

日本列島の非火山地域における深層地下水水質と地質との関係について

尾山洋一*1 高橋正明*1 塚本斉*1 風早康平*1 安原正也*1
高橋浩*1 森川徳敏*1 大和田道子*1 芝原暁彦*1 稲村明彦*1

地下水の水質や物理化学パラメータなどの地球化学特性は、その起源および岩石・鉱物との相互作用などの影響によって形成される。本研究では、約9300点の深層地下水データのうち、非火山地域のデータの抽出および地質による分類を地理情報システム(GIS)上で行い、約5200点のデータを4つのタイプの地質(堆積岩類, 付加コンプレックス, 火山岩類, 深成岩類)を基に分類した後、各地質における深層地下水の水温, pH, 主要イオン(Na, K, Mg, Ca, Cl, SO₄, HCO₃)濃度の特徴の比較を行った。その結果、総陽イオン濃度の平均値は各地質中の地下水間で有意に異なっており、堆積岩類(66.7 meq l⁻¹), 火山岩類(43.0 meq l⁻¹), 付加コンプレックス(24.6 meq l⁻¹), 深成岩類(11.0 meq l⁻¹)の順に低い傾向を示した。pHの平均値は地質間で大きな差は見られなかったが、水温の平均値は火山岩類中の地下水が最も高い値を示した。主要陽イオン(Na, K, Ca, Mg)濃度の平均値は4種類すべてにおいて堆積岩類中の地下水が最も高かった。また、主要陰イオンはCl, HCO₃, SO₄がそれぞれ、堆積岩類, 付加コンプレックス, 火山岩類中の地下水に最も多く含まれており、水質に対する地質の影響の違いを確認することができた。各陰イオンが優占する地下水の分布から、火山岩類中のSO₄タイプの地下水は、新第三紀火山岩(グリーンタフ)の影響を受けていることが示唆された。一方、近畿~四国地方の付加コンプレックス中のHCO₃タイプの地下水は、表層土壌や炭酸塩鉱物との反応だけでなく、地下深部からのCO₂ガスの供給により形成されている可能性が考えられた。

Keywords: 深層地下水, 地理情報システム(GIS), 水質, 地質

Geochemical characteristics in groundwater such as groundwater chemistry and physicochemical parameters are affected by their source and the interaction with rocks and minerals. We observed the relationships between groundwater chemistry of the deep-groundwater and the geology in non-volcanic areas in Japan using about 9300 of deep-groundwater data. A Geographical Information System (GIS) was used to extract data in non-volcanic areas and numbers of water data are about 5200. The data were further classified into four types of geology (sedimentary rock, accretionary complex, volcanic rock and plutonic rock). The pH, temperature and major ion concentrations among deep-groundwaters in each geology have been statistically analysed. Result shows that the total cation concentration of deep-groundwaters are significantly different between geology, and the average values are decreased in the order of the sedimentary rock (66.7 meq l⁻¹), volcanic rock (43.0 meq l⁻¹), accretionary complex (24.6 meq l⁻¹), and plutonic rock (11.0 meq l⁻¹). The average pH does not show the major difference between geology whereas the highest average temperature is found in volcanic rock. In addition, the all four major cations (Na, K, Mg, and Ca) show the highest average concentrations in sedimentary rock, within the highest average concentrations of major anions for Cl, SO₄, and HCO₃ are found in sedimentary rock, volcanic rock and accretionary complex, respectively, indicating the difference of the influence on the anions varied with geology. The distribution of deep-groundwater that are dominated by each major anions implied that SO₄-type groundwater in volcanic rocks are formed by the influence of Neogene volcanic rock (Green tuff). In addition, HCO₃-type groundwater in accretionary complex found from Kinki to Shikoku regions are formed by the addition of CO₂ gases supplying not only from surface soil and carbonate minerals but from deep underground.

Keywords: deep groundwater, geographical information system (GIS), water quality, geology,

1 はじめに

高レベル放射性廃棄物の地層処分(以下、地層処分と略す)における調査地区の選定プロセスにおいては、地質学的に長期的な安定性を確保できない地域を排除した上で、人工バリアと天然バリアからなる多重バリアシステムに適した地質環境であることを確認する必要がある。このうち地質学的環境に関しては、特定放射性廃棄物の最終処分に関する法律(以下、特廃法と略す)では、精密調査段階において「当該対象地層内の水素イオン濃度その他の当該対象地層の化学的性質に関する事項(第八条二項)」を調査対象として掲げている。これは「地下施設が当該対象地層内において異常な腐食作用を受けるおそれがないと見込まれることその他当該対象地層の化学的性質が最終処分施設の設置に適していると見込まれること(第八条二の二項)」を

確認するためである。また、地層処分では、特廃法第二条2の規定により深度300m以深に処分坑道が設置される。このため、深度300m以深の地下水の分布・性状・年代・起源等に関する知見は、地層処分のバックグラウンドとなる地球化学的情報として重要であり、特に人工バリア材の長期的挙動や放射性核種の溶解度、緩衝材・岩石への吸着挙動といった移行特性を評価する上で重要な環境因子である[1]。

地下水の水質やpH、温度などの物理化学パラメータは、地下水の起源および周辺の地質との相互作用によって形成されることが知られており[2]、これまで新第三紀~第四紀の海成層中に海水あるいは変質した海水を起源とする地下水が胚胎している例[3-6]や、非火山地域である北陸のグリーンタフ地域でSO₄に富んだ地下水が存在する例[7, 8]など様々な例が報告されている。このような各地域に見られる特徴的な水質がその地域特有の環境に依存しているのか、あるいは日本の環境下における一般的な特徴であるのか、といった評価を行うことは、処分候補地の選定プロセスにおいて、同様な環境をもつ他地域の地下水の性状・年代などからの類推、例えば地層処分の場として不適切と推定される地域の除外や、地下水の物理化学特性の長期安定性などを検討する上で有用な情報を提供すると思われる。

Relationship between water quality of deep-groundwater and geology in non-volcanic areas in Japan by Yoichi Oyama(y-oyama@aist.go.jp), Masaaki Takahashi, Hitoshi Tsukamoto, Kohei Kazahaya, Masaya Yasuhara, Hiroshi Takahashi, Noritoshi Morikawa, Michiko Ohwada, Akihiko Shibahara, Akihiko Inamura

*1 産業技術総合研究所 地質調査総合センター

Geological Survey of Japan, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST)

〒305-8567 茨城県つくば市東1-1-1 中央第7

(Received 12 November 2010; accepted 14 March 2011)

このため、本研究では既存地下水データベースを用い、日本全国にわたる広域かつ多量のデータを地質毎に分類することにより、地下水の水質等の物理化学パラメータと地質との関係について統計的な解析を行い、その偏向性を解析した。解析に際しては、地層処分候補地から火山地域が排除されることを考慮し、非火山地域の地下水データを対象とした。

2 地下水の水質形成過程

地下水の性状・年代は、その地下水の起源と周辺の地質環境（地層・岩体や地質構造など）に大きく依存する[2]。陸域に存在する地下水の多くは降水（天水）に起源を持つが、断層や構造線に沿って地下深部から上昇してくる熱水やマグマ水、地層中に長期的に閉じ込められた古い海水（化石海水）、岩石の脱水反応によって生成された水（続成流体）など異なる起源を持つ水が混合した地下水が存在することが知られている[3-6, 9, 10]。以下では、地層処分深度に存在する地下水の基本的な性状を理解するため、降水を起源とする地下水の水質形成過程をやや詳しく見てみる[11-14]。

- 1) 雨水や雪などの降水は、主に大気中の CO_2 の溶解により弱い酸性を示し、エアロゾルや海塩などに起源を持つ化学種が少量溶解している。
- 2) 降水のほとんどは、表層土壌に速やかに浸透し、地下水を涵養する循環系を形成する。土壌への浸透降下過程を通して形成された土壌水は、有機物が分解して生じた CO_2 ガスを吸収し、土壌中の鉱物と反応・溶解しながら HCO_3^- を消費し、Na, K, Ca, Mg などの溶存化学種を増加させる。土壌中の CO_2 ガスが常に供給されるため、土壌や表層堆積物中では鉱物の溶解が連続的に進行する。また、土壌中で生成された粘土鉱物との陽イオン交換反応により、土壌水中の溶存化学種の相対的量比は決定される。
- 3) より下層に浸透した土壌水は、地下水面で大気圧と等しい不圧状態の地下水と混合し、最も浅部の地下水（浅層地下水）を形成する。このようにして形成された浅層地下水は、 Ca-HCO_3^- 型または $\text{Na} \cdot \text{Ca-HCO}_3^-$ 型となる。
- 4) 浅層地下水がさらに地下深く浸透して、長期間にわたって岩石-水反応が継続すると、構成鉱物との反応・変質作用や、スメクタイトなどの粘土鉱物中との陽イオン交換反応（地下水中の Ca の減少と Na の増加）などが進行する。こうした反応が長時間をかけて進行すると、地下水中の Ca, Mg, K などの化学種はほとんど消失し、浅層地下水よりも Na と HCO_3^- に富んだ Na-HCO_3^- 型の水質が形成される。このような浅層地下水よりも地下深部に存在する地下水は一般に深層地下水と呼ばれる。

また、地下水の性状・年代という観点からは、地下水の水質形成過程に基づく浅層地下水と深層地下水の区分が適切と思われるが、地下水利用という観点からは異なった区分が存在する。地下水を利用するために掘削される井戸は、

深度 30 m を境として浅井戸と深井戸に区分されており、この深度 30 m を境として浅層地下水と深層地下水に区分することがある。浅井戸は主として農業用あるいは雑用として用いられるのに対し、深井戸は主として飲用あるいは工業用として用いられるという用途の差も存在する。しかし、深度 30 m という区分自体は、削井技術が十分に発達していない時代の区分であり、現時点では便宜的な区分と理解すべきであろう。実際、扇状地や平野・盆地のように第四紀層が厚く発達する地域では、深度 30 m 以深でも透水性が高く、間隙流が卓越する地域が多く存在し、深度 30 m 以浅の地下水と類似した性質の地下水が深度 30 m 以深にも分布することが多い。また、表層の土壌や風化層が薄く、表層堆積物が未発達な地域では、深度 30 m 以浅でも透水性が低く、地層や岩体中の割れ目による浸透流が卓越し、岩石-水反応により表層の地下水とは異なった水質が形成されていることがある。

本研究では、水質形成過程の観点から浅層地下水と判定される地下水を除いた地下水、すなわち浅層地下水よりも地下深部に存在する基本的には Na-HCO_3^- 型の水質を持つ地下水や、地下深部から上昇してくる熱水やマグマ水、地層中に長期停滞している古海水（化石海水）、岩石の脱水反応によって生成された水（続成流体）などを併せたものを総称して“深層地下水”と呼ぶことにする。

3 研究方法

先に記したように、地層処分の観点では地下深部に存在する地下水の性状が重要であることから、本研究では深層地下水のデータを解析の対象とする。日本における深層地下水の性状などのデータを大量に収集した資料としては、地質調査所刊行の「日本温泉・鉱泉一覽」[15]がある。この中では総数 2273 の温泉・鉱泉の名称・位置・温度・湧出量・泉質・pH・地質がまとめられている。その後、近年の温泉ブームによって日本各地で温泉の採掘が活発したこともあり、深層地下水データの収集量は増加していく[16-19]。近年刊行された「日本の熱水系アトラス」[20]では、7203 個の温泉化学分析値データと 3066 個の坑井地温データが収録されており、分析項目として主要イオン (Na, K, Ca, Mg, Cl, SO_4 , HCO_3^-), SiO_2 , 地化学温度計等を扱っている。現在、産業技術総合研究所では上記の既存データベースに加え、新たに微量イオン (Li, NH_4 , CO_3 , F, NO_3^- 等) や同位体組成 (δD , $\delta^{18}\text{O}$, $\delta^{13}\text{C}$, ^3He , ^4He , ^3H , $\delta^{34}\text{S}$, $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 等) を分析項目として加えた総数 17583 点の深層地下水のデータを収集しており、その一部が「深層地下水データベース」として公開されている[21]。本研究では、この「深層地下水データベース」を利用し、地下水の物理化学的パラメータと地質との関係について解析を行った。

まず、深層地下水データベースに収録されているデータのうち、pH・水温および主要イオン (Na, K, Mg, Ca, Cl, SO_4 , HCO_3^-) 濃度のすべてに値を持つ 9278 点のデータを抽出し、地理情報システム (Geographical Information System: GIS) に入力した。GIS のソフトウェアとして ESRI 社製 ArcGIS

Desktop 9.3 を用いた。

次に、9278 点のデータから非火山地域のデータを抽出するため、日本の第四紀火山データベース[22]および日本の第四紀火山カタログ[23]の緯度経度情報を基に第四紀火山を GIS に入力した。原子力発電環境整備機構[24]では、第四紀火山の中心から半径 15 km 圏内を放射性廃棄物地層処分の概要調査地に含めないとしていることから、GIS 上で上記範囲に含まれる深層地下水データを取り除いた。この作業によって抽出したデータ数は 5338 点となった。深層地下水データと第四紀火山の影響範囲（半径 15 km）の分布図を Fig. 1 に示す。

さらに、非火山地域の深層地下水データを地質によって分類するため、20 万分の 1 シームレス地質図基本版[25]のベクトルデータを GIS に入力した。このベクトルデータは岩石区分や地質時代を基に約 200 種類の地質に区分されているが、これは表層地質の情報を基に作成されているため、本研究では深さによる地質の違いについては考慮していないことを注記しておく。データ入力後、ベクトルデータに記載されている地質コードと地質図の凡例を照らし合わせることで、約 200 種類のベクトルデータを 5 つの地質区分（堆積岩類、付加コンプレックス、火山岩類、深成岩類、変成岩類）に大別した（Table 1）。最後に、各地質区分の範囲に含まれる深層地下水データの抽出を行い、堆積岩類：3706 点（70%）、付加コンプレックス：436 点（8%）、火山岩類：697 点（13%）、深成岩類：400 点（7%）、変成岩類：99 点（2%）に分類した。瀬尾・清水[16]は 14541 点の浅層および深層の地下水データを岩種ごとに区分し、岩種

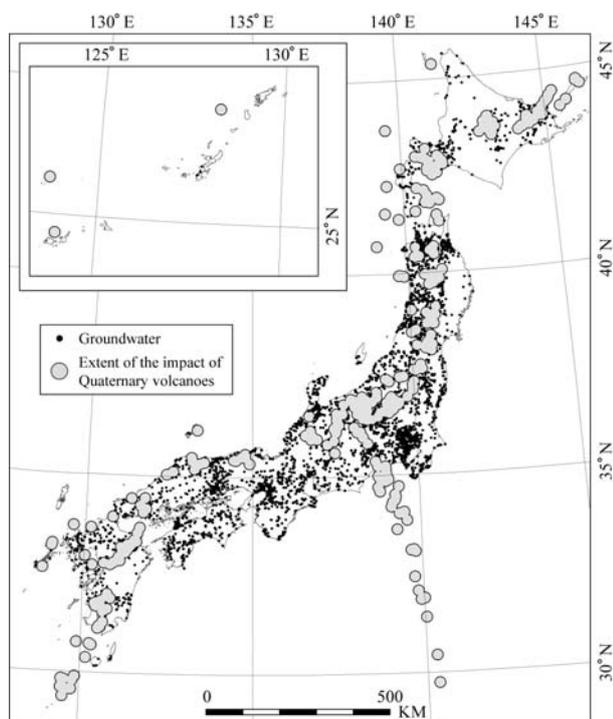


Fig. 1 Distribution of deep-groundwater (N=5410) and the extent of the impact of Quaternary volcanoes. The groundwater data were obtained from a database of deep-groundwater chemistry [21].

が不明なものを除くと、堆積岩類中の地下水が全体の約 70% を占めたと報告しており、非火山地域のデータのみを用いた本研究においても同様の結果を示した。なお、変成岩類中のデータについては、他の地質中のデータと比較して少ないため、以下の解析からは除外した。変成岩類を除く 4 つの地質中の深層地下水データについて、pH・水温・主要陽イオン (Na, K, Ca, Mg) および主要陰イオン (Cl, SO₄, HCO₃) の特徴について解析を行った。

4 結果と考察

4.1 総陽イオン濃度

まず、堆積岩類、付加コンプレックス、火山岩類、そして深成岩類中の地下水に含まれる溶存イオン濃度に違いがあるかを、総陽イオン濃度の分布を基に評価した。各地質中の深層地下水（以下、地下水と略）の総陽イオン濃度の累積頻度分布を Fig. 2 に示す。総陽イオン濃度の分布傾向は地質によって異なり、例えば 10.0 meq l⁻¹ 以上の地下水を含む割合は堆積岩類と火山岩類が約 60% であるのに対し、付加コンプレックスは約 40%、深成岩類は約 20% と少ない。濃度の平均値を比較すると、堆積岩類中の地下水が 66.7 meq l⁻¹ と最も高く、次いで火山岩類 (43.0 meq l⁻¹)、付加コンプレックス (24.6 meq l⁻¹) となり、深成岩類中の地下水

Table 1 Classification of geologies based on the legend of the seamless digital geological map of Japan 1: 200,000 [25].

Rock type	ID in legend of the geological map
Sedimentary rock	1-29, 162, 163, 170-173, 182.
Accretionary complex	30-77, 168, 183, 184.
Volcanic rock	78-121, 164-167, 175-179, 181, 185-189.
Plutonic rock	122-149, 169, 174, 191-193.
Metamorphic rock	150-161.

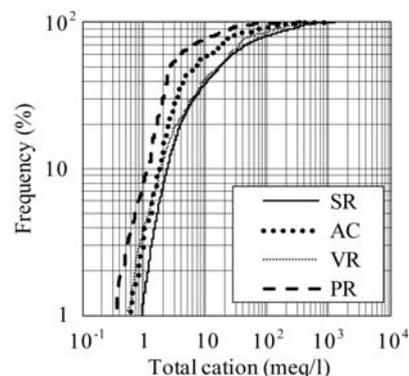


Fig. 2 The cumulative frequency distribution of total cation concentrations in groundwater in four types of geologies (SR: sedimentary rock, AC: accretionary complex, VR, volcanic rock, and PR: plutonic rock), respectively.

が 11.0 meq l^{-1} と最も低い。これらの平均値に有意な差があるかどうかを t 検定 (両側) を用いて評価した結果、すべての地質の組み合わせにおいて、危険率 5% の下で有意な差があることを確認した。よって、地下水中の溶存イオンの濃度は、地質によって違いを持つと言える。

一方、すべての地質中の地下水に共通な傾向として、総陽イオン濃度が約 4.0 meq l^{-1} までは頻度が直線的に増加するのに対し、 4.0 meq l^{-1} 以上になると増加は緩やかになる。 4.0 meq l^{-1} 以上とそれ未満の地下水をそれぞれパイパーダイアグラム上にプロットした結果、 4.0 meq l^{-1} 未満の地下水

の大半は典型的な浅層地下水のタイプである Ca-HCO_3 型に分布していたのに対し、 4.0 meq l^{-1} 以上の地下水は天水を起源とする深層地下水に代表される Na-HCO_3 型や、温泉水に多く見られる Na-Cl 型、 Ca-Cl 型などに広く分布していた (Fig. 3)。この結果から、 4.0 meq l^{-1} 未満の地下水は浅層地下水による希釈の影響を強く受けた地下水であると判断し、以下の pH・水温・主要イオンを用いた解析では総陽イオンおよび総陰イオン濃度が 4 meq l^{-1} 未満のデータを除外して行うことにした。最終的に解析に使用するデータは、堆積岩類：2743 点、付加コンプレックス：248 点、火山岩類：506 点、深成岩類：138 点となった。

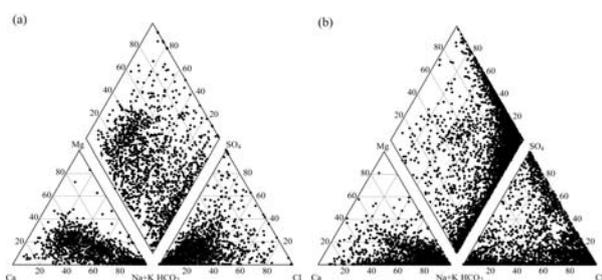


Fig. 3 The piper trilinear diagrams of deep-groundwater in four types of geologies (sedimentary rock, accretionary complex, volcanic rock, and plutonic rock). (a) Total cation $< 4 \text{ meq l}^{-1}$ ($N=1604$), and (b) total cation $\geq 4 \text{ meq l}^{-1}$ ($N=3635$).

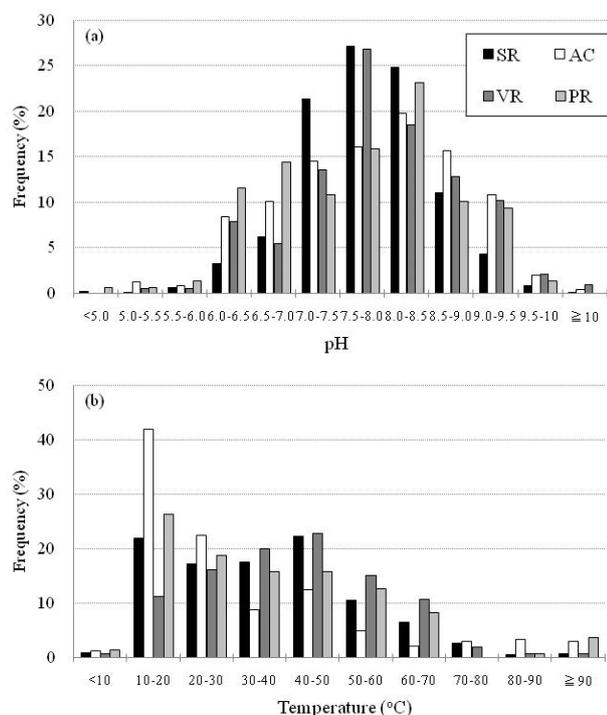


Fig. 4 Histograms of deep-groundwater in four types of geologies (SR: sedimentary rock, AC: accretionary complex, VR: volcanic rock, and PR: plutonic rock), respectively. (a) pH, and (b) temperature.

4.2 pH, 水温

pH および水温のヒストグラムを Fig. 4 に示す。pH の範囲は 2.8 から 10.8 であるが、その大半は pH 5.0~10.0 の間に分布しており、全体に占める pH 5.0 未満および 10.0 以上の地下水の割合はどちらも約 0.2% ($N=7$) と少ない (Fig. 4(a))。浅森ほか[26]による pH ヒストグラムでは、pH 1.5~3.5 の間に小さなピークが見られていたが、pH 4.8 未満の温泉の分布域が主に第四紀火山のそれと一致していたことから、マグマ性揮発物質の影響により酸性化している可能性を指摘している。本研究では火山地域の地下水を除去しているため、先の研究結果よりも低 pH の地下水の割合が減少したと考えられる。一方、pH の平均値は堆積岩類：7.78、付加コンプレックス：7.82、火山岩類：7.88、深成岩類：7.66 と弱アルカリ性付近の値であり大差は見られないが、 t 検定では有意な違いであることを示した。分布の特徴も地質によって異なっており、堆積岩類が 7.5~8.0 に、付加コンプレックスが 8.0~8.5 にそれぞれピークが見られるのに対し、火山岩類と深成岩類には 2 つのピーク (それぞれ 6.0~6.5, 7.5~8.0 および 6.5~7.0, 8.0~8.5) が存在している。

水温の平均値は pH よりも有意な違いが見られ、火山岩類が 40.9°C と最も高く、堆積岩類： 36.6°C 、深成岩類： 36.1°C 、付加コンプレックス： 31.7°C の順に低下する。温度 60°C 以上の地下水の割合もまた火山岩類が最も多い (14.3%)、 90°C 以上の割合になると深成岩類が最も多い (3.8%) (Fig. 4(b))。分布の特徴は、火山岩類が $40\sim 50^\circ\text{C}$ にピークがあるのに対し、堆積岩類は $10\sim 50^\circ\text{C}$ の間で約 $17\sim 23\%$ とほぼ均等に分布している。付加コンプレックスと深成岩類は $10\sim 20^\circ\text{C}$ にピークがあり、温度と共にほぼ減少傾向にある。

一般的に、地下の温度は地熱により深所ほど温度が高くなるため、地下水の水温も採取深度に影響を受ける。採取深度 (あるいは掘削深度) が既知のデータを用いた各地質中の地下水の水温と深度との関係を Fig. 5 に示す。データ数は堆積岩類：1546 点、付加コンプレックス：111 点、火山岩類：199 点、深成岩類：79 点であり、先に用いたデータの約 $40\sim 57\%$ に相当する。付加コンプレックスと深成岩類中の地下水は、深度に伴う水温の上昇 (温度勾配) が明瞭に見られる。一方、堆積岩類と火山岩類の地下水の水温は幅広く分布しており、温度勾配が不明瞭である。その原

因としては、(1) 深度情報が掘削深度のみであり、真の採取深度（スクリーン深度あるいは帯水層深度）が不明な孔井が多いこと、(2) 日本列島では、火山フロントを境界とした海溝側と背弧側で熱構造が異なる等、深度と地温との関係には地域性があること[27]、が考えられるが、ここでは各地質における一般的な特徴を述べるに留める。

4.3 主要陽イオン (Na, K, Mg, Ca)

各地質中の地下水の主要陽イオン (Na, K, Ca, Mg) 濃度の逆累積頻度分布を Fig. 6 に示す。Na 濃度の分布の傾向は、 100 mg l^{-1} 以下の地下水を含む割合がどの地質においても10%前後と同程度であるのに対し、 1000 mg l^{-1} 以上の地下水を含む割合は大きく異なり、堆積岩類が35%と最も多く、深成岩類が7%と最も少ない (Fig. 6(a))。堆積岩類が高濃度の地下水を含む割合が最も多い傾向は K および Mg においても見られるが、 100 mg l^{-1} 以上の地下水における地質間の割合の違いは K および Mg でそれぞれ10%および5%と Na に比べて小さい (Figs. 6(b) and 6(c))。一方、Ca の分布傾向は他の陽イオンとは異なり、 100 mg l^{-1} 以上の地下水を含む割合は火山岩類が約52%と最も多いが、約 500 mg l^{-1} 以上では堆積岩類の方が割合が多くなる (Fig. 6(d))。

分布の傾向は主要陽イオン間でやや異なっていたものの、平均値を地質毎に比較すると4種類すべてにおいて堆積岩類の地下水が最も高く、次いで火山岩類、付加コンプレックス、深成岩類の順に低下していく傾向を示し、各陽イオンの濃度に対する地質の影響の違いは確認できなかった。この原因の一つとして、地質の区分方法が考えられる。地下水中のイオン組成の変化は、岩石中の鉱物と地下水とのイオン交換反応および鉱物の溶解・沈澱反応に支配されている [11-14]。例えば、 Ca-HCO_3 型から Na-HCO_3 型への水質変化は、スメクタイトとのイオン交換反応による Ca 濃度の低下・Na 濃度の上昇や、増加した Ca 成分と HCO_3 成分との反応による方解石の沈澱に伴う Ca 濃度の低下に起因する。また、水上[28]は同じ火山岩類でも玄武岩-海水間とデイサイト-海水間とは熱水反応が異なり、前者では Ca が増加し、後者では逆に減少することを示した。これは玄武岩と比較してデイサイト中の CaO 含量が非常に低いことに関係する。またデイサイト-海水反応はデイサイト中の K_2O 含量により K 濃度が著しく増加することを指摘している。従って、地質による地下水の陽イオンへの影響の違いは、鉱物組成を考慮した地質区分を用いることでより詳細に検討することができると考えられる。

4.4 主要陰イオン (Cl , SO_4 , HCO_3)

4.4.1 濃度分布の特徴

各地質中の地下水の主要陰イオン (Cl , SO_4 , HCO_3) 濃度の逆累積頻度分布を Fig. 7 に示す。主要陽イオン4種では、Ca を除き堆積岩類中の地下水が濃度の減少に対する頻度の増加が最も多かったのに対し、主要陰イオンでは Cl において堆積岩類が、 SO_4 において火山岩類が、そして HCO_3 において付加コンプレックスが最も多く、各陰イオンに対する地質の影響の違いが明瞭に見られる。

各陰イオンの分布傾向の特徴としては、 Cl 濃度が 100 mg l^{-1} 以下の地下水を含む割合は付加コンプレックスが40%と最も多く、火山岩類と深成岩類が約30%とほぼ同値であり、堆積岩類が最も少ない (20%)。一方、 1000 mg l^{-1} 以上の地下水を含む割合は堆積岩類が最も多く (40%)、濃度の最大値は 55900 mg l^{-1} と海水 (約 19000 mg l^{-1}) の約3倍の値を持つ地下水が存在する。平均値は堆積岩類中の地下水が最も高く (2833 mg l^{-1})、次いで火山岩類 (1694 mg l^{-1})、付加

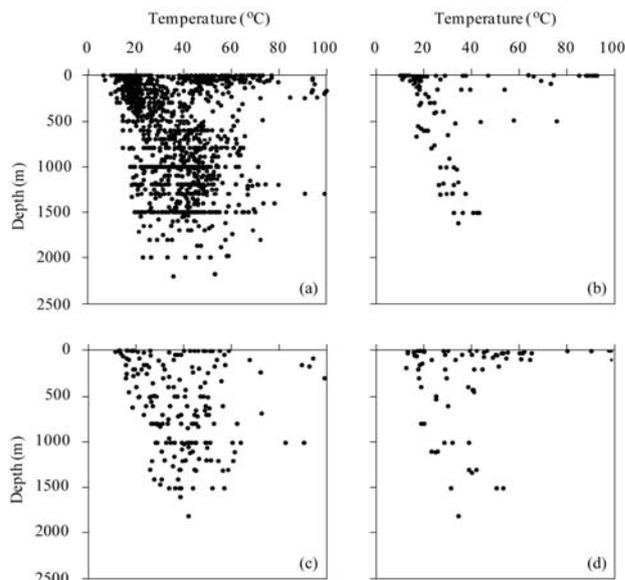


Fig. 5 Relationship between water temperature and sampling depth of groundwater in four types of geologies. (a) sedimentary rock, (b) accretionary complex, (c) volcanic rock, and (d) plutonic rock.

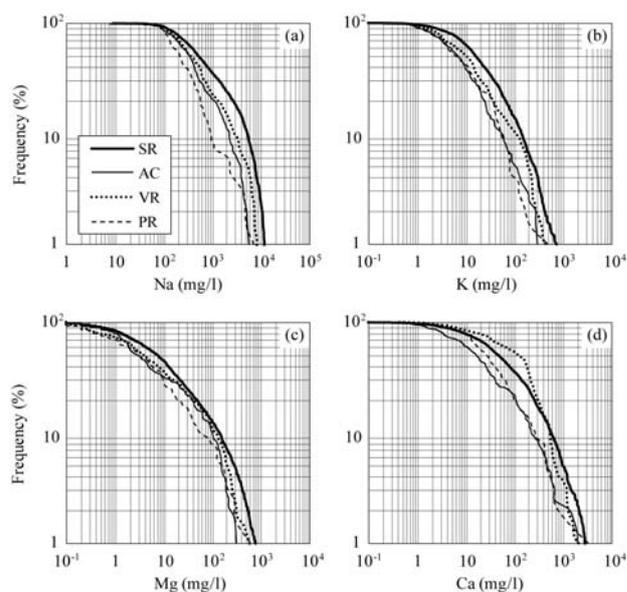


Fig. 6 Inverse cumulative frequency distributions of major cation concentrations in groundwater in four types of geologies, respectively. (a) Na, (b) K, (c) Mg, and (d) Ca.

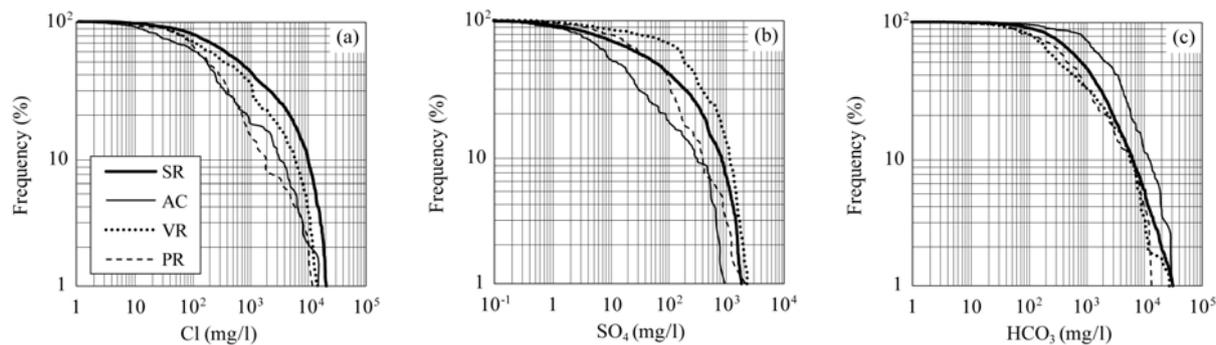


Fig. 7 Inverse cumulative frequency distributions of major anion concentrations in groundwater in four types of geologies, respectively. (a) Cl, (b) SO₄, and (c) HCO₃.

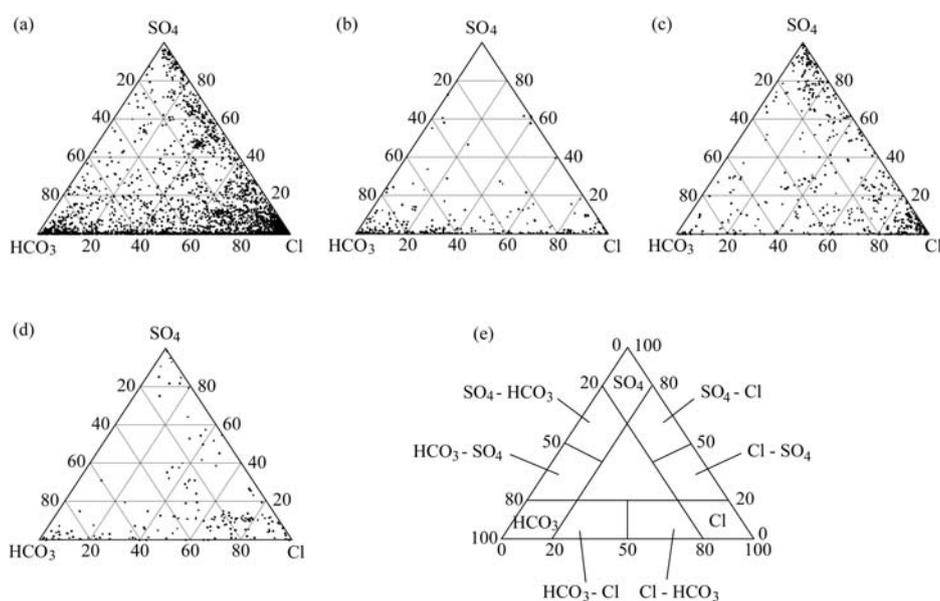


Fig. 8 Triangle diagrams showing major anion distributions in groundwater in four types of geologies, respectively. The total cation concentrations of the groundwater are more than 4 meq l⁻¹. (a) sedimentary rock, (b) accretionary complex, (c) volcanic rock, and (d) plutonic rock. (e) The basis for the classification of water types used in this study (see Table 1).

Table 2 Water types of major anions (Cl, SO₄ and HCO₃) in groundwater in four types of geologies obtained from the results of Fig. 8.

Water type	Sedimentary rock		Accretionary complex		Volcanic rock		Plutonic rock	
	N	%	N	%	N	%	N	%
Cl	1215	44.3	42	16.9	194	38.3	42	30.4
HCO ₃	285	10.4	79	31.9	27	5.3	19	13.8
SO ₄	82	3.0	0	0.0	93	18.4	9	6.5
Cl-HCO ₃	449	16.4	43	17.3	46	9.1	31	22.5
HCO ₃ -Cl	260	9.5	65	26.2	25	4.9	14	10.1
Cl-SO ₄	171	6.2	0	0.0	26	5.1	6	4.3
SO ₄ -Cl	161	5.9	7	2.8	51	10.1	6	4.3
HCO ₃ -SO ₄	30	1.1	5	2.0	10	2.0	1	0.7
SO ₄ -HCO ₃	23	0.8	2	0.8	6	1.2	0	0.0
others	67	2.4	5	2.0	28	5.5	10	7.2
total	2743	100	248	100	506	100	138	100

コンプレックス (1023 mg l⁻¹), 深成岩類 (767 mg l⁻¹) の順に低下し, t 検定は有意な違いであることを示した.

SO₄濃度の分布傾向として, 10 mg l⁻¹以下の地下水を含む割合が付加コンプレックスが最も多く (50%), 次いで堆

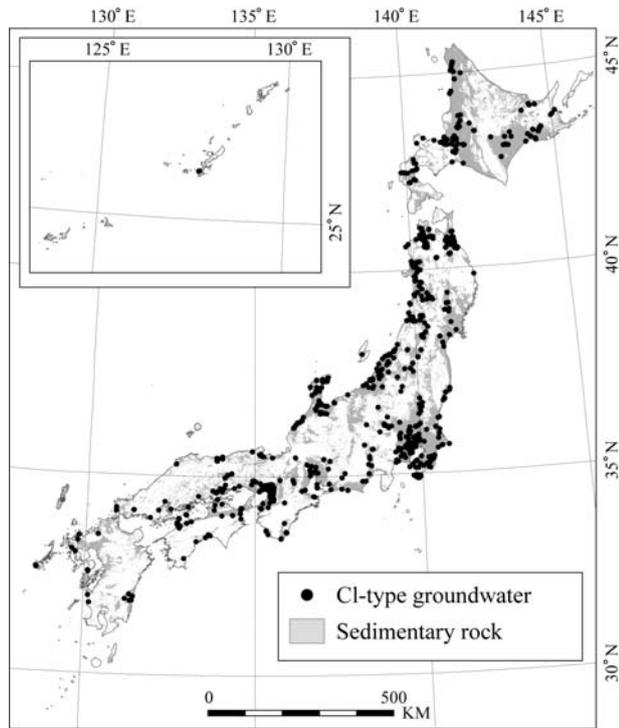


Fig. 9 Distribution maps of Cl-type groundwater in sedimentary rock.

積岩類 (30%), 深成岩類 (21%), 火山岩類 (15%) の順となる. 10~100 mg l⁻¹の濃度の割合が最も多いのは深成岩類であり (42%), 火山岩類が 15%と最も少ない, また火山岩類中の地下水の SO₄濃度の約 60%は 100~1000 mg l⁻¹の範囲であり, これは他の地質の地下水の約 1.6~4.0 倍に相当する頻度分布である. 1000 mg l⁻¹以上の地下水の割合はすべての地下水において 10%以下であり, 最大濃度は堆積岩類中の地下水の 6970 mg l⁻¹である. 濃度の平均値は火山岩類中の地下水が最も高く (382 mg l⁻¹), 次いで堆積岩類 (221 mg l⁻¹), 深成岩類 (143 mg l⁻¹) となり, 付加コンプレックスが 76 mg l⁻¹と最も低い. これらの平均値の差には有意性が見られた (P<0.05).

HCO₃濃度の分布傾向として, 100 mg l⁻¹以下の地下水を含む割合が最も多かったのは火山岩類であり (50%), 付加コンプレックスが最も少ない (10%). また, 付加コンプレックスは 100~1000 mg l⁻¹の地下水を含む割合が 70%と最も多く, 火山岩類が 40%と最も少ない. 濃度の平均値は付加コンプレックス中の地下水が最も高く (744 mg l⁻¹), 堆積岩類 (496 mg l⁻¹), 火山岩類 (341 mg l⁻¹), 深成岩類 (313 mg l⁻¹) の順に減少し, Cl, SO₄と同様に有意な違いを見せた. HCO₃と SO₄とは付加コンプレックスと火山岩類中の地下水とで対照的な特徴が見られる.

4.4.2 陰イオン水質タイプとその分布

主要陰イオンでは各地質における濃度への影響の違いが確認できたことから, Cl, SO₄, HCO₃三角ダイアグラムを作成し (Fig. 8), Fig. 8(e)を基とした水質タイプに分類することにより, 各地質中の地下水に優占する主要陰イオンを評価した (Table 2). Cl タイプの地下水は, 堆積岩類, 火山

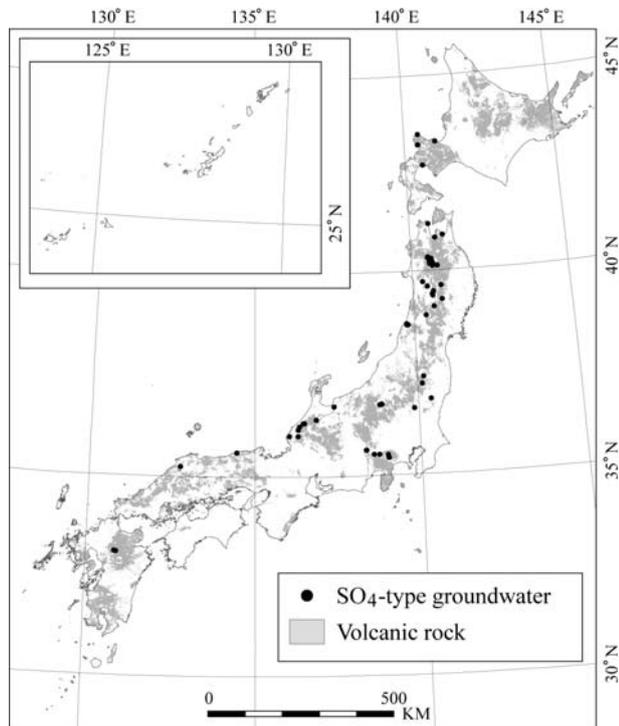


Fig. 10 Distribution maps of SO₄-type groundwater in volcanic rock.

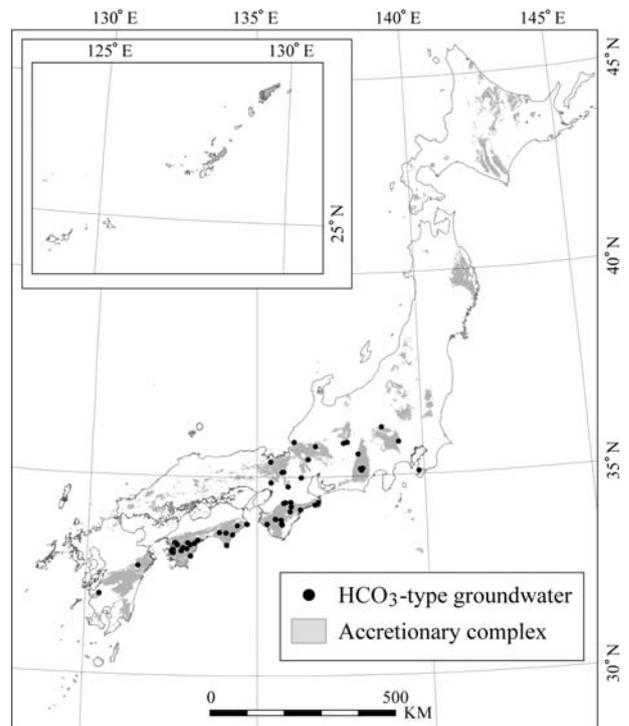


Fig. 11 Distribution maps of HCO₃-type groundwater in accretionary complex.

岩類、深成岩類において最も多い割合で存在し、特に堆積岩類に関しては全体の 44.3%と約半分を占める。一方、付加コンプレックス中の地下水は Cl タイプの占める割合が他の地質と比べて少なく (16.9%), HCO_3 タイプの占める割合が最も多い (31.9%)。また、火山岩類中の地下水は他の地質よりも HCO_3 タイプが少ないものの、代わりに SO_4 タイプの地下水の割合が多い点が特徴的である。このように、堆積岩類、付加コンプレックス、そして火山岩類中の地下水は、それぞれ Cl, HCO_3 , そして SO_4 タイプの地下水に特徴づけられるという結果となった。

堆積岩類中における Cl タイプの地下水、火山岩類中における SO_4 タイプの地下水、そして付加コンプレックス中における HCO_3 タイプの地下水の分布を地質分布と共にそれぞれ Fig. 9, Fig. 10, Fig. 11 に示す。Cl タイプの地下水は堆積岩類のほぼ全域に分布しているのに対し (Fig. 9), SO_4 タイプ、 HCO_3 タイプの地下水は地域的な偏りがあるように見える。例えば、 SO_4 タイプの地下水は主に北海道西部から島根県にかけて日本列島の背弧側に広く分布しており (Fig. 10), HCO_3 タイプの地下水は西南日本弧に集中している (Fig. 11)。

非火山地域における高 SO_4 濃度の地下水については、グリーンタフ (緑色凝灰岩) 地域に広く分布することが知られている [7, 8]。グリーンタフは新第三紀中新世初期 (2,400 万年前) から始まった海底火山活動に伴い形成され、特に日本列島の背弧側に大量に存在する。Ohwada et al. [8] は北

陸のグリーンタフ地域の地下水を調査し、地下水中の SO_4 濃度が相対的に増加するメカニズムは、グリーンタフ中の石膏 (CaSO_4) と温泉水 (地下水) との反応による Ca と SO_4 の溶出および Ca と温泉水 (地下水) に含まれる HCO_3 との反応による CaCO_3 の沈澱によって説明できることを示した。従って、同じ火山岩類中の地下水でも、グリーンタフ地域と非グリーンタフ地域とでは各水質タイプの割合が異なる可能性がある。そこで、20 万分の 1 シームレス地質図基本版の凡例を基に火山岩類を詳細な岩石区分 (火砕流堆積物・それ以外の火山岩類), および火砕流堆積物以外の火山岩類についてはさらにその地質年代 (第四紀・新第三紀 (グリーンタフ)・古第三紀以前) 毎に細かく分類し、各岩石区分に含まれる地下水の水質タイプを比較した (Table 3)。火山岩類の分類基準については Table 4 に示す。その結果、各水質タイプの地下水を含む割合は岩石区分や地質年代によって異なっており、 SO_4 タイプの地下水を含む割合はグリーンタフに相当する火砕流堆積物以外の新第三紀の火山岩類において 24.0%と最も高い値を示した。また、これらの地下水の pH の値を調べた結果、7.0~9.0 と中性からアルカリ性の範囲であったことから、 SO_4 タイプの地下水が火山ガス中の H_2S や SO_2 の影響を受けているとは考えにくい。これらの結果から、 SO_4 タイプの地下水が火山岩類中に相対的に多いのは、上述のグリーンタフ地域における地下水の挙動を反映しているためと考えられる。

付加コンプレックス中における HCO_3 タイプの地下水の

Table 3 Comparison between water types of groundwater in volcanic rocks in different rock types and geological ages. The groundwater data were obtained from Fig. 8(c).

Water type	Volcanic rock*						Pyroclastic-flow deposit	
	Quaternary		Neogene (green tuff)		Before Neogene		N	%
	N	%	N	%	N	%		
Cl	2	25.0	110	31.8	17	35.3	64	63.4
HCO_3	1	12.5	15	4.3	5	9.8	6	5.9
SO_4	0	0.0	83	24.0	9	17.6	1	1.0
Cl- HCO_3	4	50.0	20	5.8	8	15.7	14	13.9
HCO_3 -Cl	0	0.0	12	3.5	4	7.8	9	8.9
Cl- SO_4	0	0.0	25	7.2	1	2.0	0	0.0
SO_4 -Cl	1	12.5	44	12.7	2	3.9	4	4.0
HCO_3 - SO_4	0	0.0	7	2.0	3	5.9	0	0.0
SO_4 - HCO_3	0	0.0	5	1.4	0	0.0	1	1.0
others	0	0.0	25	7.2	0	2.0	2	2.0
total	8	100	346	100	51	100	101	100

* Except for the pyroclastic-flow deposit.

Table 4 Classification of volcanic rocks according to the basic version of seamless digital geological map of Japan 1: 200,000 [25].

Rock type	Age	ID in legend of the geological map
Volcanic rock*	Quaternary	83-85, 99-101, 115-117, 164, 166, 167, 181, 186-189.
	Neogene (green tuff)	79, 86-88, 102-104, 111-113, 118-120, 175, 180.
	Before Neogene	80-82, 89-94, 105-110, 114, 121, 175-178.
Pyroclastic-flow deposit		78, 95-98, 165, 179, 185, 196.

* Except for the pyroclastic-flow deposit.

濃度は 184~4432 mg l⁻¹ の範囲であり、平均値は 799 mg l⁻¹ と非常に高い値を示す。地下水中の HCO₃⁻ 濃度を増加させる主な要因としては、土壌中の微生物の有機物分解作用に伴う CO₂ の付加や、炭酸塩鉱物を含む地質との長期的な岩石-水反応が挙げられる。一方、同タイプの地下水の約 70% が分布している近畿~四国地方では、マントル起源のガスが上昇している可能性が示されており[29-31]、Morikawa et al.[32]は近畿地方において有馬型熱水[9]に含まれている CO₂ ガスが地下深部で脱ガスし、浅部の地下水に付加されていると報告している。従って、近畿~四国地方の付加コンプレックス中に HCO₃⁻ タイプの地下水が多く見られる原因については、表層土壌や炭酸塩鉱物との反応だけでなく、地下深部から上昇してくる CO₂ ガスの供給の可能性も考えられる。

5 まとめ

本研究では、深層地下水データベースを活用し、非火山地域の深層地下水水質に対する各地質（堆積岩類・付加コンプレックス・火山岩類・深成岩類）の影響について解析を行った。得られた知見について以下に記す。

- 1) 各地質における地下水の pH には大きな差は見られなかったが、水温の平均値は pH よりも有意な違いが見られ、火山岩類が最も高く、付加コンプレックスは最も低い結果となった。
 - 2) 主要陽イオン (Na, K, Ca, Mg) に対する地質の影響は、逆累積頻度分布においてやや異なる特徴を示したものの、平均値を比較すると 4 種類のイオンのすべてにおいて堆積岩類の地下水が最も高く、次いで火山岩類、付加コンプレックス、深成岩類の順に低下していく傾向を示した。地下水中のイオン組成の変化は、岩石中の鉱物と地下水とのイオン交換反応に支配されることが知られていることから、地質による地下水の陽イオンへの影響の違いは、鉱物組成を考慮した地質区分を用いることでより詳細に検討できると考えられる。
 - 3) 主要陰イオン (Cl, SO₄, HCO₃⁻) に対する地質の影響は主要陽イオンとは異なり明瞭な違いを示し、堆積岩類、付加コンプレックス、そして火山岩類中の地下水は、それぞれ Cl, HCO₃⁻, そして SO₄ タイプの地下水に富むという結果を示した。このうち、火山岩類中の SO₄ タイプの地下水については、相対的にグリーンタフ地域に多く分布していた。一方、付加コンプレックス中の HCO₃⁻ タイプの地下水の分布は近畿~四国地方に集中していた。同地域ではマントル起源のガスが上昇している可能性が多く指摘されていることから、HCO₃⁻ タイプの地下水が多い理由については、表層土壌や炭酸塩鉱物との反応だけでなく、地下深部から上昇してくる CO₂ ガスが供給されている可能性も考えられる。
- 今後の課題として、安定同位体等を用いた地下水の起源に関する解析を行う必要が挙げられる。特に炭素の安定同位体比は土壌起源の CO₂ と比較して深部上昇起源の CO₂

が高い値を示すことが知られているため[33]、これを利用することにより CO₂ の起源が明らかになることが期待される。

謝辞

本論文を作成するにあたり、匿名の査読者 2 名から貴重なご意見を頂いた、記して謝意を表します。本研究の一部は原子力安全・保安院「平成 20 年度地層処分に係る地質情報データの整備」および「平成 21 年度地層処分に係る地質情報データの整備」として実施した。

参考文献

- [1] 笹本広, 油井三和: 高レベル放射性廃棄物地層処分の性能評価における地下水水質設定の考え方. サイクル機構技報 7, 59-69 (2000).
- [2] Drever, J. J.: *The geochemistry of natural waters*, Prentice Hall, Inc., 1-437 (1988).
- [3] 松波武雄: 北海道中央部新第三系堆積盆の塩水について. 北海道立地下資源調査報告書 65, 55-72 (1993).
- [4] 伊藤俊方, 小松原岳史, 佐藤修: 北部フォッサマグナ地域における深層地下水の水質特性. 応用地質 45, 22-30 (2004).
- [5] 松葉谷治, 酒井幸子, 越中浩: 群馬県の温泉水の水素および酸素同位体比. 温泉科学 36, 1-11 (1985).
- [6] 加藤進, 安田善雄, 西田英毅: 秋田・山形地域油・ガス田の地層水の地球化学. 石油技術協会誌 65, 229-237 (2000).
- [7] 酒井均, 大木靖衛: 日本の温泉. 科学 48, 41-52 (1978).
- [8] Ohwada, M., Satake, H., Nagano, K., Kazahaya, K.: Formation process of thermal waters in Green Tuff: A geochemical study in the Hokuriku district, Central Japan. *Journal of Volcanology and Geothermal Research* 168, 55-67 (2007).
- [9] Kazahaya, K., Yasuhara, M., Sato, T., Inamura, A., Morikawa, N., Takahashi, H. A., Takahashi, M., Ohwada, M., Ritchie, B. E.: Chemical and isotopic nature of very saline spring in central Japan: implication to their origin. *23rd General Assembly of the IUGG* (Sapporo, Japan) A, 42 (2003)
- [10] 大沢信二, 網田和宏, 山田誠, 三島壮智, 風早康平: 宮崎平野の大深度温泉井から流出する温泉水の地化学特性と成因—温泉起源流体としての続成脱水流体—. 温泉化学 59, 295-319 (2010).
- [11] 山本荘毅: 新版 地下水調査法, 古今書院, 東京, pp.1-490 (1983).
- [12] Domenico, P. A. and F. W. Schwartz 著, 地下水の科学研究会 訳: 地下水の科学 I —地下水の物理と化学—, 土木工学社, 東京, pp.1-235 (1995).
- [13] Domenico, P. A. and F. W. Schwartz 著, 地下水の科学研究会 訳: 地下水の科学 II —地下水環境学—, 土木工

- 学社, 東京, pp.1-252 (1996).
- [14] Domenico, P. A. and F. W. Schwartz 著, 地下水の科学研究会 訳: 地下水の科学Ⅲ—地下水と地質—, 土木工学社, 東京, pp.1-194 (1996).
- [15] 角清愛: 日本温泉・鉱泉一覧. 地質調査所 1-134 (1975).
- [16] 瀬尾俊弘, 清水和彦: 我が国における地下水の水質に関するデータの収集, 解析. 動力炉・核燃料開発事業団技術報告書 PNC TN7410 92-017 (1992).
- [17] 金原啓司: 日本温泉・鉱泉分布図及び一覧. 地質調査所 1-394 (1992).
- [18] 金原啓司: 日本温泉・鉱泉分布図及び一覧 (第二版). 数値地図 GT-2, 産業技術総合研究所地質調査総合センター CD-ROM (2005).
- [19] 浅森浩一, 梅田浩司, 石丸恒存, 小松亮: 温泉地化学データベースの作成. 核燃料サイクル開発機構 TN7450 2002-003 (2003).
- [20] 村岡洋文, 坂口圭一, 玉生志郎, 佐々木宗建, 茂野博, 水垣桂子: 日本の熱水系アトラス. 産総研地質調査総合センター 1-110 (2007).
- [21] 高橋正明, 風早康平, 安原正也, 塚本斉, 佐藤努, 高橋浩, 森川徳敏, 大和田道子, 尾山洋一, 芝原暁彦, 稲村明彦, 鈴木秀和, 半田宙子, 仲間純子, 松尾京子, 竹内久子, 切田司, 大丸純: 深層地下水データベース. 地質調査総合センター研究資料集, no.532, 産業技術総合研究所地質調査総合センター (2011).
- [22] 産業技術総合研究所: 日本の第四紀火山データベース URL: http://riodb02.ibase.aist.go.jp/strata/VOL_JP/index.htm (accessed on Aug. 23, 2010) (2010).
- [23] 第四紀火山カタログ委員会編: 日本の第四紀火山カタログ. 日本火山学会 CD-ROM (1999).
- [24] 原子力発電環境整備機構: 概要調査地区選定上の考慮事項 (分冊-2). 16 (2002).
- [25] 産業技術総合研究所地質調査総合センター: 20 万分の1 シームレス地質図データベース. URL: <http://riodb02.ibase.aist.go.jp/db084/> (accessed on Aug. 23, 2010) (2009).
- [26] 浅森浩一, 石丸恒存, 岩月輝希: 日本列島における火山周辺の酸性地下水分布. サイクル機構技報 15, 103-111 (2002).
- [27] 田中明子, 山野誠, 矢野雄策, 笹田政克: 日本列島及びその周辺域の地温勾配及び地殻熱流量データベース. 地質ニュース 603, 42-45 (2004).
- [28] 水上正勝: 海水-Dacite 間の熱水反応実験. 日本地球化学会年会講演要旨, 363-364 (1981).
- [29] Sano, Y., Wakita, H.: Geographical distribution of $^3\text{He}/^4\text{He}$ ratios in Japan: Implications for arc tectonics and incipient magmatism. *Journal of Geophysical Research* 90, 8729-8741 (1985).
- [30] Matsumoto, T., Kawabata, T., Matsuda, J., Yamamoto, K., Mimura, K.: $^3\text{He}/^4\text{He}$ ratios in well gases in the Kinki district, SW, Japan: surface appearance of slab-derived fluids in a non-volcanic area in Kii Peninsula. *Earth and Planetary Science Letters* 216, 221-230 (2003).
- [31] Dogan, T., Sumino, H., Nagao, K., Notsu, K.: Release of mantle helium from forearc region of the Southwest Japan arc. *Chemical Geology* 233, 235-248 (2006).
- [32] Morikawa, N., Kazahaya, K., Takahashi, H. A., Inamura, A., Ohwada, M., Yasuhara, M., Takahashi, M., Ritchie, B. E., Nagao, K., Sumino, H.: Chemical and isotopic compositions of thermal water related with possible ascending deep fluid in Kii Peninsula, SW Japan. *2004 AGU Fall Meeting* (San Francisco, USA) 85, V13A-1442 (2004).
- [33] Hoefs, J.: *Stable Isotope geochemistry*, 3rd Ed. Springer-Verlag, Berlin, 1-244 (1987).