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—

網田 和宏^{*1}・大沢 信二^{*2}・西村 光史^{*3}・山田 誠^{*4}・
三島 壮智^{*2}・風早 康平^{*5}・森川 徳敏^{*5}・平島 崇男^{*6}

Origin of saline waters distributed along the Median Tectonic Line in south-west Japan: Hydrogeochemical investigation on possibility of derivation of metamorphic dehydrated fluid from subducting oceanic plate

Kazuhiro AMITA^{*1}, Shinji OHSAWA^{*2}, Koshi NISHIMURA^{*3}, Makoto YAMADA^{*4},
Taketoshi MISHIMA^{*2}, Kohei KAZAHAYA^{*5}, Noritoshi MORIKAWA^{*5} and Takao HIRAJIMA^{*6}

Abstract

To identify of metamorphic dehydrated fluid as source fluid of hot spring water, we conducted chemical and isotopic analyses of water and accompanied gas samples collected from hot-spring wells along the Median Tectonic Line (MTL) in the forearc region of the southwestern part of Japan. As a result, we found the hot spring waters having anomalous δD and $\delta^{18}O$ compositions as compared with modern seawater and shallow groundwater in Wakayama and Shikoku regions. Judging from data in relative B–Li–Cl composition and He isotopic systematics, the source fluid of the hot springs in Shikoku could be identified to be one of diagenetic fluids. On the other hand, the source fluid of the hot springs of Wakayama had different B–Li–Cl composition and higher $^3He/^4He$ ratio in comparison with diagenetic dehydrated fluids and then the fluid was thought to be originated from metamorphic dehydrated fluid as well as Oita plain. There was another striking contrast between the source fluid of Wakayama and Oita and that of Shikoku and Miyazaki; accompanied gases by the former were rich in CO_2 , whereas those with the latter were rich in CH_4 , and CO_2 in the accompanied gases of Wakayama and Oita is mostly derived from marine carbonate like volcanic gases in subduction zones. Moreover, the Li–B–Cl compositions of them showed transitive values between the relative composition of diagenetic fluids and those of volcanic thermal waters. Consequently, the source fluid of hot springs in Wakayama and Oita was likely to be dehydrated metamorphic fluids released from the subducting Philippine-Sea plate.

Key words: hot spring water, dehydrated fluid from subducting plate, Median Tectonic Line

-
- * 1 秋田大学大学院工学資源学研究科地球資源学専攻 Department of Earth Science and Technology, Graduate School of Engineering and Resource Science, Akita University
 - * 2 京都大学大学院理学研究科附属地球熱学研究施設 Beppu Geothermal Research Laboratory, Institute for Geothermal Sciences, Graduate School of Science, Kyoto University
 - * 3 東洋大学経済学部経済学科自然科学研究室 Natural Science Laboratory, Faculty of Economics, Toyo University
 - * 4 総合地球環境学研究所 Research Institute for Humanity and Nature
 - * 5 産業技術総合研究所地質情報研究部門 The Institute of Geology and Geoinformation (IGG), Advanced Industrial Science and Technology
 - * 6 京都大学大学院理学研究科地質学鉱物学教室 Department of Geology and Mineralogy, Graduate School of Science, Kyoto University

※本研究の概要は、2012年度日本水文科学会学術大会において発表した。

I. はじめに

近年、非火山地域において深い井戸掘削によって得られる「大深度温泉」の開発が盛んに行われている。しかし深井戸の掘削による温泉開発自体の歴史は古く、1960年代以降に開発されたこのような温泉は「深層熱水」（例えば茂野，1982）と呼ばれ、一時活発に研究された。そして、深層熱水型温泉の起源については長らく、「地下深くに埋没した地層の陸水性あるいは海水由来の間隙水が地温により加熱されたものである」とする考えが広く浸透していた。

九州東部、北東に瀬戸内海を望む大分平野にも、そのような深層熱水型温泉が多く分布しており、著者の一人の大沢はこれらに対して、B/Cl比を用いて起源に関する予察的研究を行い（大沢，1996）、続いて熱水に溶存する炭酸の炭素安定同位体比（ $\delta^{13}\text{C}$ ）に着目した研究を行った（大沢，2001）。その結果、深層熱水型温泉水の溶存炭酸には深部起源の CO_2 が様々な割合で混入しており、特に Na-Cl-HCO_3 型に分類される高塩分の熱水については、その炭酸成分のほとんどが深部起源 CO_2 に由来するものであることが明らかとなった。これは、深層熱水の起源を堆積層中の化石海水に求める従来の解釈とはかけ離れたものであり、その起源や成因について考え直す契機となった。この結果を受け、網田ほか（2005）は大分平野の深層熱水型の温泉水に対して水素・酸素同位体比の測定を行い、溶存炭酸のほとんどが深部起源を示唆する深層熱水の中に、有馬型熱水に酷似する異常な水素・酸素同位体比を示す極めて塩分濃度の高い熱水を見出した。そして、これらの熱水が変成脱水流体に由来するものではないかと考えたが、そのことを決定づけるまでには至らなかった。

そこで大沢ほか（2010）は、続成作用や変成作用など地質学的過程において様々な脱水流体が生み出され、それぞれに由来する温泉水が存在しているならば、各々の化学・同位体組成にみられる特徴を整理し、違いを明確にしていけることが変成脱

水流体の本質的な理解のために有効であろうとの考えのもと、宮崎平野において変成作用より浅所（200°C, 2 kbar 以下；例えば水谷・歌田，1987）で発生することが予想される続成脱水流体の探索を行った。そして、得られたデータに対する種々の地化学解析結果の解釈や考察から、宮崎平野の温泉の起源流体が、堆積物の間隙に含まれる海水と粘土鉱物の層間より脱水する流体の2種類の続成脱水流体であることを明らかにした（大沢ほか，2010）。この研究は、非火山地域の温泉水について、得られる地球化学データを起源判定図への単なる照らし合わせで終わらせることなく、その特徴を吟味し、地質学的・鉱物学的諸情報を交えて多角的に検討することで、「堆積物の間隙からの絞り出し」や「粘土鉱物の層間からの脱水」などのように、温泉起源流体の生成過程について具体的な推定が可能となることを示すものであった。

そこで著者らは、非火山地域の温泉の起源流体を変成脱水流体に求めることができるのかどうか、その可能性について、網田ほか（2005）や大沢ほか（2010）など既存論文のデータ、知見に加え、新たな現地調査で取得したデータから再度、検討を行うことにした。新たな調査地域は、四国地域および紀伊半島西部地域（以後、和歌山地域と呼ぶ）で、網田ほか（2005）と大沢ほか（2010）で得た「塩分濃度の高い温泉水や鉱泉水に同位体比異常の水が見つかることが多い」という経験に基づき、特に中央構造線沿いに分布する塩分濃度の高い温泉水に注目した。この四国地域や和歌山地域は西南日本の前弧域に位置しており、主にHe同位体比の測定結果から、深部（マントル）に由来するHeの分布が確認され、深部流体の上昇が示唆されている地域である（例えば、Matsumoto et al., 2003; Dogan et al., 2006; Umeda et al., 2006; Sano and Nakajima, 2008; Sano et al., 2009 など）。

II. 研究試料および化学・同位体分析

本研究の対象地域の中央を東西に走る中央構造線は、総延長が1000 kmを超える活断層であり、地域の地質に関しては、四国地方に代表されるように、東西性の帯状構造を示す地質帯と東西性の構造線の存在が大きな特徴となっている。四国地方の中・古生界は、北から領家帯、三波川帯、秩父累帯、四万十帯に分けられ、中央構造線は、領家変成岩類の南縁に沿って分布する上部白亜系の和泉層群と南側の三波川変成岩類を分ける地質境界断層として認められる。同様に三波川帯と秩父累帯の地質境界は御荷鉾構造線によって、秩父累帯と四万十帯との地質境界は仏像構造線によって隔てられている。四国地方にみられる帯状の地質構造は紀伊半島の西部までは連続性が良く同様の地質が分布するが、九州地方では大きく乱れ、東方からの連続が不明瞭なところが見受けられるようになる。九州東部において和泉層群は認められず、また三波川帯は佐賀関半島までは連続しているが、それより西側に関しては分布が確認されていない。そのため、四国から九州まで伸びてきた中央構造線は、佐賀関半島の三波川帯の北縁につづき、それより西では白亜系と新生代の火山岩類に覆われるが、南西に方向を変え、白杵-八代構造線に合流すると考えられている（寺岡，1970；Ichikawa, 1980）。

温泉水試料の採取は、和歌山、四国地域の計12地点において行った（Fig. 1）。Fig. 1にはフィリピン海プレートの沈み込みの方向および沈み込み深度と、中国・四国地方における火山前線の位置も図示した。前述したように、本研究の目的は温泉の起源流体と考えられる深部に由来する流体をとらえ、その起源および流体の形成過程に関する地球化学的情報を得ることにある。そのため、採水は深部由来の流体が得られる可能性の高い地点を対象を限定して行うことにした。また、大分平野、宮崎平野における研究の経験から、深部起源流体は深度500 mを超えるような掘削井より得られるNa-Cl・HCO₃型水質の高塩分の温泉水

や鉱泉水に見出される場合が多いことが分かっていたため、手に入る温泉分析書や旅行雑誌に掲載されている水質・塩分濃度情報などを用い、採水候補地点（泉源）を抽出した。前出の選定された12地点は、そのような候補地点から現地調査によって得た掘削深度の情報なども加味して、最終的に絞り込んだものである。

採水地点12地点のうち、和歌山地域は1地点のみであるが、この採水地点では掘削深度の異なる井戸が4本設置されており、それぞれの井戸で採水を行った。四国地域については中央構造線からずれた高知県に位置する温泉水の採水も行ったが（Fig. 1）、その理由は四国の中央構造線沿いでは掘削深度が大きい温泉がなかなか見つけられなかったためである。高知県には掘削深度が1000 mを超える温泉井が存在し、高塩分温泉水の湧出があったので、中央構造線に匹敵するような地質構造線である「仏像構造線」に期待し、研究対象地域に加えて採水を行った。温泉付随ガスが採取できる配管状態にある泉源では、水上置換法にて気泡状のガスの採取を行った。また、網田ほか（2005）によって深部起源流体とされた大分平野の高塩分温泉（Oita-11）と、宮崎平野の粘土鉱物層間脱水流体のグループに属する温泉（M6；大沢ほか，2010）からも付随ガス試料を採取した。

試料水の分析は、HCO₃⁻を除く主要化学成分（Na⁺、K⁺、Ca²⁺、Mg²⁺、Cl⁻、SO₄²⁻）とLi⁺はイオンクロマトグラフィーで、Bは分光光度法（アゾメチンH法）で行った。全溶存炭酸（DIC）濃度は、試料水を硫酸酸性にして試料中の炭酸成分（CO_{2(aq)}、HCO₃⁻、CO₃²⁻）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。HCO₃⁻濃度はDIC濃度の測定値と水温、pHの値を用いて化学平衡計算から求めた。

水の水素・酸素の同位体比（ δD と $\delta^{18}O$ ）の測定は、質量分析計を用いて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 $\pm 1.0\text{‰}$ 、

Fig. 1 (A) Location of the study area with topdepth contours of the Philippine Sea plate and quaternary volcanic front of SW Japan. Map showing locations of newly investigated hot spring (open circle) at Wakayama area with formerly investigated hot spring sites (open diamonds) at Oita and Miyazaki areas (Amita et al., 2005 and Ohsawa et al., 2010, respectively). MTL: Median Tectonic Line. (B) Map showing locations of hot springs newly investigated in the Shikoku area (open circles) with major tectonic lines.

Table 1 Chemical and isotopic data of sampled hot spring waters with information on depth of well and water temperature.

ID	Sampling Date	Well depth (m)	Temp (°C)	pH	Li	Na	K	Mg	Ca	Cl	SO ₄	HCO ₃	B	δD	δ ¹⁸ O
					(mg/L)									(‰)	
SK1(S1)	2005/2/17	65	9.9	8.3	0.4	1520	17.5	8.3	15.0	1930	38.4	913	15.5	-46.6	-6.2
SK2	2009/6/8	1800	21.5	7.3	6.8	2480	14.3	46.3	248	4100	n.d.	281	39.6	-55.5	-7.2
SK3	2009/6/9	1550	20.3	7.8	10.0	2600	21.3	14.5	27.9	3220	21.2	1740	87.2	-32.9	-3.6
SK4	2009/6/9	--	36.2	8.6	0.6	391	1.9	0.6	11.2	471	n.d.	219	36.5	-41.4	-6.3
SK5	2009/6/9	1758	31.3	7.7	2.0	3220	16.2	49.4	291	5840	10.3	178	29.4	-23.9	-3.7
SK6	2009/6/9	--	17.5	9.2	n.d.	32.2	0.5	0.6	4.5	62.7	3.5	150	5.5	-39.9	-6.7
SK7	2009/6/10	--	30.8	8.2	2.5	4290	25.0	87.5	5130	16300	13.5	13.7	0.4	-22.5	-3.7
SK8	2009/6/10	1300	35.9	8.8	0.4	321	1.7	0.2	20.2	503	n.d.	44.9	76.0	-40.5	-6.4
SK9	2009/6/10	--	23.1	9.1	n.d.	374	1.1	0.5	14.0	339	n.d.	14.5	30.9	-35.2	-5.0
SK10 (S2)	2009/6/11	--	24.1	8.3	4.5	4930	11.0	2.5	736	8750	n.d.	106	102	-34.0	-0.7
SK11	2009/6/11	--	20.9	8.2	1.4	282	2.4	4.3	6.7	238	5.4	336	7.9	-36.7	-6.2
W1_d1 (W)	2005/7/16	741	23.4	6.5	86.9	17500	284	174	187	24900	n.d.	7410	442	-33.3	5.2
W1_d2	2005/7/16	135	21.9	5.9	0.7	900	8.5	82.7	135	1460	10.0	715	19.9	-53.1	-7.6
W1_d3	2005/7/16	50	23.9	6.3	n.d.	18.3	1.3	3.7	12.0	13.1	14.6	63	0.3	-48.7	-7.3
W1_d4	2005/7/16	350	23.2	5.9	4.2	920	10.7	62.5	96.8	1420	10.0	630	23.0	-52.4	-7.4

±0.1‰である。DICおよびCO₂ガスの炭素安定同位体比 (δ¹³C) は、試料水およびCO₂ガスを吸収したアルカリ溶液にSr(OH)₂を加え加熱し、沈殿したSrCO₃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CO₂を質量分析計に導入し測定した。測定精度は±0.2‰である。これら安定同位体比の測定は、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) に依頼した。また、和歌山地域および大分地域の付随ガスの化学組成と希ガス同位体比 (³He/⁴He, ⁴He/²⁰Ne) の測定は、産業技術総合研究所において行い、四国地域の付随ガスの化学組成は京都大学大学院理学研究科附属地球熱学研究施設において測定を実施した。四国ならびに宮崎地域の希ガス同位体比 (³He/⁴He, ⁴He/²⁰Ne) については、九電産業株式会社環境部に測定を依頼した。

分析により得られた温泉水試料の主要化学組成および水の酸素・炭素同位体比をTable 1に、付随ガスの化学組成と希ガス同位体比 (³He/⁴He, ⁴He/²⁰Ne)、温泉水のDICの濃度と炭素同位体比 (δ¹³C) の測定結果についてはTable 2に示した。ただしTable 2において、大分地域の温泉水 (Oita-11) のDIC濃度と炭素同位体比は網田ほか (2005) から、宮崎地域の付随ガス (M6) の主要

化学組成のデータは大沢ほか (2010) から再録したものである。

Ⅲ. 結 果

1. 水の酸素・炭素安定同位体組成

本研究が対象としている深部に起源をもつ流体は、天水起源の地下水に比べ塩分濃度が高く、海水と比べて水の同位体組成に異常がみられるという共通の性質を持っている。そこで、試料水の酸素と炭素の安定同位体比の関係をδD-δ¹⁸Oダイアグラムで検討した (Fig. 2)。図中には天水線 (MWL : meteoric water line; δD = 8 × δ¹⁸O + 10) のほかに、現海水、天水起源地下水の範囲ならびに変成岩と平衡にある流体 (metamorphic water) が示す同位体比の範囲 (例えば佐々木, 1977) をそれぞれ実線ないし点線の囲みで表した。天水起源地下水の範囲は、網田ほか (2005) の浅層地下水、大沢ほか (2010) の河川水のデータに加え、四国地域の河川水の取得データなどを参考にして推定した範囲を示した。さらに、今回新たに取得した試料の同位体比と比較するために、宮崎平野の温泉の研究 (大沢ほか, 2010) で見出された粘土鉱物層間脱水流体起源の温泉水 (Dehydrated inter-layer water from clay min-

Fig. 2 Relation between hydrogen and oxygen isotopic ratios of hot spring waters obtained from Wakayama and Shikoku areas with the range of metamorphic fluid (e.g., Sasaki, 1977) and modern seawater. Solid straight line labeled MWL expresses global meteoric water line: $\delta D = 8 \times \delta^{18}O + 10$. Two hatched circular ranges (squeezed pore water from marine sediments and dehydrated inter layer water from clay mineral) show diagenetic fluids in Miyazaki plain (Ohsawa et al., 2010). Two closed squares (O1 and O2) show saline waters found in Oita plain (Amita et al., 2005). Range of shallow groundwater is estimated from ground waters in Oita plain (Amita et al., 2005) and river waters in Miyazaki plain and Shikoku area (Ohsawa et al., 2010; this study).

eral) および海底堆積物間隙の海水に由来する堆積層の圧密による絞り出しでもたらされた温泉水 (Squeezed pore water from marine sediments) が示す同位体比の範囲についても実線の囲みで表した。大分地域の温泉の深部起源流体については、網田ほか (2005) によって端成分的であることが確認されている2地点の温泉データ (Oita-09, Oita-11) についてのみ取り上げ、図中において表記が煩雑になることを避けるために、Oita-11をO1, Oita-09をO2として表した。

四国地域で採取した温泉水試料の水素・酸素同位体組成は、多くが天水線に沿った分布を示したが、SK5, SK7については天水起源地下水と現海水および海底堆積物間隙内の海水 (以後、特に断らない限り、古海水と略称する) の間にプロットされていることから、これらの温泉水は、天水起源地下水と海水あるいは古海水とが様々な割合で混合することによって形成されたものであると考えられる。これに対してSK1', SK3, SK9, SK10の4試料については天水線から高 $\delta^{18}O$ 側へ外れてプロットされており、特に、SK1'

(図中、白抜き△で示した) とSK10の2地点については、四国地域で得られた他の試料と比べて天水線から大きく外れてプロットされている($\delta^{18}O$ 値でそれぞれ -1.1 ‰ , -0.7 ‰)。ここで、SK1'について説明する。今回採水した試料SK1では、溶存成分の濃度が掘削時に採取・分析された成分濃度 (愛媛県立衛生環境研究所, 1999) と比較して明らかに低い値であった。しかし、両者ともに主要な陽イオンと陰イオンであるNaとClの比率 (Na/Cl比) を掘削時と調査時とで比較してみたところ、前者で0.78, 後者で0.79となり、成分比はほとんど変わっていないと考えられた。これは井戸掘削後の温泉水の継続的な汲み上げにより表層より塩分濃度に乏しい天水起源の地下水 (例えば、SK1近傍の河川水 [Cl^- 濃度: 1.5 mg/L , $\delta D: -52.8\text{ ‰}$, $\delta^{18}O: -8.7\text{ ‰}$]) の混入量が増え、希釈されたことによって生じた結果であると考えた。そこで、調査時の温泉水 (SK1) と河川水の塩化物イオン (Cl^-) 濃度と δD 値の関係を直線的に外挿し、掘削当時のCl濃度から掘削当時の δD 値を推定した。同様の方法で

掘削当時の $\delta^{18}\text{O}$ 値も推定した。SK1'は、このようにして推定した同位体比をプロットしたものである。

SK1'やSK10のプロット位置は、天水起源地下水と大分地域の温泉の深部起源流体とを結ぶ混合線上にあり、SK1'やSK10の高塩分温泉水が、現海水や堆積層内の古海水が天水起源地下水に混合して形成されたものではないことを示している。また、SK3およびSK9の2試料については、四国地域の温泉水の多くが属する天水線沿いのプロット領域の上端とSK1'、SK10を結ぶ線上にプロットされていることから、SK1'やSK10のような高塩分の温泉水に地域の天水起源地下水が混入することによって生成したものとして説明することが可能である。

和歌山地域の試料については、前述のように、すべてが同じ敷地内で掘削された、異なる深さの井戸から得られたものであり、最も深い井戸（掘削深度741 m）であるW1_d1以外の3試料の同位体比はすべて天水起源地下水の領域内にプロットされるが、W1_d1は明らかに変成岩と平衡にある流体（水）の同位体比の範囲内にプロットされた。この試料は塩化物イオン濃度も我々がこれまでに採取した高塩分温泉水試料の中で最高の24,900 mg/Lと極めて高い値を示し、大分を含む当該地域の温泉の深部起源流体の端成分を表す温泉水のひとつである可能性が高い。

以上のように四国、和歌山の両地域において、天水線から大きく外れる同位体組成を示す高塩分温泉水が得られ、温泉の深部起源流体の物質科学的特徴を探っていく素地ができたと考える。現海水や堆積層内の古海水と比べて酸素同位体比が高く、水素同位体比が低いという特徴は、大分地域で得られた高塩分温泉水のそれと同様の傾向であり、通常の地下水の形成過程では得ることのできない同位体組成である。この様な同位体組成は、岩石-水相互作用によって天水性地下水から作り出すことができるという考えもあるが（例えば、酒井・松久, 1996）、同時に1万mg/Lを超える塩分濃度を作り出すことは困難である（例えば、

Ellis and Mahon, 1963; Ellis and Mahon, 1967の高塩実験結果を参照）。以降では、これら高塩分・異常同位体組成を持つ和歌山地域のW1_d1および四国地域のSK1'とSK10を、それぞれの地域における温泉深部起源流体の端成分として扱い、表記を簡単にするために、それぞれWおよびS1, S2とし、それらの化学組成や同位体組成に着目し、特徴を整理していくことにする。

2. 総塩分濃度と水の水素同位体比（ δD ）の関係

Fig. 3は、水素・酸素同位体組成図（ δD - $\delta^{18}\text{O}$ ダイアグラム）上に示した各試料の δD 値と総塩分濃度の間にみられる関係を示したものである。この図において、現海水（Modern sea water）、堆積層内の古海水（Squeezed pore water from marine sediments）および粘土鉱物層間脱水流体（Dehydrated inter-layer water from clay mineral）の値がとる範囲はそれぞれ異なっており、これらの温泉起源流体と天水起源地下水を直

Fig. 3 Relation between δD and TDS (Total Dissolved Solids) of hot spring waters at Wakayama and Shikoku areas with range of shallow groundwater (see Fig. 2 for δD), modern seawater and the ranges of two diagenetic fluids in Miyazaki plain (squeezed pore water from marine sediments and dehydrated inter layer water from clay mineral). Closed circles with symbols (W, S1, S2, O1, O2) show end-members of source deep thermal fluids of hot springs in Wakayama, Shikoku and Oita areas.

線で結ぶ（混合線を引く）ことで、起源の違いを直線の傾きとして見てとることができる図となっている。ここで、大分地域の天水起源地下水の代表値として、網田ほか（2005）にて報告されている6か所の河川水の δD 値と総塩分濃度の平均値（図中の白い星印）を用い、O1との間で引くことのできる混合線を矢印で示した。同様に四国地域についても、天水起源地下水の代表値としてSK1'の推定を行った際に使用した河川水のデータ（図中の灰色の星印）を用い、これとS1との間に引くことのできる混合線を矢印で示した。

大分地域において得られる混合線と、四国地域で得られる混合線の傾きには違いがみられ、特に四国地域で得られた温泉水試料については、ほとんどが天水起源地下水-SK1'-S1（SK1'）とを結ぶ混合線の下側の（混合線より傾きが小さい）領域、すなわち四国地域の天水起源地下水と粘土鉱物層間脱水流体、あるいは堆積層内の古海水との間の領域にプロットされた。これに対し、和歌山の端成分流体（W）は天水起源地下水と大分地域の温泉水とを結ぶ直線に近い位置にプロットされた。和歌山地域については天水起源地下水のデータがないため、混合線を引いていないが、仮に天水起源地下水の領域にプロットされている温泉水試料（W1_d2からW1_d4）の値を用いてWとの間で混合線を引いた場合を考えても、混合線の傾きは大分地域のものよりも大きくなる。したがって、大分・和歌山両地域の端成分流体のプロット（WとO1, O2）と天水起源地下水とを結ぶ直線（混合線）の延長上には堆積層内の古海水や粘土鉱物層間脱水流体は存在しないと考えることができ、これらの地域の温泉深部起源流体が続成脱水流体とは異なる起源を持つ可能性のあることが示されている。以上、ここでの整理・検討より、水素・酸素同位体組成では明瞭に区別できなかった四国地域と大分・和歌山両地域とでは塩分濃度には違いがあり、四国地域の温泉の深部起源流体については、データプロットの分布に若干の幅が存在するものの、堆積層内の古海水あるいは粘土鉱物層間脱水流体といった続成脱水流体に由来する可

能性が高いことが示された。

3. 端成分流体の主要溶存化学組成

温泉水の同位体組成・塩分濃度に見られる特徴より、和歌山・四国両地域で得られた高塩分温泉水試料の中には、天水や現在の海水に直接的な由来を持たない端成分流体が含まれていることが示された。これら端成分流体の水質を見比べるために、主要溶存6成分（ Na^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} , Cl^- , SO_4^{2-} , HCO_3^- ）によるシュティフダイアグラムとパイパーダイアグラムを作成し、Fig. 4に示した。また比較のために、現海水と宮崎地域の研究（大沢ほか、2010）で示されている堆積層内古海水ならびに粘土鉱物からの層間脱水流体と化学・同位体的に近いとされた温泉水のデータについても併せて表示した。これらより、全ての水に共通する特徴として、陽イオンではナトリウムイオン（ Na^+ ）が、陰イオンでは塩化物イオン（ Cl^- ）が主な成分であることと、現海水と異なり硫酸イオン（ SO_4^{2-} ）がほとんど含まれていないことを挙げることができる。前者は、これまでこの種の温泉水が一様に化石海水由来であるとされてきた主な原因となった特徴であり、後者の特徴は、温泉水の貯留環境が低酸素分圧雰囲気にあるため、元々 SO_4^{2-} が含まれていたとしても還元されてしまったためであると考えられている。そのような共通性が認められる一方で、水質タイプについては地域や起源流体による違いが表れており、和歌山と大分の端成分流体（それぞれW, O1）、粘土鉱物層間脱水流体起源の温泉水については数千mg/L以上の濃度で炭酸水素イオン（ HCO_3^- ）を含むNa-Cl・ HCO_3^- 型水質を示すのに対し、四国の端成分流体（S2）と堆積層内古海水起源の温泉水は炭酸水素イオン（ HCO_3^- ）に乏しく水質タイプとしてはNa-Cl型となることが見て取れる。

以上の特徴の他に、前項に示した塩分濃度上の特徴を加味し、西南日本前弧域の中央構造線沿いに湧出する温泉の深部起源流体とした端成分流体は、Na-Cl・ HCO_3^- 型で高塩分である大分・和歌山地域のものと、四国・宮崎地域に存在する堆積

Fig. 4 (A) Major chemical compositions expressed by Stiff diagram of end-members of source deep thermal waters of hot springs at Wakayama (W), Shikoku (S2) and Oita (O1) with modern seawater and diagenetic fluids (squeezed pore water from marine sediments and dehydrated inter layer water from clay mineral) in Miyazaki (Ohsawa et al., 2010). (B) Piper diagram of hot spring waters in Fig. 4A. Closed square shows modern seawater. Open square and hatched diamond show dehydrated inter layer water from clay mineral and squeezed pore water from marine sediments, respectively.

層内の古海水に由来すると考えられるNa-Cl型で高塩分のもの、ならびに粘土鉱物層間脱水流体起源と考えられるNa-Cl・HCO₃型で低塩分のもの、の都合3種類に大別することができる。

4. 端成分流体のLi-B-Cl相対組成

大沢ほか(2010)は宮崎地域において、続成過程で発生する堆積層内古海水の絞り出しに由来する温泉水と粘土鉱物層間脱水流体起源の温泉水がLi-B-Cl相対組成図上で明瞭に区別できること、さらにそこで得た知見を基に大分地域のデータ(網田ほか, 2005)を見直し、Li-B-Cl相対組成図上でLi-B軸に沿って分布する温泉起源流体が変成脱水流体由来である可能性を指摘した。Fig. 5は、四国、和歌山、大分の各地域の端成分流体のLi-B-Clの相対組成を示す。ただしS1のデータについては、温泉井掘削直後に得られた温泉分析書(愛媛県立衛生環境研究所, 1999)のものを使用した。大沢ほか(2010)によれば、この図において現海水および続成過程の初期段階における堆積層内古海水の脱水流体(Squeezed pore water from marine sediments)はClコーナー付近に位置し、それに続く過程で発生する粘土鉱物の層間脱水流体(Dehydrated inter-layer water

from clay mineral)はBコーナー付近にプロットされ、Cl-B軸に沿って両者の遷移相あるいは混合によると考えられる流体(Mixing/Transition on diagenetic fluids)が分布する。四国、和歌山、大分それぞれの地域の端成分流体は続成脱水流体とは異なるB-Li軸に沿って分布し、しかもLi/B比に多様性がみられる。中でも、Li/B比が0.03と最も低かった四国地域の端成分流体S1は、古海水の脱水流体と粘土鉱物層間脱水流体が混合したものが分布する領域の近傍で、かつBコーナーに近い位置にプロットされ、温泉起源流体が続成脱水流体に近いものであることを指し示している。これはFig. 3(δD-総塩分濃度図)において、四国の温泉水が天水起源地下水と2種類の続成脱水流体との間の領域にプロットされた結果と調和的である。一方、大分と和歌山の温泉深部起源流体の端成分流体(WとO1, O2)についてはLi/B比が0.12~0.36の値をとり、粘土鉱物層間脱水流体と火山性熱水(Volcanic thermal water: 別府温泉の熱水性温泉; データは新エネルギー・産業技術総合開発機構, 1990による)の間にプロットされた。大沢ほか(2010)は、このような領域にプロットされる高塩分温泉水を続成過程より高温・高圧条件の変成過程で発生する流体であると予想しており、水素・酸素同位体組成(Fig. 2)からの予見とも矛盾しない。

Fig. 5 Relative B-Li-Cl compositions (ratio in weight) of end-members of source deep thermal fluids of hot springs in Wakayama (W), Shikoku (S) and Oita (O) with modern seawater and ranges of diagenetic fluids and the estimated range of “mixing/transition on diagenetic fluids” in Miyazaki (Ohsawa et al., 2010). And open circles show volcanic thermal waters of Na-Cl type at Beppu (NEDO, 1990).

5. 付随ガスの化学組成

温泉の深部起源流体の端成分と考えられる高塩分温泉水ともなるとガスを伴って湧出しているものが少なくなく、本研究で取り扱っているものも例外ではない。Table 2に、和歌山(W)、四国(S2)および大分(O1)で新規に取得した付随ガスの化学組成(酸素濃度等を用いて大気補正を施したデータ)と、大沢ほか(2010)に記載されている宮崎地域(M)の付随ガスのデータ(端成分流体とされる温泉水に付随するガスではないが、粘土鉱物層間脱水流体起源の系列に由来する温泉水のもの)を掲載しているが、付随ガスは、地域によってCO₂とCH₄の組成割合に大きな違いが

Table 2 Chemical and isotopic data of sampled gases associated with particular hot spring waters.

ID	N ₂	CO ₂	CH ₄	CH ₄ /CO ₂	He (ppm)	³ He/ ⁴ He	⁴ He/ ²⁰ Ne	δ ¹³ C-DIC (‰)	DIC (mg/L)
		(%)							
SK10 (S2)	25.0	0.01	74.7	7.5×10 ³	170	1.08×10 ⁻⁶	1990	1.9	10
W1_d1 (W)	0.4	95.9	3.7	3.9×10 ⁻²	13.0	6.14×10 ⁻⁶	680	-2.9	6800
Oita-11 (O1)	1.7	97.0	1.3	1.3×10 ⁻²	19.0	6.43×10 ⁻⁶	348	-3.8*	4320*
M6 (M)	4.4**	1.2**	94.1**	8.1×10 ¹	1.9	1.52×10 ⁻⁶	1340	n.a.	n.a.

Measurements with superscript asterisk are referred from: *, Amita et al. (2005), **, Ohsawa et al. (2010). n.a.: not analyzed

見られる。変成脱水流体起源が予想される和歌山と大分地域の付随ガスは、90%以上がCO₂で占められる一方でCH₄は4%未満しか含まれておらず、CH₄/CO₂比はそれぞれ1.3×10⁻², 3.9×10⁻²であるのに対して、四国の付随ガスにはCO₂はほとんど含まれておらず、CH₄/CO₂比は7.5×10³と和歌山・大分地域とは明らかに異なる。このようなCH₄に富む付随ガスは宮崎地域の付随ガスにも認められる特徴で、天然ガス資源として利用されているものである。一方のCO₂を主体とする和歌山、大分の付随ガスは、火山ガスや火山性温泉の付随ガスとまではいかないものの、続成脱水流体に由来する温泉水の付随ガスとは明らかに異なっている。

6. 付随ガスの同位体組成

5節で取り扱った和歌山、大分、四国および宮崎の各地域の付随ガス中の³He/⁴He比と⁴He/²⁰Ne比の関係をFig. 6に示す。図中に示した曲線は、大気由来Heと上部マントル由来のHe、あるいは大気由来Heと地殻由来のHeが混合した場合の混合線である。また、図中には火山性温泉に付随するガスの代表的なデータとして、別府温泉の噴気ガスのデータ(北, 1995; Kita et al., 1993; 大沢, 2000)も併せてプロットした。和歌山、大分の端成分流体(WとO1)はマントル由来Heの混合線付近に、また四国(S2)と宮崎(M)はマントル由来Heの混合割合10%~20%の混合線の付近にプロットされ、CH₄/CO₂比に現れた分類関係がここでも明瞭に表された。ここで、Ohsawa et al. (2011)に倣い、これ

Fig. 6 Plot of ³He/⁴He versus ⁴He/²⁰Ne ratios for bubble gases associated with hot spring waters from Wakayama (W), Oita (O), Shikoku (S) and Miyazaki (M); W, O1 and S2 are end-members of source fluids of hot springs, and M is diluted dehydrated inter layer water from clay mineral by shallow groundwater. Open triangles are volcanic fumarolic gases in Beppu (Ohsawa, 2000). Magmatic gas of Beppu is the fumarolic gas which has the highest ³He/⁴He and ⁴He/²⁰Ne ratios found by Kita et al. (1993) and Kita (1995). The upper line represents a mixing line between air and upper mantle components; the lower one is a mixing line for air and crust components. The medium thickness lines show trajectories for mixing between air and deep originated gas for mantle helium components of 10, 20 and 50%.

らのデータを用いてモデル混合計算を行い、和歌山(W)と大分(O1)の付随Heのマントル、大気、地殻成分のそれぞれの構成比率を求めたところ、和歌山ではマントルHe=55%、地殻起源He=45%、大気He=0.1%以下、大分ではマン

トル57%, 地殻43%, 大気0.1%となった。一方の四国 (S2) と宮崎 (M) ではそれぞれ, マントルHe=9%, 地殻起源He=91%, 大気He=0.1%以下, マントル15%, 地殻85%, 大気0.1%以下となり, 明らかに地殻起源Heの占める割合が相対的に大きいことが示された。

マントル由来と地殻起源のHeが同程度に含まれるという計算結果が得られた和歌山と大分の付随ガスのCO₂に占める起源炭素の混合関係について情報を得るために, Sano and Marty (1995) が考案したCO₂³He比とδ¹³Cの関係図上でデータを吟味した (Fig. 7)。この図上でマントル起源CO₂ (Mantle) と海成炭酸塩起源CO₂ (Marine carbonate), および堆積有機炭素起源のCO₂ (Organic sediment) はそれぞれ異なる位置にあり, 分析データと実線で示された混合線との位置関係により各起源CO₂の寄与の多さ (少なさ) を知ることができる。比較のために別府温泉の噴気ガスのデータ (大沢, 2000) や島弧火山のデータ範囲 (例えば佐藤ほか, 1999) を併せてプロットしたが, 和歌山, 大分地域のデータプロットは島弧火山から放出されるガスの範囲にあることが見て取れる。ここでもHeと同様に起源炭素の寄与率 (混合割合) を数値で表現するため, 例えば酒井ほか (2011) に倣い, 質量および同位体の保存則から以下の式を用いて計算を行い, CO₂の各起源炭素の構成比率を算出した。

$$\delta^{13}C_S = \delta^{13}C_M \cdot M + \delta^{13}C_C \cdot C + \delta^{13}C_O \cdot O \quad [1]$$

$$1/(CO_2/{}^3He) = 1/(CO_2/{}^3He)_M \cdot M + 1/(CO_2/{}^3He)_C \cdot C + 1/(CO_2/{}^3He)_O \cdot O \quad [2]$$

$$M + C + O = 1 \quad [3]$$

ここに, S, M, C, Oはそれぞれ試料, マントル (Mantle), 海成炭酸塩 (Marine carbonate), 堆積性有機物 (Organic sediment) を表し, 大文字によってこれらの混合率を, 添字によってそれぞれのδ¹³C値およびCO₂³He比を示す。各パラメータには, Sano and Marty (1995), Nishio et al. (1998), Deines (2002) に記載の数値を代入して起源炭素の混合率M, C, Oを算出した。結

Fig. 7 Correlation between CO₂/³He ratio and δ¹³C of CO₂ in associated gases of end-members of source fluids of hot springs in Wakayama (W) and Oita (O1). Data point of Beppu is from data in Ohsawa (2000). Hatched area encircled by dashed line indicates a range of arc volcanic gas shown by Sato et al. (1999). Model end members for mantle (Sano and Marty, 1995), marine carbonate (Sano and Marty, 1995) and sedimentary organic carbon [mean value of Sano and Marty (1995), Denies (2002) and Nishio et al. (1998)] are shown in this figure. The tie lines of the model end members are mixing lines.

果は, 和歌山 (W) の付随CO₂の起源炭素の構成比率は, マントルCO₂が13%, 海成炭酸塩が80%, 堆積性有機物は7%となり, 沈み込み帯の火山ガスや火山性温泉に付随するガスで認識されているのと同じように (例えば, Sano and Marty, 1995; 大沢, 2000) 3つの起源のなかで海成炭酸塩由来のCO₂が最も高い構成比率を占めていることが分かった。同様の傾向は大分 (O1) においても認められ, マントルCO₂, 海成炭酸塩, 堆積性有機物由来の炭素の構成比は13:77:10となった。

Ⅳ. 考 察

1. 温泉起源流体の深部端成分の実体に関する考察

ここまで和歌山、四国地域および大分平野の温泉の深部起源流体の端成分（以下では、端成分流体と略記する）について、水および付随ガスの化学組成・同位体組成にみられる特徴について述べてきた。それらの特徴をまとめると次のようになる。

(1) 総塩分濃度と δD 値の間に見られた関係より、和歌山・大分の両地域と四国地域の端成分流体は異なるものであり、四国のそれは続成過程において脱水した流体の可能性が高い。

(2) 和歌山・大分両地域の端成分流体は、一見、粘土鉱物層間脱水流体 (Dehydrated inter-layer water from clay mineral) の水質タイプと似ているが (Na-Cl・HCO₃型)、塩分濃度が大きく異なる (前者>後者)。一方の四国の端成分流体は海底堆積物間隙水 (Squeezed pore water from marine sediments) と同様な Na-Cl 型水質を示す。

(3) Li-B-Cl 相対組成図上で、和歌山、四国、大分地域のそれぞれの端成分流体は全て B-Li 軸に沿うようにプロットされたが、その中でも四国地域の端成分流体は粘土鉱物層間脱水流体がプロットされる領域が位置する B コーナー寄りに位置し、Li コーナーに向かって大分、和歌山のプロットが並び、大分の端成分流体の中には火山性である別府の熱水性温泉寄りに位置するものもみられた。

(4) 端成分流体に付随するガスの化学組成は、和歌山・大分のものが CO₂ を主体とするものであるのに対し、四国のものは CH₄ を主体とするガスである。

(5) 付随ガスの希ガス同位体組成のモデル混合計算より、和歌山と大分の端成分流体に含まれる He にはマントルに由来する He が 5 割を超える割合で含まれていることが示され、四国および宮崎地域に関しては、マントル由来の He は 2 割にも満たず、大半が地殻に由来することが明らかと

なった。

(6) $\delta^{13}C$ と CO₂/³He 比を用いた CO₂ のモデル混合計算から、和歌山および大分の端成分流体の付随ガスを構成する主要ガス成分である CO₂ はその大半 (計算ではおよそ 8 割) が海成炭酸塩に由来することが示された。

本章では、以上の特徴に基づいて、和歌山、四国、大分の各地域の端成分流体の実体について考察していき、さらにそれらの起源や成因に関して可能な限り議論を行う。

和歌山と大分地域の端成分流体は、水の水素・酸素同位体比 (δD , $\delta^{18}O$)、 δD -総塩分濃度の関係、水質タイプ、Li-B-Cl 相対組成、卓越する炭素ガス種 (CO₂ か CH₄ か)、高い ³He/⁴He 比 (マントル He に富む) のいずれにおいても共通した特徴を有しており、実体は同じであると考えるのが妥当であろう。大分地域の端成分流体に対し、網田ほか (2005) は沈み込む海洋プレートが変成作用を受ける際に発生するプレート脱水流体であろうと予見し、大沢ほか (2010) は続成脱水流体であると推測した。プレートの沈み込みに関わる、関わらないに限らず (関わらないのは堆積盆における埋没過程)、それが正しいとすれば、和歌山地域における端成分流体の実体も変成脱水流体とするのが妥当である。これら端成分流体と認定した高塩分温泉水の湧出地点は、和歌山地域ではその南側に三波川変成岩類が分布しており、大分地域では、前述したように、三波川変成岩類の分布はその東側で途切れるものの、地下深部には同種の変成岩類の潜在が推定されている (由佐ほか, 1992)。このような湧出母岩的情報から最も想定しやすいのは、三波川帯の変成岩が形成された時の変成作用によって発生した脱水流体が変成岩体内に包蔵され、その後起きた変成岩の上昇とともに地表近くまで運ばれてくる、とする考えである。しかしこの場合、付随ガスにマントル由来の He が含まれていることを合わせて説明する必要が生じる。前弧域におけるマントル由来の He の主な供給源はマントルウェッジ (沈み込ん

Fig. 8 Schematic diagram on dehydration processes of subducting oceanic plate and generations of dehydrated fluids involved with formations of non-volcanic hot spring waters on subduction zone.

だプレートとその上の地殻に挟まれたクサビ状の部分) であると推定されるが、脱水流体が変成岩体内に包蔵されたままマントルウェッジ内を上昇する場合には、変成脱水流体とマントルが接触しないため、地殻表層まで移動してきた岩体内に貯留されている変成脱水流体に後からマントルHeが流入する、というような複雑なプロセスを考えなければならなくなる。それに加えて、この解釈にとって障害となるのが、湧出母岩と湧出塩水の年代の不一致である。和歌山と大分地域の端成分流体（それぞれ温泉水試料のW1_d1とO1）については、 ^{129}I を用いた年代測定が行われており(Tomaru et al., 2007), それによると、大分の塩水のヨウ素年代は約13 Ma, 和歌山のそれは約38 Maと求められている。これに対して三波川変成岩の形成年代は、大分地域に産するもので 83.5 ± 0.8 Ma (泥質片岩; 植田ほか, 1977), 49–95 Ma (結晶片岩; 梶原ほか, 1990), 和歌山地域に産するもので 70 ± 5 Ma, 74 ± 5 Ma (緑色片岩; Yamaguchi and Yanagi, 1970) と求められており、湧出塩水のヨウ素年代の方が若い。端成分流体の実体が、母岩と共に地殻浅部まで移

動してきた変成脱水流体であれば、母岩の形成年代よりもヨウ素年代の方が若くなることは考えにくく、塩水が変成作用によって発生した脱水流体であるとするモデルを否定する結果となってしまう。一方、網田ほか(2005)が考えたように、プレートの沈み込みに伴う変成作用により海洋プレート内で発生した変成脱水流体が、地殻浅部まで上昇してきたものが端成分流体であると考えれば、湧出母岩と湧出塩水の年代の不一致は全く障害とならない。また、このプレート脱水流体モデルでは、端成分と考えている温泉水試料の炭酸成分(大半が海成炭酸塩に由来)の実体を沈み込むプレート上面にある海洋性堆積物中のそれに求めることができること、さらに、沈み込むプレートから離脱し、地殻浅部まで上昇してくる間にマントルからHeが付加され得ることが十分に期待でき、妥当な解釈ではないかと考える。

以上の考察の結果を基にして、西南日本の沈み込み帯における温泉の深部起源流体の生成プロセスの概念図を作成し、Fig. 8に示した。〔I〕海洋プレートの沈み込みに伴って地球内部へ引きずり込まれはじめた海洋底堆積物は圧密によって堆

積物間隙がつぶれ、その結果、間隙を満たしていた海水が放出される。〔Ⅱ〕プレートが深く沈み込むにつれて間隙は完全に無くなるが、温度上昇によって粘土鉱物の層間から塩分濃度の低い水（層間水）が脱水してくる。〔Ⅲ〕さらにプレートが沈み込むと続成過程から変成過程に移り変わり、含水鉱物（雲母や角閃石など）の脱水分解によって構造水（ -OH ）の放出が起こる。〔Ⅳ〕プレートの沈み込み深度が100 km程度に達すると、プレート脱水流体は地表への上昇途中でマグマを発生させ、マグマに含まれる水として地殻浅部まで運ばれる。最後の段階は火山性熱水の生成の説明にあたり、周知のプロセスであるが、それよりもプレート沈み込みの浅い段階（地質学的には前弧域）で少なくとも3つの異なるタイプの脱水が起こり、そのいずれもが温泉の起源流体になっている可能性があるというのが本研究のひとつの結論である。

四国地域の温泉の深部起源流体の端成分については、 δD -総塩分濃度の関係やLi-B-Cl相対組成から、宮崎地域で認知された様な続成作用に伴って脱水する流体（大沢ほか，2010）にその起源を求めることができるが、その一方で水質タイプがNa-Cl・ HCO_3 型ではなくNa-Cl型であり、 δD - $\delta^{18}\text{O}$ ダイアグラム上では粘土鉱物層間脱水流体というよりは変成流体（Metamorphic fluid）と見なせる同位体組成を示していた。このような関係が得られた理由を、四国地域とよく似たテクトニック・セッティングにあるニュージーランド北島（North Island）の前弧域の鉱泉水のデータ（Giggenbach et al., 1995）を用いて考察してみる。

ニュージーランド北島の北東-南西方向にのびる東海岸の沖合およそ60 km～100 kmでは、海岸線と平行な海溝軸を持つヒ克蘭ギ・トラフより太平洋プレートが沈み込んでいる。この沈み込み帯では、プレートが1年間に41 mmの速度で斜め方向に沈み込んでおり（オブリーク・サブダクション）、四国沖の南海トラフにおけるフィリピン海プレートの斜め沈み込み（50 mm/yr）とよ

く似ている。そして、その前弧域に湧出する鉱泉水の中で最も塩化物イオン濃度の高かった（25,720 ppm）ものの化学・同位体データを見ると、水質タイプは HCO_3 に乏しいNa-Cl型を示し、水の同位体組成は $\delta\text{D} = -2\text{‰}$ 、 $\delta^{18}\text{O} = +3.9\text{‰}$ と粘土鉱物層間脱水流体が示す同位体組成の範囲に収まる値である。また、付随ガスの化学組成は CO_2 、 N_2 、 CH_4 がそれぞれ3%、12%、85%と CO_2 に乏しく CH_4 に富んだものとなっている。Li-B-Cl相対組成については、塩化物イオン濃度が6,000 ppm以上の高い値を示した試料について、データプロットが分布する範囲のみをFig. 9Aに示したが、粘土鉱物層間脱水流体（dehydrated inter-layer water from clay mineral）と堆積物間隙海水（squeezed pore water from marine sediments）の間の領域にプロットされている。このように、ニュージーランド北島の前弧域の高塩分鉱泉水は、多くの点で四国地域の温泉深部起源流体端成分と共通する特徴を示しているが、水素・酸素同位体組成のみ異なっている（宮崎平野の粘土鉱物層間脱水流体に近い）。この様な部分的な一致（不一致）が何によって生じるのかを、プレートの沈み込みに伴う脱水を前提にして考えてみよう。

ニュージーランド北島の高塩分鉱泉水と四国地域の温泉深部起源流体の湧出地点の直下のプレートの上面までの深度を比較すると、前者が15 kmであるのに対し、後者は30 kmとほぼ倍の深度となっている。Sibson and Rowland (2003) に記述されているニュージーランド北島のスラブの深さと温度の関係より、深度15 kmのプレートではおよそ150°Cの温度にあると考えられる。一方の四国の沈み込み帯については山野・木下（1998）によって温度構造が求められており、深度30 kmにおける温度が350°C～450°Cと推定されている。一般に、堆積岩において温度が150°C～200°Cに上昇すると続成作用から低度変成作用への移行が始まるとされており（吉村，2001）、ニュージーランド北島の150°C程度はよいとしても、四国の350°C～450°Cという温度

Fig. 9 (A) Relative B–Li–Cl compositions of end-members of source fluids of hot springs in Wakayama (W), Oita (O1, O2) and Shikoku (S1, S2) compared with modern seawater, ranges of diagenetic fluids in Miyazaki (squeezed pore water from marine sediments and dehydrated inter layer water from clay mineral; Ohsawa et al., 2010) and volcanic thermal waters of Na–Cl type at Beppu (NEDO, 1990). Dark hatched area encircled by linear line shows data range of saline waters in the east coast of North Island of New Zealand (Giggenbach et al., 1995). Open thick long arrow presumably shows a “compositional change path” on generated fluids from diagenesis to metamorphism suggested by Ohsawa et al. (2010). (B) Relation between Li/B ratio of the source deep fluids of the hot springs in Fig. 9A and depth to the top of the subducting Philippine Sea plates beneath the locations of the hot springs. Open circles show the volcanic thermal waters in Beppu in Fig. 9A.

は、続成作用を被る温度にしてはかなり高い。実際、三波川帯の一般的な片岩類が迎った圧力・温度履歴（青矢，2005）においても、低温の変成帯である緑泥石帯における温度、圧力条件は約350°C、6 kbarとされており、以後ガーネット帯、曹長石–黒雲母帯、灰曹長石–黒雲母帯の順に、高温、高压変成側への履歴をたどることが示されている。以上のことから、四国の地下30 kmの沈み込むプレートにおいてはすでに変成作用の温度条件にあり、水の水素・酸素同位体組成はすでに変成流体的なものへと変化した、変成作用としてはまだ低温であるため、その他の化学特性は依然として続成流体の状態に留まったと考えることができる。この問題にさらに立ち入るためには、西南日本前弧域においてプレート沈み込み深

度の浅い（<20 km）四国沖の海底温泉のデータを収集し、検討を行う必要があると思われるため、本項では可能性を指摘するに留めておきたい。

2. Li–B–Cl相対組成に表れる温泉起源流体の組成の違いに関する考察

繰り返し述べてきたように、大沢ほか（2010）は宮崎地域で得た知見を基に大分地域のデータ（網田ほか，2005）を見直し、Li–B–Cl相対組成図上でLi–B軸に沿って分布する温泉起源流体が、変成脱水流体由来である可能性を指摘した。また、続成作用から変成作用、そして火成作用に至る一連の過程で発生する脱水流体には様々な地化学変化が伴われ、その最たるものとして、Li-

B-Cl 相対組成図上で、初期続成過程、後期続成過程、変成過程に対応して Cl に富む流体から B に富む流体を経由して Li に富む流体の発生へと段階的に移行していきだろうと予見している。Fig. 9A は、和歌山、四国、大分の各地域の温泉起源流体の端成分とした試料水のデータを Li-B-Cl 相対組成図にプロットしたもので、大沢ほか (2010) に示されている海底堆積物間隙水 (Squeezed pore water from marine sediments) と粘土鉱物層間脱水流体 (Dehydrated inter-layer water from clay mineral) の範囲、火山性熱水として別府の熱水性温泉のデータ (新エネルギー・産業技術総合開発機構, 1990) を表した。図中に書き込まれた矢印付の太い曲線は、同じく大沢ほか (2010) が表した深部脱水流体の“進化的組成変化”の予想経路であるが、粘土鉱物層間の脱水が起こる後期続成過程からマグマに由来する火山性熱水に向かう変化経路に沿ってプロットが並んでいる。

Fig. 9B は、温泉起源流体の深部端成分試料の Li/B 比と試料採取地点直下の沈み込みプレートの深度との関係を図示したものである。プレート脱水流体に由来すると考えた深部起源流体の Li/B 比とプレート沈み込み深度との間には明瞭な直線関係が認められ、プレートの沈み込みに伴った深部脱水流体の進化的組成変化があることを示唆する解析結果であると考えられる。変成岩の変成度と脱水流体の Li と B の挙動との関係を検討した研究 (Marschall et al., 2006) や、沈み込み帯の物質循環を火山岩の微量元素の化学・同位体から論じた研究 (Moriguti and Nakamura, 1998) のデータからも、プレート沈み込み深度と Li/B 比に同様な線形関係を読み取ることができる。また千眼ほか (2009) や Yoshida et al. (2011) は変成岩石英脈に含まれる流体包有物の Li-B-Cl 相対組成の測定を行っており、流体包有物の Li-B-Cl 相対組成が高塩分の温泉起源流体のそれと類似することなどが分かってきた。これらの結果はプレート脱水流体の Li/B 比が温泉起源流体のそれに反映されることがあり得ることを相補的に示し

ているものではないかと考える。

3. 温泉の深部起源流体と中央構造線の関係

網田ほか (2005) で温泉の深部起源流体の一つとしてプレート脱水流体の存在を意識して以来、探索の指標として塩分濃度に着目し、温泉分析書など既存の分析データを頼りにして高塩分の温泉や鉱泉を探し求めてきたことは前にも述べた。その文献調査の段階から要件に合うものが中央構造線に沿って分布していることは認識していたが、本調査によって採取した試料の分析を通して、改めて深部起源流体と中央構造線との関係性を示す結果が得られた。

沈み込み帯に平行で、著しい変異速度を持つ横ずれ断層の存在は古くから知られており、Fitch (1972) は、そのような断層が発達する理由として斜め沈み込みの横ずれ成分が沈み込むプレート境界に沿う変位によってではなく、内陸側の横ずれ断層に沿う変位によって賄われることを示したが、この Fitch モデルにおいて横ずれ断層の変位面はアセノスフェアの上面まで到達しているものとして扱われている。また、Fitch モデルは厚さ数十 km の剛体的プレートという、プレートテクトニクスの古典的モデルに従って考案されたものであるが、嶋本 (1989) は、Honda and Uyeda (1983) によって推定されたフィリピン海プレートの沈み込みに伴う温度分布を基に、摩擦強度と流動則から逆断層を形成する水平圧縮応力場における強度を見積もり、四国を縦断する島孤の強度断面を作成した。そして、少なくとも四国とその周辺部における中央構造線が Fitch 型横ずれ断層の一種であると述べている。この嶋本 (1989) によるモデルにおいても中央構造線が形成される地点の地殻の厚さを 20 km 余りとおいており、そのような亀裂が深部起源流体の上昇通路として機能している可能性はあると考える。

ここで取り上げている問題は、地下深部において生成された流体が地表のどこにでも見られる訳でないのはどうしてか、という問いに置き換えることができる。これは、地層間隙が極めて小さく

なる地下数km以深の領域では、流体（特に液相）の地殻中における移動が困難であるため、流動がほとんど生じていないか、あるいは生じていたとしても、その移動速度と量が極めて少量にとどまっているためであると考えられる。このように捉えると、次々に地下深部で発生し、行き場がなく滞留している状態の深部流体は、地殻中を流動するための移動効率の良い通路が存在している場合にのみ、ある程度の量を地殻浅部へ輸送することが可能になることは容易に理解できる。そして、西南日本の前弧域においては、中央構造線に代表される大規模な地質構造線／断層がその役割を果たしているものとする。今回の研究で扱った高知県に湧出する温泉S2で深部起源流体の存在が確認されたのも、議論の余地は残るが、仏像構造線が中央構造線と同様に深部流体の上昇を助ける機能を持っていることを暗示していると考えられる。

一方、深部起源流体に由来する高塩分の温泉・鉱泉水が、ごく限られた場所でしか見られないのに対して、天水起源の地下水であるにも関わらず、付随あるいは溶存するガスが深部起源であることが知られるケースは少なくない（Matsumoto et al., 2003; Umeda et al., 2006; Doğan et al., 2006; Sano and Nakajima, 2008; 酒井ほか, 2011）。これについては、ガス、特にHeを含む希ガスに関しては液体に比べて圧倒的に流動性が高いことで、地殻中の小さな割れ目や間隙を経由して地下浅部までの移動がより生じやすいためであると考えることができよう。

V. おわりに

本研究により、西南日本の中央構造線沿いに湧出する高塩分温泉の起源となっている深部由来の流体には、粘土鉱物の層間脱水流体と変成脱水流体の少なくとも2種類が存在することが示された。また、これらの温泉の深部起源流体は、フィリピン海プレートの沈み込みが浅い前弧域側で、深さ（温度・圧力条件）の違いに応じて生じる異

なるタイプのプレート脱水によって形成された流体に由来する可能性も示された。著者らが今回提示した温泉起源流体の形成モデルでは、Li-B-Cl相対組成図上での組成変化に示されるような異なる起源流体間にみられる地化学特性の違いを、海洋性堆積物の続成過程から変成過程にいたる一連の地質過程で発生する脱水流体に生じる“進化的組成変化”（大沢ほか, 2010）の結果として捉えることで合理的な説明を可能としている。

その一方で、和歌山や大分地域の温泉深部起源流体を変成脱水流体であると判断したことについては、そのことを確証する直接的なデータを提示することによって立証したのではなく、言わば状況証拠の積み重ねによって到達した結論であり、推測の域を脱しきれていないのも事実である。変成脱水流体の発生する深度は少なくとも地下10 kmを上回るであろうから、それに由来する温泉があったとしても、その地球化学的特性の多くが地表へ向けての上昇の過程で消されてしまっていると考えるのが自然であり、上昇過程および地殻浅部での貯留過程でも特性の変化（化学変質）が起きにくい成分元素に着目するのが、変成脱水流体が温泉の深部起源流体の一つに加わることを明示するための一つの道筋であると考えられる。網田ほか（2005）や大沢ほか（2010）に続き、今回も取り上げたLi, B, Clは、そのような発想に基づいて選んだ成分元素であり、それらの組成に表れたシステマティックな関係は偶然に出たものではなく、むしろ必然的なものであると考えている。本研究の結果は、LiとBが問題解決に向けての重要な指標であることを示しており、今後はそれらの同位体測定を実施して、変成脱水流体が温泉の深部起源流体である有力な証拠となりうるのかの検討・検証を行いたいと考えている。

謝 辞

現地調査と試料採取は、泉源の所有者や管理者の方々のご理解のもとに円滑に行うことができました。愛媛県立衛生環境研究所からは井戸掘削当

時における温泉の成分に関する情報を提供していただきました。水素・酸素・炭素の安定同位体分析について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、付随ガスの希ガス同位体測定の一部については九電産業株式会社環境部から、それぞれ協力と支援をいただきました。ここで関係各位に感謝申し上げます。また、2名の匿名査読者と安原正也博士には丁寧に原稿をお読みいただき、多くの有益なご指摘・ご助言をいただきました。その結果、本論文の改善に大いに役立てることができました。ここに記して深く感謝いたします。この研究の費用の一部は、独立行政法人日本学術振興会科学研究費補助金基盤研究 (A)、研究課題番号：22244067 (研究代表者：平島崇男) を用いました。

参考文献

- 青矢睦月 (2005)：四国三波川帯・瀬場地域の研究史：高度変成地域の野外調査にまつわる諸事情，地質調査研究報告，**56**，137–146。
- 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。
- 愛媛県立衛生環境研究所 (1999)：愛媛県立衛生環境研究所年報，**2**，63p。
- 植田良夫・野澤 保・大貫仁・河内洋佑 (1977)：三波川変成岩の K–Ar 年令，岩石鉱物鉱床学会誌，**72**，361–365。
- 大沢信二 (1996)：大分平野の温泉水の起源について，大分県温泉調査研究会報告，**47**，37–42。
- 大沢信二 (2000)：噴気ガスの化学・同位体組成からみた別府温泉の地熱流体の起源及び性状，大分県温泉調査研究会報告，**51**，19–28。
- 大沢信二 (2001)：大分平野に産する深層熱水中の炭酸成分の起源，大分県温泉調査研究会報告，**52**，21–26。
- 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。
- 梶原俊啓・西山忠男・柳 哮 (1990)：佐賀関の三波川変成岩の全岩時代と鉱物年代，日本地質学会第97回学術大会講演要旨集，406。
- 北 逸郎 (1995)：別府–島原地溝下のプレート沈み込み状態の怪—そのマグマ性 N_2/Ar 比と $^3He/^4He$ 比の意味—，地質ニュース，**488**，19–23。
- 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。
- 酒井 均・松久幸敬 (1996)：安定同位体地球化学，東京大学出版会，東京，83–141。
- 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。
- 佐藤雅規・森 俊哉・野津憲治・脇田 宏 (1999)：霧島火山帯から放出される噴気，温泉ガスの炭素およびヘリウム同位体比，火山，**44**，279–283。
- 茂野 博 (1982)：非火山性地域の地熱資源—深層熱水—，地質ニュース，**337**，202–203。
- 嶋本利彦 (1989)：西南日本・中央構造線のレオロジー的位置，活断層研究，**7**，87–92。
- 新エネルギー・産業技術総合開発機構 (NEDO) (1990)：平成元年度全国地熱資源総合調査 (第3次) 広域熱水流動系調査 鶴見岳地域流体地化学調査報告書要旨，90–91。
- 千眼喜照・西村光史・大沢信二・平島崇男 (2009)：深部流体の Li/B 比：深部流体の発生深度の指標になるか？，日本鉱物科学会2009年年会講演要旨集，S1-P.5。
- 寺岡易司 (1970)：九州大野川盆地付近の白亜紀層，地質調査所報告，**237**，87p。
- 水谷伸治郎・歌田 実 (1987)：続成作用，岩波講座地球科学5「地球表層の物質と環境 (勘米

- 良亀 齡, 水谷伸治郎, 鎮西清高編), 35–49, 岩波書店, 東京.
- 山野 誠・木下正高 (1998): 四国海盆と西南日本沈み込み帯の温度構造について, 東京大学地震研究所彙報, **73**, 105–123.
- 由佐悠紀・竹村恵二・北岡豪一・神山孝吉・堀江正治・中川一郎・小林芳正・久保寺章・須藤靖明・井上 猛・浅田正陽 (1992): 反射法地震探査と重力測定による別府湾の地下構造, 地震, 2 輯, **45**, 199–212.
- 吉村尚久編 (2001): 粘土鉱物と変質作用, 地学団体研究会, 156p.
- Denies, P. (2002): The carbon isotope geochemistry of mantle xenoliths, *Earth-Science Reviews*, **58**, 247–278.
- Doğan, T., Sumino, H., Nagao, K., Notsu, K. (2006): Release of mantle helium from forearc region of the Southwest Japan arc, *Chemical Geology*, **233**, 235–248.
- Ellis, A. J. and Mahon, W. A. J. (1963): Natural hydrothermal systems and experimental hot-water/rock interactions, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **28**, 1323–1357.
- Ellis, A. J. and Mahon, W. A. J. (1967): Natural hydrothermal systems and experimental hot-water/rock interactions (Part II), *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **31**, 519–538.
- Fitch, T. J. (1972): Plate convergence, transcurrent faults, and internal deformation adjacent to Southeast Asia and the western Pacific, *Journal of Geophysical Research*, **77**, 4432–4460.
- Giggenbach, W. F., Stewart, M. K., Sano, Y., Goguel, R. L., Lyon, G. L. (1995): Isotopic and chemical composition of waters and gases from the east coast accretionary prism, New Zealand, *Isotope and geochemical techniques applied to geothermal investigations*, IAEA-TECDOC-788, 209–231.
- Honda, S. and Uyeda, S. (1983): Thermal process in subduction zones—A review and preliminary approach on the origin of arc volcanism, in: *Arc Volcanism: Physics and Tectonics*, edited by D. Shimozuru and I. Yokoyama, Terra Sci. Publ. Co., 117–140p.
- Ichikawa, K. (1980): Geohistory of the Median Tectonic Line of Southwest Japan, *Memoirs of the Geological Society of Japan*, **18**, 187–212.
- Kita, I., Nitta, K., Nagao, K., Taguchi, S., Koga, A. (1993): Difference in N₂/Ar ratio of magmatic gases from northeast and southwest Japan: New evidence for different states of plate subduction, *Geology*, **21**, 391–394.
- Marschall, H.R., Altherr, R., Ludwig, T., Kalt, A., Gmeling, K., Kasztovszky, Z. (2006): Partitioning and budget of Li, Be and B in high-pressure metamorphic rocks, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **70**, 4750–4769.
- Matsumoto, T., Kawabata, T., Matsuda, J., Yamamoto, K., Miura, K. (2003): ³He/⁴He ratios in well gases in the Kinki district, SW Japan: surface appearance of slab-derived fluids in a non-volcanic area in Kii Peninsula, *Earth and Planetary Science Letters*, **216**, 221–230.
- Moriguti, T. and Nakamura, E. (1998): Across-arc variation of Li isotopes in lavas and implications for crust/mantle recycling at subduction zones, *Earth and Planetary Science Letters*, **163**, 167–174.
- Nishio, Y., Sasaki, S., Gamo, T., Hiyagon H., Sano, Y. (1998): Carbon and helium isotope systematics of North Fiji Basin basalt glasses: carbon geochemical cycle in the subduction zone, *Earth and Planetary Science Letters*, **154**, 127–138.
- 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 Hitoyo-

- shi basin in a non-volcanic region of Central Kyushu, Japan, *J. Hot Spring Sciences* (温泉科学), **60**, 410–417.
- Sano, Y., Kameda, A., Takahata, N., Yamamoto, J., Nakajima, J. (2009): Tracing extinct spreading center in SW Japan by helium-3 emanation, *Chemical Geology*, **266**, 50–56.
- Sano, Y. and Marty, B. (1995): Origin of carbon in fumarolic gas from island arcs, *Chemical Geology*, **119**, 265–274.
- Sano, Y. and Nakajima, J. (2008): Geographical distribution of $^3\text{He}/^4\text{He}$ ratios and seismic tomography in Japan, *Geochemical Journal*, **42**, 51–60.
- Sibson, R. H. and Rowland, J. V. (2003): Stress, fluid pressure and structural permeability in seismogenic crust, North Island, New Zealand, *Geophysical Journal International*, **154**, 584–594.
- Tomaru, H., Ohsawa, S., Amita, K., Lu, Z., Fehn, U. (2007): Influence of subduction zone settings on the origin of forearc fluids: Halogen concentrations and $^{129}\text{I}/\text{I}$ ratios in waters from Kyushu, Japan, *Applied Geochemistry*, **22**, 676–691.
- Umeda, K., Ogawa, Y., Asamori, K., Oikawa, T. (2006): Aqueous fluids derived from a subducting slab: Observed high ^3He emanation and conductive anomaly in a non-volcanic region, Kii Peninsula southwest Japan, *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, **149**, 47–61.
- Yamaguchi, M. and Yanagi, T. (1970): Geochronology of some metamorphic rocks in Japan, *Eclogae Geologicae Helveticae*, **63**, 371–388.
- 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, *Journal of Mineralogical and Petrological Sciences*, **106**, 164–168.

(原稿受付：2013年4月11日)

(原稿受理：2014年1月14日)

この論文に対する「討論」を2014年8月1日まで受け付けます。

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—

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

要 旨

温泉起源流体としての変成流体を探索するために、西南日本の前弧域の中央構造線沿いに湧出する高塩分温泉において、温泉水や付随ガスを採取し化学・同位体分析を行った。その結果、和歌山と四国地域で採取した温泉水試料から、現海水や浅層地下水に比べて水素・酸素安定同位体組成の大きく異なる温泉を見出した。四国地域の温泉起源流体は、Li-B-Cl相対組成やHe同位体システムティクスから、続成流体の一つであることが確認された。一方、和歌山地域の温泉起源流体は、続成脱水流体とは異なるLi-B-Cl相対組成を示し、また高い $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比を有していることから、大分平野で得られたものと同様、その起源が変成脱水流体にあると判断された。和歌山、大分の温泉起源流体と四国、宮崎のそれでは、付随ガスの化学組成において前者が CO_2 に富むのに対して後者は CH_4 に富むという明瞭な違いが認められ、また、和歌山と大分の付随ガスに含まれる CO_2 の大半が、沈み込み帯の火山ガスと同様に、海成炭酸塩に由来するものであることが示された。さらにこれら起源流体のLi-B-Cl相対組成は、続成脱水流体と火山性熱水流体のその中間的な値を示した。これらの結果は全て、和歌山と大分の温泉起源流体が、沈み込むフィリピン海プレートより脱水してきた変成脱水流体であることを示唆しているものと考えられた。

キーワード：温泉水，プレート脱水流体，中央構造線