

大分平野に産する深層熱水中の炭酸成分の起源

京都大学大学院理学研究科附属地球熱学研究施設

大 沢 信 二

1. はじめに

深層熱水とは、それが貯留される地域を流れる伝導形の熱によって地下水が加熱されたものを言い、被圧地下水起源のものと化石海水起源のものがあり、熱水の温度は貯留層の深度と地域の地殻熱流量の大きさによって左右されるとされている（森・陶山, 1980）。大分市・挾間町・庄内町で掘削によって得られた熱水も典型的な深層熱水であると考えられており（北岡・川野, 1991）、鮮新世から更新世にかけて形成された堆積岩中（碩南層群や大分層群滝尾層）に貯留されているとされている（森山・日高, 1986）。600m~800mに達する深い掘削によって得られた30℃~55℃の水には、数g/lにも達する多量の炭酸成分が含まれており、その中のいくつかは炭酸ガス（CO₂）を主成分とするガスをともない自噴している（野田・北岡, 1981a）。また、あるものは、腐植性有機成分（フミン酸様物質）により茶褐色を呈したものも見られ（野田・北岡, 1981b）、地層中の有機物と溶存炭酸成分との関係も示唆されている（志賀・川野, 1970）。以上のように、大分平野に産する深層熱水中の炭酸成分は、この地域の温泉水を特徴付ける化学成分であり、その起源（供給源）を明らかにすることは、十分に意義があると考えられる。

黒部川扇状地や庄川扇状地（富山県）の浅層地下水の溶存炭酸の供給源を特定することを目的として、溶存全炭酸（CO_{2(aq)}+HCO₃⁻+CO₃²⁻）の炭素同位体比（δ¹³C）の測定が行われた（水谷, 1995）。それによると、溶存全炭酸（DTC）のδ¹³Cと濃度の逆数の間に見られる直線関係は、河川から涵養された地下水に土壌CO₂起源の炭酸が加えられたということを示しており、化学分析だけからは入手が困難であった地下水中の溶存炭酸の供給源や挙動に関する情報が同位体地球化学的データから手に入る事が示された。そこで、同様な手法を大分平野の深層熱水の既存データ（NEDO, 1989）に応用したところ、炭酸成分の起源に関して興味深い結果が得られた。本年度は、平成8年度に行った研究報告（大沢, 1996）に続き、これについて報告する。

2. 解析データ

解析に利用したデータをTable 1に、また、それらが得られた泉源の位置をFig. 1に示した。泉源はすべて掘削井であり、掘削深度はおおむね500mである（深さの不明なものが2井ある）。それ以深のものが2井、以浅のものが3井あるが、200mより浅いものと800mより深いものは存在しない。

熱水は中性から弱アルカリ性を呈し（pH: 6.5~8.6）、泉温は30℃~55℃を示すが、掘削の深いものほど泉温は高い傾向にある。また、水の水素・酸素同位体組成から（NEDO, 1989）、水自体は天水起源であることが示される。しかし、いくつかの泉源で付随ガスのヘリウム同位体組成（³He/⁴He）が測定されており（試料97, 99, 102）、その中のいくつかは8.0x10⁻⁶~8.7x10⁻⁶と高い値を示し（Table 1）、マグマ性ヘリウムの混入が示唆される（島弧のマグマ性ヘリウムの同位体組成は約10x10⁻⁶~11x10⁻⁶; 佐野, 1996）。

Table 1 解析に利用した化学データ

No.	Locality	Depth of well (m)	WT (°C)	pH	DTC (mg/l)	$\delta^{13}\text{C}_{\text{DTC}}$ (‰)	Cl (mg/l)	$^3\text{He}/^4\text{He}$ ($\times 10^{-6}$)
94	Shonai	800	53.5	8.1	144	-16.3	466	
329	ditto	450	35.5	7.8	116	-19.3	4.1	
330	ditto	550	42.3	8.5	80	-20.2	5.3	
331	ditto	500	47.5	8.4	122	-17.7	8.1	
332	ditto	500	55.1	8.1	217	-12.9	196	
333	ditto	500	49.8	8.0	192	-14.5	16.6	
334	ditto	500	39.3	8.3	184	-12.4	73.3	
96	Hazama	480	39.9	8.3	455	-13.0	76.1	
97	ditto	400	39.8	6.6	4440	-3.3	6020	4.4
99	ditto	200	30.2	6.9	3180	-5.8	853	8.7
102	ditto	—	39.4	6.5	3330	-5.6	643	8.0
105	Oita	300	38.7	6.5	3810	-9.7	2760	
112	ditto	—	55.0	7.6	2740	-6.3	2020	
117	ditto	520	39.4	8.4	443	-10.1	4.5	
121	ditto	600	44.0	8.6	426	-11.3	7.0	
132	ditto	700	41.9	8.0	1010	-11.2	1760	

(Remarks) DTC (Dissolved Total Carbonate): $\text{CO}_2(\text{aq}) + \text{HCO}_3^-$

DTC concentration is expressed in terms of CO_2 concentration.

WT: Water temperature

全て、NEDO(1989)による。

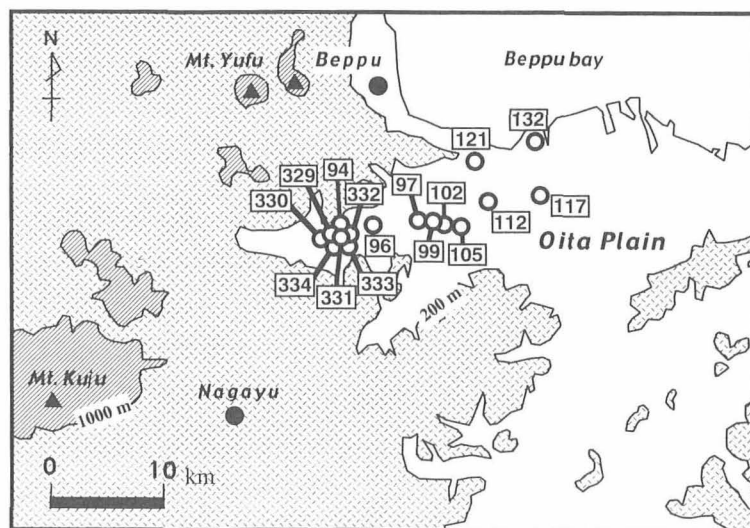


Fig. 1 泉源の位置

泉源番号は、NEDOの調査番号を踏襲した。

3. 解析及び考察

3-1. 同位体組成から見た炭酸成分の起源

本研究で取り上げた深層熱水の溶存全炭酸 (DTC) の炭素安定同位体組成 ($\delta^{13}\text{C}$) は、 -3.3% から -20.2% の広い範囲の値を示す。溶存全炭酸 (DTC) 濃度が高いほど同位体組成は高くなる傾向が認められ (Fig. 2)、両者の間には以下の関係が見られる。

$$\delta^{13}\text{C} = -27.90 \times 1/\text{DTC} - 7.19 \quad (\text{相関係数: } 0.838) \quad [1]$$

Fig. 2 に示されるように、16試料の中で最低レベルの溶存全炭酸濃度と $\delta^{13}\text{C}$ 値を示すもの (試料 329, 330, 331) は、水谷 (1995) が富山県の黒部川扇状地と庄川扇状地で得た多くの地下水がプロットされる領域 (Cold Groundwater) に位置している。水谷 (1995) は、それらの扇状地の地下水の溶存全炭酸の $\delta^{13}\text{C}$ および濃度が河川から涵養された地下水に一定の $\delta^{13}\text{C}$ をもった炭酸が加えられることによって変化していると仮定し、同位体収支から、加えられた炭酸の起源を土壌 CO_2 であると結論した。

土壌 CO_2 は、一般に植物根の呼吸や好氣的な細菌による動植物の遺体 (リター) の分解により生成するものである (鶴田, 1994)、大分平野の 400m~600m にも及ぶ大深度において、現在そのようなプロセスで CO_2 が生成しているとは考えにくい。一方、土壌 CO_2 と同様な $\delta^{13}\text{C}$ 値をもつ物質として堆積性有機物が知られており (水谷, 1995)、むしろ、埋没地層内の地下水中 (地殻熱流により浅層地下水よりも水温が高くなっている。) において、そのような有機物が分解し (例えば、 $\text{SO}_4^{2-} + 2\text{C}$ (有機炭素) $\rightarrow 2\text{CO}_2 + \text{S}^{2-}$; 志賀・川野, 1970)、低い $\delta^{13}\text{C}$ 値をもつ CO_2 の供給源になっていると考えるのが妥当である。

そこで、大分平野の深層熱水の溶存全炭酸の $\delta^{13}\text{C}$ および濃度は、地下深所の埋没地層中に貯留され、有機物起源の CO_2 を溶解した地下水に一定の $\delta^{13}\text{C}$ 値をもった CO_2 が加えられることによって変化していると仮定すると、水谷 (1995) に習い、同位体収支から次の関係式を導くことができる。

$$\delta^{13}\text{C}_m = A \times (1/\text{DTC}_m) + \delta^{13}\text{C}_{ad} \quad [2]$$

$$A = \text{DTC}_0 \times (\delta^{13}\text{C}_0 - \delta^{13}\text{C}_{ad}) \quad [3]$$

ここで、DTC は溶存全炭酸の濃度、m は混合物 (= 深層熱水)、O は地層中に貯留された地下水、ad は加えられた CO_2 を表す。このモデルを上記の結果 (Fig. 2) にあてはめると、加えられた CO_2 の $\delta^{13}\text{C}$ は関係式 [1] の切片の値として導かれ (-7.2%)、火山性の CO_2 の範囲 (-2.5% ~ -12% ; Fischer et al., 1997) に入る。一方、貯留層中に石灰岩の礫などが含まれていれば、下記の反応による石灰岩の溶解により溶存炭酸の同位体組成が増加し (石灰岩の $\delta^{13}\text{C}$ は高い。

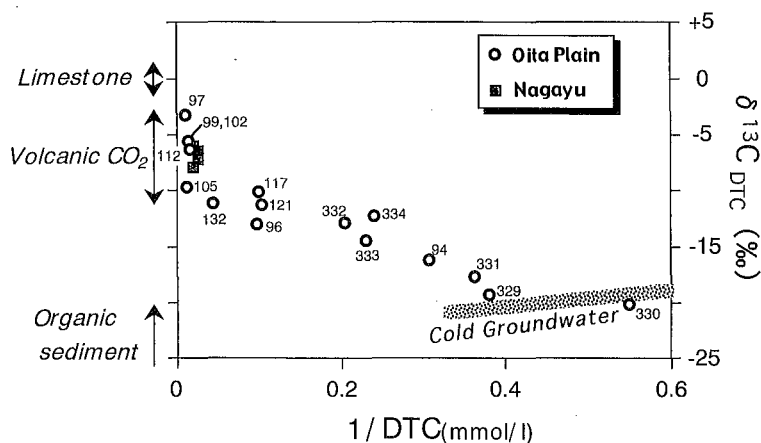


Fig. 2 深層熱水の溶存全炭酸(DTC)の濃度と炭素安定同位体組成 ($\delta^{13}\text{C}_{\text{DTC}}$) との関係

長湯温泉のデータは岩倉ほか(1999; 2000)から、冷地下水 (Cold Groundwater) の範囲は水谷(1995)から引用した。番号は、泉源番号を表す。

: 約 0 ‰ ; 水谷, 1995) 、同様な高い値を取る可能性がある。



しかし、このような石灰岩の分解過程では、付随ガスの高いヘリウム同位体組成 ($^3\text{He}/^4\text{He}$ 比: $8.0 \times 10^{-6} \sim 8.7 \times 10^{-6}$; Table 1) を説明できず、火山性CO₂の付加と考えるのが妥当である(ヘリウムのような微量ガスが、キャリアとなるガスなしに単独で地球深部より上昇してくるとは考えにくい)。

以上の考察から、大分平野の深層熱水の炭酸成分は、火山性のCO₂が、地殻熱流により加熱された地下水中の有機物起源CO₂と混ざったものとみることができる。火山性CO₂を多く含む深層熱水は、源泉番号97, 99, 102, 112, 105のもので、比較のためにあげた火山性CO₂を溶解する長湯の温泉水(岩倉ほか, 1999; 2000)も、同様な領域にプロットされる(Fig. 2)。そこで、これらの源泉の地理的な分布を見てみたところ、大量の火山性CO₂を溶かし込んだ深層熱水は挾間町や大分市に位置することが判った。この地域の近傍で、活発な火山性CO₂の噴出がある場所は別府温泉であり、そこに噴出する噴気中のCO₂の $\delta^{13}\text{C}$ 値が $-6.6\text{‰} \sim -7.2\text{‰}$ (平均 -6.9‰) (大沢, 2000) と、先に推定した大分平野の深層熱水中に混入してくる火山性CO₂の値 (-7.2‰) に近く、別府温泉の地熱活動との関連が示唆されて興味深い。一方、ほとんど有機物に由来する炭酸成分を含む深層熱水は、源泉番号329, 330, 331のものであり、庄内町の極く限られた地域に分布する。

3-2. 泉質との関係

大分平野に産出する温泉水の泉質は、ナトリウムイオン (Na⁺) と塩化物イオン (Cl⁻) を主成分とする高塩分型、ナトリウムイオン (Na⁺) と炭酸水素イオン (HCO₃⁻) を主成分とし、塩化物イオン濃度が非常に低い弱アルカリ型と、それらの中間型に大別される。そこで、今回の16源泉の深層熱水について、塩化物イオン濃度と炭酸成分(溶存全炭酸: DTC)の濃度の関係を検討した(Fig. 3)。ここでも、塩化物イオン濃度が1000mg/l程度以上で、かつ1000mg/l以上の炭酸成分を含有する高塩分型(High-salinity type)、通常の地下水と同程度の塩化物イオン濃度(10mg/l程度以下)をもつ弱アルカリ型(Weakly-alkaline type)と、それらの中間的な塩化物イオン濃度を示す中間型(Intermediate type)に分類することができる。

前項(3-1)で行った考察結果と合わせて検討してみると、火山性CO₂の混入の極めて多いもの(試料97, 99, 102, 112, 105)

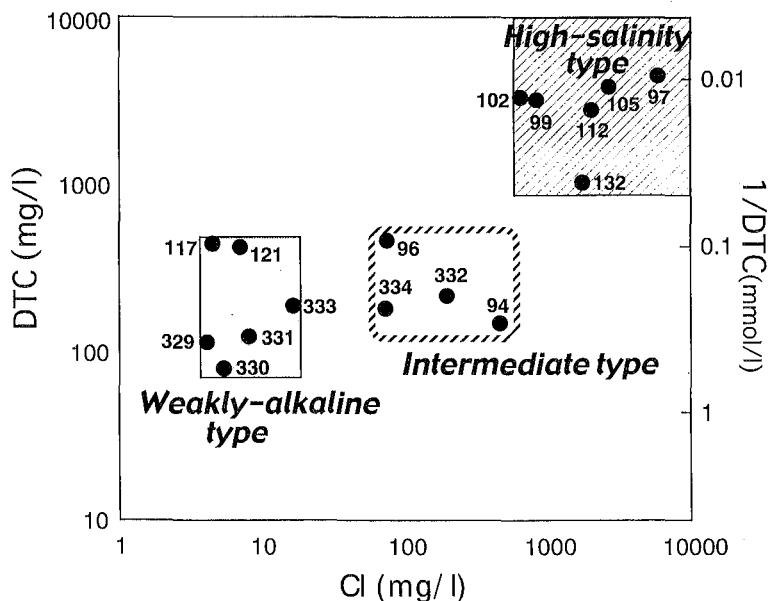


Fig. 3 塩化物イオン(Cl)濃度と溶存全炭酸(DTC)濃度の関係に基づく深層熱水の泉質分類

番号は、源泉番号を表す。

は、高塩分型 (High-salinity type) に、また、ほとんど有機物起源CO₂のみを含むもの (試料329, 330, 331) は、弱アルカリ型 (Weakly-alkaline type) に分類されることが判る。一方、中間型 (Intermediate type) に分類されたもの (試料94, 96, 332, 334) は、火山性CO₂と有機物起源CO₂の混合タイプであり、また、混合タイプのもので高塩分型ないし弱アルカリ型にあたるものでも (試料117, 121, 132, 333)、溶存全炭酸濃度が中間的な値を示し (192~1010mg/l)、典型的なものとは区別される。検討に供したデータ数が少ないが、以上の結果を見るかぎり、高塩分型深層熱水の炭酸成分の大半が火山性CO₂に由来し、一方、弱アルカリ型深層熱水の炭酸成分は堆積性有機物起源であると結論できる。

4. おわりに

大分平野の地下深所には、地層中に閉じ込められた地下水が地殻熱流により加熱されて温水化した、いわゆる深層熱水が貯留されている。この深層熱水に含まれる炭酸成分の起源を知るために、溶存全炭酸の炭素安定同位体組成 (¹³C) と濃度の関係を調べた。その結果、大分平野の深層熱水の炭酸成分は、火山性のCO₂が堆積性有機物起源のCO₂と様々な割合で混ざったものであることが判った。また、水質との比較検討から、高塩分型深層熱水の炭酸成分の大半が火山性CO₂に由来し、弱アルカリ型深層熱水の炭酸成分は堆積性有機物起源であると結論された。

今後の研究課題としては、(1) 深層熱水に混入している火山性のCO₂がどこからもたらされているのかを明らかにすることと、(2) 堆積性有機物起源CO₂の放射性炭素 (¹⁴C) 濃度を調べ、深層熱水の貯留年代を求めることが考えられる。

5. 参考文献

- Fischer, T.P., Sturchio, N.C., Stix, J., Arehart, G.B., Counce, D. and Williams, S.N. (1997) The chemical and isotopic composition of fumarolic gases and spring discharges from Galeras Volcano, Colombia. *J. Volcanol. Geotherm. Res.*, 77, 229-253.
- 岩倉一敏・大沢信二・高松信樹・大上和敏・野津憲治・由佐悠紀・今橋正征(2000) 長湯温泉(大分県)から放出される二酸化炭素の起源. *温泉科学*, 50, 86-93.
- 岩倉一敏・大沢信二・大上和敏・網田和宏・高松信樹・今橋正征・野津憲治・由佐悠紀(1999) 長湯温泉の温泉遊離ガスについて. *大分県温泉調査研究会報告*, 50, 19-25.
- 北岡豪一・川野田実夫(1991) 大分市温泉の化学成分の分布とその変化. *大分県温泉調査研究会報告*, 42, 1-10.
- 森康夫・陶山淳治(1980) 「地熱エネルギー読本」, 232p., オーム社, 東京.
- 森山善蔵・日高稔(1986) 大分市温泉の地質. *大分県温泉調査研究会報告*, 37, 38-50.
- 水谷義彦(1995) 地下水の地化学特性. 島崎英彦・新藤静夫・吉田鎮男編, 「放射性廃棄物と地質科学 地層処分現状と課題」, 123-146, 東京大学出版会, 東京.
- NEDO(1989) 「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」, 236p.
- 野田徹郎・北岡豪一(1981a) 大分川流域温泉の高塩分泉の付随ガスについて. *大分県温泉調査研究会報告*, 32, 43-55.
- 野田徹郎・北岡豪一(1981b) 大分川流域温泉の継続観測の総括. *大分県温泉調査研究会報告*, 32, 43-55.

- 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(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.
- 佐野有司(1996) ヘリウム・炭素同位体比からみたマグマ起源ガスと地殻物質との相互作用. 地質学論集, 46, 83-90.
- 志賀史光・川野田実夫(1970) くじゅう火山の温泉群(5) くじゅう北東部の炭酸泉. 大分県温泉調査研究会報告, 21, 70-77.
- 鶴田治雄(1994) 二酸化炭素. 陽捷行編, 「土壌圏と大気圏」, 29-54, 朝倉書店, 東京.