
原 著

同位体水文学的手法による九重火山南東麓に湧出する 炭酸泉の形成機構の解明

京都大学大学院理学研究科附属地球熱学研究施設

山田 誠, 網田和宏, 大沢信二

(平成 16 年 12 月 2 日受付, 平成 17 年 1 月 13 日受理)

Isotope-hydrological Study on Formation Mechanism of Carbonate Springs at the Southeastern Foothills of Kuju Volcano, Central Kyushu, Japan

Makoto YAMADA, Kazuhiro AMITA and Shinji OHSAWA

Beppu Geothermal Research Laboratory, Institute for Geothermal Sciences,
Graduate School of Science, Kyoto University

Abstract

Groundwater, which discharge as hot springs, mineral springs, cold springs and well at the southeastern foothills of Kuju Volcano, Central Kyushu, Japan, were collected for δD , $\delta^{18}O$, $\delta^{13}C$ and concentration of dissolved inorganic carbon (DIC) analyses. δD and $\delta^{18}O$ values of the samples definitely show that all of the waters are derived from the local meteoric water. Recharge elevation of the waters is estimated to be about 870–1230 m by δD values. The groundwater recharged at such elevations of the southeastern flank of the volcanic edifice discharges as mineral springs at relatively high elevations of the southeastern foothills of Kuju Volcano and partly discharges as hot springs at relatively low elevations there (Nagayu area). The characteristics of $\delta^{13}C$ values and pCO_2 show that magmatic CO_2 is mixed into groundwater discharged from hot springs, the mineral springs and some cold springs. Topographical distribution of concentrations of DIC and the result of groundwater flow analysis by δD values suggest that highly carbonated groundwater is produced by the mixing of magmatic CO_2 into the recharged groundwater at the southeastern flank of the volcanic edifice and the mixed groundwater flow from west to east and form the carbonate water zone at the southeastern foothills of Kuju volcano. These highly carbonated groundwater discharges as the mineral and hot springs, which are mixed with shallow groundwaters dissolved soil CO_2 nearby the discharge areas.

Key words : Hydrogen and oxygen stable isotopic ratio, Stable carbon isotopic ratio,
Dissolved inorganic carbon, Carbonate spring, Nagayu Hot Spring

キーワード : 水素・酸素安定同位体比, 炭素安定同位体比, 溶存炭酸, 炭酸泉, 長湯温泉

1. はじめに

火山地域では高濃度の炭酸を含む炭酸泉と称される湧水が湧出していることがある。近年、炭素安定同位体を用いた研究により、溶存炭酸は土壌起源の二酸化炭素とマグマ起源の二酸化炭素の混合によって形成されていることが明らかとなってきた (Chiodini *et al.*, 2000 ; Ohsawa *et al.*, 2002 ; Evans *et al.*, 2002). また、火山地域の地下水流動については、水の安定同位体を用いた同位体水文学的手法による研究が数多く行われている (風早・安原, 1994 ; 中村ほか, 2002). しかし、炭酸が地下水によって運ばれているにもかかわらず、地下水流動を踏まえた炭酸の挙動についての研究はこれまで行われておらず、高濃度炭酸泉の形成機構には不明な点が多く残されている。

大分県西部に位置する九重火山は、いくつかの山体が東西約 10 km に連なる複成火山である。最東部には大船山・黒岳があり、これらは九重火山を形成する山体の中で最も形成年代の新しい山体 (大船山: 3,000~5,000 年前, 黒岳: 約 1,700 年前) である (鎌田・池邊, 1999). また、大船山の西方約 5 km には 1995 年に水蒸気爆発を起こした九重硫黄山があり、現在も活発な噴気活動が見られる。大船山の南東麓 (Fig. 1) には高濃度炭酸泉がいくつか存在し、大分-熊本構造線と呼ばれる大規模な地質構造線上に存在する長湯温泉は、国内でも最も炭酸の含有量が多いといわれる温泉として知られている。また、長湯温泉は江戸時代にはすでに療養の目的で利用されており (中村, 1999), 高濃度炭酸泉が古くからこの地で自然湧出していたことがわかっている。

長湯温泉の溶存炭酸はマグマ起源であることが明らかとなっているが (岩倉ほか, 2000), その形成および流動プロセスについては明らかにされていない。また、長湯温泉以外の高濃度炭酸泉と長湯温泉との関係についての研究はこれまで行われていない。そこで本研究では、九重火山南東麓の

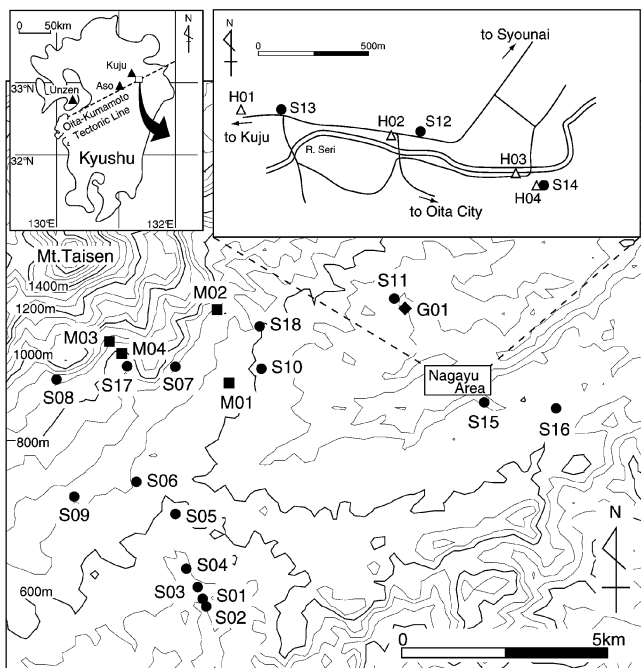


Fig. 1 Map showing locations of hot springs (open triangles), cold springs (solid circles), mineral springs (solid squares) and well (solid rhombus) at the southeastern foothills of Kuju Volcano.

長湯温泉を含む高濃度炭酸泉が湧出する地域を対象として、各種水試料の水の安定同位体、溶存炭酸の炭素安定同位体および溶存炭酸濃度の測定を行い、データ解析結果等に基づいて高濃度炭酸泉の形成機構について考察を加えたので報告する。

2. 試料の採取と分析

化学・同位体分析用の試料水は、冷湧泉 18 地点、鉱泉 4 地点、井戸水 1 地点、温泉 4 地点の合計 27 地点で採取し (Fig. 1 と Table 1)、現地において水温および pH の測定を行った。全溶存炭酸 (DIC : dissolved inorganic carbon = $\text{CO}_{2(\text{aq})} + \text{HCO}_3^- + \text{CO}_3^{2-}$) の炭素安定同位体比測定用試料 (1 L) と DIC 濃度測定用試料 (100 mL) はガス不透過性に優れたボトル (ニッコー製テクノボトル : BAREX[®]) に採取した。実験室に持ち帰った試料は測定までボトルのまま冷蔵庫内 (5°C) に保存した。また、水の安定同位体比測定用試料はガラス製バイアル瓶 (20 mL) に封入し、保存した。

DIC 濃度は試料を硫酸酸性にして炭酸成分をすべて $\text{CO}_{2(\text{aq})}$ に変換し、イオンメータ (東亜電波製 IM-1B) に接続した二酸化炭素電極 (東亜電波製 CE-235) を用いて、絶対検量線法により測定した。DIC の炭素安定同位体比 ($^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$) は、試料 (1L) に水酸化ストロンチウムを加え加熱して析出した SrCO_3 をろ別して風乾し、これに濃リン酸を滴下して、発生する CO_2 を質量分析計に導入し測定した。また、水の D/H 比と $^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$ 比は、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って測定した。炭素安定同位体比および水の安定同位体比は標準物質の同位体比からのずれを δ 値 (%) で表した ($\delta = [(R_{\text{smp}}/R_{\text{std}}) - 1] \times 1000$)。ここで R_{smp} , R_{std} はそれぞれ試料と標準物質の同位体比を表す。標準物質の同位体比には、炭素と水の安定同位体比にそれぞれ、国際標準物質の V-PDB (Peedee 層のベレムナイト化石) の同位体比、標準海水 (SMOW) の同位体比を用いた。 $\delta^{13}\text{C}$, δD , $\delta^{18}\text{O}$ の測定精度はそれぞれ $\pm 0.1\%$, $\pm 1\%$, $\pm 0.1\%$ である。これらの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分析室 (Rafter Stable Isotope Laboratory, Institute of Geological and Nuclear Sciences) で行った。測定結果を Table 1 に示した。

3. 結果と考察

3.1 地下水の平均涵養標高と流動経路

冷湧泉、鉱泉、井戸、温泉から採取した試料水の δD 値と $\delta^{18}\text{O}$ 値の関係および安山岩質マグマ性水蒸気のとる同位体比の範囲 (Giggenbach, 1992) を Fig. 2 に示した。天水性の地下水がマグマ性水蒸気の混入を受けた場合、安山岩質マグマ性水蒸気のとる同位体比の範囲と地域天水とを結ぶ直線上にプロットされ、九重火山地域のいくつかの温泉水でそのような結果が得られている (北岡ほか, 1996)。しかし、今回採取した水はすべて天水線 ($\delta\text{D} = 8\delta^{18}\text{O} + 10$) に沿ってほぼプロットされ、マグマ性水蒸気の影響は見られない。したがってこれらすべての水は天水起源であり、採水地点を含む何れかの場所で涵養された水であると考えられる。

地下水が天水起源である場合、地下水の同位体標高効果を用いてその涵養域を推定することが可能である (風早・安原, 1994)。山田ら (2003) は湧水の δD 値を用いて、九重火山地域の地下水の水素同位体標高効果を $-1.37\%/100\text{m}$ と見積もり、 δD 値と地下水の平均涵養標高 H (m) との関係 (地下水涵養線) を $\delta\text{D} = -0.0137H - 41.68$ とした。本研究の対象地域は九重火山地域の一部であり、採取した水はすべて前述の通り天水起源であると考えられるので、上記の式が適用できる。採取した水の湧出標高と δD 値の関係および地下水涵養線を Fig. 3 に示した。採取した水の δD 値は 1 つの地点 (S12) を除き $-58.5 \sim -53.6\%$ の範囲を示した。S12 の値は九重火山地域の地下水涵養線に

Table 1 Chemical and isotopic data of the water samples at the southeastern foothills of Kuju Volcano

| Point Name | Sampling Date | Water Temperature (°C) | pH | $\delta^{18}\text{O}$ (‰) | δD (‰) | DIC (mg/L) | $\delta^{13}\text{C}_{\text{DIC}}$ (‰) | Well Depth (m) |
|------------|---------------|------------------------|-----|---------------------------|----------------------|------------|--|----------------|
| S01 | 2002.11.16 | 13.8 | 5.8 | -8.5 | -55.8 | 209 | -9.6 | — |
| S02 | 2002.11.16 | 13.7 | 6.2 | -8.4 | -56.5 | 86 | -13.3 | — |
| S03 | 2002.11.16 | 14.4 | 6.1 | -8.5 | -56.2 | 107 | -11.8 | — |
| S04 | 2002.11.16 | 15.4 | 6.9 | -8.4 | -56.6 | 93 | -12.9 | — |
| S05 | 2002.11.16 | 13.9 | 6.6 | -8.3 | -56.3 | 61 | -10.8 | — |
| S06 | 2002.11.25 | 13.6 | 6.6 | -8.5 | -57.0 | 84 | -12.2 | — |
| S07 | 2002.11.12 | 15.1 | 7.1 | -8.7 | -56.9 | 217 | -5.7 | — |
| S08 | 2002.11.12 | 10.9 | 7.5 | -8.9 | -58.3 | 18 | -6.3 | — |
| S09 | 2002.11.25 | 11.7 | 7.5 | -8.4 | -57.8 | 38 | -12.7 | — |
| S10 | 2002.11.12 | 17.9 | 6.6 | -8.2 | -53.9 | 349 | -8.2 | — |
| S11 | 2002.11.12 | 14.2 | 7.0 | -8.4 | -55.8 | 94 | -14.7 | — |
| S12 | 2002.11.12 | 12.8 | 8.5 | -7.5 | -44.4 | 111 | -6.6 | — |
| S13 | 2002.11.12 | 15.7 | 6.6 | -8.2 | -53.7 | 149 | -12.3 | — |
| S14 | 2002.11.12 | 14.1 | 7.5 | -8.4 | -55.3 | 21 | -16.3 | — |
| S15 | 2002.11.12 | 14.0 | 7.2 | -8.5 | -55.8 | 24 | -18.9 | — |
| S16 | 2002.11.12 | 14.8 | 7.2 | -8.7 | -57.1 | 89 | -17.0 | — |
| S17 | 2002.11.24 | 14.3 | 7.1 | -9.0 | -57.7 | 211 | -8.0 | — |
| S18 | 2002.11.12 | 14.2 | 7.9 | -8.7 | -55.9 | 46 | -5.0 | — |
| M01 | 2002.11.12 | 19.1 | 6.3 | -8.7 | -55.3 | 1042 | -4.8 | — |
| M02 | 2002.11.12 | 11.6 | 5.5 | -9.1 | -55.9 | 929 | -4.7 | — |
| M03 | 2002.11.25 | 11.1 | 5.4 | -9.0 | -57.9 | 901 | -3.7 | — |
| M04 | 2002.11.25 | 14.8 | 5.9 | -9.0 | -58.5 | 661 | -4.1 | — |
| G01 | 2002.11.12 | 14.2 | 6.8 | -8.5 | -55.3 | 86 | -15.4 | 389 |
| H01 | 2004.07.20 | 42.1 | 6.9 | -8.8 | -58.3 | 2574 | -2.3 | 260 |
| H02 | 2004.07.20 | 44.0 | 6.6 | -8.8 | -53.6 | 2412 | -2.5 | 169 |
| H03 | 2004.07.20 | 44.0 | 6.7 | -8.8 | -56.0 | 2520 | -3.2 | 260 |
| H04 | 2004.07.20 | 42.6 | 6.6 | -8.8 | -55.3 | 2286 | -2.3 | 110 |

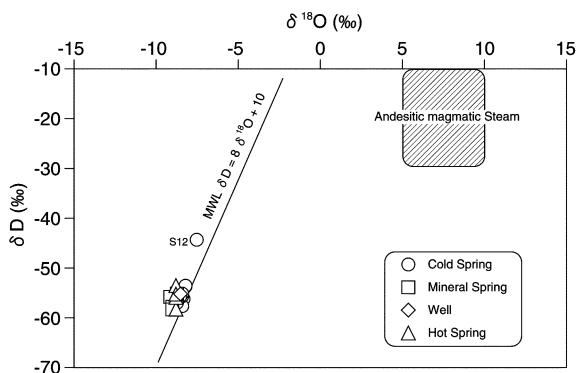


Fig. 2 δD - $\delta^{18}\text{O}$ plots of water samples discharged as hot springs (open triangles), cold springs (solid circles), mineral springs (solid squares) and well (solid rhombus) from the studied area. The diagonally shaded box shows the ranges of δD and $\delta^{18}\text{O}$ values of andesitic magmatic steam (Giggenbach, 1992). Solid line labeled with MWL expresses meteoric water line : $\delta\text{D} = 8\delta^{18}\text{O} + 10$.

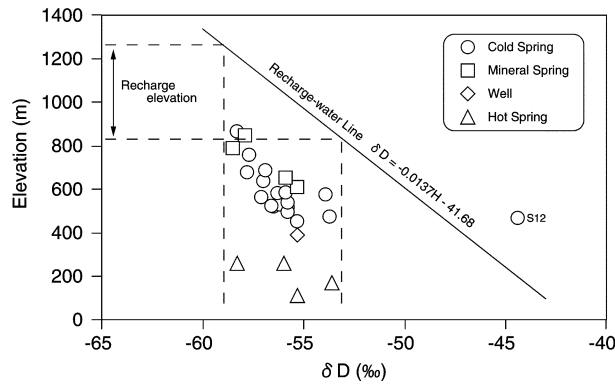


Fig. 3 Relation between discharge elevation and δD values of waters from hot springs (open triangles), cold springs (solid circles), mineral springs (solid squares) and well (solid rhombus). Solid line expressed in equation : $\delta D = -0.0137H - 41.68$ is a recharge-water line in Kuju volcanic area estimated by Yamada *et al.* (2003).

基づく同位体標高効果では説明のつかない値を示しており、なおかつ Fig. 2 において明らかに他の水と比べて δD 値、 $\delta^{18}O$ 値共に高い値を示している。したがって他の水とは異なった水系の水が湧出しているものと思われるが 1 地点のみのデータではその由来の推定は困難であること、また、本研究の目的においては特に重要な存在ではないため以後の考察からは除外した。

δD 値のとり範囲から地下水涵養線を用いて平均涵養標高を求めると 870~1,230 m となった。本研究地域で標高が 870~1,230 m を示す場所は大船山の南東斜面にあたり、冷湧泉、鉱泉、井戸、温泉ともに大船山南東斜面の 870~1,230 m 地帯を主涵養域としていると考えられる。そして、この地域で涵養された水は、一部は冷湧泉または鉱泉として比較的標高の高い場所で湧出し、一部は深部へ浸透し、流動中に地温の影響を受け、標高の低い長湯地域で温泉水として湧出していると推定される。

3.2 溶存炭酸の起源と挙動

Table 1 に示したように、冷湧泉、鉱泉、井戸、温泉から採取した水の DIC 濃度はそれぞれ、18~349 mg/L、661~1,042 mg/L、86 mg/L、2,286~2,574 mg/L であり、溶存炭酸の炭素安定同位体比はそれぞれ、 $-18.9\sim-5.0\%$ 、 $-4.8\sim-3.7\%$ 、 -15.4% 、 $-3.2\sim-2.3\%$ であった。Ohsawa *et al.* (2002) が雲仙火山で認めたと同様に、濃度の高いものほど同位体比が高いという傾向が認められ、その関係は土壌 CO_2 ($\delta^{13}C = -25\%$; 水谷・山本, 1993) を溶解した通常の地下水 ($\delta^{13}C_{DIC} = -23\sim-19\%$; 水谷・山本, 1993) にマグマ起源 CO_2 ($\delta^{13}C = -12\sim-2.5\%$; Fischer *et al.*, 1997) が混入していることを意味している。

マグマ起源 CO_2 の混入が見られる地下水の場合、次の二つのパターンの溶存炭酸成分の形成プロセスが考えられる。

- (A) 土壌起源 CO_2 を溶解した地下水にガス状のマグマ起源 CO_2 が直接混入する場合
- (B) マグマ起源 CO_2 のみを溶解した地下水と土壌起源 CO_2 を溶解した地下水とが混合する場合

(A) の場合、地下水の DIC 濃度と $\delta^{13}C_{DIC}$ の関係は次式で表すことができる。

$$\delta^{13}C_{gw} = \frac{1}{C_{gw}} \{C_0(\delta^{13}C_0 + 1000) + C_{mag}(\delta^{13}C_{mag} + 1000)\} - 1000 \quad (1)$$

ここで C は DIC 濃度, 添え字 gw, 0, mag はそれぞれマグマ起源 CO₂ 混入後の地下水, 初期値, マグマ起源 CO₂ を示す. また, (B) の場合は次式となる.

$$\delta^{13}C_{gw} = \frac{1}{C_{gw}} \{\delta^{13}C_{mag}C_{mag}X + \delta^{13}C_{soil}C_{soil}(1-X)\} \quad (2)$$

$$C_{gw} = C_{mag}X + C_{soil}(1-X) \quad (3)$$

ここで X および添え字 soil はそれぞれ混合割合, 土壌起源 CO₂ を示し, それ以外の記号は(1)式と同じである.

上記の混合関係を表す式のパラメータに妥当な値を代入することができれば, 期待する混合関係(混合線)を具体的に求めることが可能であり, マグマ起源 CO₂ の同位体比としては九重硫黄山の噴気ガスから得られた値 -4.7‰ (平林ほか, 1996) を, 土壌起源 CO₂ を溶解した地下水の同位体比としては -20‰ (-19 ~ -23‰ : 水谷・山本, 1993) を用いることができる. また, DIC 濃度には土壌起源 CO₂ を溶解した地下水の二酸化炭素分圧 (pCO_2) を 0.01 atm および 0.03 atm とし, (4)式を用いて計算した値を用いることができる.

$$C = \frac{l}{RT} \times pCO_2 \quad (4)$$

ここで C は DIC 濃度, l は Ostwald 係数, R は気体定数, T は絶対温度, pCO_2 は二酸化炭素分圧を示す. なお, (B) の混合については, マグマ起源 CO₂ のみを溶解した地下水の二酸化炭素分圧は不明であるため, 大気圧下で二酸化炭素のみと接している水 (pCO_2 : 1 atm) を仮定した. さらに, 低温の水どうしが混合して低温の水として湧出する場合(パターン 1)と, 低温の水と高温の水が混合して高温の水として湧出する場合(パターン 2)が考えられるので, パターン 1 の Ostwald 係数には 15°C での値を用い, パターン 2 では, 湧出する温度を 40°C としたときに 15°C の水に混入する水の温度を熱量の保存式から計算し, その温度での Ostwald 係数を用いた.

上記の混合に関する関係式から求めた混合関係(混合線)と実際の分析データを $pCO_2 - \delta^{13}C_{DIC}$ 図にプロットしたのが Fig. 4 である. 岩倉ら(2000)は付随ガスの CO₂, He の同位体組成から, 長湯温泉の溶存炭酸はマグマ起源であることを示しているが, Fig. 4 では長湯温泉の水はいずれの混合線上にもプロットされない. これは大気中の二酸化炭素分圧が温泉水のそれに比べて非常に小さい値 (3×10^{-4} atm) であるため湧出時に脱ガスが起こり, 同位体比の高い CO₂ が液相に濃集した結果であると考えられる. 事実, 現地では温泉水の湧出は CO₂ ガスを伴う形で湧出しており, 重い同位体 (¹³C) の濃集は十分に起こりうる状況にある. また, 鉱泉水についても同様の現象が起こっており, その結果, 混合線よりも若干高い同位体比を示しているとするのは妥当であろう.

以上の解析は, 温泉水と鉱泉水および一部の湧水の溶存炭酸がマグマ起源 CO₂ と土壌起源 CO₂ の混合で生じたことを示しているが, 各混合線の有り様には大きな差がないため, (A) (B) いずれの混合過程を経ているのかについてはこれだけでは明確にできない. そこで, 溶存炭酸濃度の高い水の地理的分布に注目してみた.

溶存炭酸濃度の分布図 (Fig. 5) では, 長湯温泉を除くと, 大船山南東斜面の標高 600 ~ 1,000 m の地域に 1,000 mg/L 程度の高濃度の水が存在し, この地域の一部は鉱泉水の涵養域 (870 ~ 1,230 m) とほぼ重なる. これはマグマ起源 CO₂ が地下水の涵養域近傍で混入していることを示しており, 高濃度炭酸水は涵養域付近で生成していることを強く示唆している. また, 長湯温泉も含めると, 大

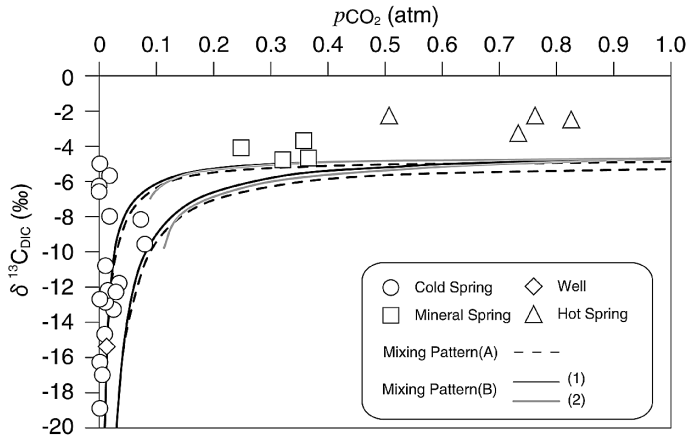


Fig. 4 Plots of $\delta^{13}\text{C}$ of dissolved inorganic carbon (DIC) versus $p\text{CO}_2$ of waters calculated from pH, water temperature and concentration of DIC. Solid (black and gray) and broken lines show expected mixing relations between magmatic CO_2 and soil CO_2 in groundwaters. For detail, see text.

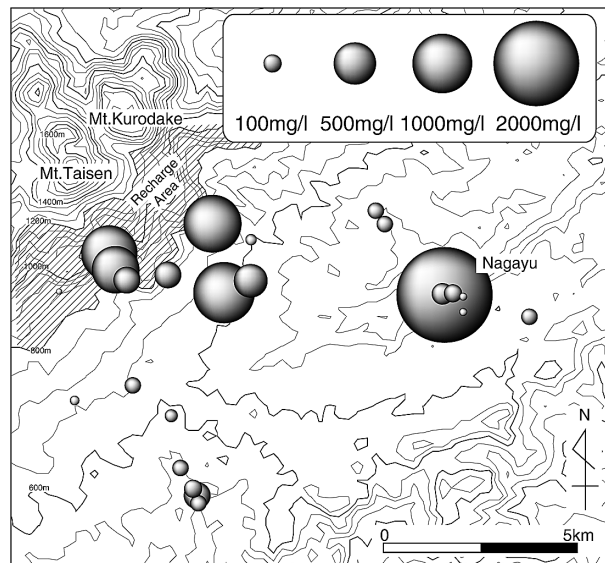


Fig. 5 Topographical distribution of concentrations of dissolved inorganic carbon of waters discharged as hot springs, cold springs, mineral springs and well. The diagonally shaded area shows main recharge area of groundwater.

船山の南東斜面 800~1,000 m 付近から東方向にかけて高炭酸濃度帯が存在し、これは 3.1 で求めた地下水の流動方向と一致する。さらに、長湯温泉の涵養標高は鉱泉水の涵養標高とほぼ同じであることから (Fig. 3), 長湯の温泉水もまた涵養域でマグマ起源 CO_2 の混入を受けて形成されたものであると考えるのが自然である。したがって、これらの高濃度炭酸水はすべて大船山の南東斜面の標高約 800~1,200 m 付近で形成され、それらが大局的に西から東へ流動しているものとするのが妥当である。近年、S10 付近 (Fig. 1) において深部掘削 (約 500 m) が行われ、高濃度の炭酸泉が湧

出している（大分県企画振興部観光・地域振興局，2004）．このことは，高濃度炭酸水がこの地域の地下を東方へ流動しているとする上述の考えを裏付けていると考えられる．以上を総合すると，提示した2つの溶存炭酸成分の形成プロセスのうち，パターン（B）（マグマ起源 CO_2 のみを溶解した地下水と土壌起源 CO_2 を溶解した地下水とが混合する場合）が当該研究地域には適用されることがわかる．

パターン（B）の場合，Fig. 4の横軸はマグマ起源 CO_2 を溶解した地下水の混合割合を示すことになり，鉱泉水（□）は長湯の温泉水（△）に比べて土壌起源 CO_2 を溶解した地下水の混入をより多く受けていることを示している．さらに，長湯温泉に注目すると，温泉水は狭い範囲で湧出しているにもかかわらず（Fig. 1），平均涵養標高および PCO_2 の値は採水場所によって異なる（Fig. 3, Fig. 4）．これは長湯エリアまで流動してきた高濃度炭酸水が湧出直前に浅層に存在する土壌起源 CO_2 を溶解した地下水の混入を様々な割合で受けていることを示唆している．つまり，長湯の温泉水は大船山付近で涵養された地下水だけではなく標高の低い場所で涵養した地下水がさらに若干混入することによって形成されているものと考えられる．高濃度炭酸水の流動経路に当たると考えられる前述のS10付近の深部井戸から湧出する炭酸泉が長湯の温泉水よりも温度が高く，溶存炭酸濃度も若干高い（水温：53.4℃，DIC：2630 mg/L）ことは，流出域での浅層地下水の混入プロセスの存在を示唆していると考えられる．その様な標高の低い場所で涵養した浅層地下水の混入の度合いを見積もるためには，S10付近で深部掘削された炭酸泉についても本研究と同様な同位体的手法による検討を行う必要があり，今後の研究課題としたい．

3.3 大船山南東麓の炭酸泉の形成機構モデル

これまでの考察結果をもとにして，大船山南東麓の炭酸泉の形成機構モデルを模式的に表したのがFig. 6である．マグマ起源 CO_2 は高標高の涵養域近傍で地下水に混入して高濃度炭酸水を形成し，その一部は土壌起源 CO_2 を溶解した地下水と混ざり，中程の標高の所に自然湧出する（鉱泉水）．一方，マグマ起源 CO_2 の溶解により形成された高濃度炭酸水の残りの部分はそのまま深部を流動

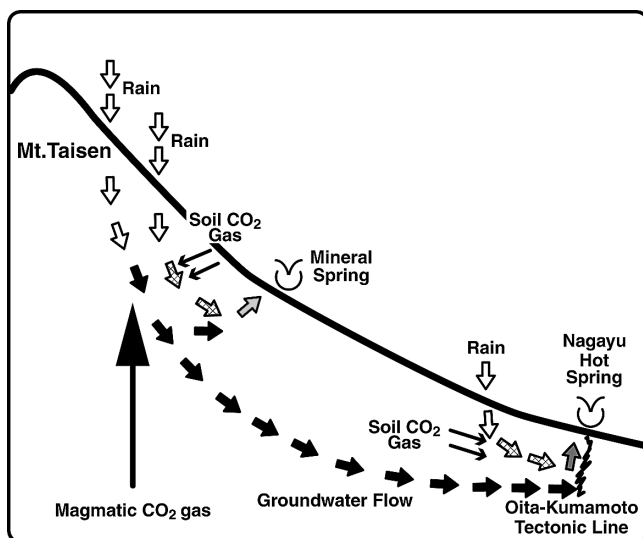


Fig. 6 Schematic representation of formation process of carbonate springs at the southeastern foothills of Kuju Volcano.

し、地温の影響で温度を上昇させて熱水となり、断層(大分-熊本構造線)に沿って上昇し、流出域付近において標高の低い場所で涵養した地下水の混入を若干受けて湧出する(長湯温泉)。

4. ま と め

冷湧泉・鉱泉・井戸水・温泉の水の安定同位体比、溶存炭酸の炭素安定同位体比および全溶存炭酸濃度の測定を行い、それらのデータ解析と考察によって以下のことが明らかとなった。

採取した水はすべて天水起源であり、大船山南東斜面の標高 870~1,230 m 地帯を主涵養域とする地下水に由来している。涵養後の地下水は、一部は冷湧水または鉱泉として中程度の標高の場所で自然湧出し、残りの部分は深部へ浸透し、流動中に地温の影響を受け、標高の低い長湯エリアで温泉水として湧出している。

マグマ起源 CO₂ の地下水系への混入は地下水主涵養域の近傍(大船山の南東斜面標高約 800~1,200 m 地帯)で起こり、高濃度炭酸水はこのエリアで形成されている。また、生成した高濃度炭酸水は前述の主要な地下水流動系を成して西から東へ流動し、九重火山南東山麓に高炭酸濃度帯を形成している。そこでは高濃度炭酸水が土壌起源 CO₂ を溶解した浅層地下水の混入を受け、鉱泉水や温泉水として湧出しているが、鉱泉水は比較的標高の高い所に、温泉水は標高の低いところに湧出している。

本研究の成果は、単にある地域に存在する炭酸泉の成り立ちを明らかにしたという事例研究的にとどまらず、炭酸泉の水と溶存炭酸の安定同位体および水質データ(DIC 濃度, pH, 水温), ならびに湧出地点の地理的分布の総合的な解析から、炭酸泉の形成機構を解明するための具体的な方法を提示したということでもある。この方法は、水や溶存炭酸の起源を知り、それから炭酸泉の成り立ちを推定する従来の方法と異なり、地下水流動系の中に炭酸泉の存在を位置づけ、それに立脚して溶存炭酸の起源や挙動を化学・同位体的に究明することにより、炭酸泉の成り立ちをより具体的に描くというところに特色があると考えられる。本論でも述べたように、今後は本研究で対象とした地域で新規掘削された深井戸から得られる水試料の化学・同位体データを収集して、提示した炭酸泉の形成機構モデルの妥当性を検証し、解析方法の有用性について検討を加えたい。

謝 辞

日本文理大学河野忠助教授には湧水点の情報の提供と現地案内をしていただいた。また、ニュージーランド地質核科学研究所(Rafter Stable Isotope Laboratory, Institute of Geological and Nuclear Sciences)の G.L. Lyon, W. Gooley, K. Rogers の諸氏には水の同位体測定および炭素同位体測定に便宜をはかっていただいた。これらの方々に深く感謝いたします。本研究に要した費用の一部に、文部科学省科学研究費(基盤研究(c)(2))研究代表者:大沢信二, 課題番号 14580504)を当てた。記して謝意を表します。

文 献

- Chiodini, G., Frondini, F., Cardellini, C., Parello, F. and Peruzzi, L. (2000) : Rate of diffuse carbon dioxide Earth degassing estimated from carbon balance of regional aquifers : The case of central Apennine, Italy, *J. Geophys. Res.*, **105**, 8423-8434.
- Evans, W.C., Sorey, M.L., Cook, A.C., Kennedy, B.M., Shuster, D.L., Colvard, E.M., White, L.D. and Huebner, M.A. (2002) : Tracing and quantifying magmatic carbon discharge in cold groundwaters : lessons learned from Mammoth Mountain, USA, *J. Volcanol. Geotherm.*

Res., **114**, 291-312.

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.

風早康平, 安原正也 (1994) : 湧水の水素同位対比からみたハヶ岳の地下水の涵養・流動過程, *ハイドロロジー*, **24**, 107-119.

Giggenbach, W.F. (1992) : Isotopic shifts in waters from geothermal and volcanic system along convergent plate boundaries and their origin. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **113**, 495-510.

平林純一, 大場 武, 野上健治 (1996) : 九重山 1995 年 10 月噴火と地球化学的研究, 研究成果報告書「1995 年 10 月九重火山の水蒸気爆発の発生機構と火山活動推移の調査・研究」, 63-73.

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**, 2, 86-93.

鎌田浩毅・池邊浩司 (1999) : 九州の火山, 築地書館, 33-48.

北岡豪一, 大沢信二, 由佐悠紀, 日下部実 (1996) : 九重硫黄山における深部循環熱水の沸騰による化学及び同位体組成の変化, *温泉科学*, **46**, 156-145.

水谷義彦, 山本晃一 (1993) : 富山県砺波平野浅層地下水中の溶存炭酸の起源, *地下水学会誌*, **35**, 2, 77-861.

中村 昭 (1999) : 本邦における炭酸泉の歴史的概観 (1), *人工炭酸泉研究会雑誌*, **2**, 1, 10-15.

中村太郎・佐藤 努・安原正也 (2002) : 御嶽山南東斜面における天水の高度効果, *日本水文科学会誌*, **32**, 135-147.

大分県企画振興部観光・地域振興局 (2004) : 大分県温泉調査報告温泉分析書, **55**, 92.

Ohsawa, S., Kazahaya, K., Yasuhara, M., Kono, T., Kitaoka, K., Yusa, Y. and Yamaguchi, K. (2002) : Escape of volcanic gas into shallow groundwater systems at Unzen Volcano (Japan) : Evidence from chemical and stable carbon isotope compositions of dissolved inorganic carbon, *Limnology*, **3**, 169-173.

山田 誠, 大沢信二, 由佐悠紀 (2003) : 湧水の水素と酸素の安定同位体比からみた九重火山地域の地下水の涵養と流動, *九大・地熱火山研究報告*, **12**, 66-74.