

## 犬吠埼温泉の源泉の放射性炭素年代

Radiocarbon ages of the hot springs,  
the source of Inubohsaki Onsen手束 聡子<sup>1)</sup>・山下 裕司<sup>2)</sup>・平尾 哲二<sup>2)</sup>

Satoko TEZUKA, Yuji YAMASHITA and Tetsuji HIRAO

本研究では、犬吠埼温泉の源泉の地下水年代を測定することを目的として、3種類の源泉についてトリチウム ( $^3\text{H}$ ) 年代および  $^{14}\text{C}$  年代の測定を行なった。 $^3\text{H}$  濃度を測定した結果、犬吠埼温泉の3つの源泉は滞留時間が60年以上の古い地下水であることが分った。さらに、3つの源泉の正味の  $^{14}\text{C}$  年代は1万年～2.2万年であることが分った。

## 1. 緒言

千葉県東部、銚子地域のいぬぼうざき犬吠埼温泉では、5件の温泉施設を併設したホテルが営業し、掘削場所が異なる3つの源泉を活用している(表1)。2015年度に行なった源泉の成分調査では、3つの源泉がすべて  $\text{Na}^+$  と  $\text{Cl}^-$  の濃度が高い海水を起源とする温泉であり、掘削場所によって主成分および微量成分が異なること報告した。また、皮膚保湿試験により各源泉の肌への保湿効果も異なることを報告した<sup>1)</sup>。

千葉県房総半島は古くから多くの非火山性温泉が分布している地域である。村松ら<sup>2)</sup>は、これらの温泉水は現海水より低い  $\text{Na}^+$  と  $\text{Cl}^-$  濃度を示すとともに、 $\text{Na}^+$  と  $\text{Cl}^-$  濃度間に正の相関が認められることから、地表水、地下水、続成作用に伴う層間水の脱水反応によって生じた水などによる化石海水の希釈によって形成されたものであると報告した。化石海水とは、大昔の海水が堆積物粒子の隙間に閉じ込められ、さらに不透水層に囲まれてトラ

ップされることにより、地下深部に海水が貯留されたものである。また、銚子温泉と記された温泉水の成分分析では、 $\text{Ca}^{2+}$  濃度が現在の海水より高く、 $\text{Mg}^{2+}$  と  $\text{SO}_4^{2-}$  濃度が低い化石海水の特徴を持つことが報告された。さらに、酸素同位体分析により  $\text{Na}^+$  と  $\text{Cl}^-$  濃度の低下は、海底堆積物を構成するスメクタイトのイライト化の際に生じる  $^{18}\text{O}$  に富む層間水の脱水反応によって化石海水が希釈されているためであると推察している。これらの銚子温泉についての報告は、源泉が古い時代の海水を起源としている間接的な証拠に留まっているのが現状であることから、本研究は犬吠埼温泉の各源泉が化石海水である明確な証拠を得ることを目的に、犬吠埼温泉の3つの源泉の  $^3\text{H}$  (トリチウム) 年代および  $^{14}\text{C}$  年代の測定を行なった。

## 2. 実験方法

## 2. 1 源泉の採水地点

図1(b)に犬吠埼温泉の3つの源泉の位置を示す。犬吠埼ホテル「黒潮の湯」および犬吠埼観光ホテル「潮の湯」は、白亜紀の時代の地層が露出している犬吠埼の海岸付近の高台に位置している。黒潮の湯および潮の湯の源泉は、各ホテルの敷地内でそれぞれ地下約1,300 mおよび1,066 mの深さまで掘削し汲み上げている。また、犬吠埼太陽の里「びょうぶがうら屏風ヶ浦温泉」の源泉の掘削場所は第四紀の地層が露出している屏風ヶ浦の上に位置している。各源泉はいずれも  $\text{Na}^+$  および  $\text{Cl}^-$  濃度が高く、各源泉の温泉分析書からイオン成分の総量は黒潮の湯22.73 g/

連絡先：手束聡子 stezuka@cis.ac.jp

1) 千葉科学大学危機管理学部環境危機管理学科

Department of Environmental Risk and Crisis Management, Faculty of Risk and Crisis Management, Chiba Institute of Science

2) 千葉科学大学薬学部生命薬科学科

Department of Pharmaceutical and Life Science, Faculty of Pharmacy, Chiba Institute of Science

(2017年10月2日受付, 2018年1月10日受理)

Kg、潮の湯22.61 g/Kg、屏風ヶ浦温泉5.38 g/Kgの順であることが分っている。

## 2. 2 採水方法

犬吠埼温泉の3つの源泉の年代を測定することを目的に、2016年12月19日に採水を行なった。犬吠埼ホテル「黒潮の湯」の源泉は、敷地内のタンクに流入する前の汲み上げ直後の源泉を採取した。犬吠埼観光ホテル「潮の湯」の源泉は、敷地内の源泉保存タンクに流入直後の

源泉を採取した。犬吠埼太陽の里の源泉は、汲み上げ直後の「屏風ヶ浦温泉」の源泉を採取した。年代測定および各種分析用の源泉は、それぞれ採水ボトルに源泉を満水状態にして蓋をして持ち帰り分析に供した。

現地では採水とともに、泉温とpHをpHメータ（(株)堀場製作所D-54）により、電気伝導度 (electrical conductance, EC) を電気伝導率計（東亜ディーケーケー(株)CM-31P）により測定した。

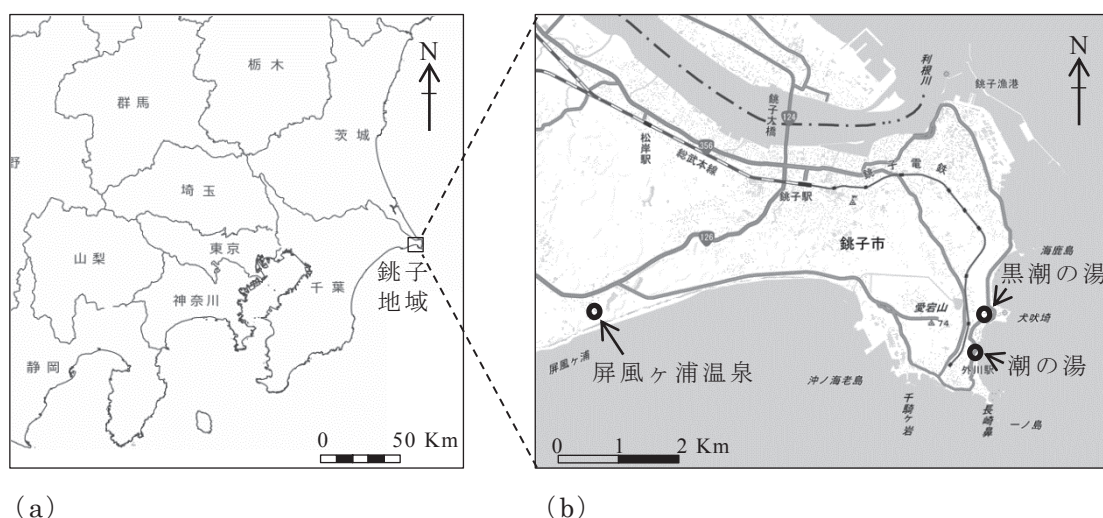


図1 関東全域地図 (a) および犬吠埼温泉の源泉の採水地点 (b)

参照地図: 国土地理院地図(電子国土 Web);

<http://maps.gsi.go.jp/#13/35.724020/140.826525/&base=std&ls=std&disp=1&vs=c1j0l0u0t0z0r0f0>

(2017/9/15 アクセス)

表1 犬吠埼温泉の源泉

犬吠埼温泉黒潮の湯の温泉分析書、犬吠埼潮の湯温泉の温泉分析書、屏風ヶ浦温泉の温泉分析書に基づく

施設	犬吠埼ホテル	犬吠埼観光ホテル	犬吠埼太陽の里
源泉名	黒潮の湯	潮の湯	屏風ヶ浦温泉
所在	鉾子市犬吠埼 10293	鉾子市犬吠埼 9575	鉾子市三崎町 3 丁目 52
泉質	ナトリウム－塩化物強塩温泉 (高張性・弱アルカリ性・低温泉)	ナトリウム・カルシウム－塩化物強塩温泉 (高張性・弱アルカリ性・低温泉)	ナトリウム－塩化物冷鉱泉 (低張性・弱アルカリ性・冷鉱泉)
備考	ホテルニュー大新、ぎょうけい館にも供給		

### 2. 3 地下水の年代測定の原理

地下水の年代（滞留時間）の測定は、地下水の流れが単一流路を混合のない分散・拡散を伴わないピストン流で流れていると仮定することにより、初期濃度と核種の壊変定数から滞留時間が求められる<sup>3)</sup>。<sup>3</sup>H年代測定法は、<sup>3</sup>Hが半減期12.3年の水素の放射性同位体であることと、核実験以降に降水中の<sup>3</sup>H濃度が時間的に変化していることに基いている<sup>4)</sup>。降水中の<sup>3</sup>Hは地中に浸透した後には他の物質と反応せずに半減期に従って濃度を減少させることから、水が地中に閉じ込められて大気と接触を遮断されてからの経過時間を標識するトレーサとして利用される。図2に1950年以降の東京の降水の<sup>3</sup>H濃度（観測値と減衰値）を示す。核実験が開始された1953年以前の降水中の<sup>3</sup>H濃度は約5 T.U.（T.U. は水素原子（<sup>1</sup>H） $10^{18}$ 個中の<sup>3</sup>H原子数で表すトリチウム単位、1T.U.  $\approx 0.119$  Bq/L）より低い値であった。核実験により<sup>3</sup>H濃度は上昇したが、崩壊による濃度減少により、現在では検出限界以下（ $< 0.3$  T.U.）まで低下している。従って、<sup>3</sup>Hが検出されなければ、1953年以前の降水によって涵養された地下水（滞留時間60年以上）であると推定することができる。

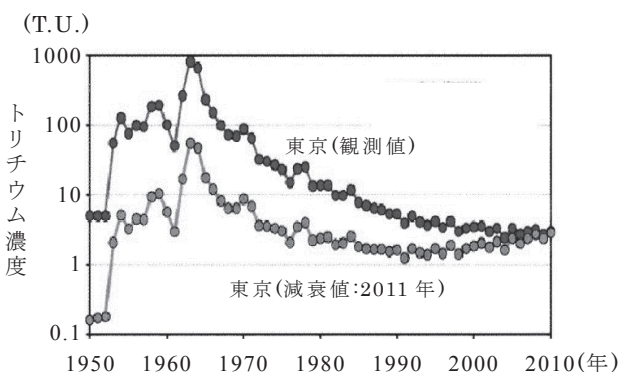


図2 東京都の降水のトリチウム濃度（観測値・減衰値）

参照データ：原子力規制庁“環境放射線データベース”；  
<http://search.kankyo-hoshano.go.jp/servlet/search.top>,  
 (2017/11/27 アクセス)。

<sup>14</sup>C年代測定は、地下水中の<sup>14</sup>C濃度の減少の程度から滞留時間を求めるもので、約500年～50,000年の古い地下水を対象としている<sup>3)</sup>。土壌中のCO<sub>2</sub>は生物活動に由来するため植物が大気から摂取した<sup>14</sup>Cを含んでおり、この生物起源の<sup>14</sup>Cが地表からの浸透水に溶解する。このように地下水にCO<sub>2</sub>が供給される炭素循環と地下で<sup>14</sup>Cが生成されず新たな供給がなければ<sup>14</sup>C濃度は半減期(5,568年)に従い、時間経過とともに減少していく。地下水の年代(t)は、地下水中に含まれる<sup>14</sup>C濃度を用

いて求められるpMC(%) (percent Modern Carbon；1950年の<sup>14</sup>C濃度を100とした場合の地下水中の<sup>14</sup>C濃度の割合)から、次式(1)により与えられる。

$$t = 8270 \ln(100 \cdot \text{pMC}^{-1}) \quad (1)$$

<sup>14</sup>Cによる地下水年代測定は、地下水中に含まれる<sup>14</sup>Cがすべて土壌中のCO<sub>2</sub>起源であることを前提としている。一方で、地下水周辺の岩盤中に含まれる炭酸塩鉱物の溶解や堆積性有機物のメタン発酵により<sup>14</sup>Cを含まない炭素が付加された場合、希釈されて<sup>14</sup>C濃度が低下し、<sup>14</sup>C年代が実際よりも古く見積もられる。そのため、見かけの<sup>14</sup>C濃度を炭素安定同位体比( $\delta^{13}\text{C}$ (‰))を用いて補正することにより、正味の<sup>14</sup>C濃度を求める必要がある<sup>5)</sup>。

### 2. 4 源泉の年代測定

<sup>3</sup>H年代測定および<sup>14</sup>C年代測定は(株)地球科学研究所に依頼し、炭素安定同位体比( $\delta^{13}\text{C}$ )の測定はBeta Analytic Inc.にて行なった。<sup>3</sup>H年代測定は、電解濃縮法により試料水を濃縮し、液体シンチレーション計測法により測定した。まず、試料水を蒸留精製し、Fe-Ni電極による電気分解によって試料水中の<sup>3</sup>H濃度を約25倍に濃縮後、低バックグラウンド液体シンチレーションカウンタにより濃度を測定した。

<sup>14</sup>C年代の測定は、ガス追い出し法により試料水中の溶存無機炭素をCO<sub>2</sub>として回収し、真空ラインの前処理によってグラファイトを作成した。ターゲットを加速器質量分析計(AMS)で測定し、<sup>14</sup>C濃度を求めた。また、回収したCO<sub>2</sub>の一部を使って、安定同位体試料量分析計(IRMS)で炭素安定同位体比( $\delta^{13}\text{C}$ )を測定し、 $\delta^{13}\text{C}$ を用いて<sup>14</sup>Cを含まない炭酸塩やメタン発酵由来の炭素の寄与を補正し、正味の<sup>14</sup>C年代を算出した。

## 3. 測定結果

### 3. 1 源泉の各種分析

各源泉の平均的な特性を持つ源泉を用いて年代測定を行なうため、前年度の2015年10月に採水を行なった源泉の水温、pH値、EC値と比較した(表2)。泉温は気温が低い12月の方が10月よりも低い値であった。潮の湯および屏風ヶ浦温泉のpH値は2016年の方が僅かに高い傾向にあったが、EC値に大きな変化はなかった。このことは各源泉のイオン性成分の総量に大きな変化はないことを示唆している。以上の結果から、今回採水した3つの源泉の濃度は時間に依存している可能性が低いと判断した。

### 3. 2 源泉の年代測定

犬吠埼温泉の3つの源泉の $^3\text{H}$ 濃度を測定した結果、いずれも検出限界である 0.3 T.U. よりも低い濃度であった。また、犬吠埼温泉の源泉の $^3\text{H}$ 濃度は核実験開始以降の降水の濃度レベルよりも低いことから、核実験開始以前の海水や地表水によって涵養された滞留時間が60年以上の地下水であることが判明した。

犬吠埼温泉の3つの源泉のpMCは2.3%～6.6%と非常に低く、黒潮の湯、潮の湯、屏風ヶ浦温泉の見かけの $^{14}\text{C}$ 年代(未補正)は、それぞれ $30,020 \pm 150$ 年、 $21,820 \pm 100$ 年、 $30,180 \pm 150$ 年であった(表3)。さらに、 $\delta^{13}\text{C}$ を用いて補正 $^{14}\text{C}$ 年代を推定した。その結果、黒潮の湯、潮の湯、屏風ヶ浦温泉の年代(補正)は、それぞれ $10,020 \pm 80$ 年、 $11,320 \pm 80$ 年、 $21,930 \pm 100$ 年であった(表3)。以上のことから、補正後の正味の $^{14}\text{C}$ 年代は1万年～2.2万年であることが判明した。

### 4. 結論

犬吠埼温泉の3つの源泉の年代測定を行なった。その結果、太陽の里「屏風ヶ浦温泉」、犬吠埼観光ホテル「潮

の湯」、犬吠埼ホテル「黒潮の湯」の順に源泉の年代が古いことが分った。その一方で、潮の湯と黒潮の湯の掘削場所が近距離であるにもかかわらず地下水の年代値にばらつきがあることから、今回の年代測定は古い海水に新しい海水または地表水が混入し、年代を新しく見積もっている可能性が残されている。そのため、犬吠埼温泉は1万年～2.2万年より以前の化石海水を源泉としてしていると推察している。今後、各源泉のイオン総量のみならず、イオン成分の濃度変化や時間変動を詳細に検討することにより、3種類の源泉の年代の違いおよび海水や地下水の流入の可能性について、より明確にしていくことが期待される。

### 謝辞

本研究は、千葉科学大学 平成27年度地域志向教育研究経費、および、銚子市の助成を受けた犬吠埼温泉協議会からの受託研究費により推進した。源泉の採取に協力いただきました犬吠埼ホテル、犬吠埼観光ホテル、犬吠埼太陽の里に感謝いたします。

表2 各源泉の水温、pH値、EC値  
2015年10月、2016年12月に採水

測定項目		黒潮の湯		潮の湯		屏風ヶ浦温泉	
採水	(年)	2015	2016	2015	2016	2015	2016
泉温	( $^{\circ}\text{C}$ )	22.9	19.7	25.3	23.4	18.2	9.8
pH	—	7.2	7.2	7.3	7.7	7.2	7.5
EC	( $\text{S} \cdot \text{m}^{-1}$ )	3.6	3.6	3.6	3.7	0.9	0.9

表3 犬吠埼温泉の見かけの $^{14}\text{C}$ 年代(未修正)および正味の $^{14}\text{C}$ 年代(補正)

源泉	測定番号	$^{14}\text{C}$ 年代 (未補正)	pMC (%)	$\delta^{13}\text{C}$ (‰)	$^{14}\text{C}$ 年代 (補正)
黒潮の湯	Beta-454459	$30,020 \pm 150$ 年	$2.4 \pm 0.24$	-2.0	$10,020 \pm 80$ 年
潮の湯	Beta-454460	$21,820 \pm 100$ 年	$6.6 \pm 0.08$	-6.5	$11,320 \pm 80$ 年
屏風ヶ浦温泉	Beta-454461	$30,180 \pm 150$ 年	$2.3 \pm 0.04$	-8.3	$21,930 \pm 100$ 年

## 参考文献

---

- 1) 平尾哲二, 手束聡子, 鈴木真綾, 木村美沙季, 山下裕司, 犬吠埼温泉の有用性－成分分析と保湿効果検証－, 千葉科学大学紀要, 10, 15-22, 2017.
- 2) 村松容一, 濱井昂弥, 山野恭, 千葉仁, 早稲田周, 千葉県房総半島および茨城県南東部における非火山性温泉の水質および安定同位体比とその地質鉱物学的解釈, 温泉科学, 62, 112-134, 2012.
- 3) 馬場保典, 最近の地下水調査方法と計測技術, 地下水学会誌, 36 (4), 473-485, 1994.
- 4) 戸崎裕貴, 浅井和由, 富士山の地下水年代, 地学雑誌, 126 (1), 89-104, 2017.
- 5) 奥村晃史, 14C年代の補正と高精度化のための手法, 第四紀研究, 34 (3), 191-194, 1995.



## Radiocarbon ages of the hot springs, the source of Inubohsaki Onsen

Satoko TEZUKA<sup>1)</sup>, Yuji YAMASHITA<sup>2)</sup> and Tetsuji HIRAO<sup>2)</sup>

1) *Department of Environmental Risk and Crisis Management, Faculty of Risk and Crisis Management, Chiba Institute of Science*

2) *Department of Pharmaceutical and Life Science, Faculty of Pharmacy, Chiba Institute of Science*

In this study, tritium ( $^3\text{H}$ ) and radiocarbon ( $^{14}\text{C}$ ) datings were carried out for sources of three hot springs, Inubohsaki Hotel "Kuroshio-no-yu", Inubohsaki Kanko Hotel "Shio-no-yu", and Taiyo-no-sato "Byobugaura Onsen", in order to elucidate their groundwater ages. From the  $^3\text{H}$  concentration, three sources of Inubohsaki Onsen were old groundwater with a residence time of over 60 years. Furthermore, the  $^{14}\text{C}$  concentration measurement indicated that the net  $^{14}\text{C}$  ages were from 10,000 to 22,000 yrs BP.