

水素・酸素同位体を用いた 屋久島における温泉水の起源推定

ESTIMATING ORIGIN OF HOT SPRING WATER
BY USING HYDROGEN AND OXYGEN ISOTOPES IN YAKUSHIMA ISLAND

横田恭平¹・井伊博行²・谷口正伸³・平田健正⁴

Kyohei YOKOTA, Hiroyuki II, Masanobu TANIGUCHI and Tatemasa HIRATA

1学生会員 和歌山大学大学院 システム工学研究科 (〒640-8510 和歌山市栄谷930番地)

2正会員 博(理) 和歌山大学教授 システム工学部環境システム学科 (同上)

3正会員 博(工) 和歌山大学助手 システム工学部環境システム学科 (同上)

4正会員 工博 和歌山大学教授 システム工学部環境システム学科 (同上)

Origin of hot spring water in the Yakushima island was clarified using δD and $\delta^{18}O$ values and Cl^- . δD and $\delta^{18}O$ values and Cl^- concentrations of river water in the Yakushima island showed zonation. Both δD and $\delta^{18}O$ values and Cl^- concentrations decreased with increase of height because of isotope effect and sea salt migration caused by air.

δD and $\delta^{18}O$ values and Cl^- concentrations of two hot spring waters were in agreement with those in river waters at 600 to 800 m in height and 1200 m in height respectively. Therefore two hot spring waters were thought to derive from river waters 600 to 800 m in height and 1200 m in height. As hot spring temperature calculated from both the normal geothermal gradients in Japan and altitude differences between recharge area and hot springs can reach actual temperature, thermal origin of hot spring does not need volcanic activity.

Key Words : δD , $\delta^{18}O$, Cl^- , hot spring water, subsurface water, Eh-pH, water chemistry

1. はじめに

地下水の流動や起源を明らかにすることは、地下水の環境保全にとって重要である。そのため地下水の流動や起源推定は多くの研究がなされている。その指標としては、水素・酸素同位体比¹⁾、重水素²⁾、塩化物イオン濃度、電気伝導度^{3),4)}などがある。地下水の水素・酸素同位体比は、蒸発や化学変化が起こらない限り変化しない。塩化物イオンは、化学的に安定した物質で、岩石などと独自に反応することがないため、ほかからの供給がない限り濃度が変化することがない。

温泉は、熱源で分類すると、火山の地下のマグマを熱源とする火山性温泉と、火山とは無関係の非火山性温泉に分けられる。温泉水の起源は主に降水であるがマグマ水の水素・酸素同位体比は天水線上にないため、マグマ水の混入があると、温泉水の同位体比は天水線からはずれるため、マグマ水の影響があるかないかが判る。また、周辺の降水の同位体比と比較することで、温泉水の起源を推定することが可能である。そこで本研究では①年間降水量が4000mm（山間部では8000～10000mm）である

ため、高降水量での特徴を把握すること、②ほぼ円錐形であり⁵⁾、高度差が大きい（最高峰の宮之浦だけは約1900m）ため同位体比が変化しやすいと考えられること（高度効果）、③人的影響が少ない場所であること、④周辺に火山フロントが確認されていること⁶⁾、⑤温泉が存在する⁷⁾ことから鹿児島県の屋久島において、トリリニア・ヘキサダイアグラム、水素（ δD ）・酸素（ $\delta^{18}O$ ）同位体比、塩化物イオン（ Cl^- ）を指標にして、温泉水の起源を推定することを目的とする。

2. 調査地、水質調査・分析の概要

調査対象地域である屋久島は、図-1に示す。屋久島は、鹿児島県に属し周囲132km、面積約503km²で中央部には、九州最高峰の宮之浦岳（1925m）が聳え立っている。1000mを越える峰は30を越え、洋上のアルプスとも呼ばれ、また白神山地とともに、1993年に日本で始めて世界自然遺産に登録された場所である。そのため、人工的な負荷をあまり受けていない場所である。植生は、屋久杉が有名であるが、低地から山岳部に至る順に熱帯・亜熱

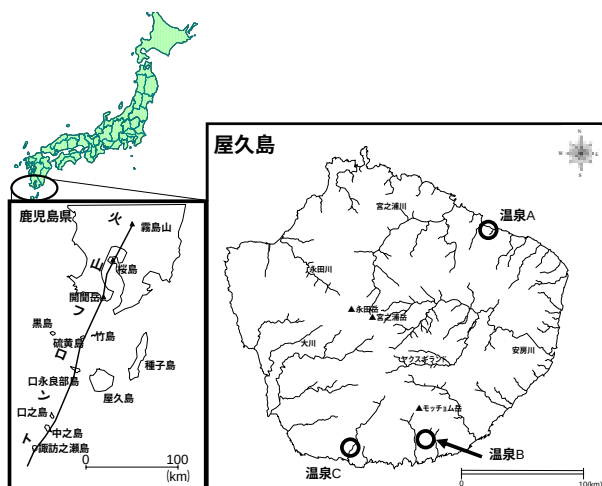


図-1 研究対象地域

帯植物、照葉樹林、スギ樹林帯、ヤマシマダケ草原帯が分布しているおり、日本全国の植生を見ることができる。また、標高1600m付近には、北海道の釧路湿原と気候的に似た高層湿原である花之江河がある。

屋久島は、約1400万年前に、元々堆積していた熊毛層群に花崗岩の貫入があり、その後熊毛層群が風化を受けたことより、現在では花崗岩が地表面に姿を現した。そして6300年前に鹿児島県に位置する硫黄島と竹島の間にあった火山島が噴火したため、鹿児島を含め屋久島の沿岸部はシラス（火砕流堆積物の非-弱溶結部）で覆われている。そのため、屋久島の地質は、花崗岩、熊毛層群、堆積岩である⁸⁾。また、屋久島の北西には、火山フロントが確認されている。火山フロントは、鹿児島県に位置する霧島山、桜島、開聞岳、硫黄島、口永良部島、中ノ島、諏訪之瀬島の直線上に存在する。

温泉A、B、Cは本研究で重点をおいた温泉である。温泉A（標高15m）は海から内陸に約0.2km、温泉B（標高87m）は約0.7kmの林にある。温泉C（標高3m）は、海に面した温泉であるが、温泉内には直接海水が混入することが少ない場所である。温泉Aは、地上に自然湧出した温泉をタンクに貯めたものを採水した。そのため、水温は湧出したときの温度より若干異なると考えられる。温泉B、Cは地上に自然湧出した温泉を直接採水した。

調査日は2006年3月27～30日（2006年3月）と7月8～18日（2006年7月）である。採水は2006年3月には、渓流水・河川水が60地点、温泉水が10地点である。2006年7月は、渓流水・河川水が120地点、温泉水が4地点、雨水が2地点、海水が1地点である。一部、同じ地点を調査した場所もある。水質調査では、サンプル採取時に、pH、電気伝導度（EC）、酸化還元電位（ORP）、水温の測定も行っている。pH計、EC計、ORP計は、HORIBA社のD-22、D-23を使用している。水温は、pH、EC、ORPに付属している水温計で測定し、3つの計測した水温の平均を使用した。採水サンプルは、研究室に持ち帰り、0.45μmのフィルターを通したあと、溶存成分をイオンク

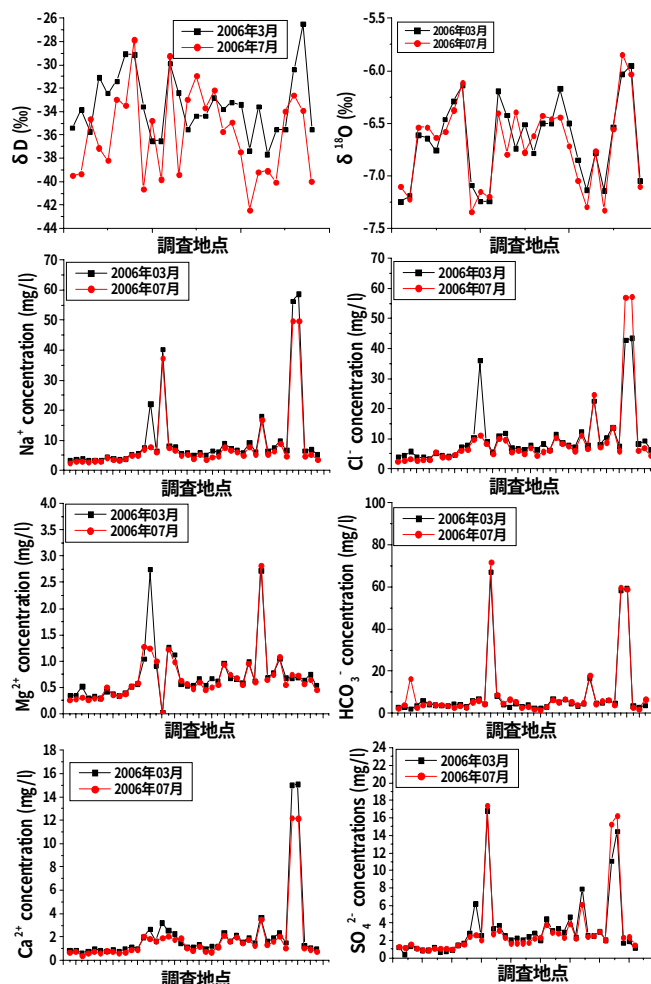


図-2 2006年3月と7月の δD 、 $\delta^{18}O$ 、 Na^+ 、 Cl^- 、 Mg^{2+} 、 HCO_3^- 、 Ca^{2+} 、 SO_4^{2-} の各地点の変化

ロマトグラフィーで分析した。イオンクロマトグラフィーは、（株）日本ダイオネクス社製を使用している。重炭酸イオンに関しては、硫酸による滴定により分析を行った。水素・酸素の同位体比は、水素・炭酸ガス平衡法によって前処理を行った後、質量分析装置（Delta plus）で測定した。

3. 2006年3月と7月のデータについて

本研究では、2006年3月と7月の調査データを使用する。図-2は、2006年3月と7月の δD 、 $\delta^{18}O$ 、 Na^+ 、 Cl^- 、 Mg^{2+} 、 HCO_3^- 、 Ca^{2+} 、 SO_4^{2-} の各地点の変化である。 δD が1～4‰、 $\delta^{18}O$ が0.1～0.2‰の差がみられる。 Cl^- は全体的に2～3mg/lの差がみられる。その変動幅は、測定器による誤差（測定精度は、 δD が±1‰、 $\delta^{18}O$ が0.1‰、イオン濃度は1～2mg/l）程度であるため、大きな差でない。 Na^+ 、 SO_4^{2-} 、 HCO_3^- 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} に関しても2006年3月と7月の濃度の差は、ほぼ2～3mg/l程度の違いが見られる。以上のことから、2006年3月と7月の結果には、大きな変化はなかった。

4. 温泉水の起源推定

(1) トリリニア・ヘキサダイアグラム

図-3は雨水の10, 温泉A, B, Cのヘキサダイアグラムである。それ以外は河川水・溪流水のヘキサダイアグラム（当量の幅を3meq/lで統一している）である。本研究では、7月のデータを使用してヘキサダイアグラムを作成している。溪流水の14と16を除く河川水と溪流水は、ほぼ同じような形をしていることがわかる。この形は、雨水の10とほぼ同じ形をしているので、屋久島の河川水・溪流水は雨水が起源であると推測できる。温泉A, B, Cは、雨水の10と形が異なり、また温泉A, Bはほぼ同じ形をしていることがわかる。温泉A, Bの当量と雨水の10の当量が異なる項目は、 Na^+ , HCO_3^- , SO_4^{2-} であるが、それ以外の Cl^- , Mg^{2+} , Ca^{2+} は、ほぼ同じ当量といえる。溪流水の14, 16のヘキサダイアグラムは、大きさは異なるものの温泉A, Bと形が似ている。そこで、温泉A, Bと形が似ている溪流水の14, 16がトリリニアダイアグラムにおいて温泉との関わりがあるか確認する。

図-4は、2006年3月、7月における雨水（2地点）、溪流水・河川水（180地点）・海水（1地点）・温泉水（14地点）のトリリニアダイアグラムと図-3の各種ヘキサダイアグラム（当量の幅は溪流水が1meq/l、海水は610meq/l、それ以外は3meq/l）である。多くの溪流水、海水、雨水の10, 温泉Cは、Na-Cl型に属している。温泉Cの Na^+ と Cl^- の約2.5(meq/l)は、雨水や河川水の Na^+ と Cl^- の0.2(meq/l)に比べて約10倍異なる。 Na^+ と Cl^- の当量が増加する原因は、生活排水¹⁰⁾と海水が考えられるが、屋久島は生活排水の影響を無視できる。そのため温泉Cは、雨水や河川水に海水が混入したものと考えられる。

溪流水の14, 16（14が標高1177m, 16が1412m）、温泉A, Bの2地点で採水した8サンプルの計10サンプルは、Na-HCO₃型に属する。これら2地点の溪流水は、当量とは異なるものの、形は温泉A, Bの8サンプルと似ていることがわかる。温泉A, Bは地上に自然湧出しているため、Na-HCO₃型に属する温泉水の起源は、この溪流水である可能性がある。

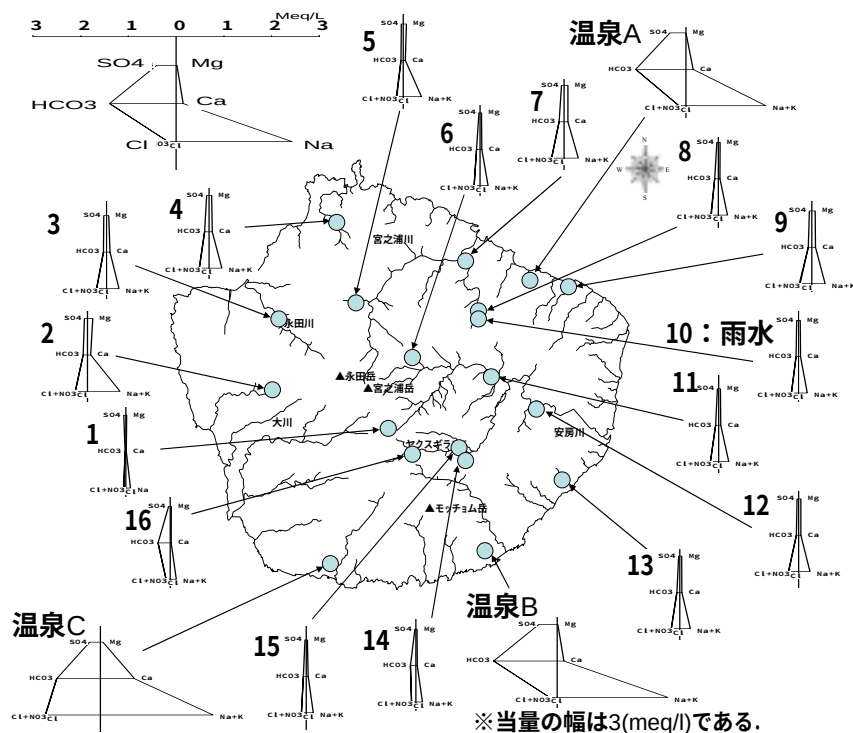


図-3 屋久島におけるヘキサダイアグラムの平面分布

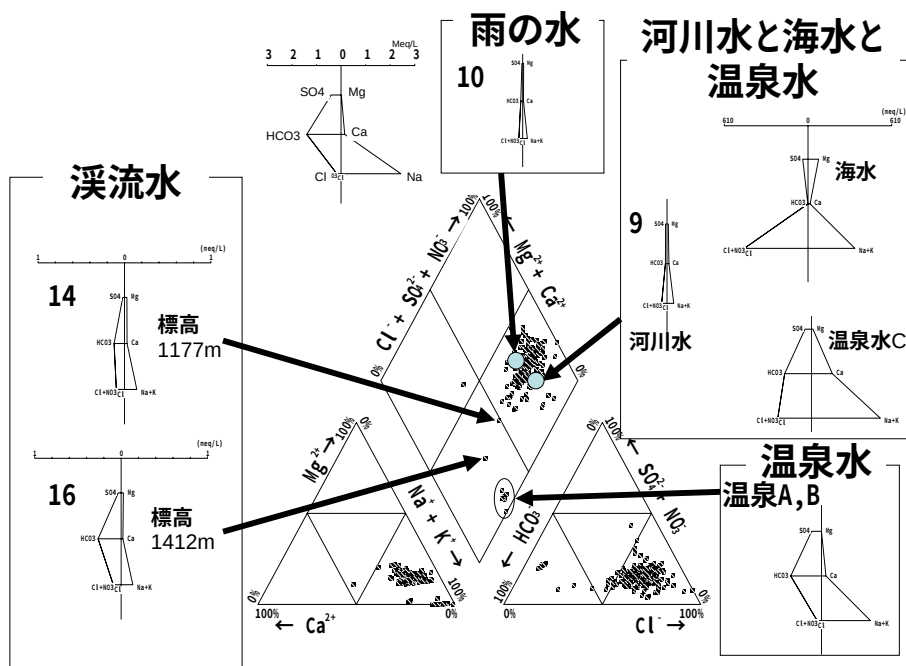


図-4 屋久島の2006年3月、7月のトリリニアダイアグラムと雨水・河川水・海水・温泉水・溪流水のヘキサダイアグラム

以上のことから、14と16を除くトリリニアダイアグラムから河川や溪流水の起源は、降雨であると推測できる。またヘキサダイアグラムとトリリニアダイアグラムより温泉水の起源には2種類あり、溪流水や河川水が起源である温泉A, Bと溪流水や河川水に海水が混入した温泉Cである。さらに、温泉A, Bの起源は、1177m, 1412mの溪流水と推測できる。

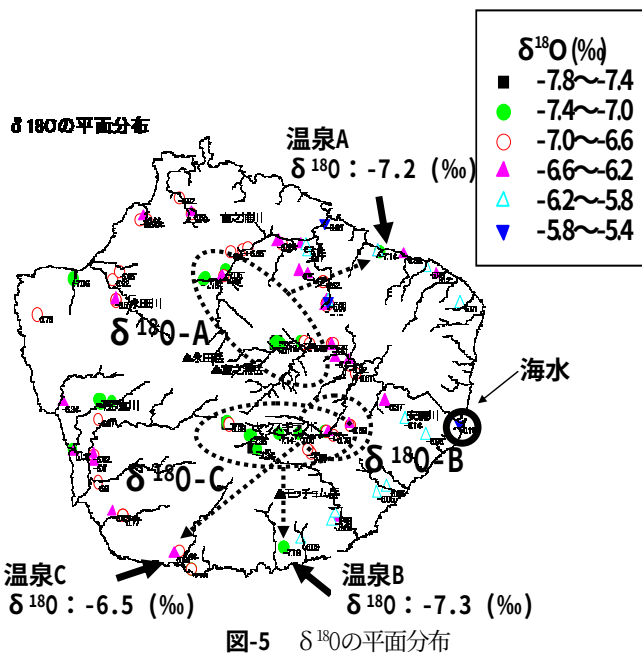


図-5 δ¹⁸Oの平面分布

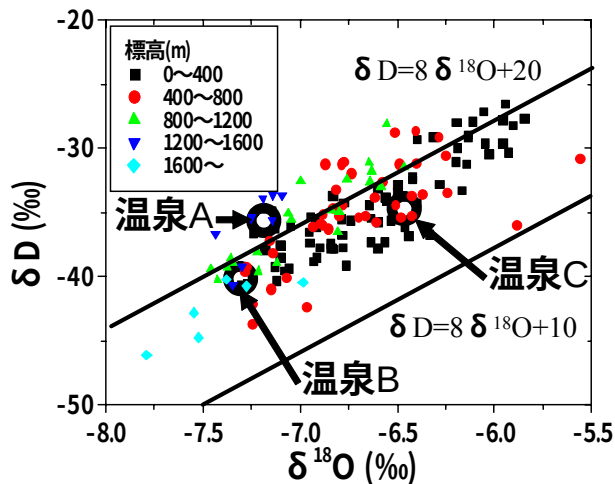


図-7 δ¹⁸OとδDとの関係を標高ごとにわけたもの

(2) 水素酸素同位体比

図-5, 6は、2006年3月と7月の屋久島におけるδDとδ¹⁸Oの平面分布である。δDは内陸にいくほど-27から-46‰へと軽くなる。δ¹⁸Oは内陸にいくほど-5.5から-7.5‰へと軽くなる。また沿岸部においては、東部ではδDが-36~-27‰、δ¹⁸Oが-6.3~-5.8‰であるが、西部はδDが-43~-39‰、δ¹⁸Oが-7.0~-6.3‰と東部のほうが値は大きい傾向にある。北部と南部においては大きな違いは見ることができない。図-7は、δ¹⁸OとδDとの関係を標高ごとに分けたものである。多くのサンプルは天水線上(δD=8δ¹⁸O+10)とは異なり、δD=8δ¹⁸O+20の上に乗っていることが分かる。また、標高が0~400mのときは、δDの範囲が-40~-28‰、δ¹⁸Oが-7.5~-5.8‰と高度効果を見ることはできない。しかし400m以上になると、高度が高くなるにつれδDとδ¹⁸Oの値が小さくなり、最も小さい値はδD=-46‰、δ¹⁸O=-7.6‰である。そのため、400m以上においては高度効果があると考えられる。

温泉A(δD: -36.5‰, δ¹⁸O: -7.2‰)と温泉B(δD: -40.6‰, δ¹⁸O: -7.3‰)は、沿岸域の同位体比より小さ

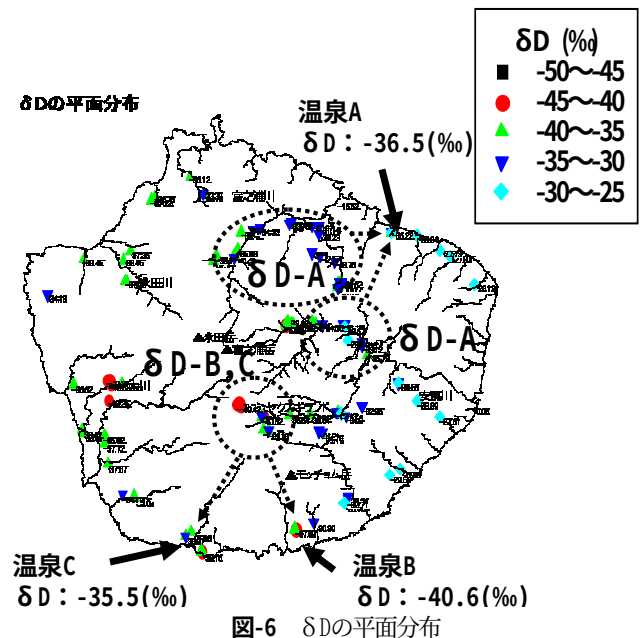


図-6 δDの平面分布

い値を示す。そのため温泉A, Bの起源は、沿岸周辺ではないと考えられる。そこで水素・酸素同位体比の両方から温泉起源を推定した。温泉水の水素・酸素同位体比の値が近似する場所を温泉水の起源とし、それを図-5, 6中にまとめると、温泉Aは、δD-A, δ¹⁸O-A(標高600~800m)、温泉Bは、δD-B, δ¹⁸O-B(標高1200m)、温泉CはδD-C, δ¹⁸O-C(標高1200m)の領域である。温泉Cは、トリリニア・ヘキサダイアグラムの結果から、海水(V-SMOW δD=δ¹⁸O=0‰)が含まれていると考えられる。そのため温泉Cは、海水の混入の影響を加味する必要があり、推定された領域よりもっと同位体比が低く、標高が異なる地点が涵養域と考えられる。温泉Bに関しては、トリリニア・ヘキサダイアグラムで特定した標高1100mとほぼ一致する。以上のことから、温泉Aは600~800m、温泉Bは1200mが涵養源と推測できる。温泉Cは涵養源を特定できなかった。

(3) 塩化物イオン濃度

Cl⁻は、海水やそれを含む岩石との反応がない限り岩石に吸着することや他の物質と化学反応することが少ないため、地下水の起源推定が可能であると考えられる。そこで図-8は2006年3月、7月のCl⁻の平面分布である。沿岸では10~25mg/lなどの値があるが、内陸に行くにつれ、0~10mg/lの範囲で、濃度は低くなる。図-9は、2006年3月、7月のNa⁺とCl⁻との結果をpHと標高ごとに分けたものである。標高が高いほどNa⁺, Cl⁻濃度が低い傾向にある。また標高が低くなるとNa⁺, Cl⁻濃度が増加することから、海水からの供給が考えられる。Na⁺濃度は高いが、Cl⁻濃度が低いものもある。これらは温泉A, Bである。温泉水のCl⁻濃度のみを見ると、800~1200mの標高のCl⁻濃度とほぼ同じである。このことから、温泉水は標高800m以上の高所から供給されていると考えられる。また河川水はpH4~8であるが、温泉A, B, CはpH9~10であり、河川水よりpHが高い傾向にある。

温泉におけるCl⁻は、温泉Aは5mg/l、温泉Bは5.6mg/l、

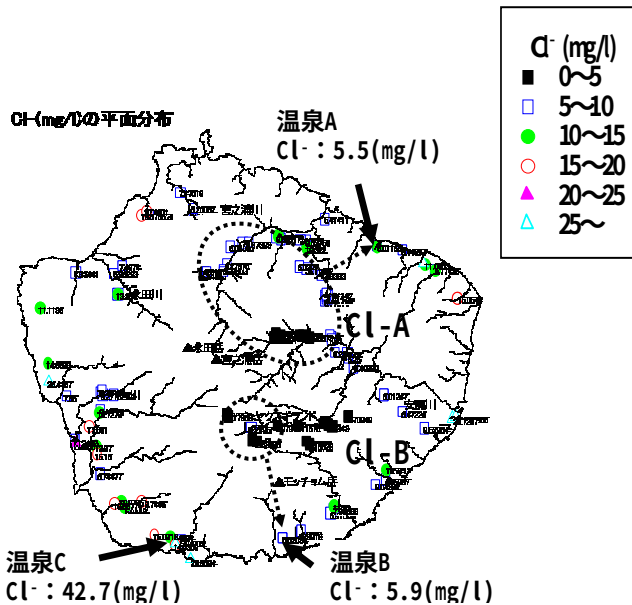


図-8 Cl⁻の平面分布

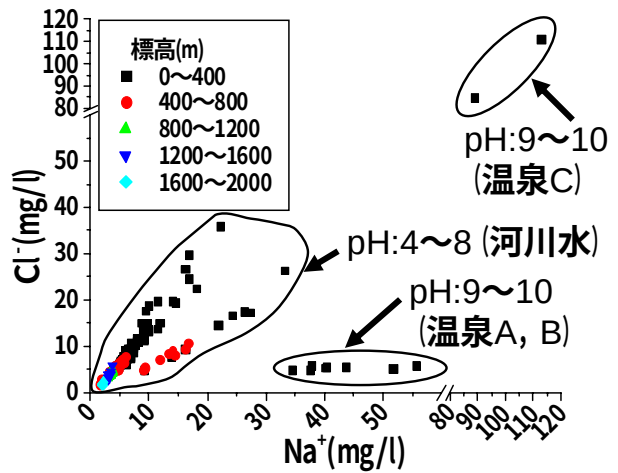


図-9 Na⁺とCl⁻との関係を標高ごとに分けたものとそれぞれのpH

表-1 各温泉と河川水のpH, ORP, 温度(tem), Na⁺, Cl⁻, HCO₃⁻, Mg²⁺, Ca²⁺, SO₄²⁻

温泉名	pH	ORP(mV)	tem(°C)	Na⁺(mg/l)	Cl⁻(mg/l)	HCO₃⁻(mg/l)	Mg²⁺(mg/l)	Ca²⁺(mg/l)	SO₄²⁻(mg/l)
温泉A	9.74	-188	24.55	40.25	5.47	67.1	0.02	3.2	16.81
温泉B	9.74	-195	44.00	55.57	5.93	84.99	0.2	2.9	19.46
温泉C	8.35	-310	35.70	56.35	42.77	58.56	0.68	15.01	11.07
河川水	5.86	328	10.85	6.47	8.29	2.44	0.67	1.24	2.88

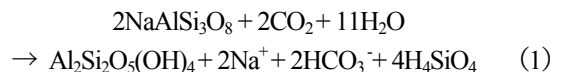
温泉Cは42.7mg/lである。温泉A, Bに関しては、内陸部の濃度とは大きく変化がないため、沿岸域が温泉水の起源でないと推測できる。そこでCl⁻濃度から温泉水の起源を推測し、図-8にまとめると、温泉Aは、Cl-A（標高600～800m）、温泉BはCl-B（標高1200m）である。温泉Cは、はっきりした水源を特定することはできなかった。温泉Cにおける水の起源を特定できなかった理由は、標高の高い場所よりCl⁻濃度が高いことである。屋久島は全体的に世界自然遺産に登録されているため、人工的な負荷は考えにくい場所であるので、地下水に海水（Cl⁻: 約20000mg/l）が混入したと考えられる。

以上、トリリニア・ヘキサダイアグラム、水素・酸素同位体比、塩化物イオン濃度から温泉水A, Bの起源を推定した。しかし、温泉Cのように海水が含まれている温泉に関しては、確固たる起源を特定することは難しいと考えられる。

5. 温泉の水質について

表-1は2006年3月に屋久島調査したときの各温泉と河川水のpH, ORP, 温度(tem), Na⁺, Cl⁻, HCO₃⁻, Mg²⁺, Ca²⁺, SO₄²⁻である。温泉のpHは、すべてアルカリ性を示している。またORPの結果から、温泉はすべて嫌気的な状態にあることがわかる。Na⁺, SO₄²⁻とHCO₃⁻は河川水に比べて増加していることが分かる。そこで表-1に掲げた温泉水の各種水質項目から判断できる硫黄と炭素の状態について考察していく。図-10は、表-1の結果を元

に作成した硫黄と炭素の電位-pH図である¹¹⁾。温泉水に硫黄が最も多く存在するのは、SO₄²⁻の状態である。もし、温泉水のpHが河川水と同じ5.8であればSが最も多い物質になる。また温泉水は地下においてはさらに還元的であると推測できる。そのため、岩石に含まれるSを溶かしHS⁻になっていると考えられる。同じく温泉水に炭素が最も多く存在する状態は、HCO₃⁻である。このことから、屋久島の温泉にSO₄²⁻とHCO₃⁻が多いのは、温泉水のpHが9.7とアルカリ性であることと、岩石の溶解が考えられる。pH, Na⁺, HCO₃⁻の上昇原因は、風化した花崗岩に含まれる長石とCO₂を含む水との反応で以下の式（1）のようにNa⁺などのアルカリ金属が溶解するためと考えられる¹²⁾。



そのためpHが酸性からアルカリ性になる原因は、花崗岩と反応が起こったためと考えられる。Na⁺の増加原因は、海水からの供給が考えられるが、Cl⁻濃度は増加していないことから海水からの供給はないといえる。そのため図-9において温泉A, Bは、河川水にくらべてCl⁻は増加していないがNa⁺とpHの値が上昇する傾向が見られた。よって、温泉水は、花崗岩と何らかの反応があったものと考えられる¹³⁾。

河川水の水温は約10℃前後であった。温泉Aの起源は、標高600～800m、温泉Bでは標高1200mであると推測された。地温の上昇率は、約2～3℃/100mであると一般

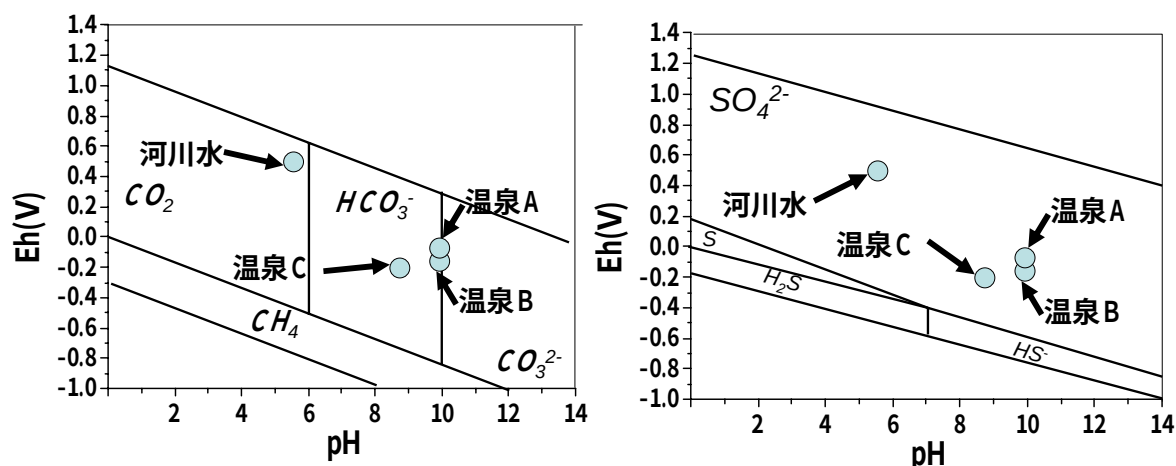


図-10 硫黄と炭素の電位-pH図（河川水と温泉水）

的に観測されているため、温泉Aの温度は12～24℃上昇し、温泉Bは24～36℃上昇すると考えられる。温泉Aの水温は24℃（温泉は25℃以上が基準であるが、タンクに一度貯めるため温度が低くなったと推測できる。しかしORPが-188mVと嫌気性のため、多くの時間空气中に触れた時間が少ないと考えられるので温度変化は小さいと考えられる。）、温泉Bは44℃であるため、地上に自然湧出する屋久島の温泉水は、火山からの熱源が必ずしも必要でないと推測できる。

6. まとめ

本研究では、花崗岩地帯でかつ北西に火山フロントが確認されている世界遺産の屋久島において、水素・酸素同位体比を主に、従来の方法であるトリリニア・ヘキサダイアグラム、塩化物イオンで温泉水の起源を推定した。本研究では、2006年3月と7月に調査を行ったが、季節変化を見ることはできなかった。

屋久島の河川水と渓流水は、雨水のヘキサダイアグラムと大差ないため、植物や岩石などの養分をあまり含まない水と考えられる。また温泉水の起源は、標高1100m以上からの水であると推測できる。水素・酸素同位体比と塩化物イオン濃度から温泉水の起源を特定すると、600～800mと1200mの2種類が推測できた。しかし海水などが含まれる温泉水（地下水）に関しては、水素・酸素同位体比、塩化物イオン濃度を用いても起源を特定することはできないといえる。トリリニア・ヘキサダイアグラムを用いれば、地下水に海水が混入した有無を確認できると考えられる。

温泉水の水質に関してpH、ORPから、嫌気性である温泉水が SO_4^{2-} や HCO_3^- を多く含む理由は、温泉水のpHが河川水より上昇したことと、岩石からの溶出が考えられる。また温度勾配より、温泉の起源水は、火山からの熱源がなくても温泉水の水温まで上昇するといえる。

参考文献

- 1) 馬原保典, 中田英二, 大山隆弘, 宮川公雄, 五十嵐敏文, 市原義久, 松本裕之: 化石海水の同定法の提案-太平洋炭鉱における地下水水質・同位体分布と地下水年代評価-, 地下水学会誌, 第48巻第1号, pp.17-33, 2006.
- 2) 後藤大輔, 井伊博行, 平田健正, 吉国孝成, 大塚康範, 金川正敏: 環境同位体と流量測定によるトンネル湧水の起源推定, 環境工学, 第41巻, pp.665-674, 2004.
- 3) 片貝武史, 亀井丈史, 鷺見哲也, 辻本哲郎: 裸地景観と植生景観を有する砂州における保存性イオンを利用した伏流水の流動特性, 水工学論文集, 第50巻, pp.1123-1128, 2006.
- 4) 平田健正: 森林域における物質循環特性の渓流水に及ぼす影響, 土木学会論文集, 第399号, pp.131-140, 1988.
- 5) 斉藤建夫: ふるさとの文化遺産郷土資料辞典46鹿児島県, 人文社, pp.147-150, 1998.
- 6) 内嶋善兵衛, 勘米良亀齡, 田川日出男, 小林茂: 日本の自然地域編7九州, 岩波書店, pp.162-177, 1995.
- 7) 近藤源一: 県別シリーズ46郷土資料辞典鹿児島県・観光と旅, 人文社, pp.108-110, 1974.
- 8) (財)屋久島環境文化財団: 図説屋久島, 鹿児島県環境生活部環境保護課, pp.18-21, 2005.
- 9) 窪原拓馬, 井伊博行, 桑川高德, 長谷部正彦, 和賀川流域の積雪・河川水・湧水・温泉水の水質について, 水工学論文集, 第44巻, pp.1161-1166, 2000.
- 10) 横田恭平, 井伊博行, 養父志乃夫, 平田健正: 大阪府南部の生活排水が混入する河川におけるヤゴの生物生息限界について, 水工学論文集, 第50巻, pp.1105-1110, 2006.
- 11) 武田育郎: 水と水質環境の基礎知識, オーム社, pp.39-41, 2002.
- 12) 多賀光彦, 那須淑子: 第2版地球の化学と環境, 三共出版, pp.43-45, 2005.
- 13) 井伊博行: 足尾の銅鉱床の成因について（鉱床学から地下水技術を学ぶ）, 地下水技術, 第45巻第3号, pp.17-28, 2003.

(2006.9.30受付)