



那須茶臼岳周辺の温泉の水質とその地質鉱物学的解釈

村 松 容 一¹⁾

(令和3年7月11日受付, 令和3年9月12日受理)

Chemical Compositions of Hot spring waters, and their Geological and Mineralogical Interpretations in the Nasu Chausudake Volcanic region, Northeast Japan

Yoichi MURAMATSU¹⁾

Abstract

The chemical and isotopic compositional data reported previously for the hot spring waters at the Nasu Chausudake volcanic region, Japan, were analyzed to constrain the formation mechanism of the deep fluids brought these hot spring waters.

The Nasu hot spring waters belong to acid to weakly acid $\text{SO}_4 \cdot \text{Cl}$, acid to neutral SO_4 and weakly acid to weakly alkaline $\text{SO}_4 \cdot \text{HCO}_3$ types. The deep fluids were formed as follows. The acid $\text{SO}_4 \cdot \text{Cl}$ deep fluid in liquid phase was formed by dissolution of volcanic gases (SO_2 , HCl , etc.) into deep groundwater, and then neutralized through reaction of plagioclase, pyroxene and olivine, and kaolinization of plagioclase in the Chausudake volcanic products. The acid SO_4 deep fluid was produced by reaction of shallow groundwater and volcanic H_2S , and then neutralized through above reactions. The produced weakly acid to neutral SO_4 deep fluid was changed to the $\text{SO}_4 \cdot \text{HCO}_3$ deep fluid by mixing of Na-HCO_3 type water in meteoric origin.

On the other hand, the other hot spring waters belong to weakly alkaline HCO_3 type for the Oshima hot spring, neutral to alkaline HCO_3 and $\text{SO}_4 \cdot \text{HCO}_3$ types for the Ofukabori hot spring, neutral to alkaline Cl and SO_4 types for the Itamuro hot spring and neutral to weakly alkaline Cl type for the Nasu plateau hot springs. The HCO_3 , $\text{SO}_4 \cdot \text{HCO}_3$ and SO_4 deep fluids in local meteoric water origin were formed by reaction of volcanic material to form Na-smectite in the Chausudake volcanic products, anhydrite and gypsum dissolutions, ion exchange of smectite in the reservoir of the Fukuwata formation (greentuff). The Cl type deep fluid was formed as follows. The Na-HCO_3 type meteoric water was altered the quality by the sulfate mineral dissolutions, ion exchange, then mixed with the altered fossil sea water formed by reaction of volcanic material to form Mg-smectite in the marine sediment as an original material of the Fukuwata formation.

Key words : Chausudake volcanic products, Nasu hot springs, Itamuro hot spring, Acid $\text{SO}_4 \cdot \text{Cl}$ fluid, fossil sea water, Fluid formation mechanism

¹⁾ 東京理科大学名誉教授. ¹⁾ Professor Emeritus, Tokyo University of Science. E-mail muramatu@rs.noda.tus.ac.jp, TEL & FAX : 047-347-0621.

要 旨

那須茶臼岳周辺の温泉を対象に主成分・安定同位体比データを収集し、地質鉱物学的視点で水質形成機構を検討した。那須温泉は酸性・弱酸性 $\text{SO}_4 \cdot \text{Cl}$ 型 (H_2S 型)、酸性～中性 SO_4 型、弱酸性～弱アルカリ性 $\text{SO}_4 \cdot \text{HCO}_3$ 型に属し、各型をもたらした深部流体は次の過程で形成された。茶臼岳深部から上昇した高温火山ガス (SO_2 , HCl など) が深部地下水に混入して気液に分離すると、液相には酸性 $\text{SO}_4 \cdot \text{Cl}$ 型流体が生じ、茶臼岳火山噴出物を構成する斜長石・輝石・かんらん石の溶解作用と斜長石のカオリナイト化作用を受けて酸性・弱酸性 $\text{SO}_4 \cdot \text{Cl}$ 型流体に変化した。一方、気相の火山ガス (H_2S) は浅部地下水によって酸化されて酸性 SO_4 型流体となり、上述の作用を受けて酸性～中性 SO_4 型流体に変化し、さらに $\text{Na}-\text{HCO}_3$ 型降水起源水で希釈されて弱酸性～弱アルカリ性 $\text{SO}_4 \cdot \text{HCO}_3$ 型流体に変化した。

大島温泉は HCO_3 型に属し、茶臼岳火山噴出物に浸透した降水が火山性物質の Na -スメクタイト化作用を受けて生じた $\text{Na}-\text{HCO}_3$ 型降水起源水である。大深堀温泉は HCO_3 型と $\text{SO}_4 \cdot \text{HCO}_3$ 型、板室温泉 (多源泉) は SO_4 型に属し、 $\text{Na}-\text{HCO}_3$ 型降水起源水が福渡層 (緑色凝灰岩) に含まれる硬石膏・石膏の溶解作用と陽イオン交換反応を受けて形成された。また、板室温泉 (1 源泉) と那須高原温泉は Cl 型に属し、海底堆積物 (福渡層の起源物質) に閉じ込められて火山性物質の Mg -スメクタイト化作用を受けた間隙水 (化石海水) が福渡層 (緑色凝灰岩) の割れ目に移流・貯留された後、硬石膏・石膏の溶解作用と陽イオン交換反応を受けた $\text{Na}-\text{HCO}_3$ 型降水起源水と混合して形成された。

キーワード：茶臼岳火山噴出物、那須温泉、板室温泉、酸性 $\text{SO}_4 \cdot \text{Cl}$ 型流体、化石海水、水質形成機構

1. はじめに

那須火山は栃木県と福島県の県境付近に位置し、南から北へ南月山、茶臼岳、朝日岳、三本槍岳、甲子旭岳、二岐山と連なる第四紀の成層火山の集合体からなる。そのうち、茶臼岳 (標高 1,915 m) の西斜面では硫黄の噴出が現在も活発で、豊富な湯量と様々な泉質をもつ那須温泉が茶臼岳の山腹に分布する (鈴木, 1986)。茶臼岳と密接に関連する那須温泉は湯本・大丸・北・弁天・三斗小屋・高雄・八幡など多数の温泉からなり、自然湧出する源泉と温泉沈殿物の化学組成 (池田, 1954a~h, 1955a~e; 平山, 1974)、茶臼岳の火山ガス凝縮水と周辺の温泉水・沢水の酸素・水素安定同位体比 (日下部ら, 1968; 吉田, 2012) が報告されている。また、世取山ら (1992) は那須温泉 (那須高原の裾野を含む) に存在する多数の源泉 (87 箇所) の化学分析結果をもとに、泉温と化学成分の関係、成分等の濃度分布を報告している。さらに、地熱資源を把握する目的で大丸温泉の北側から殺生石噴気帯にかけて調査井が掘削され、地下地質調査・温度検層が実施されるとともに、噴気試験により蒸気・熱水の化学成分データも得られている (村島, 1966)。このように、那須温泉では多くの地球化学的研究が報告されているが、地質鉱物学的視点による温泉の水質形成機構は明らかにされていないのが現状である。

近年、那須高原の裾野では深度が 1,000 m を超える深部温泉井が盛んに掘削され (那須町, 2020)、深部貯留層から回収された温泉の水質特性も明らかになってきた (平山ら, 1990)。本研究では、茶臼岳周辺に分布する温泉および調査井の蒸気・熱水を対象に長期間の主成分・安定同位体比データを収集し、温泉の水質形成機構を地質鉱物学的視点で検討したので、ここに報告する。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、地下に賦存する本源的な温泉水である深部流体 (Deep fluid) と区別する。文中、温泉名の後の括弧付きは源泉を示す。

2. 地質および温泉貯留層概要

茶臼岳周辺の地質および地質構造は山元・伴 (1997), 山元ら (2000), 久保ら (2007) などによって報告されている. Figure 1 に山元・伴 (1997) による那須火山地質図を示す. 本地域の西方に分布する基盤岩は白亜紀の深成岩と新第三紀中新世の塩谷層群からなり, 塩谷層群は下位から福渡層 (緑色凝灰岩・流紋岩に砂岩・泥岩を挟在), 鹿股沢層 (砂岩・泥岩), 関谷層 (砂岩・泥岩・凝灰岩) に細分される (伴, 2010; 新野, 1933; 高橋, 1983; 平山ら, 1990). また, 東方には前期更新世の白河火砕流堆積物群 (140~100 万年前) が分布する (山元・伴, 1997).

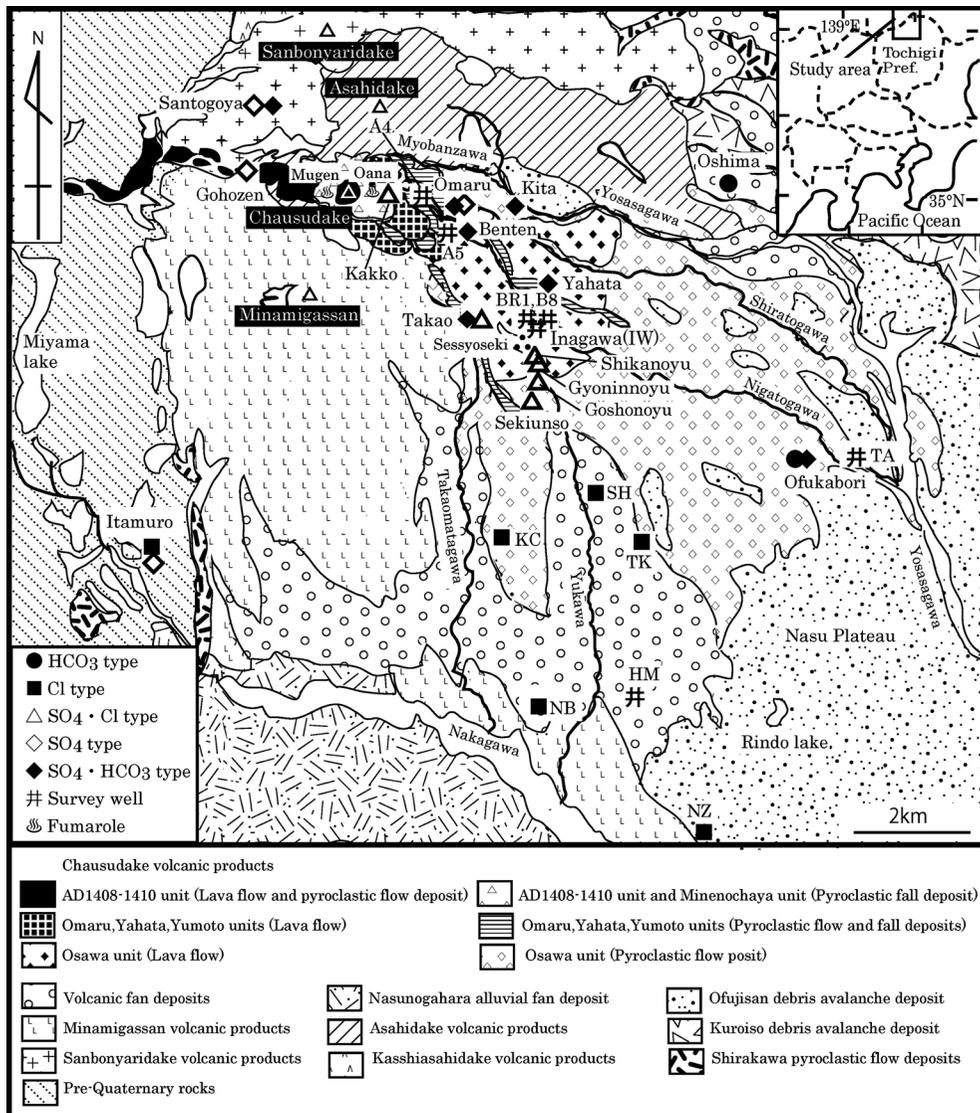


Fig. 1 Geological map and location of the hot springs in the Nasu field (after Yamamoto and Ban, 1997). The Yumoto and Nasukogen hot springs are composed of the Shikanoyu, Gyoninnoyu, Goshonoyu sources, and the SH, TK, KC, NB, NZ sources, respectively.

那須火山の活動は約60万年前の甲子旭岳から開始され、三本槍岳、朝日岳と南月山、茶臼岳へと火山活動の中心は移行している(山元, 2008)。このうち、茶臼岳では約4~3万年前に朝日岳火山南東斜面の大規模崩壊で御富士山岩屑なだれ堆積物が山麓に広がった後、火山麓扇状地堆積物が形成された。その後のマグマ活動は水蒸気爆発→降下火砕物の堆積と火砕流の発生→溶岩の流出というパターンを繰り返し、1.6万年前(大沢ユニット)、1.1万年前(湯本ユニット)、9,000年前(八幡ユニット)、6,000年前(大丸ユニット:山頂付近に火砕丘を形成)、2,600年前(峰の茶屋ユニット)、15世紀初頭(1408~1410ユニット:溶岩円頂丘を形成)に発生している(山元, 2008)。そして、溶岩円頂丘の形成後には水蒸気爆発が繰り返され、1881年に爆裂火口が円頂丘近くに形成された(木下ら, 2018)。AMT法電磁探査によれば、溶岩円頂丘形成期に噴出したマグマ残液が爆裂火口の直下に存在し、山頂のやや北側深部から火山性流体が上昇して標高1,200~1,400m付近に熱水溜まりを形成していると推定されている(木下ら, 2018)。茶臼岳火山噴出物(斑状安山岩)を構成する斑晶鉱物(斑晶量12.6~36.0 vol%)は斜長石(12.6~31.0 vol%)を主とするほか、単斜輝石(普通輝石など:1.2~6.6 vol%)、斜方輝石(紫蘇輝石など:0.5~4.3 vol%)、かんらん石(2.1 vol%以下)、石英(0.6 vol%以下)が含まれ、斜長石の多くは累帯構造を示している(高橋ら, 2016)。

以下に、本研究で対象にした那須温泉および大島・大深堀・板室・那須高原温泉の地質、温泉貯留層・貯留母岩を概説する(Fig. 1)。

(1) 那須温泉

高標高の郭公温泉(標高1,500m)と御宝前の湯(同1,380m)は茶臼岳東側と茶臼岳西側の朝日岳火山噴出物、三斗小屋温泉(同1,465m)は茶臼岳北西側の三本槍岳火山噴出物の割れ目から自然湧出する(鈴木, 1986)。中・低標高の大丸(同1,290m)・八幡(同1,040m)温泉は茶臼岳東側の白戸川、弁天温泉(同1,200m)は苦戸川、北温泉(同1,120m)は余笹川、高雄温泉(同1,055m)は高雄股川、湯本温泉(同820~836m)は湯川の各流域にあり、茶臼岳火山噴出物(火山角礫岩・凝灰角礫岩)の割れ目から自然湧出する(鈴木, 1964, 1986)。

地下地質層序を殺生石噴気帯近くの県BR-1井(標高981m, 孔底深度900m)で見ると、上位から茶臼岳火山噴出物(深度0~360m)、白河火砕流堆積物群(デイサイト質凝灰岩;深度360~527m)、塩谷層群(深度527~841m)、花崗岩類(深度841~900m)が分布する(平山ら, 1990)。孔井地質調査結果に基づいて温泉貯留層を概観すると、大丸温泉近くのA4地熱調査井(同1,310m, 同190m)および稲川噴気帯の稲川噴気井(IW;同925m, 同57m)の地下には茶臼岳火山噴出物(安山岩溶岩・凝灰角礫岩)が分布し、深部流体はそれぞれ深度78m, 52m付近の凝灰角礫岩の割れ目から孔井内に流入し(鈴木, 1964;村島, 1966)、これらより南側の殺生石噴気帯の調査井(同865m, 同約155m)では割れ目は深度20~25mと一層浅い(佐藤ら, 1977)。一方、弁天温泉近くのA5地熱調査井(同1,256m, 同160m)の地下地質は安山岩溶岩からなり、割れ目に遭遇しておらず(村島, 1966)、本地域の地下変質は割れ目周辺、および安山岩溶岩の下位の凝灰角礫岩で著しいことを踏まえると、深部流体は安山岩溶岩(帽岩)下位の凝灰角礫岩に発達する割れ目に貯留され、その割れ目を通じて地表に自然湧出していると推定される。

(2) 大島・大深堀・板室・那須高原温泉

大島温泉(孔底深度1,300m)は火山麓扇状地堆積物地域にあり、塩谷層群を貯留層にしている(関, 2004)。大深堀温泉は茶臼岳火山噴出物の大沢ユニット(火砕流堆積物)地域にあり、近くの高井調査井(TA;孔底深度800m)の地下地質をみると、茶臼岳火山噴出物(深度216m以浅)の下位には白河火砕流堆積物群(デイサイト質凝灰岩;深度216~388m)が塩谷層群(深度388~800m)に不整合に重なる(阿久津, 1986;平山ら, 1990)。

板室温泉(同85~400m)は那須連山の南西端、那珂川の上流沿いにあり、福渡層(緑色凝灰岩・

流紋岩など、砂岩・泥岩・礫岩を多数挟在)とそれを整合的に覆う鹿股沢層(砂岩・泥岩)からなり、福渡層(緑色凝灰岩)を貯留母岩にしている(高橋, 1983; 鈴木ら, 1969; 鈴木, 1986). 那須高原温泉(NZ・KC・NB・SH・TK; 前3者の孔底深度1,400~1,500m)は那須高原の裾野に位置し、主に火山麓扇状地堆積物と御富士山岩層なだれ堆積物地域にある。NB源泉近くの一つ縦調査井(HM; 孔底深度1,500m)の地下地質をみると、上位から茶臼岳火山噴出物(深度194m以浅)、白河火砕流堆積物群(デイサイト質凝灰岩; 深度194~367mまで)、塩谷層群(深度367~1,277m)、花崗岩類(深度1,277~1,500m)が分布する(平山ら, 1990)。塩谷層群は上位の関谷層・鹿股沢層(泥岩に砂岩を挟在)と下位の福渡層(凝灰岩に泥岩を挟在)からなる。

3. 研究方法

本研究で検討した茶臼岳周辺に分布する温泉の主成分データの出典を Table 1 に、温泉の位置を Fig. 1 にそれぞれ示す。Table 1 には、出典に源泉名が記載されている場合には源泉名、および孔底深度・採水年・水型、出典の泉温・pH・Cl⁻濃度を併示した。採水は1881年から2019年までの長期間に実施され、現在は利用されていない源泉も含まれている。三斗小屋噴気泉(SGF1)、三斗小屋(SGa, b)・御宝前の湯(GHa~d)・郭公(KA)・大丸(OMa~s)・北(KTa~e)・弁天(BT1, 2, a~k)・八幡(YHa~e)・高雄(TA1, a~f)・湯本(SK1~4, Ya~g, GJ, SS)・大深堀(OFa~i)温泉の公表分析値は池田(1954a, b)、世取山ら(1992)、大島温泉(OS1)は関ら(2004)、板室温泉(I1~7)は高橋(1983)を用いた。そのほか、三斗小屋噴気泉(SGF1a)、三斗小屋(SG1, 2)・湯本(MX1, 2, GS)・大丸(OM1~4)・北(KT1, 2)・弁天(BT3)・八幡(YH)・高雄(TA2)・大島(OS2)・那須高原(SH, TK, KC, NB, NZ)・板室(IT7a)温泉の非公表分析値を加えた。なお、三斗小屋噴気泉(SGF1)および郭公・高雄(TA1)・湯本(SK1)温泉の陽イオンはFe²⁺(池田, 1954a)だけが公表されている。さらに、温泉水をもたらした深部流体の地球化学的情報を知る目的で、A4地熱調査井と稲川噴気井(IW)の噴気試験時に得られた蒸気と熱水の分析値も検討に加えた(村島, 1966)。那須温泉および周辺河川水の酸素・水素安定同位体比データは吉田(2012)を用いた。

4. 温泉水の水質特性

トリリニアダイアグラムを Fig. 2、泉温と pH、および那須温泉の SO₄²⁻と Cl⁻濃度の関係を Fig. 3 に示す。以下に、那須温泉と大島・大深堀・板室・那須高原温泉に分けて、水質特性を述べる。

4.1 那須温泉

湯本(SK1~4, SS, GJ, MX1, 2, GS, Ya~g)・高雄(TA1)・郭公(KA)温泉は酸性・弱酸性(pH1.1~5.6) SO₄・Cl 型(H₂S 型)に属し(Table 1)、湯本温泉の泉温(25~78℃)と pH 間には逆相関(Fig. 3a の相関直線 L; 世取山ら, 1992)、湯本温泉(SK3 と SS を除く)の Cl⁻と SO₄²⁻濃度間には正相関(Fig. 3b の相関直線 L)がそれぞれ認められる。三斗小屋噴気泉(SGF1, 1a)は高温(93℃)の酸性・弱酸性(pH2.6~3.4) SO₄ 型、三斗小屋(SGb)・御宝前の湯(GHa~d)・大丸(OM3, q, r, s)温泉は泉温31~79℃の酸性~中性(pH2.9~7.3) SO₄ 型に属する(Table 1, Fig. 2)。高雄(TA2, a~f)・三斗小屋(SG1, 2, a)・大丸(OM3, q, r, s を除く)・北(KT1, 2, a~e)・弁天(BT1~3, a~k)・八幡(YH, a~e)温泉は泉温16~86℃の弱酸性~弱アルカリ性(pH5.4~8.3) SO₄・HCO₃ 型に属し、高雄温泉は Cl⁻にやや富み、泉温は大丸温泉で最も高い(Table 1, Figs. 2, 3a)。湯本・大丸・北・

Table 1 Data source of the hot spring waters from the Nasu field, Tochigi prefecture.

No. (Source)	Depth (m)	Sampling date (Year)	Type	WT (°C)	pH	Cl (mg/L)	References	No. (Source)	Depth (m)	Sampling date (Year)	Type	WT (°C)	pH	Cl (mg/L)	References
1. Yumoto hot springs								KT2	0	2015	SO ₄ -HCO ₃	54	6.3	1	(7)
SK1 (Shikanoyu)	0	1948	SO ₄ -Cl	73	1.5	411	(4)	KTa~e	0	1991	SO ₄ -HCO ₃	50~57	6.6~7.5	0	(2)
SK2 (Shikanoyu)	0	1881	SO ₄ -Cl	78	1.2	208	(5)	8. Benten hot spring							
SK3 (Shikanoyu)	0	1922	SO ₄ -Cl	76	1.1	475	(5)	BT1 (Ainoyu)	0	1950	SO ₄ -HCO ₃	55	5.4	29	(5)
SK4 (Shikanoyu)	0	1948	SO ₄ -Cl	70	1.5	169	(5)	BT2 (Kawanoyu)	0	1950	SO ₄ -HCO ₃	53	5.4	31	(5)
SS (Sekiuiso)	0	1948	SO ₄ -Cl	—	1.5	292	(5)	BT3	0	1995	SO ₄ -HCO ₃	48	6.4	16	(7)
GJ (Gyoninoyu)	0	1948	SO ₄ -Cl	39	2.0	97	(4)	BTa~k	0	1991	SO ₄ -HCO ₃	16~53	6.6~8.3	9~24	(2)
MX1 (Shikanoyu + Gyoninoyu)	0	2009	SO ₄ -Cl	57	2.6	76	(7)	9. Yahata hot spring							
MX2 (Shikanoyu + Gyoninoyu)	0	1999	SO ₄ -Cl	68	2.5	80	(7)	YH	0	1983	SO ₄ -HCO ₃	52	6.9	6.5	(7)
GS (Goshonoyu)	0	2009	SO ₄ -Cl	58	2.6	75	(7)	YHa~e	0	1991	SO ₄ -HCO ₃	26~50	5.7~7.6	5~35	(2)
Ya~g	0	1991	SO ₄ -Cl	25~72	2.3~4.0	36~132	(2)	10. Oshima hot spring							
2. Takao hot spring								OS1 (Dobutsu Ohkoku)	1300	2000	HCO ₃	56	8.1	9	(1)
TA1	0	1948	SO ₄ -Cl	34	5.6	112	(4)	OS2	1300	1997	HCO ₃	55	8.0	10	(7)
TA2	0	2003	SO ₄ -HCO ₃	40	6.1	45	(7)	11. Ofukabori hot spring							
TAa~f	0	1991	SO ₄ -HCO ₃	22~41	6.0~6.5	37~51	(2)	OFa~e	Unknown	1991	SO ₄ -HCO ₃	20~44	7.9~8.6	7~67	(2)
3. Santogoya hot spring								OFF~i	Unknown	1991	HCO ₃	25~34	7.4~8.2	6~42	(2)
SGF1 (FMI Motoyu)	0	1948	SO ₄	93	2.6	4	(4)	12. Itamuro hot spring							
SGF1a (FMD)	0	2019	SO ₄	93	3.4	1.1	(7)	IT1	127	1961	SO ₄	39	9.4	34	(6)
SG1	0	1999	SO ₄ -HCO ₃	42	6.4	3	(7)	IT2	85	1968	SO ₄	36	9.3	37	(6)
SG2	0	2006	SO ₄ -HCO ₃	46	6.4	3	(7)	IT3	150	1971	SO ₄	45	9.6	30	(6)
SGa	0	1991	SO ₄ -HCO ₃	57	7.0	0	(2)	IT4	200	1973	SO ₄	40	9.3	42	(6)
SGb	0	1991	SO ₄	48	6.9	0	(2)	IT5	113	1974	SO ₄	45	7.1	34	(6)
4. Gohozen no yu								IT6	400	1979	SO ₄	50	9.1	46	(6)
GHa~d	0	1991	SO ₄	31~36	2.9~3.3	50~85	(2)	IT7	300	1980	Cl	32	8.7	446	(6)
5. Kakkō hot spring								IT7a	300	2002	Cl	35	8.2	525	(7)
KA	0	1948	SO ₄ -Cl	37	2.8	146	(4)	13. Nasukogen hot springs							
6. Omaru hot spring								SH	Drilling	2007	Cl	86	7.6	751	(7)
OM1	0	1983	SO ₄ -HCO ₃	61	6.9	7	(7)	TK	Drilling	2008	Cl	77	7.3	709	(7)
OM2	0	2001	SO ₄ -HCO ₃	60	8.3	5	(7)	KC	1400	2010	Cl	82	7.5	1359	(7)
OM3	0	2001	SO ₄	79	7.1	2	(7)	NB	1500	Unknown	Cl	46	7.0	539	(7)
OM4	0	2003	SO ₄ -HCO ₃	38	7.5	3	(7)	NZ	1500	2010	Cl	52	7.7	1226	(7)
OMa~p	0	1991	SO ₄ -HCO ₃	50~86	6.3~7.6	2~19	(2)	14. Survey well							
OMq~s	0	1991	SO ₄	58~76	4.2~7.3	2~8	(2)	A4	190	1965	SO ₄ -HCO ₃	—	6.8	42	(3)
7. Kita hot spring								IW (Inagawa)	57	1960	SO ₄ -Cl	—	3.0	38	(3)
KT1	0	2001	SO ₄ -HCO ₃	50	6.7	3	(7)								

FMI, Water injected into fumarole. References : (1) Seki *et al.* (2004), (2) Setoriyama *et al.* (1992), (3) Murashima (1966), (4) Ikeda (1954a), (5) Ikeda (1954b), (6) Takahashi (1983), (7) Unpublished data.

弁天・八幡温泉の δ¹⁸O と δD 値は周辺河川水と同じく天水線 (δD = 8δ¹⁸O + 15) 付近にプロットされ、天水起源を示唆する (Fig. 4; 吉田, 2012).

4.2 大島・大深堀・板室・那須高原温泉

大島温泉 (OS1, 2, 動力揚湯) は泉温 55~56°C の弱アルカリ性 (pH8.0~8.1) HCO₃ 型, 大深堀温泉 (OFa~e, 同) は泉温 20~44°C の弱アルカリ性・アルカリ性 (pH7.9~8.6) SO₄・HCO₃ 型, 大深堀 (OFF~i, 同) 温泉は泉温 25~34°C の中性・弱アルカリ性 (pH7.4~8.2) HCO₃ 型に属する (Table 1, Fig. 2). 板室温泉 (IT1~6, 掘削自噴・動力揚湯) は泉温 36~50°C の中性~アルカリ性 (pH7.1~9.6) SO₄ 型, 板室温泉 (IT7, 7a, 動力揚湯) は泉温 32~35°C の弱アルカリ性・アルカリ性 (pH8.2~8.7) Cl 型 (Cl⁻ 濃度 446~525 mg/L) に属する (Table 1, Fig. 2). 那須高原温泉 (SH, TK, KC, NB, NZ,

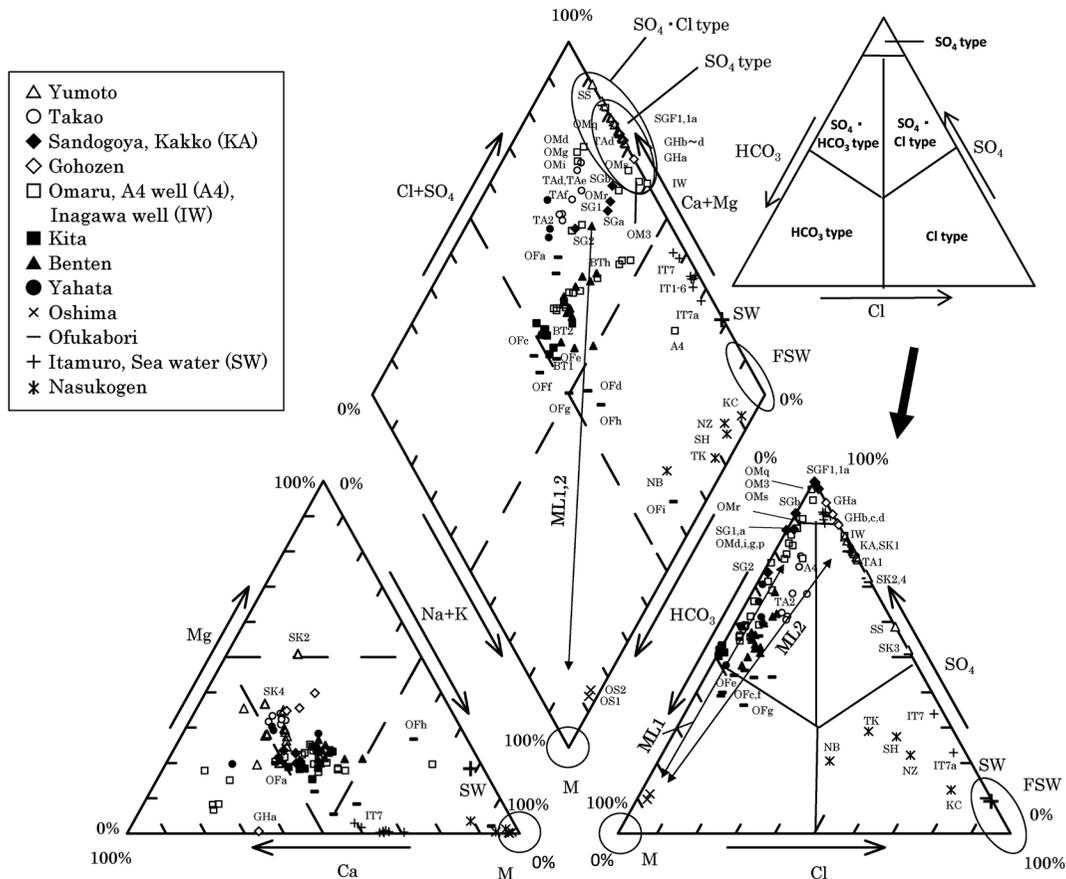


Fig. 2 Trilinear diagram for the hot spring waters. FSW, Fossil seawater. The ML1 and ML2 show the SO_4 and $\text{SO}_4 \cdot \text{Cl}$ types— $\text{Na}-\text{HCO}_3$ type meteoric water (M) mixing lines, respectively. The location numbers are the same as in Table 1.

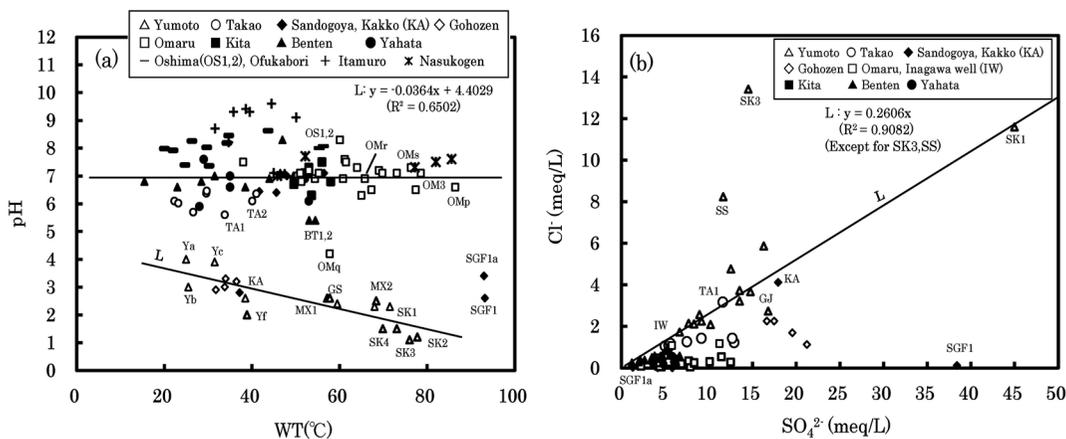


Fig. 3 WT—pH(a) and SO_4^{2-} — Cl^- (b) diagrams for the hot spring waters from the Nasu field. The location numbers are the same as in Table 1. The line L sees in text.

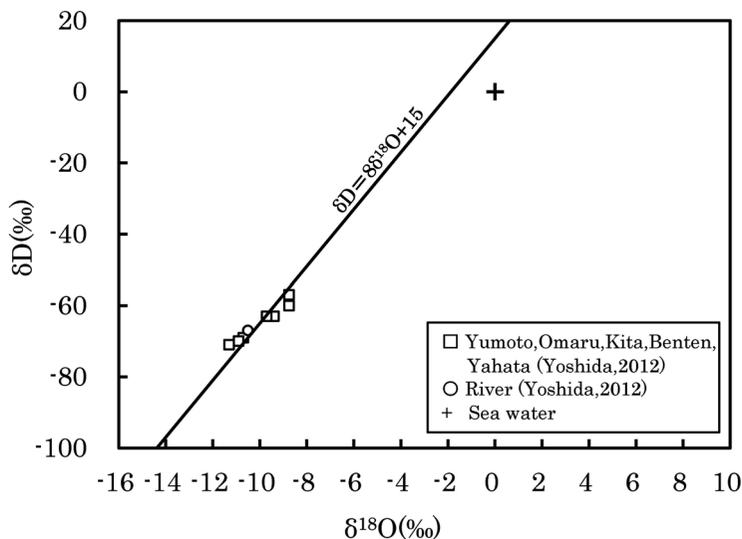


Fig. 4 $\delta^{18}\text{O}$ — δD diagram for the hot spring waters from the Nasu field.

同)は泉温46~86°Cの中性・弱アルカリ性(pH7.0~7.7)Cl型(Cl^- 濃度539~1,359 mg/L)に属し, SO_4^{2-} に富む(Table 1, Fig. 2)。これらの温泉の陽イオンは Na^+ を主とし、大深堀・板室温泉では Ca^{2+} が多くなる(Fig. 2)。

5. 水質形成機構

5.1 那須温泉

5.1.1 $\text{SO}_4 \cdot \text{Cl}$ 型(H_2S 型)温泉

稲川噴気井(IW;孔底深度57m,孔底温度154°C)の孔井地質調査および噴気試験によれば、深度52mの茶臼岳火山噴出物(凝灰角礫岩)の割れ目から孔井内に流入した深部流体が上昇して蒸気と熱水を自噴し、熱水(IW)はほぼ酸性(pH3.0)の $\text{SO}_4 \cdot \text{Cl}$ 型(H_2S 型)に属する(Fig. 2, Table 1;村島,1966;鈴木,1986)。したがって、酸性・弱酸性(pH1.1~5.6) $\text{SO}_4 \cdot \text{Cl}$ 型(H_2S 型)の湯本・高雄(TA1)・郭公(KA)温泉をもたらした深部流体の貯留母岩は茶臼岳火山噴出物(凝灰角礫岩)と判断され、2源泉(MX1,2,GS)の Cl^- 濃度(75~80 mg/L)とB/Clモル比(0.01~0.04)から導かれる貯留母岩の種類(火山岩)と一致する(Fig. 5;犬山ら,1999)。

茶臼岳山頂近く的那須無限(標高1,750m)および大穴(同1,800m)の噴気孔ガス(Fig. 1)にはHClが SO_2 , H_2S , CO_2 とともに含まれ、とくに大穴噴気孔では16.3 vol.%含まれることを考慮すると(鎌田ら,1985)、この型の温泉の Cl^- は火山ガス(HCl)起源と推定される。火山ガス以外の Cl^- の起源として、マグマから放出される高温の中性Na—Cl型流体が箱根・登別温泉で報告されているが(酒井・大木,1978;松葉谷,1991)、茶臼岳周辺に分布するNa—Cl型温泉は基盤岩から湧出しているもの(第5.2.2,3項)に限られ、茶臼岳直下に存在すると予想されるマグマ起源の中性Na—Cl型流体に由来する温泉は確認されていない。

稲川噴気井の噴気試験(前述)で得られた蒸気に含まれる主要ガス成分は CO_2 (81.6 vol.%)と H_2S (17.4 vol.%)からなり、 SO_2 は微量であり(村島,1966)、湯本温泉に近い殺生石噴気帯の噴気ガスも CO_2 (69.7 vol.%)と H_2S (29.4 vol.%)を主要ガス成分とし、 SO_2 は0.1 vol.%以下である(鎌

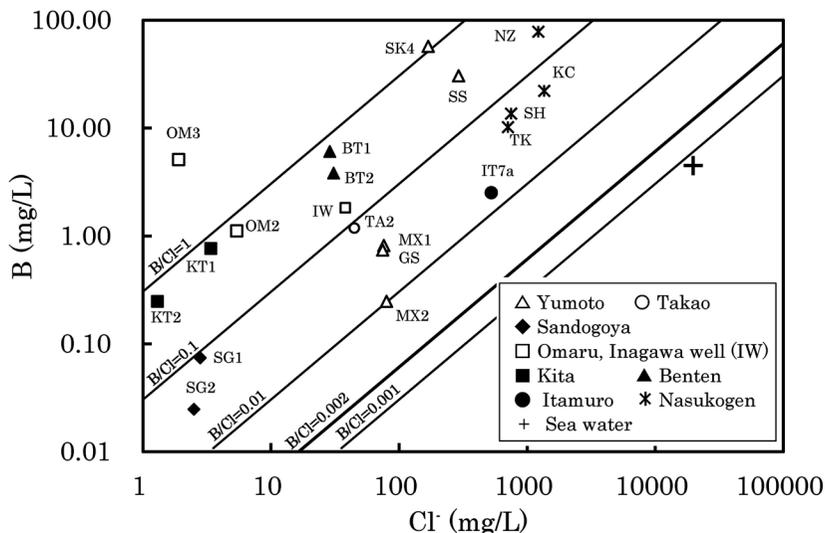


Fig. 5 B—Cl⁻ diagram for the hot spring waters from the Nasu field. The location numbers are the same as in Table 1.

田ら, 1985). このように, 那須温泉の酸性・弱酸性 SO₄・Cl 型 (H₂S 型) と同じ水型の熱水を噴出する稲川噴気井の噴出ガスは, 那須温泉の殺生石噴気ガスと同じ化学的特徴を示している. そこで, Cl⁻ の火山ガス (HCl) 起源および稲川噴気井の噴気試験結果を考慮すると, 茶臼岳深部から上昇した火山ガス (SO₂, HCl など) が茶臼岳火山噴出物 (凝灰角礫岩) の割れ目に賦存する深部地下水に混入して深部流体が形成された後に気液に分離して, 液相には HCl のほとんど全てが深部地下水に溶け込んで酸性 SO₄・Cl 型流体が生成し, 稲川噴気井の熱水や酸性 SO₄・Cl 型 (H₂S 型) 温泉をもたらしたことが示唆される.

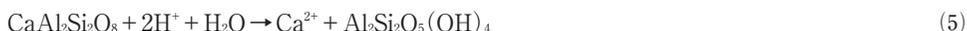


一方, 気相の火山ガス (H₂S など) は稲川噴気井の噴出ガスや殺生石噴気帯の噴気ガスをもたらした.

酸性 (pH1.1~1.5) の湯本温泉 (SK2~4, SS) は Al³⁺ 濃度を 5.7~15.9 meq/L 含んでいる (Fig. 6a; 池田, 1954b). 斜長石は灰長石 (CaAl₂Si₂O₈) と曹長石 (NaAlSi₃O₈) を端成分とする固溶体からなり, 茶臼岳火山噴出物 (斑状安山岩) の主要造岩鉱物である斜長石に累帯構造が多数観察されることから, Al³⁺ は一部の Ca²⁺, Na⁺ とともに斜長石の溶解作用によってもたらされたと判断される (吉川・塚本, 2007). 両端成分の斜長石の溶解反応は次のとおりである (千田, 1996).



稲川噴気帯近くの B8 調査井 (標高 960 m, 孔底深度 171 m) の地質調査によれば, 茶臼岳火山噴出物 (安山岩) にカオリナイトがスメクタイトとともに確認されており (村島, 1966; 角ら, 1980), 湯本温泉の Ca²⁺, Na⁺ の一部は斜長石のカオリナイト化作用によってもたらされたと推定される (千田, 1996).



湯本温泉 (SK2~4, SS) は Fe²⁺ を 0.3~1.0 meq/L, Mg²⁺ を 2.5~5.0 meq/L, Ca²⁺ を 3.0~5.0 meq/L,

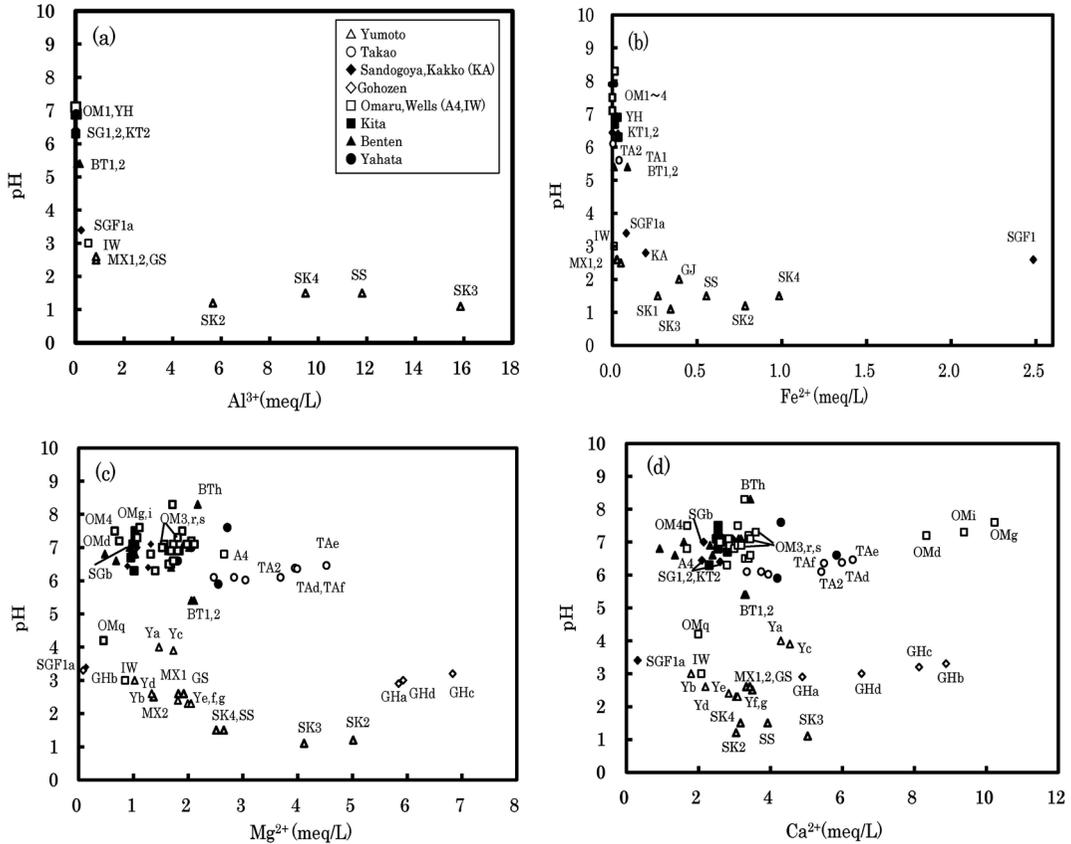


Fig. 6 Al³⁺—pH (a), Fe²⁺—pH (b), Mg²⁺—pH (c) and Ca²⁺—pH (d) diagrams for the hot spring waters from the Nasu field. The location numbers are the same as in Table 1.

郭公温泉 (KA) は Fe²⁺ を 0.2 meq/L 含んでおり (Figs. 6b~d), Mg²⁺ と Fe²⁺ は安山岩を構成する紫蘇輝石 (Mg, Fe²⁺)SiO₃, 普通輝石 Ca_{1-p}(Mg, Fe²⁺)_{1+p}Si₂O₆, かんらん石 (Mg, Fe²⁺)₂SiO₄ の溶解作用, Ca²⁺ の一部は普通輝石の溶解作用によってもたらされたと考えられる (吉川・塚本, 2007). これらの造岩鉱物のなかで, Mg²⁺ 端成分の頑火輝石と苦土かんらん石の溶解反応は次のとおりである.



以上の結果によれば, 酸性・弱酸性 SO₄・Cl 型 (H₂S 型) 温泉の水質形成機構は次のようにまとめられる. 茶臼岳深部から上昇した高温火山ガス (SO₂, HCl など) が深部地下水へ混入することによって深部流体が形成された. この深部流体が気液分離し, 液相の酸性 SO₄・Cl 型流体が斜長石・輝石・かんらん石の溶解作用および斜長石のカオリナイト化作用を受けて, 酸性・弱酸性 SO₄・Cl 型 (H₂S 型) 温泉の深部流体が形成された.

5. 1. 2 SO₄ 型温泉

酸性・弱酸性 (pH2.6~3.4) SO₄ 型の三斗小屋噴気泉 (SGF1, 1a) は噴気ガスを沢水に注いだ人工造水を利用しており, Al³⁺ (0.23 meq/L), Fe²⁺ (0.08~2.49 mg/L), Mg²⁺ (0.1 mg/L), Ca²⁺ (0.3 mg/L) を含む (Fig. 6; 池田, 1954a; 未公表資料). 三斗小屋周辺の茶臼岳火山噴出物 (安山岩) でカオリナイトが確認されており (角ら, 1980), 本噴気泉は斜長石・輝石・かんらん石の溶解作用

と斜長石のカオリナイト化作用を受けていると推定される。

酸性～中性 (pH2.9～7.3) SO_4 型の三斗小屋 (SGb)・御宝前の湯 (GHa～d)・大丸 (OM3, q, r, s) 温泉のなかで、大丸温泉 (OM3) は Cl^- 濃度 1.9mg/L, B/Cl モル比 8.8 を示し、高い泉温 (79℃) は蒸気による加熱に起因する (Figs. 3a, 5)。前述したように、茶臼岳深部から上昇した火山ガス (SO_2 , HCl など) が深部地下水に混入して深部流体が形成された後に気液に分離すると、気相の火山ガス (H_2S など) は微細な縦型割れ目を通じて殺生石噴気帯などで地上に達して噴気ガスを放出する。火山ガス (H_2S) の一部は地上へ上昇する途中で浅部地下水で酸化され、酸性 SO_4 型流体が生成したと推定される。

御宝前の湯 (GHa～d) は SO_4 型温泉のなかで最も pH (2.9～3.3) が低い (Table 1, Fig. 3a; 世取山ら, 1992)。本温泉の Mg^{2+} と Ca^{2+} 濃度 (GHb の Mg^{2+} を除く) は湯本温泉 (SK2～4, SS; pH1.1～1.5) より高く (Figs. 6c, d)、御宝前の湯周辺の茶臼岳火山噴出物 (安山岩) にもカオリナイトが確認されていることを考慮すると (角ら, 1980)、斜長石・輝石・かんらん石の溶解作用と斜長石のカオリナイト化作用を受けていると判断される。大丸温泉でも御宝前の湯と同様の傾向が認められ、大丸温泉 (OM3, r, s; pH6.9～7.3) は大丸温泉 (OMq; pH4.2) より Mg^{2+} と Ca^{2+} 濃度が高い (Figs. 6c, d; 世取山ら, 1992)。大丸温泉周辺の茶臼岳火山噴出物 (安山岩) にもカオリナイトが確認されることから (角ら, 1980) これらの作用を大丸温泉 (OMq) より強く受けているのであろう。以上の結果によれば、火山ガス (H_2S) が浅部地下水で酸化されて酸性 SO_4 型流体となり、その後斜長石・輝石・かんらん石の溶解作用と斜長石のカオリナイト化作用を受けて、酸性～中性 SO_4 型温泉の深部流体が形成されたと推定される。

5.1.3 $\text{SO}_4 \cdot \text{HCO}_3$ 型温泉

弱酸性～弱アルカリ性 (pH5.4～8.3) $\text{SO}_4 \cdot \text{HCO}_3$ 型の高雄 (TA1 以外)・三斗小屋 (SG1, 2, a)・大丸 (OM3, q, r, s 以外)・北・弁天・八幡温泉のなかで、5 源泉 (TA2, SG1, OM2, KT1, 2, BT1, 2) は Cl^- 濃度 1～45 mg/L, B/Cl モル比 0.09～0.74 を示し、蒸気による加熱を受けたことが示唆される (Fig. 5)。また、前述したように、大丸・北・弁天・八幡温泉の $\delta^{18}\text{O}$ と δD 値は、温泉水の天水起源を示唆する。

この型の温泉の Na^+ と HCO_3^- 濃度は直線 $\text{Na}^+ = \text{HCO}_3^-$ 付近にプロットされる (Fig. 7)。大丸温泉近くの明礬沢―白戸川および B8 調査井の茶臼岳火山噴出物 (安山岩) にスメクタイトが確認されており (村島, 1966; 角ら, 1980)、本噴出物に浸透した降水が火山性物質 (曹長石組成) の Na ―スメクタイト化作用を受けて形成された Na ― HCO_3 型降水起源水が $\text{SO}_4 \cdot \text{HCO}_3$ 型温泉の深部流体の形成に関与すると判断される。



Figure 2 からわかるように、三斗小屋 (SG1, 2, a)・大丸 (OM3, q, r, s 以外)・北・弁天・八幡温泉は Na ― HCO_3 型降水起源水と SO_4 型熱水の両端成分の混合 (混合線 ML1) からなり、三斗小屋・大丸温泉は相対的に SO_4 型熱水、北・弁天温泉は Na ― HCO_3 型降水起源水にそれぞれ富む傾向が認められる。多くの中性・弱アルカリ性 $\text{SO}_4 \cdot \text{HCO}_3$ 型温泉は中性 SO_4 型の大丸温泉 (OM3, r, s) とほぼ同程度ないし低い Mg^{2+} と Ca^{2+} 濃度を示し、 Al^{3+} と Fe^{2+} を含む (Fig. 6)。以上の結果をもとに、A4 地熱調査井は深度 78 m 付近の茶臼岳火山噴出物 (凝灰角礫岩) の割れ目から中性 (pH 6.8) $\text{SO}_4 \cdot \text{HCO}_3$ 型熱水を噴出する (Table 1; 村島, 1966) ことを考慮すると、中性 SO_4 型流体 (第 5.1.2 項) と Na ― HCO_3 型降水起源水が混合して $\text{SO}_4 \cdot \text{HCO}_3$ 型流体となり、凝灰角礫岩の割れ目に貯留されたと推定される。

トリリニアダイアグラムからわかるように、 $\text{SO}_4 \cdot \text{HCO}_3$ 型温泉のなかで Cl^- にやや富む高雄温泉 (TA1 以外) は、高雄 (TA1)・湯本などの酸性・弱酸性 $\text{SO}_4 \cdot \text{Cl}$ 型 (H_2S 型) 温泉と Na ― HCO_3

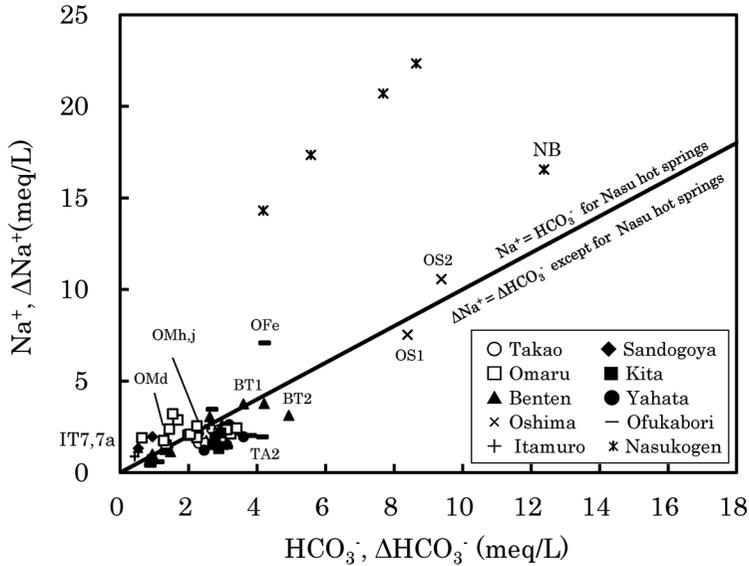


Fig. 7 $\text{Na}^+ - \text{HCO}_3^-$ and $\Delta\text{Na}^+ - \Delta\text{HCO}_3^-$ diagram for the $\text{SO}_4 \cdot \text{HCO}_3$, HCO_3 and Cl type hot spring waters from the Nasu field. The $\text{Na}^+ - \text{HCO}_3^-$ and $\Delta\text{Na}^+ - \Delta\text{HCO}_3^-$ diagrams are shown for the Nasu hot springs, and the Oshima, Ofukabori, Itamuro, Nasukogen hot springs, respectively. The location numbers are the same as in Table 1.

型降水起源水を結ぶ混合線 ML2 付近にプロットされることから (Fig. 2), 酸性 $\text{SO}_4 \cdot \text{Cl}$ 型熱水が斜長石・輝石・かんらん石の溶解作用と斜長石のカオリナイト化作用, $\text{Na} - \text{HCO}_3$ 型降水起源水の混合を受けて深部流体になったと推定される。

5.2 大島・大深堀・板室・那須高原温泉

温泉水の形成に基盤岩に閉じ込められた海水が関与する大島・大深堀・板室・那須高原温泉におけ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・欠損量を求める必要がある。試料の Cl^- がすべて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 成分の濃度を算出する。

$$\Delta[M] = [M] - [M/\text{Cl}]_{\text{sea}} \times [\text{Cl}] \tag{10}$$

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する。

$$f_{\text{sea}} = \frac{\text{Cl}_{\text{sample}} - \text{Cl}_{\text{rain}}}{\text{Cl}_{\text{sea}} - \text{Cl}_{\text{rain}}} \tag{11}$$

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

5.2.1 大島・大深堀温泉

大島温泉 (HCO_3 型; OS1, 2) の主要陽イオンは Na^+ からなり, ΔNa^+ と ΔHCO_3^- は直線 $\Delta\text{Na}^+ = \Delta\text{HCO}_3^-$ 付近にプロットされる (Figs. 2, 7; 関ら, 2004; 非公表資料)。茶臼岳火山噴出物 (安山岩溶岩) を構成するかんらん石輝石安山岩の石基には半晶質のガラスが多量に含まれており (加藤, 1964; 高橋ら, 2016), Na^+ と HCO_3^- 濃度は火山性物質 (火山ガラス) の Na -スメクタイト化作用に規制されると判断される ((9)式)。したがって, 那須火山の高標高域で茶臼岳火山噴出物に浸

透した降水が火山性物質 (火山ガラス) の Na—スメクタイト化作用を受けて Na—HCO₃ 型降水起源地となり、塩谷層群に貯留されて大島温泉 (HCO₃ 型) の深部流体になったと推定される。

大深堀温泉 (SO₄・HCO₃ 型; OFa~d, HCO₃ 型; OFf~i) の ΔNa^+ と ΔHCO_3^- も直線 $\Delta\text{Na}^+ = \Delta\text{HCO}_3^-$ 付近にプロットされる (Fig. 7; 世取山ら, 1992)。また、 ΔCa^{2+} と ΔSO_4^{2-} は直線 $\Delta\text{Ca}^{2+} = \Delta\text{SO}_4^{2-}$ 付近にプロットされ、 Ca^{2+} と SO_4^{2-} 濃度は硬石膏・石膏の溶解作用に規制される (Fig. 8a)。残る OFe 源泉 (SO₄・HCO₃ 型) は直線 $\Delta\text{Ca}^{2+} = \Delta\text{SO}_4^{2-}$ よりかなり ΔCa^{2+} に乏しい (Fig. 8a)。この源泉は直線 $\Delta\text{Na}^+ = \Delta\text{HCO}_3^-$ より ΔNa^+ に富むことから (Fig. 7)、 ΔNa^+ 過剰量を ΦNa^+ ($\Phi\text{Na}^+ = \Delta\text{Na}^+ - \Delta\text{HCO}_3^-$) とおくと、 ΔCa^{2+} に ΦNa^+ を加えた ($\Delta\text{Ca}^{2+} + \Phi\text{Na}^+$) と ΔSO_4^{2-} は直線 ($\Delta\text{Ca}^{2+} + \Phi\text{Na}^+$) = ΔSO_4^{2-} 付近にプロットされる (Fig. 8b)。以上の結果によれば、那須火山の高標高域で茶臼岳火山噴出物中に浸透した降水が火山性物質の Na—スメクタイト化作用、塩谷層群に含まれる硬石膏・石膏の溶解作用、陽イオン交換反応 (Na—スメクタイトの Ca—スメクタイト化; OFe) を受けて、大深堀温泉 (SO₄・HCO₃ 型, HCO₃ 型) の深部流体が形成されたと推定される。

5.2.2 板室温泉

那須・大島・大深堀温泉の地下では茶臼岳火山噴出物に浸透した降水による火山性物質の Na—スメクタイト化作用が進行していることが明らかとなり、那須茶臼岳周辺の温泉で広く行われていると予想される。板室温泉 (Cl 型; IT7, 7a) の ΔNa^+ と ΔHCO_3^- も直線 $\Delta\text{Na}^+ = \Delta\text{HCO}_3^-$ 付近にプロットされるが、 ΔHCO_3^- (+0.4~+0.5 meq/L) は非常に小さい (Fig. 7; 高橋, 1983; 非公表資料)。また、板室温泉 (SO₄ 型; IT1~6) も ΔHCO_3^- (+0.1~+0.5 meq/L) を僅かに含んでおり (高橋, 1983)、板室温泉 (SO₄ 型, Cl 型) の深部流体はこの風化作用を弱く受けていると推定される。

掘削井の地質調査によれば、板室温泉 (SO₄ 型, Cl 型) は福渡層 (緑色凝灰岩) を貯留母岩にしており (高橋, 1983; 鈴木, 1986)、IT7a 源泉の Cl⁻ 濃度 (525 mg/L) と B/Cl モル比 (0.02) から導かれる貯留母岩の種類 (火山岩) と一致する (Fig. 5)。この緑色凝灰岩には海水から沈殿した硫酸カルシウム (硬石膏・石膏) が含まれることが丹沢山地などで知られている (Muramatsu *et al.*, 2011)。Figure 8a からわかるように、板室温泉 (SO₄ 型; IT1~6) の ΔCa^{2+} と ΔSO_4^{2-} 間には正相関が認められ、深部流体は硬石膏・石膏の溶解作用を受けていることが示唆されるが、直線 $\Delta\text{Ca}^{2+} = \Delta\text{SO}_4^{2-}$ 付近より ΔCa^{2+} にかなり乏しい。そこで、($\Delta\text{Ca}^{2+} + \Phi\text{Na}^+$) と ΔSO_4^{2-} の関係を見ると、直線 ($\Delta\text{Ca}^{2+} + \Phi\text{Na}^+$) = ΔSO_4^{2-} 上にほぼプロットされる (Fig. 8b)。これらの結果によれば、地下に浸透

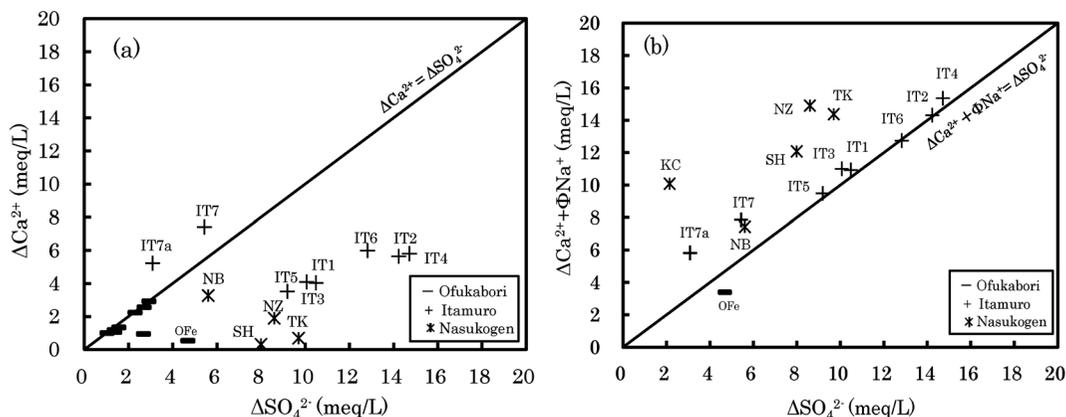
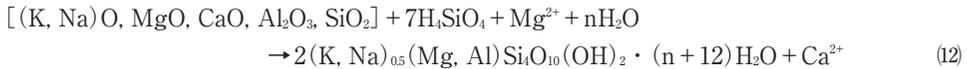


Fig. 8 $\Delta\text{Ca}^{2+} - \Delta\text{SO}_4^{2-}$ (a) and $(\Delta\text{Ca}^{2+} + \Phi\text{Na}^+) - \Delta\text{SO}_4^{2-}$ (b) diagrams for the Ofukabori, Itamuro and Nasukogen hot spring waters. The location numbers are the same as in Table 1.

した降水が火山噴出物を構成する火山性物質のNa—スメクタイト化作用（僅か）、福渡層（緑色凝灰岩）の硬石膏・石膏の溶解作用，陽イオン交換反応を受けて，板室温泉（SO₄型；IT1～6）の深部流体が形成されたと推定される。

一方，板室温泉（Cl型；IT7, 7a）はCl⁻濃度を446～525mg/L（海水混合比0.02～0.03）含む（Table 1；高橋，1983；非公表資料）。板室温泉（IT7, 7a）のSO₄²⁻/Cl⁻当量比（0.31～0.53）は現海水（0.10）より高く（ΔSO₄²⁻ = +3.1～+5.4 meq/L），ΔCa²⁺とΔSO₄²⁻間に正相関が認められることから，硬石膏・石膏の溶解作用がSO₄²⁻濃度を規制すると判断される（Fig. 8a）。Mg²⁺/Cl⁻当量比（0.004～0.027）は現海水（0.204）より低く（ΔMg²⁺ = -3.0～-2.2 meq/L；Fig. 9），このMg²⁺濃度の低下は海底堆積物（福渡層の起源物質）に閉じ込められた間隙水（化石海水）が母岩を構成する火山性物質のMg—スメクタイト化作用の影響を受けたことに起因すると考えられる（Lawrence *et al.*, 1975；Scholz *et al.*, 2013；村松，2019）。



これらの特徴をもとに，硬石膏・石膏の溶解由来のCa²⁺を除くCa²⁺量をΦCa²⁺（ΦCa²⁺ = ΔCa²⁺ - ΔSO₄²⁻）とおくと，板室温泉（IT7, 7a）は直線（ΦCa²⁺ + ΦNa⁺） = -ΔMg²⁺付近にプロットされる（Fig. 9）。以上の結果によれば，板室温泉（Cl型；IT7, 7a）の水質形成機構は次のようにまとめられる。中新世の埋没過程で海底堆積物（福渡層の起源物質）に閉じ込められた間隙水（化石海水）は火山性物質のMg—スメクタイト化作用を受けた後に，福渡層（緑色凝灰岩）の割れ目に移流・貯留された。そして陸化した後，那須火山の高標高部で地下に涵養された降水が火山噴出物を構成する火山性物質のNa—スメクタイト化作用（僅か），福渡層（緑色凝灰岩）の硬石膏・石膏の溶解作用，陽イオン交換反応（僅か）を受けた降水起源水に変化し，同層の割れ目に貯留された海水起源水と混合して深部流体になったと推定される。

5. 2. 3 那須高原温泉

那須高原温泉（Cl型；SH, TK, KC, NB, NZ）はCl⁻濃度を539～1,359mg/L（海水混合比0.03～

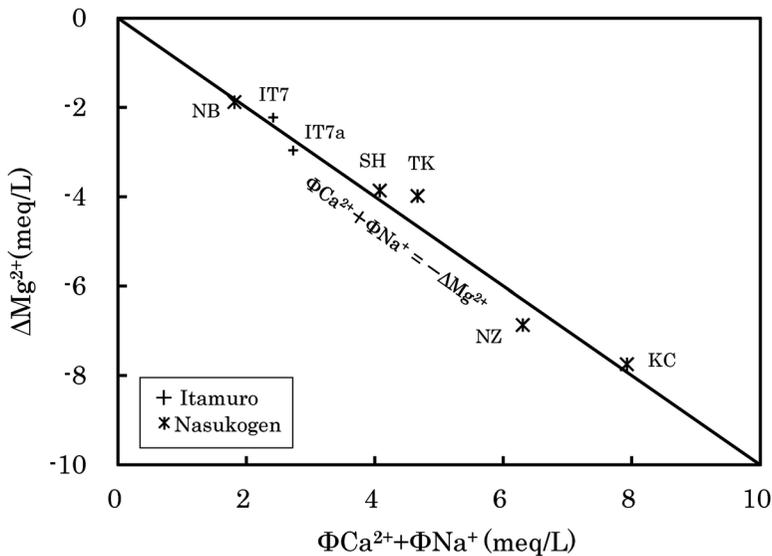


Fig. 9 (ΦCa²⁺ + ΦNa⁺)—ΔMg²⁺ diagram for the Itamuro and Nasukogen hot spring waters. The location numbers are the same as in Table 1.

0.07) 含む (Table 1; 非公表資料). このうち, 3 源泉 (SH, TK, KC) の Cl^- 濃度 (709~1,359 mg/L), B/Cl モル比 (0.05~0.06) は火山岩が貯留母岩であることを示唆する (Fig. 5). 那須高原温泉は深層掘削によって塩谷層群から深部流体を回収していることを勘案すると, 福渡層 (緑色凝灰岩) が貯留層であると判断される. $\text{SO}_4^{2-}/\text{Cl}^-$ 当量比 (0.16~0.59) は現海水 (0.10) より高く ($\Delta\text{SO}_4^{2-} = +2.1 \sim +9.7$ meq/L), 福渡層 (緑色凝灰岩) の硬石膏・石膏の溶解作用が SO_4^{2-} 濃度を規制すると推定されるが, 那須高原温泉 (NB を除く) の ΔCa^{2+} と ΔSO_4^{2-} は直線 $\Delta\text{Ca}^{2+} = \Delta\text{SO}_4^{2-}$ より ΔCa^{2+} にかなり乏しい (Fig. 8a). 一方, 那須高原温泉 (NB を除く) の ΔNa^+ と ΔHCO_3^- は正相関を示し, 直線 $\Delta\text{Na}^+ = \Delta\text{HCO}_3^-$ より ΔNa^+ にかなり富むことから (Fig. 7), 陽イオン交換反応 (Na—スメクタイトの Ca—スメクタイト化) の進行が示唆される. また, 那須高原温泉の $\text{Mg}^{2+}/\text{Cl}^-$ 当量比 (0.002~0.081) は板室温泉 (IT7, 7a) と同様に現海水 (0.204) より低く ($\Delta\text{Mg}^{2+} = -7.8 \sim -1.9$ meq/L; Fig. 9), ($\Phi\text{Ca}^{2+} + \Phi\text{Na}^+$) と ΔMg^{2+} は直線 ($\Phi\text{Ca}^{2+} + \Phi\text{Na}^+$) = $-\Delta\text{Mg}^{2+}$ 付近にプロットされる (Fig. 9). 以上の結果に基づけば, 那須高原温泉をもたらした深部流体の水質形成機構は火山性物質の Na—スメクタイト化作用と陽イオン交換反応を強く受けている点を除けば, 板室温泉 (Cl 型; IT7, 7a) と同じである.

6. ま と め

茶臼岳周辺に分布する那須・大島・大深堀・板室・那須高原温泉を対象に長期間の主成分・安定同位体比データを収集し, 地質鉱物学的視点で検討した結果, 得られた水質形成機構は次のとおりである.

(1) 那須温泉は酸性・弱酸性 $\text{SO}_4 \cdot \text{Cl}$ 型 (H_2S 型) (湯本・高雄・郭公温泉), 酸性~中性 SO_4 型 (三斗小屋・御宝前の湯・大丸温泉), 弱酸性~弱アルカリ性 $\text{SO}_4 \cdot \text{HCO}_3$ 型 (三斗小屋・大丸・弁天・八幡・高雄温泉) に属し, 深部流体は次の過程で形成された. 茶臼岳深部から上昇した高温火山ガス (SO_2 , HCl など) が深部地下水に混入して気液分離すると, 液相に酸性 $\text{SO}_4 \cdot \text{Cl}$ 型流体が生じ, 茶臼岳火山噴出物を構成する斜長石・輝石・かんらん石の溶解作用と斜長石のカオリナイト化作用を受けて酸性・弱酸性 $\text{SO}_4 \cdot \text{Cl}$ 型流体に変化した. 一方, 気相の火山ガス (H_2S) は殺生石噴気帯などで噴気ガスをもたらすとともに, 浅部地下水によって酸化されて酸性 SO_4 型流体となり, 上述の作用を受けて酸性~中性 SO_4 型流体に変化した. さらに, この SO_4 型流体が Na— HCO_3 型降水起原水で希釈されて弱酸性~弱アルカリ性 $\text{SO}_4 \cdot \text{HCO}_3$ 型流体が形成された.

(2) 大島温泉は HCO_3 型に属し, 高標高域で茶臼岳火山噴出物に浸透した降水が火山性物質の Na—スメクタイト化作用を受けた Na— HCO_3 型降水起原水である. 大深堀温泉は $\text{SO}_4 \cdot \text{HCO}_3$ 型と HCO_3 型, 板室温泉 (多源泉) は SO_4 型に属し, Na— HCO_3 型降水起原水が福渡層 (緑色凝灰岩) に含まれる硬石膏・石膏の溶解作用と陽イオン交換反応を受けて深部流体が形成された. また, 板室温泉 (1 源泉) と那須高原温泉は Cl 型に属し, 海底堆積物 (福渡層の起原物質) に閉じ込められて火山性物質の Mg—スメクタイト化作用を受けた間隙水 (化石海水) が福渡層 (緑色凝灰岩) の割れ目に移流・貯留された後, 硬石膏・石膏の溶解作用と陽イオン交換反応を受けた Na— HCO_3 型降水起原水と混合して Cl 型流体になった.

謝 辞

2 名の査読者には懇切丁寧なご指摘を頂きました. ここに記して深く感謝いたします.

引用文献

阿久津純 (1986) : (5) 高久・喜連川丘陵および那須野が原, 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, 182-184, 共立出版, 東京.
- 伴 敦志 (2010): 栃木県那須野が原の扇状地形成以前の地史. 那須野が原博物館紀要, **6**, 1-10.
- 千田 侑 (1996): 地球化学反応速度と移動現象. p. 175, コロナ社, 東京.
- 平山光衛 (1974): 4. 栃木県温泉の化学. 温泉科学, **25**, 75-80.
- 平山光衛, 鈴木陽雄, 守塚清司 (1990): 那須山麓の温泉について. 宇都宮大教育紀要, 第2部 (通号40), 89-102.
- 池田長生 (1954a): 那須温泉の化学的研究 (第1報) 湯本温泉における主要化学成分の分布. 日本化学雑誌, **75**, 362-365.
- 池田長生 (1954b): (第2報) 湯本温泉及び辨天温泉の化学組成. 日本化学雑誌, **75**, 366-368.
- 池田長生 (1954c): (第3報) 湯本温泉元湯の化学組成について (その1). 日本化学雑誌, **75**, 368-371.
- 池田長生 (1954d): (第4報) 湯本温泉元湯の化学組成について (その2). 日本化学雑誌, **75**, 463-465.
- 池田長生 (1954e): (第5報) 湯本温泉元湯の化学組成について (その3) 日本化学雑誌, **75**, 465-468.
- 池田長生 (1954f): (第6報) 湯本温泉元湯の化学組成について (その4) 日本化学雑誌, **75**, 468-471.
- 池田長生 (1954g): (第7報) 湯本温泉元湯の化学組成について (その5) 日本化学雑誌, **76**, 711-713.
- 池田長生 (1954h): (第8報) 湯本温泉元湯の化学組成について (その6) 日本化学雑誌, **76**, 713-716.
- 池田長生 (1955a): (第9報) 湯本温泉元湯の化学組成について (その7) 日本化学雑誌, **76**, 833-836.
- 池田長生 (1955b): (第10報) 湯本温泉元湯の化学組成の日変化. 日本化学雑誌, **76**, 836-839.
- 池田長生 (1955c): (第11報) 湯本温泉元湯の温泉沈殿物について (その1). 日本化学雑誌, **76**, 1071-1073.
- 池田長生 (1955d): (第12報) 湯本温泉元湯の温泉沈殿物について (その2). 日本化学雑誌, **76**, 1073-1076.
- 池田長生 (1955e): (第13報) 湯本温泉元湯の温泉沈殿物について (その3). 日本化学雑誌, **76**, 1076-1079.
- 犬山文孝, 島田寛一, 鴫田洋行, 横井浩一 (1999): 地熱発電所環境保全実証調査. 温泉・地下水系影響予測マニュアル (1). 地熱エネルギー, **87**, 245-281.
- 鎌田政明, 小沢竹二郎, 村上悠紀雄, 吉田 稔 (1985): 地熱流体の化学—環境科学の視点から—. p. 215, 東京大学出版会, 東京.
- 加藤祐三 (1964): 那須火山の岩石学的研究. 岩鉱, **51**, 233-243.
- 木下貴裕, 神田 径, 高倉伸一, 関 香織, 松永康生, 木下雄介, 相澤広記 (2018): AMT 調査と土壌ガス拡散放出量測定による那須茶臼岳溶岩ドームの熱水系構造の推定. 日本地球惑星科学連合2018年大会. SVC42-07.
- 久保和也, 柳沢幸夫, 山元孝広, 中江 訓, 高橋浩, 利光誠一, 坂野靖行, 宮地良典, 高橋雅紀, 駒澤正夫, 大野哲二 (2007): 20万分の1地質図幅「白河」. 産業技術総合研究所地質調査総合センター.
- 日下部実, 松尾禎士, 堀部純男 (1968): 那須岳火山ガス凝縮水および周辺表面水の同位体地球化

- 学. 地球化学, **2**, 46-47.
- 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 (1991) : 熱水の地球化学. p. 139, 裳華堂, 東京.
- 村松容一 (2019) : 日本の油・ガス田におけるかん水の水質形成機構—続成変質による間隙水の進化—. *温泉科学*, **69**, 20-36.
- 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.
- 村島侃一 (1966) : 那須地域の地熱調査概報. *地熱*, **7**, 7-18.
- 那須町観光協会 (2020) : 那須の温泉. 那須町観光ガイド, (一社)那須町観光協会. <https://www.nasukogen.org/nasuonsen/>. (2020. 5. 19 閲覧).
- 新野 弘 (1933) : 下野山地東北縁の地質 (1). *地質学雑誌*, **40**, 517-532.
- 酒井 均, 大木靖衛 (1978) : 日本の温泉. *科学*, **48**, 41-52.
- 佐藤幸二, 甘露寺泰雄, 田中 昭, 高橋 保 (1977) : 那須湯本, 殺生石地帯の地温分布. *温泉科学*, **28**, 178-187.
- 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.
- 世取山守, 長門顕子, 谷田部秀夫, 福田尚二, 岡田安雄 (1992) : 那須温泉の地区特性について—泉温と化学成分の関係, 成分等の濃度分布, 噴気泉, 飲用のための細菌汚染状況—. *栃木衛研研報*, **22**, 57-68.
- Scholz, F., Hensen, C., Schmidt, M. and Geersen, J. (2013) : Submarine weathering of silicate minerals and the extent of pore water freshening at active continental margins. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **100**, 200-216.
- 角 清愛, 金原啓司, 高島 勲 (1980) : 日本の鮮新世後期から完新世の熱水変質帯・温泉沈殿物一覧. p. 84, 地質調査所, 東京.
- 鈴木陽雄 (1964) : 那須温泉について. 宇都宮大学学芸学部研究論集, 第 2 部 (通号 13), 17-24.
- 鈴木陽雄 (1986) : (6) 那須岳周辺の温泉. *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, 239-240, 共立出版, 東京.
- 鈴木陽雄, 人見 功, 守塚清司 (1969) : 板室温泉付近の地質と温泉. 宇都宮大教育紀要, 第 2 部 (通号 19), 64-75.
- 高橋正樹, 中島洋一, 安井真也, 金丸龍夫, 南雲 旭 (2016) : 那須茶臼岳火山噴出物の全岩主化学組成—分析データ 114 個の総括—. *日大文理学部自然科学研究所研究紀要*, **51**, 129-177.
- 高橋 保 (1983) : 板室温泉における温泉水の流動状況に関する考察. *地球科学*, **37**, 126-135.
- 山元孝広 (2008) : 7.4.1 那須火山群. *日本地方地質誌 3 関東地方*. 日本地質学会編, 447-449, 朝倉書店, 東京.
- 山元孝広, 伴 雅雄 (1997) : 那須火山地質図. p. 8, 地質調査所, 東京.
- 山元孝広, 滝沢文教, 高橋 浩, 久保和也, 駒澤正夫, 広島俊男, 須藤定久 (2000) : 20 万分の 1 地質図幅「日光」. 地質調査所.
- 吉田則夫 (2012) : 火山噴火予知連絡会会報, 112, 5.
- 吉川和男, 堺本由紀 (2007) : 希硫酸溶液による造岩鉱物の変質. 群馬大学教育学部紀要. 自然科学編, **55**, 59-75.