

奥会津地熱系の地熱流体の地球化学的特徴

関 陽児*

SEKI Yoji (1996) Geochemical characteristics of the Oku-aizu geothermal system, Japan. *Bull. Geol. Surv. Japan*, vol. 47 (5), p. 273-289, 16 figs., 6 tables.

Abstract: Major geochemical characteristics of geothermal fluid in the Oku-aizu system are discussed based on previously reported analytical data.

The system is characterized by high temperatures (aximum 340°C), high salinity (about 2 wt% TDS) and large amounts of non-condensable gases (1 wt% CO₂ and 200 mg/kg H₂S). Enthalpy data, in conjunction with CO₂-H₂S and CO₂-H₂-CH₄ data, indicate present aquifer boiling.

Although the dominant components in the geothermal water are Cl and Na, the ratio of B/Cl and Br/Cl indicate no sea water interaction in the system. N₂-He-Ar gas compositions strongly suggest that magmatic gases are mixing with the geothermal fluid.

The geothermal water has at most several tens of mg/kg of Pb and Zn, and estimates Au of 0.06 ppb (a previous report). The origin of these metals is uncertain at present.

要 旨

福島県奥会津地熱系の地熱流体について、主として既存データに基づいてその地球化学的特徴を総括し、地熱流体の起源を考察した。

奥会津地熱系は、急傾斜の断層破碎帯にともなう開放裂か群を貯留層とする熱水卓越型の地熱系であり、坑井内の実測最高温度は340°Cに達する。開発による地熱流体の噴出に起因する貯留層圧の低下にともない、坑井周辺の貯留層内では沸騰が生じている。貯留層内沸騰により坑井には気液二相が流入するため、沸騰以前の地熱流体(原熱水)の化学組成は、沸騰のモデルに基づき推定された。

推定原熱水の全溶存成分濃度は約2 wt%, CO₂濃度は約1 wt%, H₂S濃度は約200 mg/kgであり、国内の他の地熱系に比べ高塩濃度、高ガス濃度の特徴をもつ。地熱水中のNa, K, Mgは、母岩中の長石類、カリ雲母などの熱水変質鉱物と300°C前後での平衡-部分平衡に相当する濃度となっている。溶存成分の主体はNaClであるが、B/Cl比、Br/Cl比から海水の寄与は認められない。水素・酸素同位体比およびトリチウム濃度は、地熱流体に相当量の天水が含まれていることを示す。N₂, Ar, He組成は地熱流体への火山ガスの寄与を強く示唆する。高い塩濃度がマグマ発散物に由来するのか、いわゆる“化石海水”起源であるのかを決定づける証拠は、

* 鉱物資源部 Mineral Resources Department (GSJ)

今のところない。

これらのことから、奥会津地熱系の地熱流体は、地表から浸透し深部のマグマにより暖められた水(加熱地下水)を主体とし、少なくとも、そのマグマから供給された高温のマグマ性ガスが吹き込まれて形成されたものと考えられる。

1. はじめに

奥会津地熱地域(第1図)では、1970年代半ば以降、国、企業による地熱資源の調査が進められてきた。多年にわたる探査・開発の結果、1995年5月に、我が国有数の発電規模である65,000 kWの電気出力をもつ柳津西山地熱発電所が運転を開始した。福島県会津若松市の西南西約20 km、同県河沼郡柳津町西山地区に位置する奥会津地熱系は、生産井の坑内温度が300°C前後に達する高温の地熱系であり、また貯留層中の熱水の溶存成分濃度(約2 wt% TDS)、CO₂(約1 wt%)、H₂S(約200 mg/kg)などのガス濃度も国内の他の地熱系と比べて高い、などの特徴をもつ。本報では、すでに報告されている化学分析データをもとに、この地熱系の地熱流体の基本的な化学的特徴を総括し、地熱流体の起源について考察する。

Keywords: Oku-aizu geothermal system, fluid geo-chemistry, reservoir boiling, fluid-mineral equilibria, magmatic contribution, stable isotope

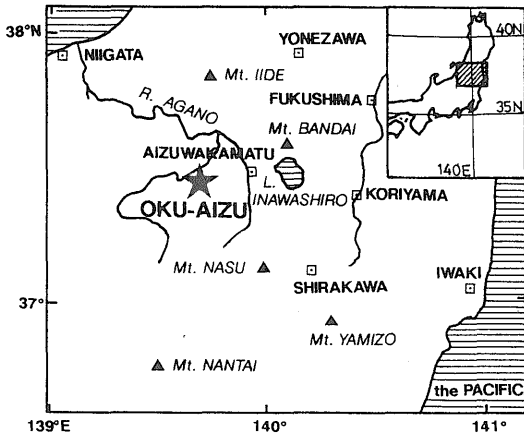
2. 地質および地熱系の概要

奥会津地熱系の位置する会津盆地南縁の山地域には、先第三紀の堆積岩類および花こう岩類を基盤として、前期-中期中新世の海成(一部非海成)砕屑岩と火山岩が広く分布する(北村ほか, 1968; 通産省, 1970; 鈴木ほか,

1986). 最近, 山元(1992a)は, この地域にいくつかの後期中新世-鮮新世の陥没カルデラが存在することを明らかにした.

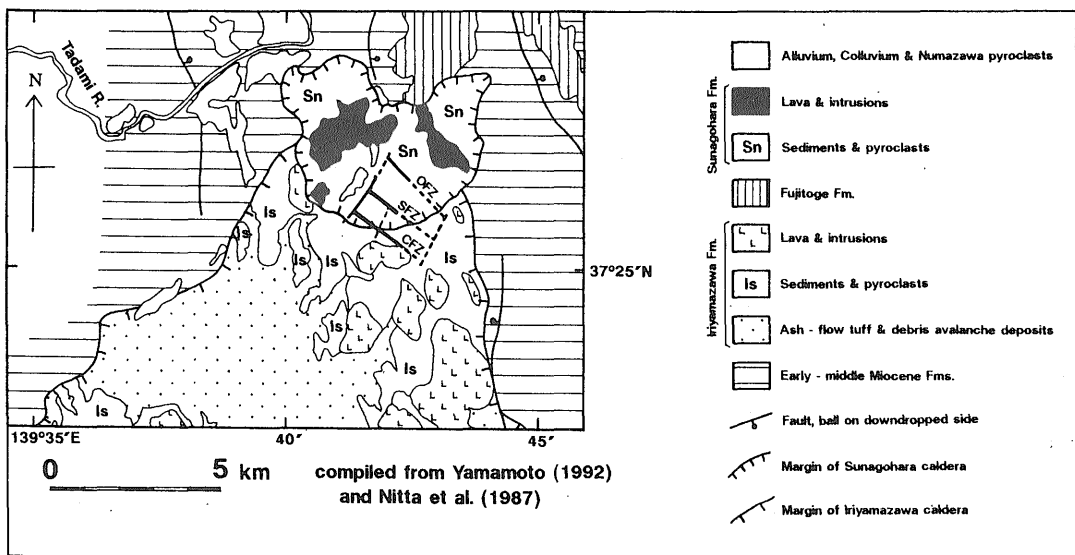
奥会津地熱系の発達する砂子原周辺では, 湖成層(砂子原層)と流紋岩ドームにより特徴づけられる中新世以降に形成された陥没構造の存在が知られていたが(小室, 1978; NEDO, 1985), 山元(1992a, b)は, この砂子原層が地表部の直径約6kmのカルデラを埋積する地層であることを明らかにし, 砂子原カルデラと命名した(第2図). また, 水垣(1993)は, 試錐試料の解析と地表地質調査を行ない, 砂子原カルデラが最大径約2kmの火道をもつ, 濁川カルデラ(北海道)とよく似た構造をもつカルデラであるとした. カルデラ内の地表に露出する黒雲母角閃石流紋岩の溶岩ドーム群からは0.2-0.6MaのK-Arおよびフィッシュオントラック年代値が報告されており(NEDO, 1985), 砂子原カルデラは更新世に形成されたと考えられている.

一方, 砂子原カルデラは, より古い7Ma頃に形成されたと考えられる入山沢カルデラ(山元, 1992a)の北端部に位置するが, 奥会津地熱系の高温中心部は砂子原カルデラをはずれて, 入山沢カルデラの後カルデラ溶岩ドーム群の配列線上深部に位置するという見方もできる(第2図).



第1図 位置図

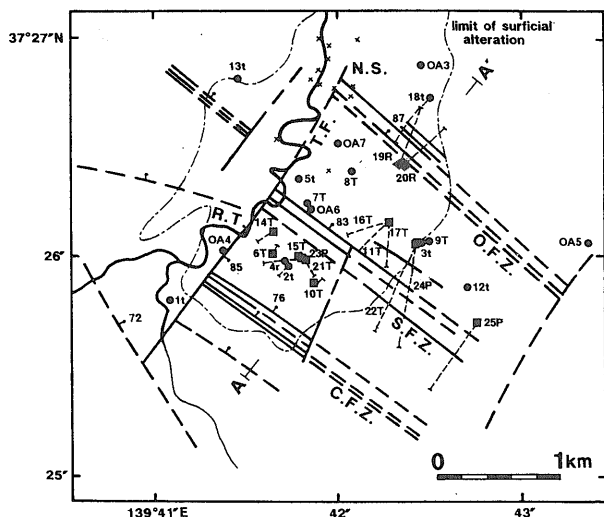
Fig. 1 Location of the Oku-aizu geothermal system.



第2図 地質セッティング(新田ほか, 1987および山元, 1992より編図)

C.F.Z.: 血の池沢断層破砕帯, S.F.Z.: 猿倉沢断層破砕帯, O.F.Z.: 老沢断層破砕帯

Fig. 2 Geological setting of the Oku-aizu geothermal system. Compiled from Yamamoto (1992) and Nitta *et al.* (1987). Abbreviations - C.F.Z.: Chinoikezawa fault zone, S.F.Z.: Sarukurazawa fault zone, O.F.Z.: Oizawa fault zone.

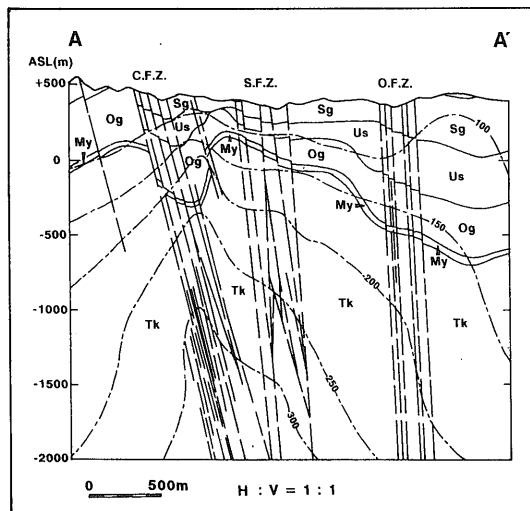


第3図 主要な断層, 温泉, 地表の変質帯および坑井の分布 (Sekii, 1991)

C.F.Z.: 血の池沢断層破砕帯, S.F.Z.: 猿倉沢断層破砕帯, O.F.Z.: 老沢断層破砕帯, T.F.: 滝谷川断層, N.S.: 西山温泉, R.T.: 滝谷川, /: 断層および傾斜, - - -: 推定断層, ■: 坑井 (生産井), ◆: 坑井 (還元井), ●: 坑井 (観測井その他), ×: 温泉, /: 地表での変質の範囲

Fig. 3 Distribution of major fracture systems, hot springs, area of surficial alteration and geothermal wells in the Oku-aizu geothermal system (Sekii, 1991). Abbreviations - C.F.Z., S.F.Z. and O.F.Z. are the same as in Fig. 2, T.F.: Takiyagawa fault, N.S.: Nishiyama hot springs, R.T.: Takiyagawa river. Symbols - /: fault and dip, - - -: inferred fault, ■: geothermal well (production), ◆: geothermal well (reinjection), ●: geothermal well (others), ×: hot spring, /: border of surficial alteration area.

地熱流体の貯留層となっているのは, NW 走向, NE 急傾斜の断層群であり, 北から老沢断層破砕帯, 猿倉沢断層破砕帯, 血の池沢断層破砕帯と呼ばれる (第3, 4図)。地熱発電に際しては, 高温の地熱流体の貯留層となっている血の池沢断層破砕帯と猿倉沢断層破砕帯は生産ゾーンとして, 前二者に比べて温度が低い老沢断層破砕帯は還元ゾーンとして使用されている。それぞれの断層破砕帯は, 深部では開放裂が群をなすが, 地表下数100 m の深度に連続する宮下泥岩部層およびそれよりさらに浅所に分布する粘土化変質帯中にいたって開放裂かはほぼ消滅し, シーリングゾーンを形成していると考えられる。地熱系の北西側では, これらの主要な断層とほぼ直交してNE 走向, SE 急傾斜の滝谷川断層が走る



第4図 主要な断層の走向に直交する地下温度断面 (Sekii, 1991)

断面線は第3図のA-A', C.F.Z.: 血の池沢断層, S.F.Z.: 猿倉沢断層, O.F.Z.: 老沢断層, Tk: 滝谷川層, My: 宮下泥岩部層, Og: 荻野層, Us: 漆窪層, Sg: 砂子原層, 数字は温度(°C)

Fig. 4 Temperature cross-section along A-A' (Fig. 3) in the Oku-aizu geothermal system, indicating high temperature center locating beneath the Chinokezawa fault zone (modified from Sekii, 1991).

(新田ほか, 1987)。

地熱系の北側に隣接する砂子原付近では, 滝谷川断層と老沢断層との会合部近辺から Na-Cl タイプで 90°C 以上の泉温をもつ西山温泉が湧出する (比留川ほか, 1981; 新田ほか, 1987)。また血の池沢断層や猿倉沢断層の地表部では CO₂ および H₂S を含む弱い噴気活動が認められるなどの地表地熱兆候がみられていたが (新田ほか, 1987), 現在はごく微弱なものとなっている。

当地域の母岩にみられる熱水変質作用には, 中新世の海底火山活動に関連したと考えられるものと, 現在の熱水活動に伴うものの, 少なくとも二つが認められる。貯留層の賦存深度における母岩である, 下部中新統滝谷川層の流紋岩質火山砕屑岩中には, 普遍的に多量の緑泥石とセリサイトが認められる。それらは当地熱系内に限らず広範囲にわたって認められ, 中新世の海底火山活動に伴う変質作用の産物と考えられている (早川ほか, 1977)。一方, 現在の地熱系の産物と考えられる変質としては, 浅所の粘土化変質, 深所の硬石膏化変質などがある。浅所の粘土化変質帯では, スメクタイト, セリサイト-スメクタイト混合層鉱物, カオリナイト, 沸石などが

生成している。硬石膏は温度 100-200°C 以上の高温部で広く認められる。そのほかに、炭酸塩鉱物として菱マンガン鉱、菱鉄鉱、クトナホライト、アンケライトなどがしばしば認められる。方解石は浅部と深部に二分して認められることがあるが、その量は少ない(新田ほか, 1987; Seki, 1991)。

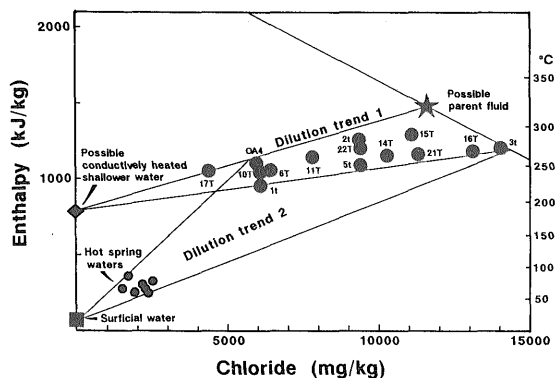
温度検層データは、当地域の地下の温度構造が、大局的には裂か系に支配されていることを示す(Seki, 1991)。海拔-1000 m 以深の深所では高温部は血の池沢断層と一致しているが、より浅所では高温部は血の池沢断層と猿倉沢断層の中間に移る。さらに、地表付近では高温部の軸はその向きを変え、滝谷川断層に沿うかたちになるとともに老沢断層沿いに低温部が入り込む。温度勾配は高温部の軸がその向きを変える深度付近を境として、それ以浅で大きく、以深で小さい。温度勾配が変化する深度は、不透水層となっている浅所の粘土化変質帯の底部とほぼ一致し、それ以深では熱水は対流系を形成していると推定される(新田ほか, 1987; Seki, 1991)。硬石膏および方解石中の流体包有物の均質化温度が測定されており、硬石膏の均質化温度が実測温度とよく一致する(武内, 1985)。

開発初期の坑井がほぼ正常エンタルピーを示していたこと、その時期の安定時の深度-温度曲線が沸騰温度に達していなかったことなどから、自然状態での奥会津地熱系は、全体としては沸騰していなかったと考えられる。

坑井から得られる地熱流体の主な化学的特徴として、分離熱水中で 5,000~20,000 mg/kg 以上という高い Cl 濃度をもつこと、CO₂、H₂S 等の非凝縮性ガス量が多く、全放出流体の 2-10 wt% を占めることなどがあげられる(新田ほか, 1987; Seki, 1991)。

沸騰以前の原熱水中の塩化物イオン濃度と、地化学温度計から計算されるエンタルピーとの関係からは、以下の 2 系統の混合関係の存在が推定されている(Seki, 1991)。1) 温度 300°C 以上、塩化物イオン濃度 10,000 mg/kg 前後の深部熱水と、温度 200°C 以下、塩化物イオン濃度ほぼ 0 mg/kg のより浅所の加熱地下水との混合による貯留層深度付近の地熱流体の形成、2) 上記 1) の混合により形成された地熱流体と、地表水との混合による西山温泉水の形成(第 5 図)。

奥会津地熱系では、深部に閃亜鉛鉱、方鉛鉱などを含む鉱脈があること、一部の坑井の内壁に閃亜鉛鉱、ウルツ鉱などの金属硫化物スケールが付着することが知られていた(今井ほか, 1988)。さらに、坑井の地上設備の配管内部から、四面銅鉱を主とし、閃亜鉛鉱と方鉛鉱を伴



第 5 図 推定原熱水の Cl-エンタルピーダイアグラム (Seki, 1991)

2 系統の混合関係が推定される(本文参照)

Fig. 5 Chloride-enthalpy diagram for calculated reservoir fluids in the Oku-aizu geothermal system (Seki, 1991), illustrating two series of dilution trends expected (1 and 2).

い、最高で 116 ppm の金および 3.49 wt% の銀を含む金属硫化物スケールが報告されている(新田ほか, 1991)。

3. 地熱流体の温度とエンタルピー

噴出試験で得られた地熱流体の代表的な分析結果および坑井データを第 1 表に、それらに基づく地化学温度、エンタルピー温度および実測最高温度を第 2 表に、それぞれ示す。

生産ゾーンに掘削された地熱井の坑内実測最高温度は 260-340°C の範囲にわたり、300°C 前後のものも多かった。現在、国内で運転および開発中の地熱系の多くは、流入地熱流体の温度は 300°C 以下であり、奥会津地熱系は国内屈指の高温の系であるといえる。なかでも、89N-22T では、実測最高温度が 341°C、温度回復曲線から推定される最高最終安定温度は 371°C に達し(奥会津地熱(株)未公表資料)、同坑井が掘削された血の池沢断層の南東部が奥会津地熱系の中でもとりわけ高温部であることを示している。

実測最高温度と地化学温度を比べると、アルカリ温度計(Fournier and Truesdell, 1973)の示す温度が実測温度と比較的よく一致している(第 6 図)。多くの坑井でアルカリ温度計は実測温度±20°C の温度をしめすが、例外として 89N-22T では約 40°C、OA-6 では約 80°C、それぞれ実測温度より低い温度を示す。一方、シリカ温度計(Fournier and Potter (1982)に基づき、過剰エンタルピー分の補正計算を施したものはほとんどの坑井で、

第1表 坑井から噴出する地熱流体の化学分析結果 (Seki, 1991)

Table 1 Analytical results and discharge data of the Oku-aizu geothermal wells (Seki, 1991)

Well	OA-4	OA-6	84N-1t	84N-2t	84N-3t	84N-5t	85N-6T	85N-10T	86N-11T	87N-14T	87N-15T	87N-16T	87N-17T	89N-21T	89N-22T
Sampling date	84/2/3	83/12/26	85/6/14	85/11/8	86/1/16	84/12/8	86/12/20	87/9/26	89/1/8	87/10/30	87/12/7	89/1/8	89/1/8	89/12/26	89/12/25
W.H.P. (b.g.)	0.2	0.2	1.1	6.2	0.6	0.0	21.0	10.0	8.3	9.6	62.7	8.6	8.0	8.5	15.3
P _{sep} (b.g.)	0.04	0.0	0.04	0.14	0.20	0.01	4.53	6.50	6.42	6.57	6.50	6.46	6.45	6.42	6.42
F _{stm} (t/h)	5.8	0.6	5.9	24.1	2.8	1.9	59.4	49.9	42.6	48.9	87.7	35.8	41.7	51.8	63.3
F _{wat} (t/h)	4.7	1.1	20.9	33.4	3.5	3.4	135.2	34.5	55.7	67.2	134.0	63.2	38.6	25.2	28.9
H _{td} (kJ/kg)	1660	1210	908	1365	1415	1220	1295	1920	1596	1565	1519	1447	1773	2092	2121
Steam sample (vol%)															
H ₂ O	96.60	—	90.12	96.37	95.85	96.79	90.67	96.68	92.88	97.16	96.62	97.37	89.94	97.82	95.21
Gas	3.40	—	9.88	3.63	4.15	3.21	9.33	3.32	7.12	2.84	3.38	2.63	10.06	2.18	4.79
Gas CO ₂	96.5	—	99.0	96.3	99.1	98.1	96.6	97.0	97.6	96.5	96.6	97.8	97.4	96.3	95.6
H ₂ S	2.7	—	0.1	3.0	0.3	1.3	2.6	2.3	1.9	2.8	2.7	1.6	2.0	3.1	3.8
R. gas	0.8	—	0.9	0.7	0.6	0.6	0.8	0.7	0.5	0.7	0.7	0.6	0.6	0.6	0.6
R. gas H ₂	—	—	0.4	7.10	2.0	6.0	3.10	9.50	4.70	3.80	10.30	3.40	18.5	11.7	21.4
N ₂	—	—	98.4	92.3	97.0	92.0	96.1	89.5	94.6	95.2	89.0	95.7	77.9	87.4	77.9
CH ₄	—	—	1.2	0.3	0.6	2.0	0.50	0.67	0.54	0.66	0.42	0.58	3.28	0.515	0.448
He	—	—	—	0.05	0.03	—	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.04	0.047	0.047
Ar	—	—	—	0.27	0.41	—	0.31	0.21	0.11	0.32	0.20	0.24	0.26	0.254	0.196
Water sample (mg/kg)															
pH (at 25°C)	7.05	5.50	7.98	6.44	6.30	6.89	6.37	7.03	6.90	6.70	6.56	6.67	7.68	6.38	5.64
Li ⁺	—	—	—	9.8	16.9	—	5.3	—	7.33	—	—	12.0	3.9	10.5	10.7
Na ⁺	5300	2700	5560	7120	10600	6990	3600	3770	5170	6210	7170	8020	3010	7770	5310
K ⁺	1400	180	644	2050	2550	1350	1030	940	1060	1640	2000	1940	547	1950	1780
Mg ²⁺	1.10	0.10	3.22	8.05	20.8	15.4	8.9	5.16	8.11	3.63	9.81	20.4	3.84	9.63	6.55
Ca ²⁺	230	42	26.0	1160	1750	788	609	385	586	1030	1060	1330	81.2	1220	647
Al ³⁺	0.43	0.10	0.87	0.19	0.40	0.09	0.12	0.28	0.29	0.02	0.64	0.14	0.21	0.55	1.47
Mn ²⁺	—	—	—	419	185	—	129	17.0	46.9	125	290	311	0.9	266	356
Fe ²⁺	0.92	70.0	0.69	0.31	1.47	0.2	0.93	0.42	0.49	0.02	1.69	0.61	0.11	1.07	50.1
Cu	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.25	0.18
Pb	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	1.8	1.5
Zn	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	1.01	1.28
Sb	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	2.9	2.7
NH ₄ ⁺	—	—	—	2.90	4.40	—	1.93	—	2.69	—	—	2.55	1.53	4.84	5.86
Cl ⁻	8800	6900	7780	15000	21800	13400	7930	7360	10000	13300	15300	17000	5300	16500	11700
SO ₄ ²⁻	36.0	191	771	4.0	6.2	50.2	61.7	102	48.1	62.7	7.1	65.4	34.5	22.4	34.3
HCO ₃ ⁻	83.0	4.3	956	41.1	5.2	122	27.0	53.2	23.5	44.3	35.9	<5	145	20	11
F ⁻	—	—	—	2.70	1.94	—	1.45	—	1.78	—	—	1.90	1.81	2.64	3.25
Br ⁻	—	—	—	29.1	43.0	—	11.2	—	17.3	—	—	34.0	10.8	31.4	22.6
I ⁻	—	—	—	4.1	5.9	—	2.0	—	2.8	—	—	4.3	1.5	2.8	2.9
SiO ₂	680	439	450	990	866	662	605	642	771	787	1010	821	632	887	952
HBO ₂	568	—	304	628	846	—	337	—	462	—	—	624	370	693	693
As	8.00	2.20	8.2	12.4	14.6	6.4	6.52	6.70	7.73	11.7	17.2	12.6	2.20	17.4	0.87
Hg	<0.001	<0.001	—	—	—	—	—	—	<0.0005	—	—	<0.0005	0.0006	<0.0005	<0.0005
H ₂ S	1.5	<0.1	—	—	—	—	—	—	6.7	—	—	2.5	13.3	1.9	<0.5

W.H.P.: 坑口圧力, P_{sep}: 分離圧力, F_{stm}: 蒸気流量, F_{wat}: 熱水流量, H_{td}: 全放出流体のエンタルピー

Abbreviations: W.H.P.: well head pressure, P_{sep}: separation pressure, F_{stm}: steam flow, F_{wat}: water flow, H_{td}: total discharge enthalpy.

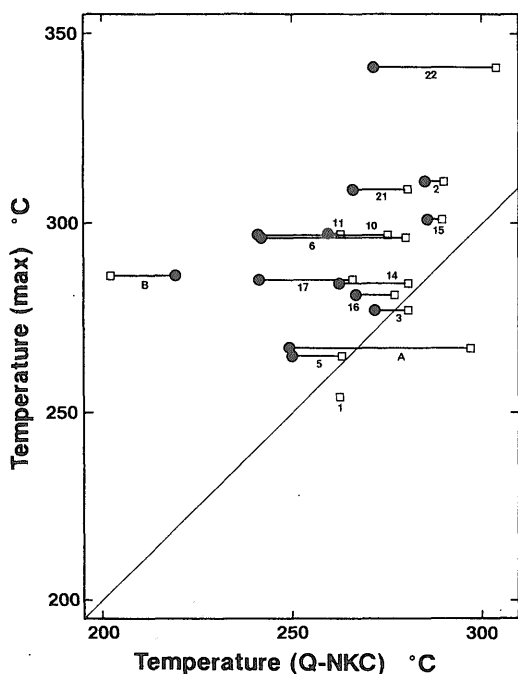
第2表 各坑井の実測、地化学およびエンタルピー温度

Table 2 Measured, geochemical and enthalpy temperature of the Oku-aizu geothermal wells

Well	OA-4	OA-6	84N-1t	84N-2t	84N-3t	85N-5T	85N-6T	85N-10T	86N-11T	87N-14T	87N-15T	87N-16T	87N-17T	89N-21T	89N-22T
T _{mes} (°C)	267	286	254	311	277	265	296	296	297	284	301	281	285	309	341
T _{qz} (°C)	249	219	—	285	272	250	242	241	260	262	286	267	241	266	271
T _{nkc} (°C)	297	203	262	290	281	263	280	276	264	281	289	277	266	281	303
T _H (°C)	349	275	212	304	312	277	291	371	340	336	329	318	361	374	>374

T_{qz}: 石英地化学温度計 (Fournier and Potter (1982) に基づき過剰エンタルピーを過剰蒸気とみなして補正), T_{nkc}: アルカリ地化学温度計 (Fournier and Truesdell, 1973), T_{mes}: 実測最高温度 (噴出停止 120 時間後の回復温度), T_H: 全放出流体のエンタルピーに基づく温度

Abbreviations: T_{mes}: maximum measured temperature (120 hours after drilling), T_{qz}: temperature of quartz geothermometer (Fournier and Potter, 1982), T_{nkc}: temperature of alkali geothermometer (Fournier and Truesdell, 1973), T_H: enthalpy temperature



第6図 地化学温度と実測温度

●: 石英地化学温度計 (Fournier and Potter (1982) に基づき過剰エンタルピーを過剰蒸気とみなして補正) による温度, □: アルカリ地化学温度計 (Fournier and Truesdell, 1973) による温度

A: OA-4, B: OA-6, 1: 84N-1t, 2: 84N-2t, 3: 84N-3t, 5: 84N-5t, 6: 85N-6T, 10: 86N-10T, 11: 86N-11T, 14: 87N-14T, 15: 87N-15T, 16: 87N-16T, 17: 87N-17T, 21: 89N-21T, 22: 89N-22T

Fig. 6 Plot of geochemical temperature versus maximum measured temperature in the Oku-aizu geothermal system, illustrating good agreement between temperature of quartz geothermometer and maximum measured temperature. Abbreviations - A: OA-4, B: OA-6, 1: 84N-1t, 2: 84N-2t, 3: 84N-3t, 5: 84N-5t, 6: 85N-6T, 10: 86N-10T, 11: 86N-11T, 14: 87N-14T, 15: 87N-15T, 16: 87N-16T, 17: 87N-17T, 21: 89N-21T, 22: 89N-22T, Symbols - ●: temperature of quartz geothermometer (Fournier and Potter, 1982), □: temperature of alkali geothermometer (Fournier and Truesdell, 1973).

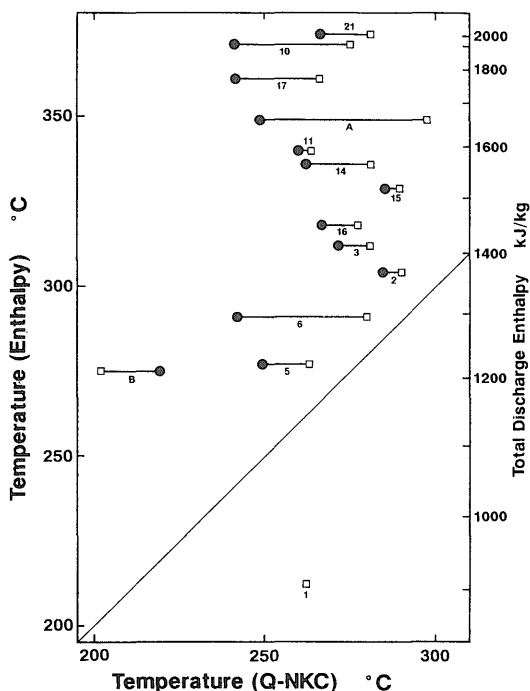
アルカリ温度計より数~30°C低い温度を示す。例外はOA-6で、シリカ温度計による温度の方がアルカリ温度計の温度より15°Cほど高い。

奥会津地熱系では、84N-1tを除くすべての地熱坑井でエンタルピー温度が、シリカおよびアルカリ地化学温度計による温度を上回る(第7図)。また、多くの坑井でエンタルピー温度は実測最高温度をも上回っている。エンタルピー温度が、地化学温度あるいは実測最高温度よりも高いということは、噴出地熱流体のエンタルピーが、地化学温度あるいは実測温度における飽和曲線上の熱水のもつエンタルピーよりも大きいことを意味する。一般に坑井がこのような過剰エンタルピーの状態になる

理由としては、1) 貯留層内沸騰により発生した蒸気相の坑井への選択的な流入、あるいは2) 高温の壁岩から地熱流体への熱の吸収、などがある(Henley, 1984)。奥会津地熱系では、坑井を通じた地熱流体の放出にともなう貯留層圧力の低下に起因して坑井近くの貯留層内で沸騰が起き、上記1)の状態になっていると考えられる(関, 1991)。

4. 熱水の地球化学

前章で述べたように、奥会津地熱系では坑井周辺の貯留層内で沸騰現象が起きていると考えられるため、沸騰以前の原熱水の化学組成を知るためには、例えば Seki



第7図 地化学温度とエンタルピー温度
番号および記号は第6図と同じ

Fig. 7 Plot of geochemical temperature versus enthalpy temperature, illustrating enthalpy temperature being much higher than geochemical temperature, which indicates aquifer boiling. Abbreviations are the same as in Fig. 6.

(1990) のような補正計算を行なう必要がある。Seki (1990) の補正法は坑井流入点における蒸気分率と貯留層内での蒸気分率の両方を考慮したものであり、より正確な推定が可能だが、その計算には噴出時の坑内温度データが必要となる。しかし、坑井の噴出条件下での坑内温度検層は相当の作業量を必要とするため、必ずしも全ての坑井でそのデータが得られているわけではない。

ここで用いた原熱水組成 (第3表) は、より簡便な補正計算により求めたものである。すなわち、過剰エンタルピー坑井に対して、過剰分のエンタルピー (全放出エンタルピーとシリカ温度から推定した坑井流入点での液相一相のもつエンタルピーとの差) に相当する蒸気を除外する補正計算を行なった。第3表の SFdh が坑井流入点での蒸気混入率であり、全放出流体中の各溶存成分濃度に $\text{factor} = 1/(1-\text{SFdh})$ を乗ずることにより、原熱水中の濃度とみなしている。したがって、Seki (1990) の

方法 (補正係数 $= (1-\text{SFaq})/(1-\text{SFdh})$) にあてはめると貯留層内での蒸気分率 (SFaq) を 0 とみなして計算したことになる。実際には貯留層内での蒸気分率 (SFaq) は、0.01-0.1 程度と推定されるので、前述の近似による誤差は最大で 10% 程度と考えられる。

分離熱水の pH は 5.5-8.0 の範囲にあるが、多くは 6-7 であり、ほぼ中性 pH を示す。ガス濃度として Seki (1990) の推定した CO_2 : 1 wt%, H_2S : 200 mg/kg を用い、貯留層における地熱流体の pH および化学種組成を推定するプログラム PECS (竹野, 1988) により原熱水の pH を推定すると、4.1-5.5 となる (第4表)。貯留層温度における原熱水は分離熱水よりも低い pH を示すが、その理由は主として高温下での水の解離の進行を反映したものであり、各坑井の貯留層温度における中性 pH (250°C-300°C で約 5.6) ないし弱酸性となっている。

原熱水の化学組成上の顕著な特徴として、全溶存成分濃度 2 wt% 以上に達する高い溶存成分濃度があげられる。溶存成分中もっとも濃度が高い Cl^- の場合、原熱水中の濃度は 6,000-14,000 mg/kg に達し、海水の寄与が明白な鹿児島県伏目地熱系 (吉村ほか, 1985; Akaku, 1990) を除けば、国内で最高である。 Cl^- , SO_4^{2-} , HCO_3^- の主要陰イオンの重量比を見ると Cl^- がほとんどの坑井で 97% 以上、過半数の坑井で 99% 以上と他を圧倒している (第8図)。陽イオンとしては、 Na^+ が 3,000-7,000 mg/kg と最も高く、 K^+ , Ca^{2+} がそれに次ぐ。

金属成分としては、原熱水中換算で数 mg/kg の鉛、亜鉛、アンチモンおよび 0.5 mg/kg 前後の銅を含むことが分析結果から確認されているほか、含金硫化物スケールが沈殿する 87N-15T では 0.06 ppb の金を含有すると推定されている (新田ほか, 1991)。他の坑井よりもやや pH が低い 89N-22T はベースメタル含有量もやや高いが、さらに一時的な pH 低下に伴って、数 10 mg/kg に達する鉛、亜鉛を分離熱水中に含むことがある (奥会津地熱 (株) 未公表資料)。また、当地熱系では、多くの坑井で原熱水中に 200 mg/kg を超えるマンガンが含まれる。このマンガン含有量は、国内の他地域の地熱水や温泉水と比べて著しく高く、貯留層深度以深の第三系あるいは基盤の先第三系中のマンガン鉱床 (鉱徴) に起因する可能性がある。

塩化物イオン濃度は高いが、B/Cl 比および Br/Cl 比はいずれも海水のそれと異なっており、地熱流体中の Cl が現在の海水とは無関係であることを示唆している (第9図)。Shigeno and Abe (1983) は、地熱水中の B/Cl 比 $= 0.02$ (重量比) 付近を境界として、それ以上が海成堆積岩質の貯留層に、それ以下が火山岩質の貯留層に対応す

第3表 全放出流体の化学組成および推定される原熱水の化学組成 (Seki, 1991)

Table 3 Total discharge composition and estimated reservoir fluid composition prior to boiling in the Oku-aizu geothermal wells (Seki, 1991)

Well Data	OA-4 84/02/03	84N-1t 85/06/14	84N-2t 85/11/08	84N-3t 86/01/16	84N-5t 84/12/08	85N-6t 86/12/20	86N-10T 87/09/26	86N-11T 89/01/08	87N-14T 87/10/30	87N-15T 87/12/07	87N-16T 89/01/08	87N-17T 89/01/08	89N-21T 89/12/26	89N-22T 89/12/25
H _{td}	1660	908	1365	1415	1220	1295	1290	1596	1565	1519	1447	1773	2092	2121
T _{aq}	249	221	285	272	250	242	242	261	262	286	267	242	266	272
H _{vap, taq}	2802	2802	2773	2788	2802	2804	2804	2796	2796	2772	2792	2804	2793	2788
H _{liq, taq}	1081	948	1262	1195	1085	1047	1047	1139	1144	1268	1169	1047	1164	1195
SF _{dh}	0.336	0	0.068	0.138	0.079	0.141	0.497	0.276	0.255	0.167	0.171	0.413	0.570	0.581
factor	1.057	1	1.073	1.160	1.085	1.164	1.988	1.381	1.342	1.200	1.207	1.704	2.324	2.388
Total Discharge Composition (mg/kg)														
Na	2372	4336	4136	5889	4484	2501	1541	2930	3594	4334	5120	1447	2543	1664
K	623	502	1191	1417	866	716	384	601	949	1209	1238	263	638	558
Mg	0.49	2.50	4.68	11.6	9.88	6.18	2.11	4.60	2.10	5.93	13.0	1.85	3.15	2.05
Ca	103	20.3	674	972	506	423	157	332	596	641	849	39.0	399	203
Fe	0.41	0.54	0.18	0.82	0.14	0.65	0.17	0.28	—	1.02	0.39	0.05	0.35	15.7
Al	0.19	0.68	0.11	0.22	0.06	0.08	0.11	0.16	—	0.39	0.09	0.10	0.18	0.46
Mn	—	—	243	103	—	89.6	6.95	26.6	72.4	175	199	0.43	87.1	112
Cl	3939	6067	8713	12110	8596	5509	3009	5666	7698	9248	10850	2548	5400	3667
SO ₄	16.1	601	2.32	3.44	32.2	42.9	41.7	27.3	36.3	4.29	41.8	16.6	7.33	10.8
SiO ₂	304	351	575	481	425	420	263	437	456	611	524	304	290	298
HBO ₂	254	237	362	470	—	234	—	262	—	—	398	178	227	218
Estimated Aquifer Composition (mg/kg)														
Na	3775	4336	4439	6833	4867	2912	3063	4046	4823	5202	6178	2466	5909	3974
K	939	502	1278	1644	940	834	763	830	1274	1451	1494	448	1483	1333
Mg	0.74	2.50	5.02	13.5	10.7	7.20	4.19	6.35	2.82	7.12	15.7	3.15	7.32	4.90
Ca	155	20.3	723	1128	549	493	312	458	800	769	1024	66.5	927	485
Fe	0.62	0.54	0.19	0.95	0.15	0.76	0.34	0.39	—	1.22	0.47	0.09	0.81	37.5
Al	0.29	0.68	0.12	0.26	0.07	0.09	0.22	0.22	—	0.47	0.11	0.17	0.42	1.10
Mn	—	—	261	120	—	104	13.8	36.7	97.2	210	240	0.73	202	267
Cl	5936	6067	9350	14050	9330	6414	5981	7824	10310	11100	13100	4342	12550	8758
SO ₄	24.3	601	2.49	3.99	35.0	50.0	82.9	37.79	48.79	5.15	50.4	28.3	17.09	25.8
SiO ₂	458	351	617	558	461	489	523	603	612	733	632	518	674	712
HBO ₂	383	237	388	545	—	272	—	362	—	—	480	303	528	521

T.D.C.: 全放出流体の化学組成, E.A.C.: 貯留層内沸騰をおこす前の熱水 (原熱水) の推定化学組成, H_{td}: 全放出流体のエンタルピー, T_{aq}: 原熱水の推定温度 (石英地化学温度: Fournier and Potter (1982) に基づき過剰エンタルピーを過剰蒸気とみなして補正), H_{vap, taq}: 原熱水の温度での蒸気一相のもつエンタルピー, H_{liq, taq}: 原熱水の温度での熱水一相のもつエンタルピー, SF_{dh}: 坑井流入時の蒸気分率, factor: 全放出流体の成分濃度から原熱水の成分濃度を求めるための補正係数 (本文参照)

Abbreviations: T.D.C.: total discharge composition, E.A.C.: estimated aquifer composition prior to boiling, H_{td}: total discharge enthalpy, T_{aq}: aquifer temperature based on silica geothermometer (Fournier and Potter, 1982), H_{vap, taq}: enthalpy of vapor at aquifer temperature, H_{liq, taq}: enthalpy of liquid at aquifer temperature, SF_{dh}: steam fraction at down hole conditions, factor: correction made to T.D.C. to E.A.C.

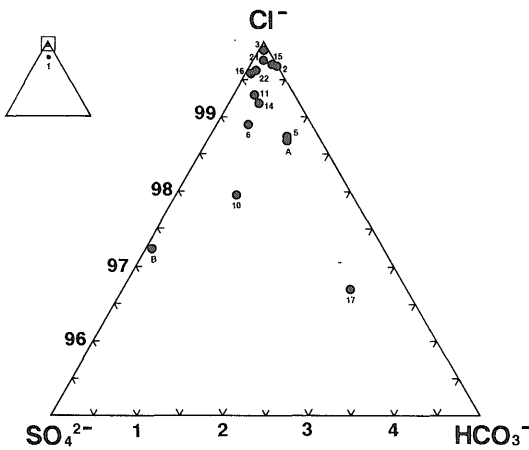
第4表 PECS (竹野, 1988) により求めた原熱水の pH および主要鉱物の飽和度

Table 4 Saturation indices for major alteration minerals and estimated reservoir pH calculated by computer code PECS (Takeno, 1988)

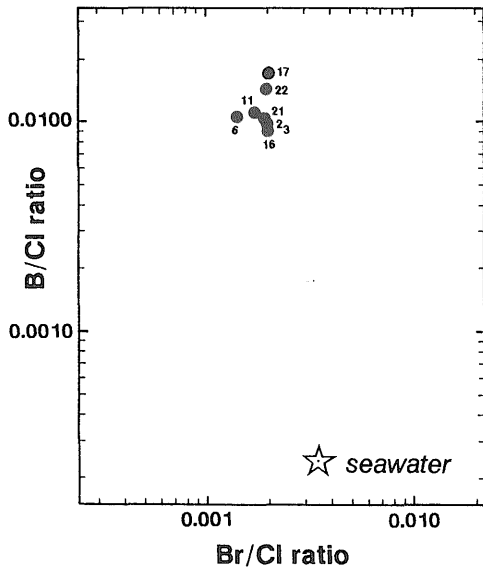
Well Sampling Date	OA-4 84/2/3	84N-1t 85/6/14	84N-2t 85/11/8	84N-3t 86/1/16	84N-5t 84/12/8	85N-6T 86/12/20	86N-10T 87/9/26	86N-11T 89/1/8	87N-14T 87/10/30	87N-15T 87/12/7	87N-16T 89/1/8	87N-17T 89/1/8	89N-21T 89/12/26	89N-22T 89/12/25
T _{aq} °C	249	221	285	272	250	242	242	261	262	286	267	242	266	272
pH ₂₅	7.05	7.98	6.44	6.30	6.89	6.37	7.03	6.90	6.70	6.56	6.67	7.68	6.38	5.64
pH _{Taq}	4.99	5.83	4.64	4.22	4.89	4.35	4.74	4.64	4.63	4.71	4.60	5.35	4.43	4.43
I.S.	1.82e-1	2.00e-1	2.68e-1	4.12e-1	2.72e-1	1.88e-1	1.74e-1	2.26e-1	2.99e-1	3.10e-1	3.80e-1	1.23e-1	3.60e-1	2.45e-1
cation	1.92e-1	1.99e-1	2.48e-1	3.82e-1	2.57e-1	1.71e-1	1.65e-1	2.14e-1	2.74e-1	2.85e-1	3.47e-1	1.20e-1	3.29e-1	2.24e-1
anion	1.64e-1	1.93e-1	2.50e-1	3.82e-1	2.59e-1	1.80e-1	1.68e-1	2.15e-1	2.84e-1	2.96e-1	3.59e-1	1.23e-1	3.42e-1	2.39e-1
QUARTZ	0.10	0.11	0.10	0.11	0.11	0.16	0.19	0.17	0.18	0.17	0.18	0.18	0.20	0.21
CHALCEDONY	-0.05	-0.05	-0.05	-0.04	-0.05	0.00	0.03	0.02	0.03	0.03	0.03	0.02	0.05	0.07
CRISTOBALITE	-0.17	-0.18	-0.15	-0.14	-0.16	-0.11	-0.08	-0.08	-0.08	-0.07	-0.07	-0.09	-0.05	-0.04
ALBITE. LOW	-0.02	1.48	-0.99	-1.45	-0.76	-1.73	-0.45	-0.64	-0.92	0.02	-0.87	0.47	-0.59	-0.25
K. FELDSPAR	0.26	1.52	-0.79	-1.28	-0.60	-1.37	-0.14	-0.49	-0.67	0.21	-0.68	0.64	-0.39	0.08
MUSCOVITE	1.92	4.62	-0.70	-1.54	-0.41	-1.89	0.90	0.09	-0.82	1.63	-0.67	2.48	0.24	1.57
CLINOCHLORE. 14	-5.72	2.46	-4.23	-7.95	-2.64	-9.71	-5.49	-4.70	-7.37	-1.28	-3.88	0.94	-6.03	-5.67
EPIDOTE	-0.40	2.30	-1.98	-4.46	-2.14	-5.29	-2.10	-2.13	-2.42	0.83	-2.37	0.30	-2.23	0.05
KAOLINITE	0.55	2.05	-1.08	-1.39	-0.91	-1.51	0.11	-0.41	-1.12	0.40	-1.17	0.90	-0.33	0.58
ALUNITE	0.55	-5.04	-11.86	-10.96	-9.53	-8.73	-6.83	-8.34	-9.23	-9.40	-9.34	-8.08	-8.70	-6.88
LAUMONTITE	-0.50	1.14	-1.80	-2.97	-1.66	-3.29	-1.04	-1.42	-1.93	-0.03	-1.93	0.28	-1.38	-0.66
WAIRAKITE	-0.52	0.75	-1.39	-2.70	-1.67	-3.40	-1.15	-1.29	-1.78	0.40	-1.72	0.16	-1.14	-0.42
ANALCIME	-0.43	1.08	-1.44	-1.89	-1.18	-2.19	-0.93	-1.13	-1.42	-0.49	-1.38	-0.01	-1.12	-0.79
ANYDRITE	0.05	-0.09	-0.21	-0.30	0.53	0.56	0.72	0.65	0.87	0.13	0.92	-0.16	0.41	0.46
CALCITE	-0.49	0.16	-1.01	-1.57	-0.22	-1.20	-0.63	-0.87	-0.70	-0.88	-0.77	-0.08	-1.17	-1.38
DOLOMITE	-1.43	1.10	-2.20	-3.10	-0.27	-2.39	-1.31	-1.71	-1.95	-1.82	-1.43	0.37	-2.51	-2.83
SIDERITE	-0.47	1.22	-2.13	-2.21	-1.38	-1.64	-1.19	-1.53	-1.53	-1.22	-1.68	-0.48	-1.81	-0.07
PYRITE	0.58	5.52	1.50	1.68	2.72	2.84	3.18	2.59	2.58	2.45	2.38	3.52	2.19	4.00
PYRRHOTITE	0.52	2.02	-0.76	-1.01	-0.38	-0.70	-0.25	-0.43	-0.43	0.16	-0.53	0.45	-0.62	1.12

試料採取日は第1, 2表と異なるが, 推定原熱水組成はほぼ同じ

T_{aq}: シリカ温度計 (Fournier and Potter (1982) に基づき過剰エンタルピーを過剰蒸気とみなして補正した温度) により推定した貯留層の温度, pH₂₅: 25°C における pH, pH_{Taq}: T_{aq} における pH, I.S.: イオン強度
Abbreviations: Temp.aq.: aquifer temperature based on quartz geothermometer (Fournier and Potter, 1982), pH₂₅: pH at 25°C, pH_{Taq}: pH at T_{aq}, I.S.: ionic strength



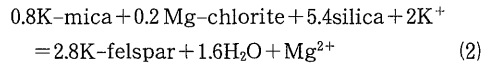
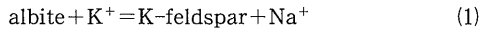
第8図 推定原熱水の主要陰イオン組成
番号は第6図と同じ。第3表のE.A.C.(推定原熱水)に基づく。ただし沸騰前後でのHCO₃⁻の変化は考慮していない。
Fig. 8 Cl-SO₄-HCO₃ equivalent composition of Oku-aizu geothermal water prior to boiling, showing chloride domination among anions. Abbreviations are the same as in Fig. 6.



第9図 熱水のB/Cl, Br/Cl比(重量比)
番号は第6図と同じ
Fig. 9 B/Cl and Br/Cl weight ratio of Oku-aizu geothermal water prior to boiling, showing that both ratios in geothermal water are different from those of sea water. Abbreviations are the same as in Fig. 6.

るとした。奥会津地熱系では、同比が0.01前後のものが多く、貯留層深度の母岩が流紋岩質火山碎屑岩(滝沢川層)であることと調和する。

Giggenbach (1988) のNa-K-Mg三角ダイアグラムからは、地熱流体と母岩との平衡の度合を考察できる。地熱流体と母岩との間に完全な化学平衡が成立している場合には、以下の反応が熱水中のNa, KとMgの濃度をコントロールする(Giggenbach, 1988)。

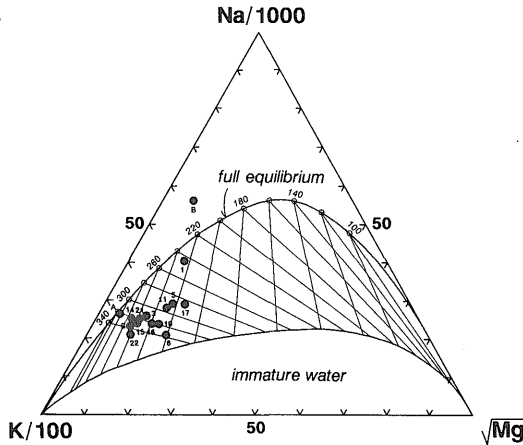


奥会津地熱系の坑井データは、OA-6を除く全てが平衡ラインと部分平衡ラインとの間ないし平衡ライン付近にプロットされ、地熱流体が周辺の母岩中の長石類、セリサイトなどの変質鉱物と300°C前後で平衡に近い状態で存在していることを示している(第10図)。

前述の方法により推定した原熱水組成に対して、主要な熱水変質鉱物に関する飽和度を計算コードPECS(竹野, 1988)を用いて求めた(第4表)。それによれば、石英は全坑井でほぼ0となり、飽和を示す。カリ長石およびアルバイトもほとんどの坑井で-1-1であり、ほぼ飽和とみなせる。セリサイトは多くの坑井で0前後だが一部に2-4と過飽和を示すものがある。緑泥石は-10-2とバラツキが大きい。カオリナイトは-2-2を示し、飽和しないし不飽和状態にある。硬石膏は0-1を示し、全ての坑井でほぼ飽和状態にある。方解石はほとんどの坑井で-1前後でありわずかに不飽和を示す。菱鉄鉱は-2-1を示し、飽和しないし不飽和状態にある。緑簾石は-5-2とバラツキが大きい。ワイラカイトは-3-1の範囲にあり、不飽和を示す坑井が多い。ミョウバン石はOA-4を除く全ての坑井で-5-12を示し、著しい不飽和状態にある。黄鉄鉱は1-6となり、過飽和状態の坑井が多い。

奥会津地熱系の貯留層の開放割れ目には、自形ないし半自形結晶からなる石英-硬石膏-硫化鉱物脈が発達する。また貯留層が賦存する深度付近の母岩中には、広く硬石膏化変質がみられる。緑泥石は中間深度から貯留層深度にかけて大量に認められる。カオリナイトは貯留層深度より浅所に選択的に分布している。方解石は一部の坑井の浅所で少量の細脈が認められるのみだが、菱鉄鉱は坑井によってはかなり大量に含まれる。一方、緑簾石、ワイラカイトはほとんど、ミョウバン石は全く認められない。

飽和度計算の結果および実際の鉱物分布と産状は、以



第10図 熱水中のNa-K-Mgダイアグラム
番号は第6図と同じ

Fig. 10 Na-K-Mg diagram of Oku-aizu geothermal water prior to boiling. The upper line is for full equilibrium conditions with feldspars and clays, and the region of immature water corresponds to the composition of waters related to rock dissolution without any control by mineral equilibria (Giggenbach, 1988). Oku-aizu geothermal water is rather close to the equilibrium. Abbreviations are the same as in Fig. 6.

下のように整理される。1) 飽和度計算の結果が過飽和-飽和を示し、かつ貯留層深度の開放裂かに(半)自形で晶出する鉱物: 石英, 硬石膏, 黄鉄鉱など。2) 過飽和-飽和を示し、深度方向にも平面的にも広範囲に分布する鉱物: アルバイト, セリサイトなど。3) 飽和-不飽和を示し、選択的に分布する鉱物: カオリナイト, 菱鉄鉱, 方解石など。4) 不飽和-著しい不飽和を示し、分布が(ほとんど)みられない鉱物: 緑簾石, ワイラカイト, ミョウバン石など。5) 過飽和-著しい不飽和まで飽和度のバラツキが大きく、広範囲に分布する鉱物: 緑泥石。

これらと地熱流体との関係は以下のように考えられる。1) は、現在の地熱流体から直接沈殿した鉱物。2) は、現在の地熱流体が母岩中に浸透する際に沈殿した鉱物、あるいは地熱流体との化学平衡に達するまで反応が進行した母岩中の鉱物。3) は、特定の条件下で地熱流体が飽和に達し沈殿を生じた鉱物。4) は、現在の地熱流体からは(ほとんど)沈殿せず、また過去にも存在しなかったであろう鉱物。5) は、条件次第で、現在の地熱流体から沈殿したり地熱流体へ溶解し、また場所によっては、現在の熱水系が形成される以前から存在していたで

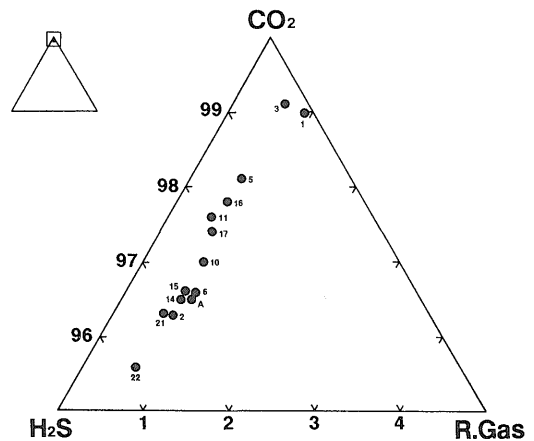
あろう鉱物。

5. ガスの特徴

気液分離後の蒸気中には2-10 vol% (重量比では5-21 wt%) のガスが含まれる(第1表)。ガスの組成は、CO₂が96-99vol%, H₂Sが0.1-4%, 残りの1%弱が窒素, 水素その他のガスからなり、CO₂ガスが卓越している(第11図)。全放出流体中のガス含有量は2-10 wt% に達し(第5表, 第12図)、国内の他の地熱系と比べてかなり高い値となっている。

主要なガス成分であるCO₂とH₂Sの濃度および濃度比をみると、坑井間でバラツキが存在する。ガスの気相-液相間分配係数は、ガスの種類および分配時の温度に依存する(例えば、Giggenbach, 1980)。また、気液分離のプロセス(単段か多段か連続か)の違いによっても沸騰過程全体で生じる気液両相中のガス濃度は大きく変わる。その結果、貯留層内沸騰をおこしている坑井では、同じ原熱水から生じた気相、液相であっても、ガス濃度および異種ガス間の濃度比が大きく変化する。

第13図は、縦軸に全放出流体中のCO₂/H₂S比を、横軸に全放出流体中のCO₂濃度をとったダイアグラム(Hedenquist, 1990)である。この図に示した曲線群は、CO₂を10,000 mg/kg、H₂Sを200 mg/kg含む原熱水が



第11図 全放出流体中の熱水-水蒸気-ガスの重量比
番号は第6図と同じ。気液比は167°C (6.5 b.g.) にて計算

Fig. 11 Weight ratio of water vapor, liquid and gas in total discharge from Oku-aizu geothermal wells (under separation pressures). Gas contents range from 2 to 10%, being higher compared to the other Japanese geothermal systems. Abbreviations are the same as in Fig. 6.

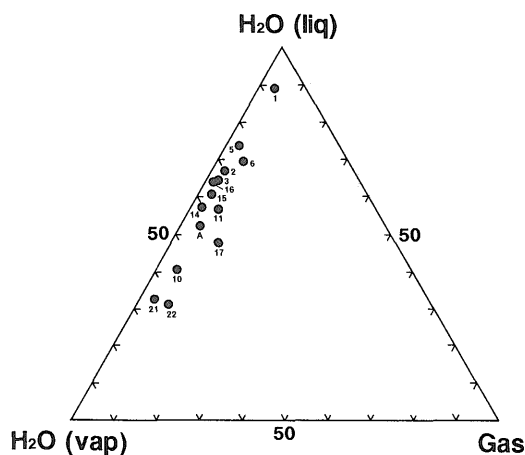
第5表 気液分離後の地熱流体の熱水・蒸気・ガス組成
Table 5 Gas concentrations in total discharge

Well Sampling date	OA-4 84/02/03	84N-1t 85/06/14	84N-2t 85/11/08	84N-3t 86/01/16	84N-5t 84/12/08	85N-6T 86/12/20	85N-10T 87/09/26
Abbreviation	A	1	2	3	5	6	10
F. tot (t/h)	10.5	26.8	57.5	6.3	5.3	194.6	84.4
F. stm (t/h)	5.8	5.9	24.1	2.8	1.9	59.4	49.9
F. wat (t/h)	4.7	20.9	33.4	3.5	3.4	135.2	34.5
P. sep (b.g.)	0.04	0.04	0.14	0.20	0.01	4.53	6.50
S.F. (at Sep.)	0.552	0.220	0.419	0.444	0.359	0.305	0.591
S.F. (at 168°C)	0.462	0.096	0.318	0.342	0.248	0.284	0.591
Gas/Stm (vol %)	3.40	9.88	3.63	4.15	3.21	9.33	3.32
Gas/Stm (wt %)	7.75	20.8	8.20	9.50	7.34	19.7	7.54
Gas/F. tot (wt %)	4.28	4.58	3.44	4.22	2.63	6.01	4.46

Well Sampling date	86N-11T 89/01/08	87N-14T 87/10/30	87N-15T 87/12/07	87N-16T 89/01/08	87N-17T 89/01/08	89N-21T 89/12/26	89N-22T 89/12/25
Abbreviation	11	14	15	16	17	21	22
F. tot (t/h)	98.3	116.1	221.7	99.0	80.3	77.0	92.2
F. stm (t/h)	42.6	48.9	87.7	35.8	41.7	51.8	63.3
F. wat (t/h)	55.7	67.2	134.0	63.2	38.6	25.2	28.9
P. sep (b.g.)	6.42	6.57	6.50	6.46	6.45	6.42	6.42
S.F. (at Sep.)	0.433	0.421	0.396	0.362	0.519	0.673	0.687
S.F. (at 168°C)	0.430	0.415	0.393	0.358	0.517	0.672	0.686
Gas/Stm (vol %)	7.12	2.84	3.38	2.63	10.1	2.18	4.79
Gas/Stm (wt %)	15.4	6.42	7.75	6.01	21.1	5.12	10.7
Gas/F. tot (wt %)	6.68	2.70	3.07	2.17	11.0	3.44	7.37

F. tot: 全放出流量, F. stm: 蒸気流量, F. wat: 熱水流量, P. sep: 分離圧力, S.F. (at Sep): 分離圧力下での蒸気分率, S.F. (at 168°C): 168°C での蒸気分率

Abbreviations: F. tot: total flow, F. stm: steam flow, F. wat: water flow, P. sep: separation pressure, S.F. (at Sep): steam fraction at P. sep, S.F. (at 168°C): steam fraction at 168°C



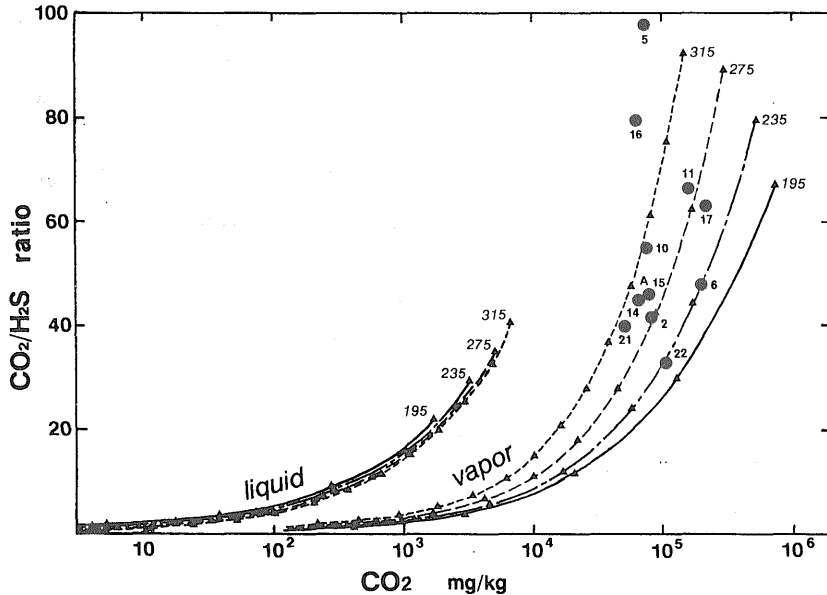
第12図 主要ガス成分のモル比 番号は第6図と同じ

Fig. 12 R. gas-H₂S-CO₂ in total gas of Oku-aizu geothermal well discharges, showing CO₂ domination. Abbreviations are the same as in Fig. 6.

沸騰した際に生じる、気相と液相それぞれの CO₂/H₂S 比および CO₂ 濃度を表している。原熱水中の CO₂ および H₂S 濃度は Seki (1990) の推定値を用いた。それぞれの曲線の上端に示した数字は、沸騰の開始温度であり、沸騰プロセスは 5°C 毎の多段沸騰である。

各坑井の実測データのほとんどは、原熱水が沸騰して生じる気相と液相の曲線ペアの間に挟まれる。これは、坑井に流入する地熱流体中に貯留層内沸騰により生じた気相が選択的に付加されていることを意味すると解釈でき、地化学温度とエンタルピー温度との比較から導かれる結論とも調和している。ただし、個々のデータを検討すると、例えばエンタルピーのデータから過剰蒸気の流入率が 6.8% と推定される 84N-2t が、ガスデータに基づく過半が過剰蒸気とみなされるなど、完全には整合しない点もある。

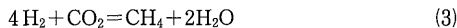
一方、CO₂, CH₄, H₂の間には、地熱系の条件下では次の平衡が成り立っていると考えられている (Giggenbach, 1980)。



第13図 全放出流体中のCO₂-CO₂/H₂S ダイアグラム

CO₂を10000 mg/kg, H₂Sを200 mg/kgを含む熱水(推定原熱水)が, 多段沸騰した場合に生ずる気相と液相中のCO₂濃度およびCO₂/H₂S比(沸騰温度は5°C毎に計算)。それぞれの曲線に付した数字は沸騰開始温度(°C)。黒三角印は5°Cステップの点を示す。番号は第6図と同じ。

Fig. 13 CO₂ content versus CO₂/H₂S ratio for total discharge compositions of Oku-aizu geothermal wells, showing the gas loss from a boiling liquid and/or a two-phase mixture of liquid plus vapor. Calculated gas loss trends for a boiling liquid (in 5 C steam loss steps) and an equilibrium vapor phase are also shown. Numbers at the top of each line are initial boiling temperatures. CO₂ and H₂S contents in aquifer fluid prior to boiling are 1 wt% and 200 mg/kg, respectively, which are estimated by Seki (1991). Abbreviations are the same as in Fig. 6.



第14図は反応(3)に関する活動度積を縦軸に, 地化学温度(シリカおよびアルカリ)を横軸にとったダイアグラム(Giggenbach, 1980)である。この図上で, ほとんどの坑井は蒸気付加の領域にプロットされ, 貯留層内沸騰で生じた蒸気相が選択的に坑井に流入しているとする考えと矛盾しない。

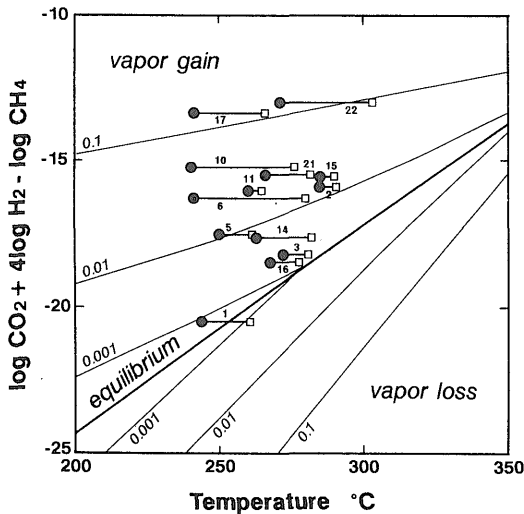
N₂, Ar, Heガスは, 通常地熱系の条件下では化学反応に関与せず, それらの起源に関する情報を保存していると考えられるため, その組成から地熱系へのマグマ性流体の関与について考察できる。奥会津の地熱流体中のそれらのガスは有珠山などで観測される高温火山ガスの組成にかなり近い位置にプロットされ, マグマ起源のガスの寄与が強く示唆される(第15図)。高橋(1994)は, 窒素-希ガス組成からみた高温火山ガスの寄与の程度を10%程度と見積もっている。

6. 安定同位体の特徴

奥会津地熱系の地熱流体の水素同位体比は, 分離熱水中で-36--18‰, 分離蒸気中で-50--26‰, 全放出流体中で-40--23‰となる。また, 酸素同位体比は, 分離熱水中で-0.2--4.5‰, 分離蒸気中で-4.5--1.6‰, 全放出流体中で-1.5--2.5‰の範囲内にある(第6表)。以下の議論では全放出流体中の同位体比を用いる。

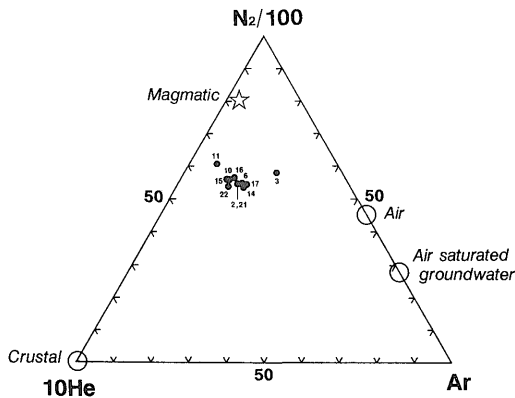
第16図は, 各坑井の全放出流体中の水素・酸素同位体比および推定原熱水のCl⁻濃度をプロットしたものである。

水素-酸素同位体比組成(第16図右)は, 西山温泉の温泉水がこの地域の天水と地熱水との混合水であることを明瞭に示している。また, 地熱流体の水素・酸素同位体比の分布範囲からは, 1) 地熱流体が, 天水と+10--15‰付近まで酸素同位体シフトした“化石海水”との混合水であるとする見方と, 2) それか, わが国的高温火山ガスの組成領域(Matsuo *et al.*, 1974; Matsuo *et al.*,



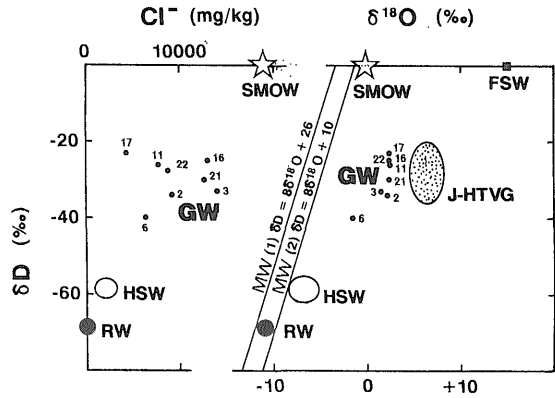
第14図 地熱流体の地化学温度と反応(1)のlogKとの関係
番号および記号は第6図と同じ。

Fig. 14 Plot of temperature (of quartz and Na-K-Ca geothermometers) versus Log K for reaction (3) (Giggenbach, 1980), illustrating the effect of steam gain due to aquifer boiling. Abbreviations and symbols are the same as in Fig. 6.



第15図 残留ガス中のN₂-He-Arダイアグラム
番号は第6図と同じ。 マグマ性ガスの組成は (Matsuo *et al.*, 1982) による有珠山の火山ガス分析値。

Fig. 15 N₂-He-Ar content of gases from Oku-aizu geothermal wells, illustrating significant contribution of magmatic gas to the Oku-aizu system. The composition of magmatic gas is defined by volcanic gases of Mt. Usu, Japan (Matsuo *et al.*, 1982). Abbreviations are the same as in Fig. 6.



第16図 地熱流体(全放出流体)中の水素酸素同位体比(新田ほか(1987)に基づく Seki (1991) に加筆)

J-HTVG: 日本の火山性ガスの組成範囲 (Matsuo *et al.* (1974) and Mizutani *et al.* (1986)). (1) および (2) は, Sakai and Matsubaya (1974) による天水ライン
GW: 地熱水, HSW: 温泉水, RW: 河川水, SMOW: 海水, FSW: 化石海水

Fig. 16 $\delta^{18}\text{O}$ -chloride and $\delta^{18}\text{O}$ - δD diagrams for geothermal well discharges (GW), hot spring waters (HSW) and local meteoric waters (RW) (compiled from Nitta *et al.*, 1987 and Oku-aizu Geothermal Co. Ltd., unpublished data), illustrating significant magmatic contribution to the Oku-aizu system. The compositional range of Japanese high temperature volcanic gas (J-HTVG: Matsuo *et al.*, 1974 and Mizutani *et al.*, 1986) and the composition of "fossil sea water" (FSW) are also shown. MW (1) and (2) are local meteoric water lines according to Sakai and Matsubaya (1974).

1982) とこの地域の天水とを結んだ線上付近にプロットされることから、地熱流体にマグマ性流体が寄与しているとする、ふたつの可能性がある。

一方、水素同位体比と塩化物イオン濃度との関係からは、Cl⁻ vs. エンタルピーダイアグラム(第5図)から比較的 "possible parent fluid" に近いと考えられる地熱水(16T, 21T, 3tなど)をひとつのエンドメンバーとして、1) 天水と混合するグループ(2t, 6Tなど)と、2) 天水よりも重い水素同位体比をもつ水と混合するグループ(17T, 11T, 22Tなど)のふたつの混合関係が存在するように見える。

なお、ここでは水素-酸素同位体比として、地表プラントの分離熱水と分離蒸気中の同位体比にそれぞれの重量比を乗じて算出した値を用いた。対象とした坑井に流入する地熱流体は熱水一相ではなく、貯留層内沸騰により

第6表 地熱流体の同位体分析結果 (奥会津地熱(株)未公表データ)
Table 6 Isotopic data in the Oku-aizu geothermal system (OAG, unpublished data)

Well Sampl. Date	84N-2t 85/11/8	84N-3t 86/1/16	85N-6T 86/12/20	86N-11T 89/1/8	87N-16T 89/1/8	87N-17T 89/1/8	89N-21T 89/12/26	89N-22T 89/12/25
S.F.	0.419	0.444	0.305	0.433	0.362	0.519	0.673	0.687
H _{T,D} (kJ/kg)	1365	1415	1295	1596	1447	1773	2092	2121
Water δD (‰)	-22.2	-21.1	-35.6	-21.9	18.1	-19.9	-21.4	22.8
Water δ ¹⁸ O (‰)	4.5	4.1	-0.2	3.7	3.5	4.0	4.4	4.5
Steam δD (‰)	-49.5	-47.5	-49.3	-31.9	-36.9	-25.9	-34.2	-29.5
Steam δ ¹⁸ O (‰)	-1.2	-1.3	-4.5	0.5	0.4	1.0	1.6	1.6
T.D. δD (‰)	-33.6	-32.8	-39.8	-26.2	-24.9	-23.0	-30.0	-27.4
T.D. δ ¹⁸ O (‰)	2.1	1.7	-1.5	2.3	2.4	2.4	2.5	2.5
³ H (T.R.)	1.0	1.3	3.0	0.6	0.3	0.4	1.0	1.0
δ ¹³ C (CO ₂)	-2.9	-2.9	-5.2	3.4	-3.6	-5.8	-4.6	-4.3
Cl ⁻ (mg/kg)	9350	14050	6414	7824	13100	4342	12550	8758

S.F.: 試料採取時の蒸気分率 H_{T,D}: 全放出流体のエンタルピー, T.D....: 全放出流体の同位体比

Abbreviations: S.F.: steam fraction in separator, T.D.....: Isotopic value in total discharge

気液二相が流入し、かつ気相が選択的に多量に流入している。したがって、坑井流入時の気相と液相が異なる同位体比をもつ場合には、原則としては前述の計算法は適用できないことになる。対象坑井の地化学温度計や坑内温度地層結果から判断される貯留層の温度は250-300°Cであり、その温度領域における気相-液相間の水素と酸素の同位体分配係数 ($1,000 \ln = \delta l - \delta v$) はそれぞれ-3-4, +1-+2である (Friedman and O'Neil, 1977)。気液分離の過程が単段か多段かにより、生ずる気液各相の平均の同位体比は変わりうる。しかし、同位体比を大きく変える極端な多段分離現象はおそらく起きていないと推測されるので、坑井流入時の気液各相の同位体比の差は、上記の同位体分配係数と大差ないと考えられる。したがって、坑井内に気相が選択的に流入しても、それにより生ずる水素と酸素の同位体比の計算誤差はたかだか3-4%以内ということになり、ここでおこなった議論にはさほど影響を与えない。

奥会津地熱系の地熱水中からはトリチウムが検出される。その濃度は0.3-3TRの範囲にあるが(第6表)、掘削後数ヵ月以上を経過した坑井では例外なく1TR以下を示す(奥会津地熱(株)未公表資料)。天水中に含まれる放射性同位元素であるトリチウムが地熱水中に検出されることは、地熱水に天水が関与していることを意味する。1960年代に大気圏核実験が頻繁に行われた時期を除くと、降水中のトリチウム濃度はほぼ15TRで安定しており、またその半減期は12.3年である。したがって、地熱流体の主たる起源が天水であるとの仮定のもとに、トリチウム濃度から地熱水の年齢を推定できる。地熱系が完全な閉鎖系であれば、濃度1TR以下になるのに要す

る時間は50年以上であるが、核実験による影響を加味した上で定常的流通系として計算すると平均滞留時間は数百年以上となる(松葉谷(1986)に基づく)。奥会津地熱系では、地熱流体の起源として天水のみならずマグマ性流体も寄与していると考えられるので、実際には上述の数値よりもさらに長期にわたるサイクルで地熱流体が流動していると推定される。

地熱流体中のCO₂ガスの¹³Cの同位体比は、-3ないし-6‰を示す(奥会津地熱(株)、未公表資料;第6表)。これは地熱流体中のCO₂のδ¹³Cの一般的な値である-2-6‰(Faure, 1986)の範囲に含まれる。また、その起源を高温火山ガスにもとめても矛盾しない。一方、第三紀以前の海成炭酸塩岩のδ¹³Cはほぼ0‰であり、地熱流体中に多量に含まれるCO₂の起源として基盤中の炭酸塩岩を考えることは難しい。

7. まとめ

奥会津地熱系は、実測最高温度340°Cにおよぶ高温の熱水卓越型地熱系である。地熱流体は、急傾斜の断層破砕帯にともなう開放裂か群中に貯留され、優勢な地熱流体は主に地表下1,000-2,000mより坑井へ流入する。

開発初期の地熱系は全体としては沸騰していなかったが、エンタルピーおよびガスのデータなどから判断して、現在では坑井の周辺で貯留層内沸騰をおこしていると考えられる。その原因は、開発にともなう地熱流体の放出に起因する貯留層圧力の低下にあると考えられる。

計算により求められた原熱水中の全溶存成分濃度は約2wt%, CO₂濃度は約1wt%, H₂S濃度は約200mg/kgであり、国内の他の地熱系に比べ高塩濃度、高ガス濃度

の特徴をもつ。

溶存成分の主体はNa, Clであり, それらについてK, Ca, SiO₂, B, Mnの濃度が高い。地熱水中のNa, K, Mgは, 母岩中の長石類, カリ雲母などの変質鉱物と300°C前後での平衡ないし部分平衡に相当する濃度となっており, 地熱流体と母岩との反応が相当程度に進んでいることを示唆している。主要変質鉱物に関する熱水の飽和度は, 石英が飽和, カリ長石とアルバイトがほぼ飽和, セリサイト, 緑泥石およびカオリナイトが不飽和ないし過飽和, 硬石膏がほぼ飽和, 方解石がやや不飽和, 菱鉄鉱が不飽和ないし過飽和, 緑簾石, ワイラカイト, ミョウバン石が不飽和, 黄鉄鉱が過飽和となる。飽和度計算の結果が飽和-過飽和を示し, かつ貯留層深度の開放裂か表面に晶出する石英, 硬石膏, 黄鉄鉱などは, 現在の地熱流体から直接沈殿したものと考えられる。

B/Cl比, Br/Cl比および水素同位体-塩化物イオン濃度比などは, 地熱水に現在の海水の寄与はないことを示している。また, 地熱水からは1TR以下ながら普遍的にトリチウムが検出されることから, 明らかに天水を起源水として含んでいる。定常的流通系と仮定した場合には, 平均滞留時間は最低でも数100年と見積もられる。一方, N₂-Ar-Heガスの組成および地熱水の酸素-酸素同位体比組成は, この地熱系に高温火山ガスで代表されるマグマ性ガスが寄与していることを強く示唆する。高いCl⁻濃度がマグマ発散物に由来するののか, いわゆる“化石海水”起源であるのかを決定づける証拠はない。これらのことから, 奥会津地熱系の貯留層深度における地熱流体は, 地表から長時間をかけて浸透し深部のマグマにより暖められた水(加熱地下水)を主体とし, 少なくとも, そのマグマから供給された高温のマグマ性ガスが吹き込まれて形成されたものと考えられる。

沸騰前の地熱水には鉛, 亜鉛などのベースメタルが数-数10mg/kg含まれるほか, 地熱プラントの配管内部には金銀を含む金属硫化物スケールが沈殿することから, 地熱水中にはベースメタルのみならず金銀も溶存していると考えられる。これらのベースメタルや金銀などの金属成分の起源としては, 1) 深部のマグマに由来する可能性と, 2) 下位の地層中に胚胎されていた鉱床(鉱徴)からの溶脱の可能性, などが考えられるが, 現時点ではいずれかを決定するに足る証拠はない。

謝辞 安達正敏氏, 井上啓二氏, 阿部泰行氏, 日比福二氏をはじめとする奥会津地熱株式会社および三井金属鉱業株式会社の皆様からは, サンプルングや現地調査に際し種々の便宜, ご協力を頂くとともに, 未公表資料の使

用を許可して頂いた。また, 当所鉱物資源部J.W. Hedenquist博士, 青木正博博士, 地殻熱部竹野直人博士, 高橋正明博士および地質部山元孝広博士からは, 論文のまとめに際し多くの御教示を頂いた。これらの方々に深く感謝申し上げます。

文 献

- Akaku, K. (1990) Geochemical study on mineral precipitation from geothermal waters at the Fushime field, Kyushu, Japan. *Geothermics*, **19**, 455-467.
- Chiba, H. (1991) Attainment of solution and gas equilibrium in Japanese geothermal systems. *Geochem. Jour.*, **25**, 335-355.
- Faure, G. (1986) Principles of isotope geology, Second edition. John Wiley and Sons, 589p.
- Fournier, R.O. and Potter, R.W. (1982) A revised and expanded silica (quartz) geothermometer. *Geotherm. Resour. Counc. Bull.*, **11**, 3-12.
- Fournier, R.O. and Truesdell, A.H. (1973) An empirical Na/K/Ca geothermometer for natural waters. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **37**, 1255-1275.
- Friedman, I. and O'Neil, J. (1977) Data of geochemistry, sixth edition, Chapter KK: Compilation of stable isotope fractionation factors of geochemical interest. *U.S. G.S. Professional paper*, 440-KK
- Giggenbach, W.F. (1980) Geothermal gas equilibria. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **44**, 2021-2032.
- Giggenbach, W.F. (1988) Geothermal solute equilibria: Derivation of Na-K-Mg-Ca geothermometers. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **48**, 2693-2711.
- 早川典久・鈴木舜一・小田幸人(1977) 会津地方新第三系の続成および熱水変質, 鉱山地質, **27**, 367-378.
- Hedenquist, J.W. (1990) The thermal and geochemical structure of the Broadlands-Ohaaki geothermal system, New Zealand. *Geothermics*, **19**, 151-185.
- Henley, R.W. (1984) Aquifer boiling and excess

- enthalpy wells. *Rev. Econ. Geol.*, **1**, 143-153.
- 比留川貴・安藤直行・角 清愛 (1981) 日本の主要地熱地域の熱水の化学組成, その2. 地調報告, no. 262, 403 p.
- 今井秀喜・安達正敏・高橋幹男・山口光男・家城康二 (1988) 福島県奥会津地熱試錐井における地熱流体より沈澱した硫化鉱物ならびにその浅成金鉱脈との関連, 鉱山地質, **38**, 291-301.
- 北村 信・菅原祐輔・鈴木養身・藤井敬三・伊藤修・高橋清治 (1968) 福島県地質調査報告, 宮下地域の地質. 福島県, 21 p.
- 小室裕明 (1978) 会津柳津地方における後期中新世陥没盆地の形成について. 地球科学, **32**, 68-83.
- 松葉谷治 (1986) 地熱水の同位体地球化学 (3). 地熱エネルギー, **11**, 31-36.
- Mastuo, S., Osaka, J., Hirabayashi, J., Ozawa, T. and Kimishima, K. (1982) Chemical nature of volcanic gases of Usu volcano in Japan. *Bull. Volcanol.*, **45**, 261-264.
- Matsuo, S., Suzuoki, T., Kusakabe, M., Wada, H. and Suzuki, M. (1974) Isotopic and chemical compositions of volcanic gases from Satsuma-Iwojima, Japan. *Geochem. J.*, **8**, 165-173.
- 水垣桂子 (1993) 砂子原カルデラの構造と火山活動史. 地質雑, **99**, 721-737.
- NEDO (新エネルギー総合開発機構) (1985) 地熱開発促進調査報告書. no. 8, 奥会津地域, 811 p.
- 新田富也・寿賀祥五・塚越重明・安達正敏 (1987) 福島県奥会津地域の地熱資源について. 地熱, **24**, 340-370.
- 新田富也・安達正敏・高橋幹男・井上啓二・阿部泰行 (1991) 福島県奥会津 87 N-15 T 坑井地熱流体からの重金属鉱物の沈澱について. 鉱山地質, **41**, 231-242.
- Sakai, H. and Matsubaya, O. (1974) Isotopic geochemistry of the thermal waters of Japan and its bearing on the Kuroko ore solutions. *Econ. Geol.*, **69**, 974-991.
- Seki, Y. (1990) Gas concentration in aquifer fluid prior to boiling in the Oku-aizu geothermal system, Fukushima, Japan. *Geochem. Jour.*, **24**, 105-121.
- Seki, Y. (1991) The physical and chemical structure of the Oku-aizu geothermal system. *Japan. Geochem. Jour.*, **25**, 245-265.
- 関 陽児 (1991) 気液二相流入坑井における貯留層内沸騰以前の地熱流体の化学組成の推定法. 地調月報, **42**, 337-346.
- Sigeno, H. and Abe, K. (1983) B-Cl geochemistry applied to geothermal fluids in Japan, especially as an indicator for deep-rooted hydrothermal systems. Extended abstracts of the 4th International Symposium on Water-Rock Interaction, Misasa, Japan, 437-440.
- 鈴木敬治・島津光夫・島田 朗・真鍋健一 (1986) 北村 信編 "新生代東北本州弧地質資料集" 第3巻, 島弧横断ルート no. 28 (柏崎-守門岳-只見-会津若松-郡山), 宝文堂.
- 高橋正明 (1994) 化学的に見た第四紀火山と熱水系との関係-なぜ高塩濃度と低塩濃度の熱水系が存在するのか. 地質学論集, **43**, 156-168.
- 竹野直人 (1988) 地熱貯留層における地熱流体のpHおよび化学種組成を推定するプログラム使用手引書. 地質調査所研究資料集, no. 49, 27 p.
- 武内寿久彌 (1985) 福島県西山地熱帯の硬石こう・方解石中の流体包有物について. 日本地熱学会昭和60年度学術講演会講演要旨集, 66.
- 通商産業省 (1970) 昭和44年度広域調査報告書. 西会津地域, 31 p.
- 山元孝広 (1992 a) 会津地域の後期中新世-更新世カルデラ火山群. 地質雑, **98**, 21-38.
- 山元孝広 (1992 b) 会津盆地, 塔寺層の火山性碎屑物堆積相から見た砂子原カルデラ火山の中期更新世火山活動. 地質雑, **98**, 855-866.
- 吉村雄三郎・柳本 裕・中込 理 (1985) 鹿児島県伏目地区の地熱構造について. 地熱, **22**, 167-194.

(受付: 1996年1月10日; 受理: 1996年4月23日)