 成分の濃度を算出した。

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

ここで, $\Delta[M]$: 試料の過剰・欠損する M 成分量, $[M]$: 試料の M 成分の濃度, $[M/\text{Cl}]_{\text{sea}}$: 海水の Cl^- に対する M 成分の濃度, $[\text{Cl}]$: 試料の Cl^- 濃度。また, 試料の海水混合比は次式より算出した。

$$f_{\text{sea}} = \frac{[\text{Cl}]_{\text{sample}} - [\text{Cl}]_{\text{rain}}}{[\text{Cl}]_{\text{sea}} - [\text{Cl}]_{\text{rain}}} \quad (3)$$

ここで, f_{sea} は試料の海水混合比, $[\text{Cl}]_{\text{sample}}$, $[\text{Cl}]_{\text{rain}}$, $[\text{Cl}]_{\text{sea}}$ はそれぞれ試料, 降水, 海水の Cl^- 濃度。

以下には, 泉温泉, 明野温泉, 増富温泉の順に水質形成機構を検討する。

4.2.1 泉温泉

Na— HCO_3 型に属する泉温泉 (IZ) の水温は 48.5°C, pH は 7.1, 海水混合比は 0.044 を示す。 $\delta^{18}\text{O}$ と δD 値の関係をみると, 泉温泉 (IZ) は天水線 ($\delta\text{D} = 8\delta^{18}\text{O} + 10$) 付近にプロットされ (Fig. 3a), ΔNa^+ (+48.8 meq/L) は ΔHCO_3^- (+54.3 meq/L) に近い (Fig. 4)。これらの結果に基づけば, 八ヶ岳の高標高地域から地下に浸透した降水が玄武岩・安山岩溶岩を構成する火山性物質 (曹長石組成)

Table 1 Chemical composition of the hot spring waters from the Masutomi hot spring field.

No.	Source	Depth (m)	Type	WT (°C)	pH	Na ⁺ (mg/L)	Li ⁺ (mg/L)	K ⁺ (mg/L)	Ca ²⁺ (mg/L)	Mg ²⁺ (mg/L)	Al ³⁺ (mg/L)	ΣFe (mg/L)	Cl ⁻ (mg/L)	SO ₄ ²⁻ (mg/L)	HCO ₃ ⁻ (mg/L)	Br (mg/L)	B (mg/L)	SiO ₂ (mg/L)	free CO ₂ (mg/L)	δ ¹⁸ O (‰)	δD (‰)	δ ³⁴ S (‰)	fsea
M1	Masutominoyu ^{*1}	300	NaCl	25.5	6.4	1870	5.5	232	263	38.0	0.008	15	2480	278	2290	-	30.0	61.7	-	-8.90	-74.5	+14.2	0.125
M1a	Masutominoyu ^{*2}	300	NaCl	20.5	6.3	1111	3.4	167	145	20.0	0.750	26	1464	184	917	3.0	-	50	800	-	-	-	0.074
M2	Kusenakaku ^{*2}	0	NaCl	29.0	6.2	2800	10	411	305	23.0	1.100	8.0	3846	588	1613	7.8	-	102	1180	-	-	-	0.194
M3	Kinsento ^{*2}	0	NaCl	30.0	6.0	2368	8.5	328	276	19.0	0.620	8.2	3248	561	1268	6.5	-	116	1336	-	-	-	0.164
M4	Tsuganero ^{*2}	0	NaCl	20.5	6.7	3117	11	444	332	23.0	1.200	6.4	4368	662	1656	8.8	-	116	1262	-	-	-	0.221
M5	Furokaku ^{*2}	0	NaCl	25.7	6.4	2824	10	414	307	23.0	1.000	6.8	3916	599	1619	7.9	-	82	1082	-	-	-	0.198
M6	Koseiryō ^{*2}	0	NaCl	37.9	6.7	3207	12	447	360	41.0	1.800	1.8	4467	580	1994	9.5	-	112	1020	-	-	-	0.226
M7	Nyuzawa ^{*2}	0	NaCl	23.7	6.0	2490	8.9	317	287	20.0	1.200	6.3	3516	513	1354	7.0	-	123	1572	-	-	-	0.178
AK	Akeno ^{*1}	1500	NaCl	37.6	8.1	565	0.9	10.5	37.5	5.30	0.007	<0.1	596	7.00	647	-	<0.2	24	-	-11.1	-79.3	-	0.030
IZ	Izumi ^{*1}	1300	NaHCO ₃	48.5	7.1	1610	5.6	49.9	42.3	14.3	0.009	0.3	878	<0.1	3320	-	15.0	30	-	-11.3	-84.1	-	0.044
	Sea water ^{*3}					11000	0.2	391	410	1390	-	-	19800	2690	150	67.5	4.5	-	-	0.00 ^{*4}	0.00 ^{*4}	+20.3 ^{*5}	1.000

WT, Water temperature. ^{*1}Data from Yaguchi (2015), ^{*2}Data from Sasaki *et al.* (2009), ^{*3}Data from Imahashi *et al.* (1996), ^{*4}V-SMOW, ^{*5}Data from Sakai and Matsuhisa (1996).

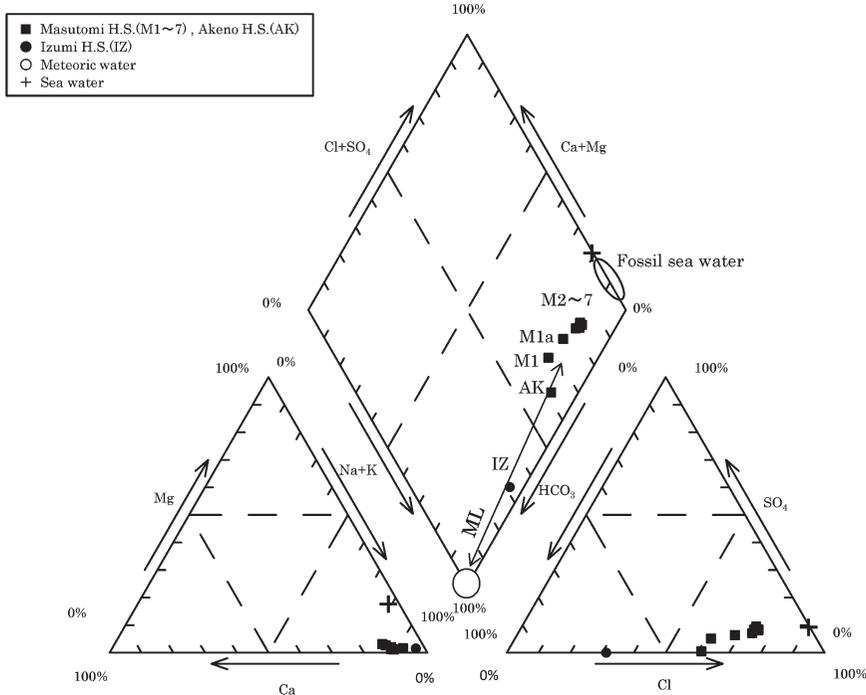


Fig. 2 Trilinear diagram for the Masutomi hot spring waters. The ML shows the fossil sea water—meteoric water mixing line. The location numbers are the same as in Table 1.

のNa-スメクタイト化(次式)を受けて形成されたNa-HCO₃型降水起源水を主としており、海底泥質堆積物(小仏層群頁岩の起源物質)に閉じ込められた間隙水起源の化石海水を少量混入する。



4.2.2 明野温泉

Na—Cl型に属する明野温泉(AK)の水温は37.6℃、pHは8.1、海水混合比は0.030を示し、全Feは検出限界値(0.1mg/L)以下である(Table 1)。δ¹⁸OとδD値の関係をみると、明野温泉(AK)も天水線(δD=8δ¹⁸O+10)付近にプロットされる(Fig. 3a)。明野温泉井(孔底深度1,500m)は深度640m以深に分布する海成の小仏層群を温泉貯留層にしており、化石海水は小仏層群頁岩をもたらし海成泥質堆積物に閉じ込められた間隙水が続成作用により変化したものである。

明野温泉のSO₄²⁻/Cl⁻当量比(0.01)は現海水(0.10)より低く(ΔSO₄²⁻=-1.5meq/L)、硫酸還元反応が進行している。



この硫酸還元菌の活動期に、(5)式で生成した間隙水のHCO₃⁻はCa²⁺と反応して方解石の生成に消費される(平, 2004)。



このように、間隙水(海水)は硫酸還元反応および方解石の生成を受けているので、硫酸還元反応および方解石生成後の過剰Ca²⁺量をΦCa²⁺(ΦCa²⁺=ΔCa²⁺-ΔSO₄²⁻)とおくと、明野温泉のΦCa²⁺とΔMg²⁺はほぼ直線ΦCa²⁺=-ΔMg²⁺上にあることがわかる(Fig. 5a)。

以上の結果にΔNa⁺とΔHCO₃⁻がほぼ等しいこと(Fig. 4)を勘案すると、明野温泉の水質形成機構は次のようにまとめられる。白亜紀に海洋プレートにおける埋没過程で、有機物を含む海底泥

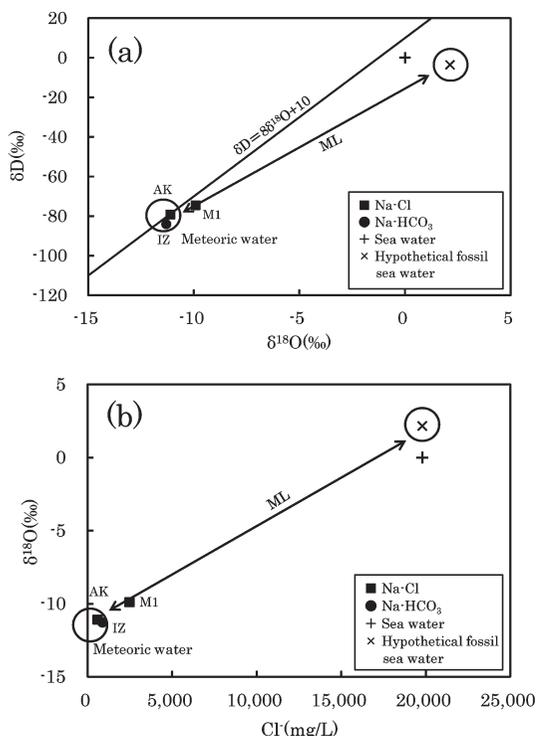


Fig. 3 $\delta^{18}\text{O}$ — δD (a) and Cl^- — $\delta^{18}\text{O}$ (b) diagrams for the hot spring waters from the Masutomi hot spring field. The ML shows the hypothetical fossil sea water—meteoric water mixing line. The location numbers are the same as in Table 1.

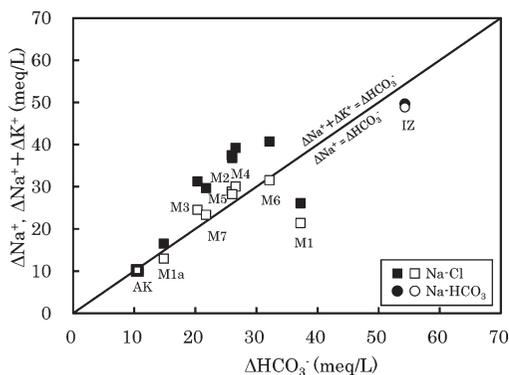


Fig. 4 $\Delta\text{Na}^+ - \Delta\text{HCO}_3^-$ and $(\Delta\text{Na}^+ + \Delta\text{K}^+) - \text{HCO}_3^-$ diagrams for the hot spring waters from the Masutomi hot spring field. The data for $\Delta\text{Na}^+ - \Delta\text{HCO}_3^-$ and $(\Delta\text{Na}^+ + \Delta\text{K}^+) - \text{HCO}_3^-$ diagrams are shown by Open and solid symbols, respectively. The location numbers are the same as in Table 1.

質堆積物（小仏層群頁岩の起源物質）に閉じ込められた間隙水は硫酸還元反応と方解石の生成、火山性物質のMg-スメクタイト化を受けた。その後、海底泥質堆積物がアジア大陸東縁に付加されると、間隙水（化石海水）は貯留層（小仏層群砂岩または断層）に移動した。更新世になって茅ヶ岳火山が誕生すると、高標高地域から地下に浸透した降水は安山岩溶岩・火砕流堆積物を構成する火山性物質のNa-スメクタイト化を受けてNa-HCO₃型降水起源水に変化した後、貯留層で間隙水起源の化石海水と混合した。

4.2.3 増富温泉

前述したように、増富温泉（Na—Cl型）も化石海水と降水起源水の両端成分の混合からなり、海水混合比は0.074~0.226を示す（Fig. 2, Table 1）。増富温泉は昇仙峡型黒雲母花崗岩と小仏層群の境界付近にあり、明野温泉と同様に、化石海水は小仏層群泥岩をもたらした海成泥質堆積物に閉じ込められた間隙水を起源にしている。以下に、水の起源の違いから、(1) 海底泥質堆積物に閉じ込められた間隙水の進化 (2) 降水起源水の進化に分けて検討する。

(1) 海底泥質堆積物に閉じ込められた間隙水の進化

Na—Cl型に属する増富温泉（M1~7）の泉温は20.5~37.9℃、Cl⁻濃度は1,464~4,467 mg/L含まれる。当該温泉水のΦCa²⁺とΔMg²⁺は逆相関を示し（Fig. 5a）、有機物を含む海底泥質堆積物に閉じ込められた間隙水は埋没過程で硫酸還元反応と方解石生成に加えて、火山性物質のMg-スメクタイト化を受けている。

$\delta^{18}\text{O}$ と δD 値の関係をみると、増富の湯（M1）は天水線（ $\delta\text{D} = 8\delta^{18}\text{O} + 10$ ）上の降水起源水と仮想化石海水（ $\delta^{18}\text{O} = +2.15\text{‰}$, $\delta\text{D} = -3.6\text{‰}$ ）を結ぶ直線ML上にプロットされる（Fig. 3a）。また、 $\delta^{18}\text{O}$ 値とCl⁻濃度の関係をみると、増富の湯（M1）は現海水のCl⁻濃度における $\delta^{18}\text{O}$ 値がプラスを示す仮想化石海水（Cl⁻ = 19800 mg/L, $\delta^{18}\text{O} = +2.15\text{‰}$ ）と降水起源水の混合線ML上にプロットされる

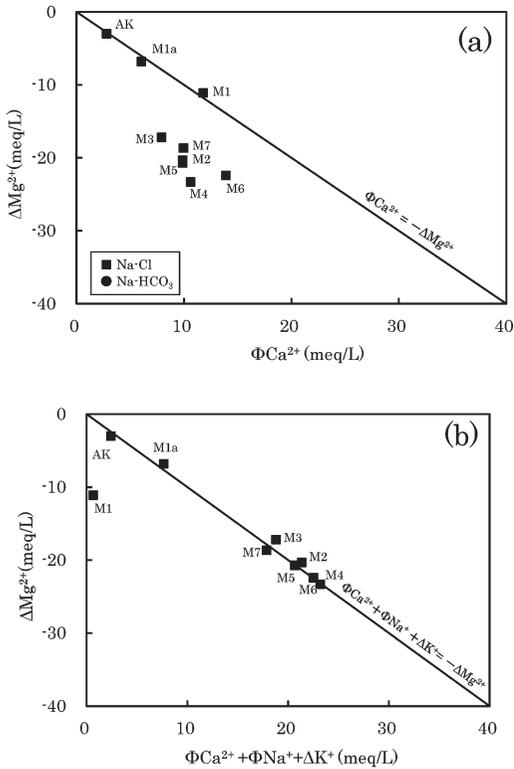


Fig. 5 $\Phi\text{Ca}^{2+} - \Delta\text{Mg}^{2+}$ (a) and $(\Phi\text{Ca}^{2+} + \Phi\text{Na}^{+} + \Delta\text{K}^{+}) - \Delta\text{Mg}^{2+}$ (b) diagrams for the hot spring waters from the Masutomi hot spring field. The location numbers are the same as in Table 1.

(Fig. 3b). このような仮想化石海水の $\delta^{18}\text{O}$ 値が現海水より高い特徴は関東平野中央部や北部の塩化物泉等で認められており、スメクタイトがイライト化する際に ^{18}O に富む層間水が脱水反応を起こしたことに起因する (村松ら, 2016a, b). スメクタイトの層間に $\text{B}(\text{OH})_3$ として存在する B はイライトへ変換する時に層間水とともに放出され、関東平野中央部ではスメクタイトのイライト化の影響を受けた塩化物泉の B/Cl モル比は約 0.002 以上を示すことが報告されている (村松ら, 2016a). 今回検討した増富温泉の源泉のなかで、B 濃度は増富の湯 (M1) で分析しているだけであるため、相川 (1995) による公表値を加えた B と Cl^- 濃度の関係を Fig. 6 に示す. 図からわかるように、増富温泉の B/Cl モル比は 0.040~0.098 の範囲にあり、スメクタイトのイライト化を支持する.

以上の結果によれば、有機物を含む海底泥質堆積物 (小仏層群泥岩の起源物質) に閉じ込められた間隙水は埋没過程で、硫酸還元反応と方解石生成、火山性物質の Mg-スメクタイト化、スメクタイトのイライト化を受けた. その後、間隙水 (化石海水) を含む海底泥質堆積物はアジア大陸東縁に付加された. そして、昇仙峡型黒雲母花崗岩の貫入によって破砕が進んだ接触部に間隙水 (化石海水) は移動した後、次に述べる変質した $\text{Na} \cdot \text{K} - \text{HCO}_3$ 型降水起源水に

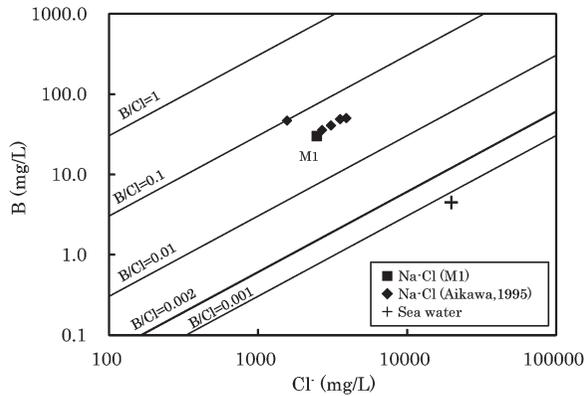
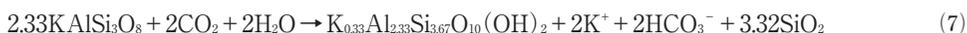


Fig. 6 B—Cl⁻ diagram for the hot spring waters from the Masutomi hot spring field. The location numbers are the same as in Table 1. The data except for M1 are from Aikawa (1995).

よって希釈された。

(2) 降水起源水の進化

増富温泉周辺には昇仙峡型黒雲母花崗岩が広く分布する。花崗岩類に貯留される地下水の水質がアルカリ性で低濃度の Na-HCO₃ 型に属することは、甲府花崗岩類(徳和型花崗閃緑岩)や阿武隈花崗岩類等で知られている(関ら, 2004; Yaguchi *et al.*, 2014)。増富温泉には Na-HCO₃ 型の源泉は確認されていないが、本谷川の両岸に分布する温泉、鉱泉、湧水、河川水等の分析成果によれば、不老閣(Fig. 1bのM5)近くの対岸に、アルカリ度が高くて Cl⁻, SO₄²⁻, Ca²⁺ 濃度が低い湧水(Na⁺, K⁺, Mg²⁺ は未測定)が分布しており、その水型は Na-HCO₃ 型に属すると推定される(伏見・秋山, 1955)。さらに、増富温泉は K⁺ に富む特徴を示しており、昇仙峡型黒雲母花崗岩の構成鉱物としてカリ長石が豊富に含まれるとともに晶洞としても存在していることを考慮すると(松原, 1966; 清水・角田, 1987; 角田・清水, 1988)、表層では(4)式に示した曹長石の Na-スメクタイト化に加えて、カリ長石の K-スメクタイト化(次式)も様々に進んでいることがわかる。



したがって、増富温泉地域の降水起源水は Na・K-HCO₃ 型に属すると判断され、標高の高い瑞牆山・金峰山方面の昇仙峡型黒雲母花崗岩に発達した亀裂から地下に涵養された降水が、表層で曹長石・カリ長石の化学的風化作用の影響を受けて形成されたものである。

Figure 5a からわかるように、増富温泉の多くの源泉(M1, 1aを除く)は直線 $\Phi\text{Ca}^{2+} = -\Delta\text{Mg}^{2+}$ より ΦCa^{2+} にかなり欠損する。これらの源泉の ΔNa^+ 濃度は ΔHCO_3^- 濃度にほぼ等しいかやや大きい程度であるが(Fig. 4)、 $(\Delta\text{Na}^+ + \Delta\text{K}^+)$ 濃度は ΔHCO_3^- 濃度よりさらに大きい。そこで、 ΦCa^{2+} に曹長石の Na-スメクタイト化後の過剰 Na⁺ 量 ($\Phi\text{Na}^+ = \Delta\text{Na}^+ - \Delta\text{HCO}_3^-$) と ΔK^+ を加えた ($\Phi\text{Ca}^{2+} + \Phi\text{Na}^+ + \Delta\text{K}^+$) と ΔMg^{2+} の関係を見ると、多くの源泉(M1を除く)は直線 $(\Phi\text{Ca}^{2+} + \Phi\text{Na}^+ + \Delta\text{K}^+) = -\Delta\text{Mg}^{2+}$ 付近にプロットされる(Fig. 5b)。この結果によれば、Fig. 5a から得られた硫酸還元反応と方解石生成、火山性物質の Mg-スメクタイト化に加えて、イオン交換反応として Na-スメクタイトの Ca-スメクタイト化、および K-スメクタイトの Ca-スメクタイト化も進行したことが示唆される。これらのイオン交換反応は粘土鉱物に対する主要な陽イオンの吸着力の大きさ ($\text{Ca}^{2+} > \text{Mg}^{2+} > \text{K}^+ > \text{Na}^+$; 藤貫ら, 1967) に従っている。前述したように、Na-スメクタイトと K-スメクタイトは昇仙峡型黒雲母花崗岩を構成する曹長石とカリ長石の化学的風化作用で生成しており、イオン交換反応は風化花崗岩地域で進行している。

増富温泉における海底泥質堆積物に閉じ込められた間隙水の水質形成機構は明野温泉と似ている(スメクタイトのイライト化を除く)ことが明らかになった。一方、明野温泉と異なり、増富温泉の全 Fe 濃度は 1.8~26 mg/L を示し、また多くの源泉(M1, 1a, 6を除く)の SO₄²⁻/Cl⁻ 当量比(0.11~0.13)は現海水(0.10)よりやや高い特徴を示している。標高の高い瑞牆山・金峰山方面と増富温泉の間に増富鉱山が位置することを考慮すると(Fig. 1)、これらの特徴は、Na・K-HCO₃ 型降水起源水が昇仙峡型黒雲母花崗岩の亀裂を流動する過程で、増富鉱山に産出する硫化鉱物のなかで昇仙峡型黒雲母花崗岩体の表層にも存在する黄鉄鉱の酸化作用を多少主に受けたことを示唆する。



温泉水に含まれる SO₄²⁻ が黄鉄鉱の酸化作用に由来するならば、 $\delta^{34}\text{S}$ 値は海水起源の値(+20.3%)より軽くなる。例えば、長野県の松本花崗岩体の貫入に関連して黄鉄鉱・輝水鉛鉱が生成しており、この黄鉄鉱の酸化作用を受けて生成した降水起源の酸性 Fe-SO₄ 泉(全 Fe 濃度は 87 mg/L)における $\delta^{34}\text{S}$ 値は +2.0% (村松ら, 2014) を示す。増富の湯(M1)の $\delta^{34}\text{S}$ 値(+14.2%)はそれより重く、その理由は海底泥質堆積物に閉じ込められた間隙水に由来する海水起源の SO₄²⁻ も含んでいることで説明できる。

(8)式の反応で pH は低くなり, 例えば, 上述した長野県の酸性 Fe—SO₄ 泉の pH 値は 3.1 であるのに対して, 増富温泉の pH は 6.0~6.7 の中性を示す. 増富温泉は Al³⁺ (多くは 0.62~1.80 mg/L) にやや富むので, 硫化鉱物 (主に黄鉄鉱) の酸化作用でやや低下した pH は, 増富温泉寄りのやや深部で昇仙峡型黒雲母花崗岩を構成する曹長石・カリ長石が低 pH 溶液に溶ける反応による中和作用によって上昇したと判断される (千田, 1996).



最後に, (1)と(2)の結果をまとめると, 増富温泉 (Na—Cl 型) の水質形成機構は次のとおりである.

- ① 白亜紀に海洋プレートにおける埋没過程で, 有機物を含む海底泥質堆積物 (小仏層群泥岩の起源物質) に閉じ込められた間隙水は硫酸還元反応と方解石生成, 火山性物質の Mg-スメクタイト化, スメクタイトのイライト化を受けた後, 間隙水 (化石海水) を含む海底泥質堆積物はアジア大陸東縁に付加された. その後, 中新世中期に昇仙峡型黒雲母花崗岩の貫入に伴って境界部に破碎帯が発達すると, 間隙水は移動した.
- ② 一方, 昇仙峡型花崗岩体では, CO₂ を溶存した降水が高標高地域に発達した亀裂から地下に浸透し, 表層で曹長石の Na-スメクタイト化とカリ長石の K-スメクタイト化を受けて Na・K—HCO₃ 型降水起源水に変化した. そして, この降水起源水は表層の流動過程で硫化鉱物 (主に黄鉄鉱) の酸化作用によりやや低い pH となり, 増富温泉寄りで曹長石・カリ長石の溶解による中和作用を受けながら破碎帯に移動した.
- ③ その後, この変質した Na・K—HCO₃ 型降水起源水と間隙水起源の化石海水が破碎帯で混合するとともにイオン交換反応 (風化花崗岩における Na-スメクタイトと K-スメクタイトの Ca-スメクタイト化) を受けて深部流体が形成された.

5. ま と め

増富温泉とその周辺の明野・泉温泉を対象に主要化学成分および安定同位体比を分析し, 公表分析値も加えて検討した結果, 得られた水質形成機構は次のとおりである.

- (1) 増富・明野温泉は Na—Cl 型, 泉温泉は Na—HCO₃ 型に属し, 明野・泉温泉は化石海水と Na—HCO₃ 型降水起源水, 増富温泉は化石海水と Na・K—HCO₃ 型降水起源水がそれぞれ混合して形成された.
- (2) 化石海水は, 白亜紀に海洋プレートにおける埋没過程で, 有機物を含む海底泥質堆積物 (小仏層群泥岩・頁岩の起源物質) に閉じ込められた間隙水が硫酸還元反応と方解石の生成, 火山性物質の Mg-スメクタイト化, スメクタイトのイライト化 (増富温泉) を受けて形成された. その後, 間隙水 (化石海水) を含む堆積物はアジア大陸東縁に付加された.
- (3) Na—HCO₃ 型降水起源水は八ヶ岳火山 (泉温泉), 茅ヶ岳火山 (明野温泉) の各高標高地域から地下に涵養された降水が火山性物質 (曹長石組成) の Na-スメクタイト化を受けて形成された. また, Na・K—HCO₃ 型降水起源水は昇仙峡型黒雲母花崗岩 (増富温泉) の高標高地域から地下に涵養された降水が表層で曹長石の Na-スメクタイト化とカリ長石の K-スメクタイト化を受けて形成された.
- (4) 泉温泉は Na-HCO₃ 型降水起源水を主とし, 化石海水を少量混入したものである. 明野温泉では, 間隙水 (化石海水) が貯留層 (小仏層群砂岩または断層) に移動した後, 化石海水が Na—HCO₃ 型降水起源水により著しく希釈されて深部流体は形成された.

- (5) 増富温泉では、間隙水（化石海水）は中新世中期の昇仙峡型黒雲母花崗岩の貫入に伴って発達した境界部の破砕帯に移動した。また、 $\text{Na} \cdot \text{K} - \text{HCO}_3$ 型降水起源水は表層で硫化鉱物（主に黄鉄鉱）の酸化作用を受けてやや低pH化した後、増富温泉寄りでは曹長石・カリ長石の溶解による中和作用を受けながら破砕帯に移動した。そして、両者が破砕帯で混合するとともにイオン交換反応を受けて深部流体は形成された。

謝 辞

本研究を行うにあたって、温泉施設管理者ならびに関係者の皆様には温泉水の採取にご協力頂きました。また、2名の査読者には懇切丁寧なご指摘を頂きました。以上の方々に深く感謝いたします。

引用文献

- 相川嘉正 (1995) : 山梨県の温泉の化学. 温泉科学, **45**, 188-210.
- 秋山梯四郎 (1960) : 6. 増富温泉水のゲルマニウムについて. 山梨県衛生環境研究所年報, **4**, 20-23.
- 千田 信 (1996) : 地球化学反応速度と移動現象. p. 175, コロナ社, 東京.
- 藤貫 正, 藤井紀之, 武司秀夫 (1967) : 粘土の陽イオン交換容量 (CEO) の測定と交換性陽イオンの定量. 地質ニュース, **156**, 10-14.
- 伏見 弘, 秋山梯四郎 (1955) : 増富温泉地域ならびに同地における試鑿井の地球化学的研究. 日本化学雑誌, **76**, 620-624.
- 今橋正征, 加藤尚之, 高松信樹, 相川嘉正 (1996) : 千葉県を中心とした地域の温泉水およびガス田付随水中の臭化物およびヨウ化物イオン含量. 温泉科学, **46**, 69-78.
- 鎌田祥仁, 指田勝男, 猪郷久義 (1991) : 関東山地南西部に分布する白亜系増富層群. 地質学雑誌, **97**, 157-169.
- Kanai, Y. (1988) : Behavior of uranium-238 and its daughter nuclides in the Masutomi spring, Yamanashi Prefecture, central Japan. *Geochem. J.*, **22**, 285-292.
- 金井 豊 (1989) : 山梨県増富温泉における温泉沈殿物の化学組成. 地球化学, **23**, 77-83.
- 小坂共栄 (2008) : 関東山地南西縁部に発見された「塩川断層」の特徴と、その地質学的意味. 地球科学, **62**, 375-385.
- Kuroda, K. (1944) : Strongly radioactive springs discovered in Masutomi. *Bull. Chem. Soc. Japan*, **19**, 33-83.
- 松原秀樹 (1966) : 山梨県金峰山地域の花崗岩類とベグマタイト. 地質調査所月報, **17**, 543-550.
- 松本哲一, 太田 靖, 星住英夫, 高橋 浩, 西岡芳晴, 三宅康幸, 角田謙朗, 清水正明 (2007) : 日本列島における年代未詳岩石の K-Ar 年代測定—地質図幅作成地域の火山岩・深成岩 (平成17年度分)—. 地質調査研究報告, **58**, 1/2, 33-43.
- 望月映希, 小林 浩, 早川拓哉 (2016) : 増富温泉地内自然湧泉の ^{222}Rn 濃度の経時的変化について. 山梨衛環研年報, **60**, 31-38.
- 村松容一, 谷口無我, 大場 武 (2016a) : 関東平野中央部における塩化物泉の水質形成機構—続成変質による間隙水の進化—. 温泉科学, **65**, 216-233.
- 村松容一, 谷口無我, 大場 武 (2016b) : 関東平野北部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, **66**, 4-20.
- 村松容一, 山野 恭, 千葉 仁, 奥村文章 (2014) : 糸魚川—静岡構造線活断層帯中部 (牛伏寺断層付近) 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, **64**,

4-23.

- 三村弘二 (1967) : 黒富士火山の火山層序学的研究. 地球科学, **21**, 1-10.
- 三村弘二 (1988) : (6)黒富士・茅ヶ岳火山. 日本の地質 4 中部地方 I, 日本の地質「中部地方 I 編集委員会編」, 共立出版, 201-203.
- 永井香織, 田崎和江, 田中義太郎 (2001) : 山梨県増富鉱泉のバイオマットにおける砒素の濃集. 島根大学地球資源環境学研究報告, **20**, 179-188.
- 尾崎正紀, 牧本 博, 杉山雄一, 三村弘二, 酒井 彰, 久保和也, 加藤碩一, 駒澤正夫, 広島俊男, 須藤定久 (2002) : 20 万分の 1 地質図幅「甲府」. 産業技術総合研究所.
- 酒井 均, 松久幸敬 (1996) : 安定同位体地球化学. p. 403, 東京大学出版会, 東京.
- 佐々木宗建, 徂徠正夫, 奥山康子, 村岡洋文 (2009) : 本邦の炭酸塩沈殿物を多量に伴う温泉・鉱泉の地化学的特徴—CO₂ 地中貯留に対するナチュラルアナログの可能性—. 岩石鉱物科学, **38**, 175-197.
- 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.
- 清水正明, 角田謙朗 (1987) : 5. 金峰山周辺. 山梨県の地質とそのおいたち (田中 収編著). 地学のガイドシリーズ 19. 52-58, コロナ社, 東京.
- 杉原 健 (1972) : 4. 山梨県内の放射能泉について. 温泉科学, **23**, 84-93.
- 平 朝彦 (2004) : 地質学 2 地層の解説. p. 441. 岩波書店, 東京.
- 滝沢 茂 (1994) : 南八ヶ岳火山山麓の地下地質—特に基盤岩の構造について—. ハイドロロジー (日本水文科学会誌), **24**, 73-82.
- 角田謙朗, 清水正明 (1988) : 3.4 新第三紀の貫入岩類 (2)南部フォッサマグナ地域およびその周辺. 日本の地質 4 中部地方 I, 日本の地質「中部地方 I 編集委員会編」. 117-119, 共立出版, 東京.
- 角田謙朗, 西戸裕嗣, 清水正明 (1992) : 甲府盆地周縁の花崗岩類に伴う鉱床の K-Ar 年代. 資源地質, **42**, 147-153.
- Yaguchi, M. (2015) : Quality and forming environment of deep groundwaters in the southern Fossa Magna region and its adjacent area, central Japan. Ph. D. Thesis, The University of Tokyo, p. 103.
- Yaguchi, M., Muramatsu, Y., Chiba, H., Okumura, F., Ohba, T. and Yamamuro, M. (2014) : Hydrochemistry and isotopic characteristics of non-volcanic hot springs around the Miocene Kofu granitic complex surrounding the Kofu Basin in the South Fossa Magna region, central Honshu, Japan. *Geochem. J.*, **48**, 345-356.
- 矢板 毅, 大関香織, 木村 幹 (1991) : 山梨県増富鉱泉およびその周辺に湧出する温泉水の化学組成. 地球化学, **25**, 49-58.
- 薬師大五郎, 円城寺 守 (2004) : 南部フォッサマグナ地域における鉱床の形成場と生成時期. 資源地質, **54**, 167-174.