

地下水溶存物質に着目した深部流体の起源と影響領域の評価手法の検討

富岡祐一*1 近藤浩文*1 楠原文武*1 長谷川琢磨*1 太田朋子*1,*2

高レベル放射性廃棄物の処分地選定においては、地下深部からの流入が想定される深部流体の調査・評価が必要である。深部流体のうち、スラブ起源水は高温、高塩濃度、高 CO₂ 濃度、低 pH という特徴を持つものがあり、処分環境へ流入した場合に悪影響を及ぼすことが懸念されている。そのため、スラブ起源水の流入を判別する方法の構築が必要である。深部流体の定義は非天水起源の地下水の総称としたものや、いわゆるスラブ起源水のみを深部流体としたものもあり、文献により異なる。また、国内のさまざまな地域での研究事例があり、溶存物質や地質環境の検討を併せて起源水の推定がなされているが、それぞれの共通した特徴を整理した事例に乏しい。そこで本研究では、既往文献調査に基づき、深部流体の形成機構のまとめと起源水の定義を行うとともに、30 か所以上におよぶ採水調査を実施し、既往文献結果と併せて溶存物質の特徴を再整理して深部流体の起源を判別する方法の検討を行った。その結果、Cl 濃度、He 同位体比、水の安定同位体比ならびに溶存イオン、溶存ガスを用いて定性的ではあるが起源水の推定が可能であること、溶存物質は深部流体の影響領域を評価できる可能性があることを示した。

Keywords: 深部流体, スラブ起源水, 化石海水, 油田かん水

For selecting the HLW geological disposal site, it is necessary to evaluate the groundwater chemical and physical stability and inflowing of deep-seated fluids which is idiomatically classified as slab-derived fluid, fossil seawater, and oil-field brine. Among them, the slab-derived fluid is found in some areas in Japan, they often have high temperature, high CO₂ gas, and low pH characters. The features may have adverse impact for geological disposal systems, hence, consolidation of the methodology for finding the fluid is required. However, according to previous studies, the terminology of deep-seated fluids is somewhat ambiguous, and chemical characteristics of each deep-seated fluids does not well organized. In this study, the authors classify the terminology of deep-seated fluids by the formation mechanisms and the reduction of common chemical features of deep-seated fluids are conducted based on the own field surveys over 30 springs and previous studies. The origin of the deep-seated fluids could be classified by dissolved chemicals such as concentration of Cl, He isotope ratio and stable isotope ratio combined with concentrations of other dissolved ions and gases. Dissolved chemicals could be also useful tracer to find out the area of influence of the deep-seated fluid.

Keywords: deep-seated fluid, slab-derived fluid, fossil seawater, oil-field brine

1 はじめに

高レベル放射性廃棄物の処分地選定においては、火山・火成活動、断層活動および、地下水の水質や滞留性といった地質環境特性に関する調査が必要である。そのなかで、深部流体も検討項目の一つに挙げられる[1]。深部流体の定義は非天水起源の地下水の総称としたものや、いわゆるスラブ起源水のみを深部流体としたものもあり、文献により異なる。本稿では、まずは産業技術総合研究所[2, 3]の定義にならい、深部流体は、非天水起源の地下水であり、慣用的にスラブ起源水、化石海水、油田かん水と呼ばれる地下水とし、検討結果に基づいて改めて定義を行う。

深部流体のうち、化石海水、油田かん水は海水の変質したもので、長い滞留時間を持ち、化学的にも安定であると考えられている。一方、スラブ起源水については、高温、高塩濃度、高 CO₂ 濃度、低 pH という特徴を持つものがあり、地表に湧出する場合のあることから、処分環境へ著しい影響を及ぼすことが懸念されている[1, 4]。このため、高レベル放射性廃棄物の処分地の選定にあたっては、スラブ起源水のような地下水が湧出する地域はその影響を評価し、地下施設に対する著しい影響を回避する必要がある。

処分地選定調査においては、大深度ボーリング掘削による地下水調査の他、周辺地域の湧水や温泉などのデータを

参考にして深部流体の有無・混合の程度や空間的・時間的な影響評価がなされると想定される。その際に得られる溶存物質の情報、例えば、水質組成、同位体組成、溶存ガス組成などを利用して地下水の起源や空間的な広がりを把握できることが期待できる。各深部流体の組成に明瞭な違いがあれば、それを基に起源水の特定ができ、また、溶存物質の濃度からスラブ起源水がどの程度の広がり(影響領域)を持つか情報を得られると考えられる。しかしながら、溶存物質を用いた深部流体の起源判定や影響領域の評価方法は整備されていない。また、深部流体の研究において、個別の地域について地質や地形、溶存物質を調査評価した事例は多くあるが、複数地点で共通してみられる特徴などを整理検討した事例に乏しい。

そこで本報告では、とくに溶存物質に着目して、文献や採水調査により得られたデータを基に深部流体の特徴を整理し、溶存物質を用いた深部流体の判別方法や影響領域の調査への適用性についての検討を行った。

2 深部流体の形成機構と水質の特徴

本節では、まずは既往の深部流体の定義[2, 3]に従って、深部流体をスラブ起源水と、化石海水・油田かん水とに分け、それらの形成機構と溶存物質の特徴、ならびに起源の判別事例について調査した結果を述べる。その結果から、水質の特徴の整理と、形成機構や判別事例に基づいて新たに深部流体の分類を行う。

2.1 深部流体の形成機構

2.1.1 スラブ起源水の形成機構

スラブ起源水の代表例として兵庫県の有馬温泉が挙げられる。有馬温泉は、火山やマグマ溜まりが近傍に存在しな

Study on discrimination methodology to identify the origin and area of influence of deep-seated fluids in terms of dissolved chemicals by Yuichi TOMIOKA (tomioka@cripi.denken.or.jp), Hirofumi KONDO, Fumitake KUSUHARA, Takuma HASEGAWA and Tomoko OHTA

*1 一般財団法人電力中央研究所

Central Research Institute of Electric Power Industry
〒270-1194 千葉県我孫子市我孫子 1646

*2 現所属：国立大学法人長岡技術科学大学
Present address: Nagaoka University of Technology)
〒940-2188 新潟県長岡市上富岡町 1603-1

(Received 8 April 2022; accepted 19 August 2022)

いにもかかわらず、標高 400 m 程度の地表において 100 °C 近い温度で多量の CO₂ ガスを伴って自噴している。また、水の安定同位体比が δ ダイアグラム上で天水よりも $\delta^{18}\text{O}$ がプラス側へシフトするという、地熱水にみられる同位体比の特徴をもつことが知られており、その起源については古くから多くの研究がなされている[5]。有馬温泉の水は、高い溶存成分濃度が特徴的であり、地表水の混合のない起源水では 1185~1523 mM の Cl 濃度を持つといわれている[6-9]。また、温泉水に溶存する He の同位体比 ($^3\text{He}/^4\text{He}$) が大気を持つ He 同位体比 (1.38×10^{-6}) よりも高いことから、マントル由来の物質が混合していると考えられている[9]。有馬温泉以外にも有馬温泉に似た水質を持つ地下水が報告されており、有馬型熱水や有馬型塩水とも呼ばれている。火山の影響がないと考えられる状況で有馬温泉に似た化学組成をもつ水の事例として、兵庫県宝塚温泉[9-11]、大阪府南部の石仏の湧水[8, 11]、紀伊半島の温泉や湧水[12, 13]、四国[14]、島根県の津和野地域の湧水[15]、長野県の鹿塩温泉[16-18]、大分県の大分平野の温泉[19]が報告されている。

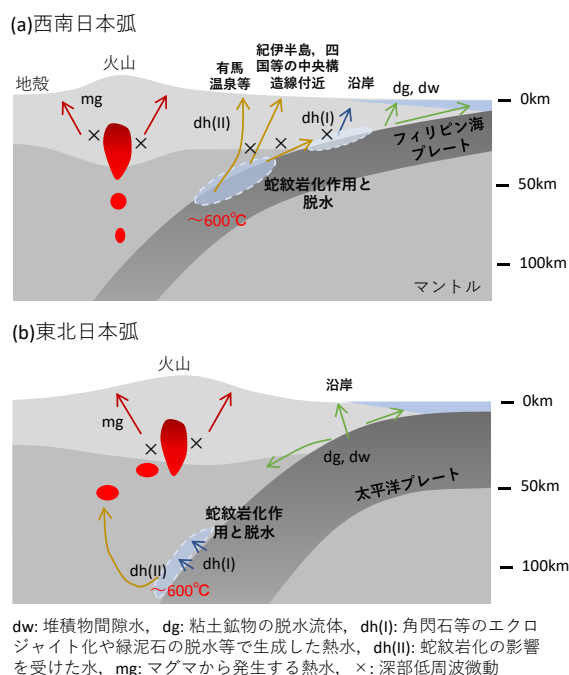


Fig. 1 Schematic of generation mechanisms of slab-derived fluid (based on [24])

スラブ起源水の形成機構は、沈み込み帯の水の循環に関わる研究（例えば、[20, 21]）を基に、モデル化がなされている[22-24]。産業技術総合研究所[24]による模式図に改変を加えたものを Fig. 1 (a), (b) に示す。産業技術総合研究所[24]によれば、スラブ起源水の生成機構は(a)西南日本弧と(b)東北日本弧で大きく分けられる。フィリピン海プレートが沈み込む西南日本弧 (Fig. 1 (a)) では、スラブの沈み込み初期に粘土鉱物等の脱水の影響を受けた続成流体(dg)と堆積物の間隙から絞り出される間隙水(dw)が発生するが、この水のほとんどはスラブと地殻の境界を通じて海へ排出されると考えられている。さらに沈み込みが進むと、含水鉱物由来の鉱物脱水流体(dh(I))が深さ 30~40 km ま

でに生成し、西南日本の付加体内部を上昇すると考えられている。そのうち、深さ 60 km までは熱流体(dh(II))を生じる。この dh(II)はマントルウェッジを蛇紋岩化しつつさらに熱水として上昇し、地表へと至る。この熱水が有馬型熱水の起源水であるとしている。また、背弧側の火山周辺にみられるスラブ起源水に似た地下水は、スラブ溶融成分を含むマグマが上昇して地殻下部のマグマだまりの固化に伴い放出された熱水(マグマ起源水: mg)であると考えられている。一方、東北日本弧 (Fig. 1 (b)) では、フィリピン海プレートと比べて低温で厚い太平洋プレートが沈み込むため、地下の温度構造が比較的低温度であることから、西南日本弧とはスラブ起源水の発生メカニズムが異なる。dg, dw は地殻とスラブの間を通じて海に流出するものの他に、その一部は陸域に供給される。鉱物脱水流体の dh(I)は西南日本弧よりも深部で生成し、主にマントルウェッジ内での蛇紋岩化に寄与する。ここで生成した蛇紋岩はマントルの対流によりさらに深部へと運ばれ、600 °Cを超えたところで熱流体 dh(II)を発生し、マントル中を上昇する。この dh(II)がマグマの初成メルトを発生する元となる。マグマから発生するマグマ起源水(mg)は火山周辺部に上昇する。このため、有馬温泉で見られるような dh(II)を起源とする水は東北日本弧の前弧側では見られないとされる。また、西南日本では、火山地域に加え前弧側で深部低周波微動が観測されている (Fig. 1 (a))。風早ほか[25]は、西南日本の火山のない地域に列状に並ぶ深部低周波微動の震源の分布が、スラブ起源水の分布と調和的であることを見出し、スラブ起源水が地下深部の熱水活動に関連している可能性を示している。

Tatsumi ほか[26]は、西南日本における火山の分布についての検討の中で、中国地方(近畿地方も含む)と九州地方でのフィリピン海プレートの沈み込みに伴う脱水現象についての検討を行っている。その中で、中国地方・近畿地方の深さ 20~40 km で角閃石相への変成に伴う脱水が起き、その脱水流体が深さ 30 km 付近のスラブ上面における深部低周波微動の原因であるとしている。また、深さ 40 km 付近では蛇紋岩からの脱水が起きており、その脱水流体が有馬型熱水の起源であるとしている。一方、九州地方では、中国地方・近畿地方に比べてプレートが古く、温度が低いいため主に 50~80 km の深さでスラブ脱水流体を生成するが、その深度のスラブの上は厚いマントルウェッジで覆われていることから上方へと脱水流体が移動しづらく、その多くはマグマ生成に寄与するとしている。

以上、既往研究によるスラブ起源水形成機構の概要をまとめた。火山やマグマの見られない地域で高塩濃度の熱水が湧水するメカニズムは、プレートとマントルウェッジの相互作用を基にして説明することが可能である。

2.1.2 化石海水、油田かん水の形成機構

化石海水、油田かん水の呼称は文献によってさまざまであり、水溶性ガス田の付随水はかん水と呼ばれるが、いずれも地下深部に滞留していて、海水と似た組成を持つ地下水である。化石海水は、堆積時に間隙水として取り込まれた海水あるいは海水準変動などで地層に侵入した海水が、その場での続成作用を受けながら長期間滞留しているもの

であり[27,28], 油田かん水は石油・ガスに付随する海水に似た成分の塩水のことで, 長い滞留時間のうちに続成作用を受けた海水である[29].

化石海水や油田かん水等は日本の沿岸域に広く存在すると考えられており[27], 多くの研究事例がある. 例えば, 北海道[27, 30-35], 東北地方日本海側[29, 30, 36-39], 関東地方[31, 40-42], 宮崎県[30, 43]などがある.

化石海水, 油田かん水等はスラブ起源水と異なり, 地層の温度勾配に従った温度を持ち, 溶存成分濃度は海水程度かそれ以下であることが多いが, 海水よりも高い溶存元素濃度を持つものも報告されている[29, 32, 39].

化石海水, 油田かん水等共に, 滞留・移動の状況については必ずしも明らかではない. これらは共に古い海水と言われているが, 水質が海水と類似していることや, 帯水層の透水性の低さや深度, 背斜構造やキャップロックの存在などの水理地質学的な条件から滞留性が高いと判断したものであり, 実際に地下水年代測定で長期に滞留していることを確認した事例は多くない[27].

2.2 深部流体の水質の特徴と判定事例

2.2.1 スラブ起源水の水質の特徴

スラブ起源水と判定されている地下水調査事例のうち, 詳細な調査・分析がなされている代表的な事例について調査概要と溶存成分の特徴を整理する.

Table 1 Estimated composition of original water of Arima hot spring

a) 溶存成分濃度

| | Na mM | K mM | Ca mM | Li mM | Sr mM | NH ₄ mM | Cl mM | Br mM |
|-----------|----------|---------|----------|----------|----------|-----------------------|----------|----------|
| 起源水推定値[9] | 913 | 95 | 77 | 7.9 | 1.0 | 0.5 | 1185 | 1.1 |
| 海水[44] | 457 | 10 | 10 | 0.026 | 7.8 | — | 547 | 0.84 |

b) 水の安定同位体比

| | δD ‰ | δO ‰ |
|------------|-----------------|-----------------|
| 起源水推定値[9] | -33 | 6 |
| 海水 (VSMOW) | 0 | 0 |

c) He同位体比

| | He同位体比 R/R _a |
|--------|----------------------------|
| 測定値[9] | 2.33~6.41 |
| 大気 | 1 |

d) ガス組成[11]

| O ₂ % | N ₂ % | CH ₄ % | CO ₂ % | Ar % | $\delta^{13}C-CO_2$ ‰ | $\delta^{13}C-CH_4$ ‰ |
|---------------------|---------------------|----------------------|----------------------|---------|--------------------------|--------------------------|
| 0.4 | 2.5 | 0.67 | 96.4 | 0.027 | -6.8 | -29.5 |

有馬温泉はスラブ起源水の代表といえる. 有馬温泉は浅層地下水が混合していることから, その影響を差し引いた起源水の化学成分の推定が行われてきた[6-9]. **Table 1** に, 溶存元素および水の安定同位体比の推定事例[9], ならびに溶存ガスの実測データ[9, 11]を示す. **Table 1** では溶存成分の比較のため, 海水組成[44]を併記した.

推定された起源水は海水の 2.2 倍の Cl 濃度を持っており, 溶存成分濃度も高い. He 同位体比は, 測定値の He 同位体比 (R) を大気 He 同位体比 (R_a) で除した値である R/R_a で表しており, 大気 He 同位体比は 1 となる. 有馬温泉で得られる He 同位体比は大気よりも数倍高い値を示していることからマントル起源の物質が混合していると考えられる. また, CO₂ ガスが多く含まれる. 水の安定同位体比が海水と比べて低い δD , 高い $\delta^{18}O$ であり, 熱水にしばしばみられる特徴を有している.

他に, スラブ起源水の報告事例としては, 長野県の鹿塩温泉, 紀伊半島, 島根県の津和野地域, 大分県の大分平野が挙げられる. また, **Fig. 1** に示した dh(I), dg, dw と考えられる, 変成の程度の低いスラブ起源水として, 四国南部, 常磐堆積盆の研究例がある.

鹿塩温泉は長野県南部で湧水する塩濃度の高い冷鉱泉である. 鹿塩温泉は有馬温泉と異なり, 温度が低く, CO₂ ガスが見られないが, 水の安定同位体比にはプラス側へのシフトが見られ[16, 18, 45], He 同位体比が高いことが報告されている[18, 46]. Kusahara ほか[18]は, 希ガス組成, 溶存元素, 水の安定同位体比の特徴から, 鹿塩地域の冷鉱泉はスラブ起源水であるとし, その起源水の水質の推定を行い, 水の同位体比は有馬温泉で推定されるものよりも低い δD , 高い $\delta^{18}O$ で, Cl 濃度は 677 mM 程度であり, 起源水は有馬温泉とは異なる可能性を指摘している.

紀伊半島では, 広範囲で多数の湧水, 温泉水, ガス等の採取結果に基づく検討が行われている[13, 14, 47]. とくに中央構造線付近で Cl 濃度が高く, 同位体比が熱水側にシフトした有馬温泉と似た特徴をもつスラブ起源水が湧水している. He 同位体比は中央構造線付近に限らず紀伊半島全体で大気より高い値を示すことが多く, とくに偏在する傾向は見られない. ほかに, CO₂ ガスが含まれるものと含まれないもの, Na-Cl 型や Ca-HCO₃ 型など種々の水質があることが分かっている. さまざまな水質が見られる原因は, スラブ起源水が地表付近に上昇してくる過程での地下水混合や, スラブ起源水が湧水する過程でガス成分が遊離して水とガスで別に移動する現象が起きていることなどが影響しているといわれている[13]. また, 紀伊半島中南部にある, 湯の峰温泉とその周辺では, スラブ起源水のリザーバーと考えられる熱源が物理探査により捉えられており, 地表由来の水がリザーバーにあるスラブ起源水と混合して湧水していると考えられている[48-50].

島根県の津和野地域では塩濃度の高い冷鉱泉が湧水しており, 村上と田中[15]は湧水とそのガス成分について詳細な調査検討を行っている. 湧水は複数の場所で見られ, 主に日原断層に沿っている. 湧水のうち Cl 濃度が高いものは 282 mM であり, 溶存ガスは CO₂ 濃度が 90 %程度, He 同位体比が大気の 4 倍程度の高い値を示している. また, 水の安定同位体比は熱水側にシフトしていることから, スラブ起源水の寄与が疑われる. 付近には第四紀火山である青野山があることから, 火山性熱水の可能性も否定できないが, 青野山には現在高温のマグマは供給されていないと考えられており, 噴火以降長期にわたって火山性熱水が湧水し続けるのは考えづらいことから, 津和野地域に湧水する塩水は火山性熱水を起源とするものではなく, スラブ起源水を含む水が湧水している可能性が高いとされている.

大分県の大分平野では, CO₂ を主成分とするガスが含まれる Na-Cl 型の温泉が報告されており, 温泉水の He 同位体比は 4.4~8.7 である[51, 52]. 網田ほか[19]は, 同地域の複数の温泉井において水の安定同位体比が熱水側にシフトしていることを見出した. 溶存成分を分析し, δD , Cl および, スラブの脱水過程で流体相へ放出されるといわれている元素である Li, B との関係について有馬温泉で得られた

水との比較を行い、大分平野で見られる水の安定同位体比のシフトした温泉水は有馬温泉の温泉水と類似した特徴があることを示した。

太平洋側沿岸部において、浅い深度で生成する変成度が低いと考えられるスラブ起源水の事例として、四国の事例[14]と常磐堆積盆の事例[53]がある。網田ほか[14]は、仏像構造線に近い四国南部の坑井で得られた水は、水の安定同位体比がプラス側にシフトしていることから熱による影響を受けた水であると考えられる一方で、大分や紀伊半島の中央構造線付近で見られるスラブ起源水よりも塩濃度が低く、溶存ガスの He 同位体比は 0.78 と大気より低い値を示し、CO₂ 濃度が低く、N₂ と CH₄ 濃度が高いものであった。網田ほか[14]は、採水した地域のプレート深度が有馬温泉ほかのスラブ起源水が湧水しているとされる地域より浅い深度であることや、宮崎平野で得られた粘土鉱物の脱水により形成されたと考えられる地下水[43]と大分平野ほかで得られたスラブ起源水[19]との比較から、四国地方の中央構造線から南側の地域で得られた温泉水は、スラブ起源水同様のプレート脱水流体ではあるがその変成の程度が低い水であると推定している。Togo ほか[53]は、常磐堆積盆における温泉水について検討を行い、地温勾配から推定されるよりも高い泉温であることや、放射性ヨウ素やヨウ素濃度を用いて温泉水の起源の検討を行い、当該温泉水は地下深くから湧水しているスラブ起源水と推定されることを示した。また、この塩水は水の同位体比がやや熱水側にシフトしており、Cl 濃度は海水よりも低い。その理由として、太平洋プレートの沈み込みに伴って発生するスラブ起源水が Opal-A から CT へ変化するとき脱水する水やスメクタイトからイライトが生成するとき脱水する水によって希釈された可能性を指摘している。

風早ほか[22]、産業技術総合研究所[23]では、深部流体の水質の分類や特徴について総合的な検討を行っている。それによると、スラブ起源水の特徴として、高い He 同位体比、水の安定同位体比のシフトなどのほかに、Li/Cl や Br/Cl、I/Cl を用いている。また、網田ほか[19]、大沢ほか[43]は Li のほかに B を深部流体の判別に使用している。Li は高温高压下での岩石からの溶出試験結果から、いったん溶出した Li は温度や圧力を低下させても沈殿等により固相に戻ることなく溶存することが示されており[54, 55]、地下深部から上昇する熱水の検出指標として有効であるとされている[56]。また、B も Li と同様の特徴を持つ[54]。Cl が吸着や沈殿等の影響を受けづらい保存性の高い元素であることから、それぞれ Li/Cl、B/Cl として、熱影響を受けた水の判別指標として利用される。Li/Cl については重量比で 0.001 を超えるものをスラブ起源水の判別指標とすることが提案されている[22]。Br と I はスラブやマントル中の流体の移動の指標として利用されている。Sumino ほか[57]は、マントル中のハロゲン元素についての検討を行っており、Br/Cl と I/Cl を組み合わせて、捕獲岩の流体包有物の起源について論じている。その中で、マントル中や火山噴気ガス、海洋堆積物中の間隙水の Br/Cl、I/Cl の差異を論じている。産業技術総合研究所[23]は Br/Cl と I/Cl を組み合わせて、スラブ起源水の判別を試みており、東北地方の地下水において、

起源の判別が可能であることを示した。また産業技術総合研究所[58]は、スラブ起源水の Br/Cl が海水より低いことを指摘している。

有馬温泉と類似した化学的特徴を持っているが、必ずしもスラブ起源水と判断されない事例もある。火山の周辺に見られる火山性熱水は、CO₂ ガスを多く含んでいたり、塩濃度が高い水や強酸性、アルカリ性であったりとさまざまな水質がみられる[59]。その中には、CO₂ ガスを多く含んでいるものや、高塩濃度で He 同位体比が高く、水の同位体比は熱水側へシフトするなど、スラブ起源水と類似した水質を持つものもある。火山性熱水はマグマに含まれる水や地表起源の地下水が高温下で水岩石相互作用を受けて生成するものであり、同じく高温を経た履歴を持つスラブ起源水と類似した水質となることが理由として考えられる。村松ほか[60]は、糸魚川―静岡構造線南部とその東域、および鹿塩温泉付近で見られるスラブ起源水とされる水について、スラブ起源の熱水が現在上昇しているのではなく、過去にマグマ起源の熱水を含む鉱化作用を起こした熱水が深部に貯留されており、その水が湧水している可能性を指摘している。同様に、酒井ほか[61]は、大分県の山香温泉で湧水する温泉水は、高い He 同位体比を持つ塩水であることから、スラブ起源水の可能性も考えられるが、この水は、第三紀の火山活動で生成した熱水が長期にわたって滞留している湧水であるとしている。また、村上・田中[15]は島根県津和野地域の湧水において、スラブ起源水の可能性が高いと結論しているものの、湧水地点の近傍にある第四紀火山である青野山に起因する水の可能性も指摘している。長野県にある松代温泉は塩水が炭酸ガスを伴って自噴している[62]。この温泉水は、高い塩濃度、高い He 同位体比、水の同位体比の熱水側へのシフトを示すことからスラブ起源水が関与している可能性も考えられるが、Okuyama ほか[63]は、塩濃度が海水程度と有馬温泉より低いこと、また、比較的高い SO₄ 濃度から、火成活動に起因して生成し、地殻内に貯留されている中部地殻流体 (Mid-crustal fluid) [64]であるとしている。

2.2.2 化石海水・油田かん水の水質の特徴

化石海水・油田かん水の水質の特徴は、海水よりも K、Mg、SO₄ に欠乏し、Ca、Sr、Br、I に富み、HCO₃ は根源的には低い、天水の侵入がある場合は高いとされている[65-67]。秋田地域の油田かん水についてまとめられた事例では、海水に比べ、Mg、SO₄ に乏しく、HCO₃、NH₄、I に富むとされている[38]。油田かん水の I や Br の起源は I や Br を濃縮した昆布等の海藻や微生物などが地層に埋没したのちに分解されて溶出したものであるといわれている[39, 68, 69]。

大沢ほか[43]は、宮崎平野の大深度井で得られる海水より低い溶存成分濃度の化石海水のような水質を持つ温泉水の起源は、スメクタイトがイライト化する過程での粘土鉱物の脱水の影響を受けた続成脱水流体であることを示した。村松[70, 71]は関東平野南西部、石狩低地帯、新潟平野、国内の水溶性ガス田の化石海水・油田かん水の水質形成についてまとめており、それらの海水と比べた特徴として、微生物による硫酸還元反応を受けて SO₄ 濃度が低下している

こと、カルサイト沈殿の生成による Ca 濃度の減少、スメクタイト生成や、陽イオン交換で陽イオン組成が変化し、とくに Mg 濃度が減少することを挙げている。また、続成作用によりスメクタイトがイライト化する場合、 K 濃度の減少と共にスメクタイトの脱水により Cl 濃度が減少するとしている。

Cl 濃度が海水(547 mM)よりも高い事例があり、油田かん水の例では、吹浦油田で 845 mM[29]、東新潟ガス田で 592mM[39]という報告がある。温泉水の事例では北海道の浦臼温泉で 959 mM[32]という報告がある。海水よりも塩濃度が高い地下水の形成機構としては、国外の事例[72-74]では、海水の蒸発や凍結による濃縮、岩塩の溶解などが成因として挙げられており、国内の高 Cl 塩水については蒸発や比重の違いによる分離、粘土鉱物との相互作用等の可能性が挙げられているが[39]、そのメカニズムは明らかになっていない。

水の同位体比については海水を起源とすることから、淡水より高く海水に近い δD 、 $\delta^{18}\text{O}$ 値を持つが、変質により海水とは異なる値となっている。秋田、山形地域のガス田の事例では、とくに $\delta^{18}\text{O}$ の値に大きな幅があり、 δD が +1 ~ -10 ‰ に対して $\delta^{18}\text{O}$ は +2.5 ~ -3.6 ‰ の幅を示している。 $\delta^{18}\text{O}$ が小さくなる理由として、粘土鉱物や沸石の生成、有機物との同位体交換で重い同位体が固定されることで水の同位体比が軽くなる可能性が指摘されている。また、水の $\delta^{18}\text{O}$ が重くなる原因として、地熱の影響や炭酸塩鉱物との同位体交換、粘土鉱物の相転換時の脱水の影響が挙げられている[29]。油田かん水の、水の安定同位体シフトについては、別の研究においても粘土鉱物の影響が指摘されており、スメクタイト生成に重い酸素原子が利用されることで間隙水の $\delta^{18}\text{O}$ がマイナス側にシフトし、一方で、続成作用によりスメクタイトがイライト化する場合、スメクタイトの脱水に伴って重い酸素同位体が放出されることで、 $\delta^{18}\text{O}$ がプラス側にシフトするとされている[70]。

He 同位体比についても大気に比べて高い場合も低い場合もある。化石海水・油田かん水は地殻由来の ^4He の供給を受けながら長期間滞留していると考えられるため、 He 同位体比は低い値を示すと考えられるが、東北地方日本海側の油田かん水では He 同位体比が高いものが見られる（例えば、[75-78]）。東北地方日本海側で得られた油田かん水は火山フロント近くや背弧側で採取されたものであることから、マグマの影響を受けている可能性[79]や、新第三紀の同地域の形成に係る火山活動に由来する高い同位体比を持つ He が岩石等に残留し、それが影響している可能性も指摘されているが[77]、その起源は必ずしも明らかになっていない。そのほかの溶存ガスについては、 CH_4 が 90 % 以上などの高い割合で含まれ、少ない割合で N_2 や CO_2 が含まれている事例が多い。早稲田・岩野[80]、加藤ほか[81]は、片貝ガス田、日南ガス田で得られるガスに CO_2 がそれぞれ 10 % 弱、30 % 弱含まれているものがあることを示し、その CO_2 の $\delta^{13}\text{C}$ が -4 ‰ 前後であり、マントル起源 CO_2 の持つ値 (-9 ~ -4 ‰ ; [82]) と同程度であることから、マントル由来の CO_2 が含まれている可能性を指摘している。一方で、別の研究で同地域の He 同位体比が計測されており、片貝ガス

田では大気より明らかに高い He 同位体比 (3.9 ~ 7.2) を示している[76, 77]。一方、日南ガス田の He 同位体比は大気よりも低い値 (0.21) を示している[83]。

馬原ほかは化石海水の判定法として、地下水の滞留時間を測定する地下水年代測定法の適用を提案している[27]。国内での化石海水・油田かん水の年代測定事例としては、例えば、馬原ほか[27]、長谷川ほか[28]、Mahara ほか[84]、Nakata ほか[35]がある。これらのうち、長谷川ほか[28]では三浦半島西岸の深度 300 m ~ 400 m 程度の葉山層群の地下水で 700 万年程度の値を得ている。Mahara ほか[84]では、千葉県茂原地域の水溶性ガス田の深度 640 ~ 1900 m の間隙水に対して地下水年代測定を行い、9 万 ~ 85 万年という値を得ている。また、Nakata ほか[35]は、北海道幌延町に掘削されたボーリング孔の声間層、稚内層において得られた間隙水の ^4He 、 ^{36}Cl のデータと隆起侵食、圧密などの地質学的条件と合わせて検討した結果、稚内層の間隙水は 100 万 ~ 130 万年程度の滞留時間を持つとした。

2.2.3 深部流体の水質等特徴の整理

これまで事例を挙げたスラブ起源水、化石海水それぞれの特徴について整理した結果を Table 2 に示す。整理にあたっては、比較的多くの研究で測定されている項目である、溶存元素組成、水の安定同位体比、 He 同位体比、溶存ガス組成を用いた。

Table 2 Comparison of the chemical features of slab-derived fluid and fossil seawater, oil-field brine based on literatures

| 判別指標 | スラブ起源水 | 化石海水・油田かん水 |
|------------------|---|---|
| 溶存元素組成 | <ul style="list-style-type: none"> ・有馬温泉、鹿塩温泉の起源水の Cl 濃度は海水より高いが、プレート深度の浅い地域では、同程度から低い場合がある。 ・Li/Cl が重量比で 0.001 以上を示す。 ・Br/Cl が海水より低い。 | <ul style="list-style-type: none"> ・Mg/Cl が海水より低い。 ・Br/Cl、I/Cl、Sr/Cl が海水より高い。油田かん水については NH_4 が海水より高い。 ・SO_4 が欠乏していることが多い。 ・Li/Cl は、0.001 以上を示す場合がある。 |
| 水の安定同位体比 | <ul style="list-style-type: none"> ・海水と比較して δD が低く、$\delta^{18}\text{O}$ が大きい、いわゆる熱水側へのシフトを示す。 | <ul style="list-style-type: none"> ・海水と比較して、δD が同程度からやや低い、$\delta^{18}\text{O}$ は大きい場合も小さい場合もある。 |
| He 同位体比 | <ul style="list-style-type: none"> ・大気と比較して高いが、プレート深度の浅い地域では、He 同位体比が低い場合がある。 | <ul style="list-style-type: none"> ・大気と比較して高い場合も低い場合もある。 |
| 溶存ガス組成 | <ul style="list-style-type: none"> ・CO_2 が主成分の場合が多い。 | <ul style="list-style-type: none"> ・CH_4 が主成分。 |

※火成活動の影響を受けた熱水はスラブ起源水と区別がつかない場合がある。

2.3 深部流体の分類の整理

これまで調査した事例を基に、形成機構と起源の判定事例を考慮した深部流体の分類の概念図を Fig. 2 に示す。浅い地下水は、天水由来の淡水が主であり、海洋の沿岸地域においては現海水の塩水くさびが見られることが一般に知られている。その下位には化石海水が滞留していると考えられる。さらに地殻の深部に向かって、水は熱水や超臨界水、鉱物の結晶水として存在すると考えられ、また、スラブからの脱水流体が上昇・混合すると考えられる。

マントルに沈み込んでいく海洋プレートが地殻やマントルウェッジと相互作用することにより脱水・生成する地下水をスラブ起源水とする。ただし、スラブ起源水は一般的な化学的性質を持つものではない。沈み込み初期には、スラブの間隙水や粘土の脱水などの流体が生成し、その後、高

温・高圧下で、鉱物の脱水や変質に伴う流体が形成される。マグマに含まれる水やマグマと地下水との相互作用により生成するマグマ起源水は、地殻流体や火山性熱水が相当するものとする。また、地殻流体や、鉱化流体が地下に貯留されている事例については、マグマ起源水に分類する。また、火山近傍に見られる火山活動に伴う熱水はマグマ起源水の一つであるが、多様な水質を持つことから別途、火山性熱水と呼ぶ。

化石海水は、これまで多くの文献で述べられている通り、長期間地層中で滞留するうちに続成作用を受けて変質した海水とする。油田かん水については、化石海水と同様の変質した海水であり油・ガス田に付随する状態にあるものを指すことから、本報告では油田かん水も化石海水の一種とし、状況に応じて適宜使い分ける。以降の本稿では Fig. 2 の分類に従う。

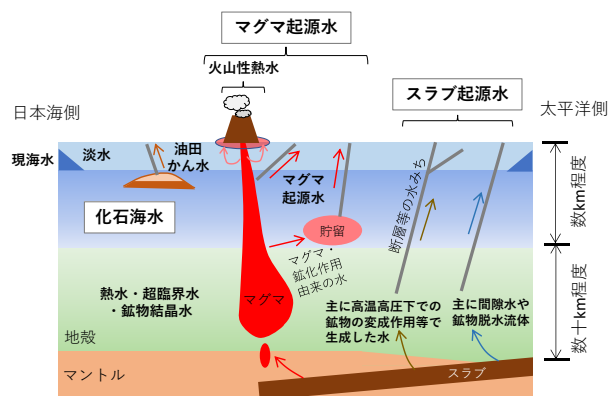


Fig. 2 Terminology of deep-seated fluids in this study

3 溶存物質を基にした深部流体の判定方法の検討

これまで各深部流体の形成機構や水質の特徴、さまざまな地域の研究事例についてのまとめを行った。地層処分サイトの調査・評価においては、深部流体の種類の判別や、影響領域についての検討をする必要がある。そのため、各深部流体を判別できる指標を見出し、個別の地域の地下に存在する起源水の特定や、起源水に混合する他の地下水の起源・組成やその混合率などの状況を把握することが必要となる。そこで、本節では、Table 2 にまとめた各深部流体を溶存物質から見分ける指標の適用性を、種々の溶存物質データを用いて検討した。

3.1 採水調査とデータ

文献から溶存物質データを収集したほか、著者らは温泉水等の採水・分析を行った[85-87]。文献データ並びに採水データが得られた地域の概略位置を Fig. 3 に示す。図中の化石海水とスラブ起源水、マグマ起源水の分類は各地域で行われた既往研究事例の判定を Fig. 2 に基づいて分類したものである。

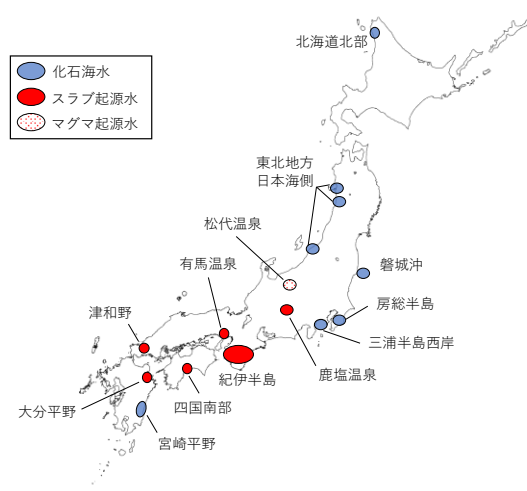


Fig. 3 Study area

著者らによる採水・分析結果ならびに文献情報に基づく溶存物質のデータについて希ガス組成を Table 3, 溶存元素・水の安定同位体比を Table 4, 炭化水素ガス等の組成を Table 5 に示す。文献より得たデータは引用文献を示し、著者らによる[85-87]で得られたデータは本研究と表記した。

Table 3 Noble gas composition of deep-seated fluids

| 採取地域 | 既往研究に基づく水質分類 | 試料形態 | He同位体比 (R/Ra) | $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ | 文献 |
|----------|--------------|-------|---------------|------------------------------|-------|
| 北海道北部 | 化石海水 | water | 0.1 | 122 | [35]* |
| 東北地方日本海側 | 化石海水 | gas | 1.6 | 0.5 | |
| 東北地方日本海側 | 化石海水 | gas | 8.1 | 114 | 本研究 |
| 東北地方日本海側 | 化石海水 | gas | 2.1 | 1.3 | |
| 磐城沖 | 化石海水 | gas | 0.5 | 1090 | [77] |
| 房総半島 | 化石海水 | gas | 0.2 | 50 | |
| 房総半島 | 化石海水 | gas | 0.3 | 14 | [88] |
| 房総半島 | 化石海水 | gas | 0.2 | 4.8 | |
| 房総半島 | 化石海水 | gas | 0.2 | 4.2 | |
| 三浦半島西岸 | 化石海水 | gas | 0.1 | 200 | [28]* |
| 宮崎平野 | 化石海水 | gas | 0.3 | 324 | |
| 宮崎平野 | 化石海水 | gas | 0.8 | 781 | |
| 宮崎平野 | 化石海水 | gas | 0.3 | 637 | [83] |
| 宮崎平野 | 化石海水 | gas | 0.2 | 308 | |
| 宮崎平野 | 化石海水 | gas | 0.1 | 709 | |
| 宮崎平野 | 化石海水 | gas | 0.3 | 158 | |
| 松代温泉 | マグマ起源水 | gas | 4.6 | 29 | [75] |
| 鹿塩温泉 | スラブ起源水 | water | 1.4 | 26 | |
| 紀伊半島北部 | スラブ起源水 | water | 1.5 | 0.9 | |
| 紀伊半島北部 | スラブ起源水 | water | 4.9 | 3.6 | |
| 紀伊半島中南部 | スラブ起源水 | water | 2.1 | 0.6 | |
| 紀伊半島中南部 | スラブ起源水 | water | 3.5 | 2.3 | 本研究 |
| 紀伊半島中南部 | スラブ起源水 | water | 1.9 | 1.7 | |
| 紀伊半島中南部 | スラブ起源水 | water | 3.0 | 596 | |
| 紀伊半島中南部 | スラブ起源水 | water | 5.2 | 1.9 | |
| 有馬温泉 | スラブ起源水 | gas | 8.4 | 371 | |
| 有馬温泉 | スラブ起源水 | gas | 8.6 | 19 | |
| 津和野 | スラブ起源水 | gas | 4.4 | 1.9 | [15] |
| 四国南部 | スラブ起源水 | 不明 | 0.8 | 1990 | |
| 大分平野 | スラブ起源水 | 不明 | 4.7 | 348 | [14] |

*[28][35]は $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ ではなくTotal-He/Total-Ne.

地下水溶存物質に着目した深部流体の起源と影響領域の評価手法の検討

Table 4 Composition of chemicals and stable isotope ratio of water of deep-seated fluids

| 採取地域 | 既往研究による 水質分類 | Temp °C | pH | EC mS/m | アルカリ度 mM | Na mM | K mM | Mg mM | Ca mM | Cl mM | SO ₄ mM | Br mM | Sr mM | NH ₄ mM | B mM | Li mM | I μM | δD ‰ VSMOW | δ ¹⁸ O ‰ VSMOW | 文献 |
|-------------|-----------------|------------|-----|------------|-------------|----------|---------|----------|----------|----------|-----------------------|----------|----------|-----------------------|---------|----------|---------|------------------|---------------------------------|----------|
| 北海道北部 | 化石海水 | 16 | 6.9 | 1620 | 47.8 | 158.5 | 2.2 | 2.8 | 2.3 | 127.5 | <0.03 | 0.4 | 0.02 | 7.2 | 8.7 | 1.3 | 117.6 | -42.8 | -1.8 | 本研究と[89] |
| 北海道北部 | 化石海水 | 17 | 7.4 | 1320 | 45.0 | 129.4 | 2.4 | 2.0 | 1.8 | 93.1 | <0.03 | 0.3 | 0.01 | 7.2 | 9.2 | 1.3 | 88.8 | -51.1 | -2.9 | 本研究と[89] |
| 東北地方日本海側 | 化石海水 | 14 | 8.8 | 1490 | 1.7 | 166.6 | 2.1 | 0.02 | 24.8 | 207.6 | 0.8 | 0.6 | 0.1 | 1.4 | 1.2 | 0.2 | 383.8 | -12.7 | 1.7 | 本研究 |
| 東北地方日本海側 | 化石海水 | 21 | 6.9 | 2670 | 29.0 | 371.0 | 1.8 | 0.9 | 3.0 | 321.6 | 0.3 | 1.1 | 0.08 | 2.9 | 13.9 | 0.2 | 88.3 | -9.6 | -0.9 | 本研究 |
| 東北地方日本海側 | 化石海水 | 20 | 7.4 | 2310 | 50.5 | 329.3 | 1.3 | 0.2 | 0.5 | 277.9 | 0.03 | 0.7 | 0.07 | 2.4 | 6.5 | 0.01 | 129.2 | -10.1 | 1.5 | 本研究 |
| 松代温泉 | マグマ起源水 | 45 | 6.6 | 2610 | 35.2 | 190.7 | 12.7 | 12.4 | 26.2 | 236.7 | 2.2 | 0.2 | 0.2 | 0.02 | 27.5 | 1.1 | 68.0 | -48.2 | -1.4 | 本研究 |
| 松代温泉 | マグマ起源水 | 32 | 6.4 | 1939 | 35.2 | 139.0 | 11.5 | 7.3 | 25.1 | 171.7 | 1.9 | 0.1 | 0.1 | 0.01 | 18.3 | 0.9 | 47.0 | -60.6 | -5.2 | 本研究 |
| 松代温泉 | マグマ起源水 | 38 | 6.2 | 2320 | 37.2 | 157.1 | 13.2 | 11.0 | 31.3 | 211.4 | 1.9 | 0.2 | 0.2 | 0.01 | 22.1 | 1.0 | 63.8 | -57.4 | -4.2 | 本研究 |
| 松代温泉 | マグマ起源水 | 36 | 6.4 | 1710 | 28.3 | 96.9 | 6.0 | 11.9 | 31.0 | 149.8 | 3.0 | 0.1 | 0.1 | 0.03 | 15.2 | 0.5 | 45.2 | -62.7 | -5.9 | 本研究 |
| 鹿塩温泉 | スラブ起源水 | 7 | 8.0 | 1856 | 6.6 | 180.5 | 2.1 | 1.0 | 1.5 | 185.5 | <0.03 | 0.1 | 0.4 | 1.0 | 2.3 | 3.1 | 2.0 | -79.8 | -9.6 | 本研究 |
| 鹿塩温泉 | スラブ起源水 | 12 | 8.1 | 4870 | 1.3 | 559.4 | 4.7 | 2.9 | 15.6 | 615.6 | <0.03 | 0.5 | 2.0 | 1.7 | 5.1 | 10.6 | 5.4 | -55.1 | -2.7 | 本研究 |
| 鹿塩温泉 | スラブ起源水 | 13 | 7.7 | 3050 | 2.4 | 312.9 | 2.8 | 1.8 | 9.1 | 337.8 | 0.1 | 0.3 | 1.0 | 1.0 | 3.1 | 6.2 | 3.1 | -63.0 | -6.0 | 本研究 |
| 鹿塩温泉 | スラブ起源水 | 14 | 7.5 | 4020 | 2.8 | 449.0 | 4.9 | 3.3 | 7.4 | 475.5 | <0.03 | 0.4 | 1.4 | 2.8 | 5.4 | 9.0 | 4.9 | -62.9 | -5.2 | 本研究 |
| 紀伊半島北部 | スラブ起源水 | 31 | 7.5 | 4450 | 3.8 | 419.8 | 1.7 | 32.3 | 21.3 | 518.7 | 5.1 | 0.9 | 1.3 | 0.4 | 9.3 | 0.6 | 2.8 | -9.9 | 0.2 | 本研究 |
| 紀伊半島北部 | スラブ起源水 | 25 | 6.3 | 2430 | 54.5 | 52.4 | 0.5 | 55.9 | 71.9 | 255.1 | <0.05 | 0.3 | 0.2 | 0.1 | 9.6 | 0.1 | 2.0 | -49.6 | -5.6 | 本研究 |
| 紀伊半島北部 | スラブ起源水 | 29 | 6.7 | 849 | 4.0 | 42.8 | 0.3 | 9.7 | 15.8 | 83.6 | 1.1 | 0.2 | 0.07 | <0.01 | 0.1 | 0.01 | 0.5 | -50.1 | -7.2 | 本研究 |
| 紀伊半島北部 | スラブ起源水 | 26 | 8.3 | 224 | 12.7 | 21.8 | 0.1 | 0.1 | 0.3 | 9.5 | 0.1 | 0.0 | 0.01 | <0.01 | 0.6 | 0.1 | 0.9 | -50.5 | -7.9 | 本研究 |
| 紀伊半島北部 | スラブ起源水 | 28 | 7.4 | 2810 | 10.3 | 250.8 | 0.4 | 8.7 | 8.9 | 274.5 | 0.1 | 0.4 | 0.2 | 0.7 | 10.0 | 0.3 | 3.3 | -44.4 | -3.1 | 本研究 |
| 紀伊半島北部 | スラブ起源水 | 31 | 6.6 | 1519 | 62.1 | 125.1 | 4.2 | 4.1 | 6.7 | 96.8 | 0.01 | 0.2 | 0.1 | 1.5 | 8.5 | 4.0 | 0.5 | -61.9 | -7.9 | 本研究 |
| 紀伊半島北部 | スラブ起源水 | 20 | 9.8 | 34 | 2.4 | 3.2 | <0.01 | 0.001 | 0.0 | 0.2 | 0.2 | <0.0006 | 0.0001 | <0.01 | 0.4 | 0.02 | 0.05 | -55.7 | -8.4 | 本研究 |
| 紀伊半島北部 | スラブ起源水 | 25 | 6.7 | 1228 | 56.9 | 106.5 | 2.4 | 2.4 | 2.9 | 66.3 | 0.1 | 0.1 | 0.02 | 1.1 | 7.2 | 0.8 | 1.2 | -56.5 | -6.9 | 本研究 |
| 紀伊半島北部 | スラブ起源水 | 26 | 6.8 | 133 | 10.2 | 8.0 | 0.3 | 0.6 | 2.1 | 3.8 | 0.01 | 0.01 | 0.02 | 0.1 | 0.3 | 0.2 | 0.1 | -55.7 | -8.3 | 本研究 |
| 紀伊半島北部 | スラブ起源水 | 31 | 8.6 | 66 | 2.4 | 2.7 | 0.01 | 0.02 | 0.2 | 0.5 | 0.04 | 0.00 | 0.001 | <0.002 | 0.04 | 0.01 | 0.2 | -67.3 | -10.1 | 本研究 |
| 紀伊半島北部 | スラブ起源水 | 31 | 6.9 | 872 | 78.9 | 81.0 | 1.8 | 3.3 | 3.4 | 20.9 | 0.02 | 0.02 | 0.05 | 0.6 | 6.3 | 1.4 | 0.3 | -59.7 | -8.0 | 本研究 |
| 紀伊半島中南部 | スラブ起源水 | 29 | 9.4 | 92 | 0.7 | 6.2 | 0.03 | 0.0004 | 0.3 | 5.9 | 0.07 | 0.01 | 0.002 | 0.02 | 0.06 | 0.07 | 0.1 | -41.0 | -7.0 | 本研究 |
| 紀伊半島中南部 | スラブ起源水 | 79 | 6.9 | 214 | 13.4 | 17.8 | 0.6 | 0.07 | 0.6 | 5.8 | 0.2 | 0.01 | 0.01 | 0.2 | 0.3 | 0.3 | 0.2 | -45.1 | -7.2 | 本研究 |
| 紀伊半島中南部 | スラブ起源水 | 64 | 6.8 | 166 | 11.8 | 14.5 | 0.4 | 0.09 | 0.8 | 4.8 | 0.05 | 0.01 | 0.01 | 0.14 | 0.2 | 0.2 | 0.2 | -44.5 | -7.2 | 本研究 |
| 紀伊半島中南部 | スラブ起源水 | 56 | 8.8 | 35 | 2.3 | 2.9 | 0.03 | 0.01 | 0.1 | 0.2 | 0.1 | <0.0006 | 0.001 | <0.01 | 0.02 | 0.01 | <0.04 | -53.5 | -8.5 | 本研究 |
| 紀伊半島中南部 | スラブ起源水 | 60 | 7.0 | 177 | 14.9 | 16.5 | 0.28 | 0.06 | 0.4 | 2.9 | 0.02 | 0.00 | 0.006 | 0.10 | 0.4 | 0.3 | 0.1 | -50.3 | -8.0 | 本研究 |
| 紀伊半島中南部 | スラブ起源水 | 25 | 8.2 | 116 | 4.9 | 10.0 | 0.05 | 0.05 | 0.2 | 5.2 | 0.09 | 0.01 | 0.005 | 0.02 | 0.3 | 0.1 | 0.2 | -50.3 | -7.7 | 本研究 |
| 紀伊半島中南部 | スラブ起源水 | 21 | 9.1 | 41 | 2.9 | 3.6 | 0.01 | 0.01 | 0.1 | 0.2 | 0.3 | 0.00 | 0.002 | 0.003 | 0.1 | 0.02 | 0.01 | -44.4 | -6.9 | 本研究 |
| 紀伊半島中南部 | スラブ起源水 | 25 | 8.1 | 653 | 48.9 | 73.8 | 0.25 | 0.07 | 0.1 | 23.8 | <0.05 | 0.04 | 0.02 | 0.09 | 0.3 | 0.7 | 0.9 | -34.7 | -5.1 | 本研究 |
| 紀伊半島中南部 | スラブ起源水 | 26 | 6.7 | 587 | 76.2 | 60.7 | 0.50 | 3.5 | 3.9 | 0.2 | 0.01 | 0.0004 | 0.2 | 0.28 | 0.6 | 0.3 | 0.1 | -40.6 | -6.7 | 本研究 |
| 紀伊半島中南部 | スラブ起源水 | 45 | 7.8 | 268 | 1.1 | 13.1 | 0.11 | 0.17 | 4.6 | 19.9 | 0.63 | 0.03 | 0.03 | 0.02 | 0.1 | 0.2 | 1.2 | -45.6 | -7.4 | 本研究 |
| 有馬温泉 | スラブ起源水 | 94 | 6.5 | 5760 | 2.3 | 499.2 | 56.6 | 0.8 | 48.6 | 655.9 | <0.05 | 0.5 | 0.4 | 0.34 | 6.9 | 4.3 | 2.6 | -40.4 | 0.6 | 本研究 |
| 有馬温泉 | スラブ起源水 | 98 | 6.6 | 5520 | 1.7 | 429.5 | 48.5 | 0.8 | 40.6 | 563.4 | 0.23 | 0.4 | 0.3 | 0.30 | 6.2 | 3.8 | 2.1 | -41.7 | -0.4 | 本研究 |
| 津和野 | スラブ起源水 | 9 | 6.6 | 2870 | 58.4 | 290.1 | 5.6 | 9.7 | 11.6 | 278.7 | 0.98 | 0.4 | 0.3 | 0.12 | 6.2 | 3.0 | 7.9 | -41.5 | -4.4 | 本研究 |
| 有馬温泉（起源推定値） | スラブ起源水 | — | — | — | — | 913.4 | 94.6 | — | 77.3 | 1184.8 | — | 1.1 | 1.0 | — | — | 7.9 | — | -33.0 | 6.0 | [9] |
| 鹿塩温泉（起源推定値） | スラブ起源水 | — | — | — | 1.1* | 609.0 | 4.6 | 2.7 | 16.2 | 677.0 | 0.00 | 0.5 | — | — | — | 12.0 | — | -52.0 | -2.0 | [18] |
| 大分平野 | スラブ起源水 | 36 | 6.7 | — | 70.8* | 687.8 | 5.9 | 42.9 | 7.0 | 673.6 | nd | — | — | 21.2 | 25.7 | 4.8 | — | -22.2 | 2.7 | [19] |
| 宮崎平野 | 化石海水 | — | 8.1 | — | 26.1 | 89.6 | 0.3 | 0.1 | 0.3 | 62.1 | nd | — | — | — | 7.1 | 0.2 | — | -22.4 | -1.7 | [43] |
| 四国南部 | スラブ起源水 | 24 | 8.3 | — | 1.7* | 214.4 | 0.3 | 0.1 | 18.4 | 246.8 | nd | — | — | — | 9.4 | — | — | -34.0 | -0.7 | [14] |
| 房総半島 | 化石海水 | 28 | 7.9 | 4770 | 14.8 | 465.4 | 77.2 | 13.0 | 5.7 | 530.3 | 0.23 | 1.7 | — | — | 1.1 | — | 1032 | -0.4 | -1.9 | [90] |
| 海水 | — | — | — | — | 2* | 470.0 | 10 | 53 | 10.0 | 547.0 | 28.0 | 0.8 | 0.09 | — | 0.42 | 0.03 | 0.4 | — | — | [44] |

*引用元ではHCO₃表記であったものをアルカリ度とした。

Table 5 Concentrations of gases associated with deep-seated fluids

| 採取地域 | 既往研究による 水質分類 | N ₂ vol% | CO ₂ vol% | CH ₄ vol% | C ₂ H ₆ vol% | C ₃ H ₈ vol% | i-C ₄ H ₁₀ vol% | n-C ₄ H ₁₀ vol% | i-C ₅ H ₁₂ vol% | n-C ₅ H ₁₂ vol% | n-C ₆ H ₁₄ vol% | CH ₄ /CO ₂ — | 文献 |
|----------|-----------------|------------------------|-------------------------|-------------------------|---------------------------------------|---------------------------------------|--|--|--|--|--|---------------------------------------|------|
| 東北地方日本海側 | 化石海水 | 1.5 | 0.29 | 83.2 | 9.2 | 3.81 | 0.56 | 0.91 | 0.24 | 0.26 | 0.04 | 287 | 本研究 |
| 東北地方日本海側 | 化石海水 | 0.1 | 0.70 | 86.7 | 7.3 | 2.86 | 0.61 | 0.92 | 0.36 | 0.35 | 0.05 | 123 | 本研究 |
| 東北地方日本海側 | 化石海水 | 2.6 | 2.76 | 72.2 | 11.3 | 6.91 | 1.09 | 1.95 | 0.57 | 0.57 | 0.07 | 26 | 本研究 |
| 宮崎平野 | 化石海水 | 2.0 | 34.08 | 63.7 | 0.140 | 0.004 | — | — | — | — | — | 1.9 | [81] |
| 宮崎平野 | 化石海水 | 0.0 | 0.82 | 99.1 | 0.020 | 0.005 | 0.001 | — | — | — | — | 120 | [81] |
| 宮崎平野 | 化石海水 | 2.1 | 1.19 | 96.7 | 0.021 | — | — | — | — | — | — | 81 | [43] |
| 松代温泉 | マグマ起源水 | 6.9 | 93.00 | 0.1 | — | — | — | — | — | — | — | 0.001 | 本研究 |
| 松代温泉 | マグマ起源水 | 4.6 | 95.39 | 0.004 | — | — | — | — | — | — | — | 0.000 | 本研究 |
| 鹿塩温泉 | スラブ起源水 | 32.4 | 0.03 | 67.6 | 0.023 | — | — | — | — | — | — | 2288 | 本研究 |
| 鹿塩温泉 | スラブ起源水 | 54.8 | 0.37 | 44.8 | 0.018 | — | — | — | — | — | — | 122 | 本研究 |
| 紀伊半島北部 | スラブ起源水 | 1.4 | 97.86 | 0.8 | 0.001 | — | — | — | — | — | — | 0.008 | 本研究 |
| 紀伊半島北部 | スラブ起源水 | 4.1 | 89.15 | 6.7 | 0.001 | — | — | — | — | — | — | 0.075 | 本研究 |
| 紀伊半島中南部 | スラブ起源水 | 45.0 | 1.45 | 53.5 | 0.01 | — | — | — | — | — | — | 37 | 本研究 |
| 有馬温泉 | スラブ起源水 | 0.4 | 99.48 | 0.1 | — | — | — | — | — | — | — | 0.001 | 本研究 |
| 有馬温泉 | スラブ起源水 | 2.6 | 97.24 | 0.2 | — | — | — | — | — | — | — | 0.002 | 本研究 |
| 津和野 | スラブ起源水 | 0.7 | 99.19 | 0.1 | — | — | — | — | — | — | — | 0.001 | 本研究 |
| 四国南部 | スラブ起源水 | 25.1 | 0.01 | 74.9 | — | — | — | — | — | — | — | 7470 | [14] |
| 大分平野 | スラブ起源水 | 1.7 | 97.00 | 1.3 | — | — | — | — | — | — | — | 0.013 | [14] |

※分析値に酸素が含まれている場合は採取時の大気との混入とみなし、酸素濃度から標準大気組成（JIS W 0201）を基にN₂、CO₂、CH₄の大気混合分を差し引きする補正を行った。

著者らによる採水・分析は以下の手順で行った。水試料は市販のプラスチック製の容器に採取した。採取から分析までの間に沈殿が発生するなどして濃度が変化する可能性のある微量元素については、Nalgen製のボトルに採取し、分析前にボトルに電子工業用硝酸(1.42)(富士フィルム和光純薬製)を1%となるように加えて、実験室に持ち帰るまでに生成した沈殿を溶解してから分析に供した。希ガス試料は試料水やガスを銅管に導入して銅製クランプで銅管をかしめて封入した。炭化水素ガスや二酸化炭素ガスの試料は水上置換法でガラスバイアル瓶に採取し、ブチルゴム製のセプタムラバーをアルミシールでかしめて封入した。分析は、Na, K, Ca, Mg, Cl, SO₄, Fについてはイオンクロマトグラフ法、アルカリ度はpH4.8滴定法、NH₄濃度についてはインドフェノール青法によった。その他の元素についてはICP-MS法で実施した。いずれの分析もJISK0101に準じた方法で実施した。

水の安定同位体比と希ガスはそれぞれ(株)地球科学研究所に委託して分析した。水の安定同位体比はLos Gatos Research社製のLWIA DLT-100による近赤外線半導体レーザーを用いたキャビティリングダウン吸収分光法で $\delta^{18}\text{O}$ については $\pm 0.1\%$ 、 δD については $\pm 1\%$ の精度で実施した。希ガスの分析においてはSRS社製Model RGA300四重極型質量分析計でNe同位体比を測定し、He同位体比および ^4He はMAP社製Model 215-50扇形磁場型質量分析計で分析した。分析精度はHe, Ne濃度については $\pm 1\%$ 、He同位体比については $\pm 2\%$ である。O₂, CO₂, N₂, 炭化水素ガスの組成と同位体比は石油資源開発(株)に委託し、FID, TCD検出装置を備えたAgilent社製GC7890Aガスクロマトグラフにより分析した。水温, pH, 電気伝導度(EC)は、現場にてプラスチック製のピーカーに温泉水等を注ぎ、ポータブル式のpH・ECメーターを用いて測定をした。水温, pH, ECは5~10分程度電極を浸しておおむね安定した値を記録した。

3.2 判別指標の適用性検討

これまで多くの研究で取り上げられている項目を中心に、ヘリウム同位体比、水の安定同位体比、溶存元素組成、炭化水素ガスとCO₂ガスそれぞれについて、判別指標としての適用性を検討する。

3.2.1 He同位体比

マントル中のHe同位体比は大気の8倍程度高い値を持つといわれている[91]。火成活動が活発な地域のガスや地下水にはマントル由来のHeが含まれ、He同位体比が高いことが知られている。マントルウェッジとの相互作用で生成するスラブ起源水はHe同位体比が高いと考えられ、そのことを利用して地下水に対するスラブ起源水混合の判定に用いられている。

今回収集したTable 3のデータを起源の分類ごとに分けてプロットしたもの(Fig. 4(a))と、地域ごとに分けてプロットしたもの(Fig. 4(b))を示す。図中のエンドメンバーは大気、マントル起源、地殻起源のHe同位体比と ^4He , ^{20}Ne の濃度比である[91]。スラブ起源水・マグマ起源水が混合していると分類されている地点のほとんどは大気より

高いHe同位体比を示し、化石海水はおおむね低いHe同位体比を示している。東北地方日本海側で得られた化石海水については、既往の研究[75-78]の通り、大気よりも高いHe同位体比を示している。そもそもHe同位体比を基にスラブ起源水混合の判断がなされる場合が多いことから、Fig. 4は当然の結果ではあるが、このように高いHe同位体比はマントル起源物質の有無を判定する上で有用であり、スラブ起源水の混合の判定には必須と言える。

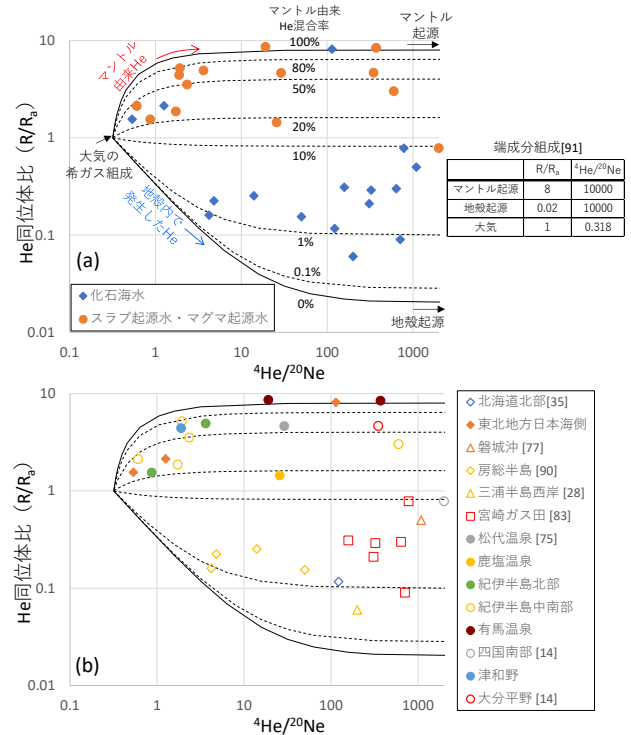


Fig. 4 R/Ra versus $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$

He同位体比からマントル起源物質の混合を判断する際の厳密な閾値はなく、基本的に大気の数より高いか否かが目安となっている。ただし、He同位体比はマントル起源物質の混合だけではなく、降水起源の地下水にしばしば含まれる ^3H が放射壊変で ^3He を生成することから、He同位体比が大気よりも高い値を示すことがある(例えば[92])。He同位体比は、マントル由来成分の混合を直接的に検出することからスラブ起源水の混合を判断する目安としてきわめて有用と考えられるが、スラブ起源水の混合以外の理由でも高い値を示す場合があることに留意する必要がある。

3.2.2 水の安定同位体比

水の酸素同位体比(δD)と酸素同位体比($\delta^{18}\text{O}$)は、地下水の起源推定にしばしば用いられる。天水の示す範囲や、化石海水、スラブ起源水と考えられる水が示す値などについて多くの事例が報告されており、水質の起源の分類でしばしば用いられる。今回収集したTable 3のデータを起源の分類ごとに分けてプロットしたもの(Fig. 5(a))と、地域ごとに分けてプロットしたもの(Fig. 5(b))を示す。

Fig. 5上の点線は日本海側と太平洋側の天水線である[93]。また天水線の間に示した水色の枠はMizota and Kusakabe[94]で示されている δD の最大値と最小値を早稲田・中井[93]で示されている天水線で囲んだものであり、こ

れを日本国内の天水の領域とした。ほかに東北地方日本海側の化石海水[36, 39]がプロットされる概略的な位置を化石海水の示す領域とし、有馬温泉、鹿塩温泉でスラブ起源水の起源水と推定される水[9, 18]がプロットされる概略的な位置をスラブ起源水の示す領域とした。また、図にプロットした δD 、 δO のほかに、同じ地点で He 同位体比が測定されているものについては、その値を $R/R_a=1$ を閾値として分けて示している。

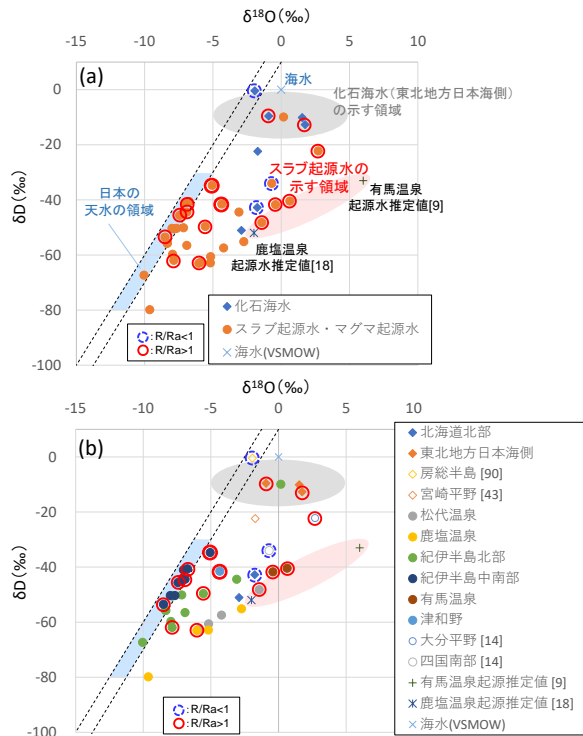


Fig. 5 Stable isotope ratio of water

化石海水とされる水は主に化石海水の領域にプロットされ、スラブ起源水・マグマ起源水とされる水は有馬温泉、鹿塩温泉の起源水付近から天水との間にプロットされる。水の安定同位体比を用いることで、起源を推定することが可能である。ただし、必ずしもその感度は高くないと考えられる。例えば、紀伊半島の中南部では、天水より高い濃度の Cl を含む高温の温泉水が湧出している (Table 2), He 同位体比が 1 を超えるものがあり (Fig. 4), スラブ起源水が混合していると考えられている [13, 48]。しかしながら本図上では、そのほとんどが日本の天水の領域にプロットされ、スラブ起源水かどうかの判別はできない。水の安定同位体比は水質の起源や混合状態を把握できる優れた指標ではあるが、他の水質指標と合わせて起源を評価することが必要である。

3.2.3 溶存元素組成

深部流体は共通して Cl 濃度が高い特徴をもつ。湧水やボーリング孔からの採水で得られた水の Cl 濃度がその周囲の地表水よりも高い場合は、深部流体が混合している可能性が高いと考えられる。また、Cl は一般に沈殿や収着、イオン交換反応を起こしづらい元素であることから、各元素濃度と Cl 濃度との比較により深部流体の特徴を捉えることができると考えられる。そこで、一般に水質測定で分析

対象となる主要溶存成分である Na, K, Mg, Ca, SO_4 濃度、溶存無機炭素濃度 (ここではアルカリ度とする)、ならびに、深部流体評価で用いられている微量成分である Li, B, NH_4 , Sr, Br, I と Cl 濃度との比較を行った。また、既往研究において、深部流体の判別・混合評価に有効であるといわれている Br/Cl と I/Cl を用いた検討を行った。

(1) 主要元素組成

Na, K, Mg, Ca, SO_4 濃度、アルカリ度と Cl 濃度との関係を Fig. 6 に示す。深部流体の評価は海水組成との比較がなされることが多いことから、海水の組成 [44] も図中に示す。Fig. 6 各図の原点と海水を結ぶ破線は、天水と海水の混合線を表す。Fig. 6 の左列は既往研究に基づく分類でスラブ起源水・マグマ起源水と化石海水を分けてプロットしたもので、右列は同じグラフを地域別に分けて示している。

Na 濃度はスラブ起源水・マグマ起源水、化石海水共に、ほとんどの点が天水と海水の混合線あるいはその延長線付近にプロットされる。Na 濃度と Cl 濃度の関係からは、スラブ起源水と化石海水の判別はできないものと考えられる。K, Mg, Ca 濃度、アルカリ度および SO_4 濃度については、Na と異なり必ずしも海水との混合線上にプロットされないが、スラブ起源水・マグマ起源水と化石海水との区別はできていない。主要元素組成と Cl 濃度との比較からは深部流体の種別を見分けることはできないと考えられる。

Mg 濃度と SO_4 濃度は、化石海水が海水よりも低い値を示す場合が多いといわれていることから、Table 2 に化石海水の特徴を表すものとして挙げたが、スラブ起源水も海水よりも低い値を示すものが多いことから、Mg と SO_4 濃度は海水と深部流体の判別の目安となると考えられるが、スラブ起源水・マグマ起源水と化石海水との判別には利用できないと考えられる。

K, Mg, Ca 濃度およびアルカリ度のプロットにおいて、個別の地域ごとに見ると、同じ地域内では互いに近い値を示す場合や、直線関係が見られるものがある。同一地域内での鉱物の溶解・沈殿や地下水混合などの水質形成プロセスを反映しているものと考えられる。このことは、K, Mg, Ca 濃度およびアルカリ度を利用して、影響領域を推定できる可能性を示唆する。

(2) 微量元素組成

Li, B, NH_4 , Sr と Cl との関係を Fig. 7 に示す。Fig. 7 各図の原点と海水を結ぶ破線は、天水と海水の混合線を表す。Fig. 7 の左列は既往研究に基づく分類でスラブ起源水・マグマ起源水と化石海水を分けてプロットしたもので、右列は地域別に分けて示している。

Li, B は熱水変質などの影響を受けて岩石から溶出し、熱水が冷却されたのちも沈殿等で除去されずに溶存することが知られている。Sr と NH_4 は化石海水において海水に比して高い値を示すとされているが、スラブ起源水についての比較事例はない。

Li/Cl は重量濃度比で 0.001 (モル濃度比で 0.005) を閾値としてスラブ起源水の混合を識別する目安とされている [22]。図中に Li/Cl のモル濃度比 0.005 の閾値を示す。スラブ起源水の多くとマグマ起源水は閾値よりも高い値を示すものが多く、化石海水は一部を除いて低い値を示す。Li/Cl

は起源判別の目安となるが、必ずしも明瞭に分けうるものではない。本図において閾値を超えている化石海水は北海道北部の地点で、日本原子力研究開発機構の幌延深地層研究センターの研究坑道で得られた地下水である。本地点のLiの起源については明らかではないが、当該地域の化石海水は本研究で試料を得た地表から200~300 m程度よりも深

い、1000 mを超える地下から上昇してきたという報告[95]がある。仮に、地下深部で地下水やその周囲の岩石が熱の影響を受けているならば、高温環境下でLiが岩石から溶出し、冷えた後も残留している可能性が考えられる。このような地域での起源水の判断は、地史や水質形成機構を考慮した検討が必要であると考えられる。

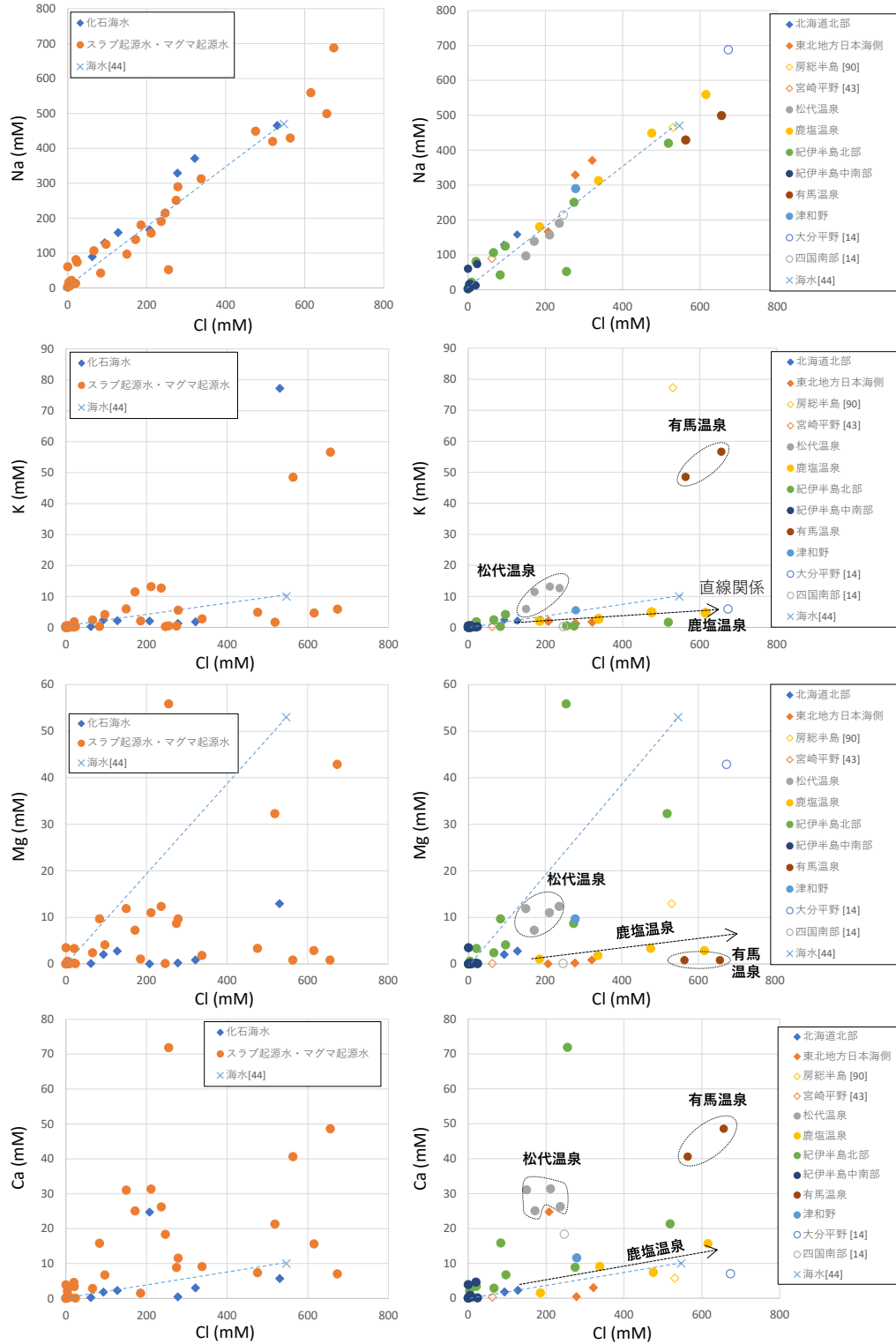


Fig. 6 Relationship between Cl and major ions

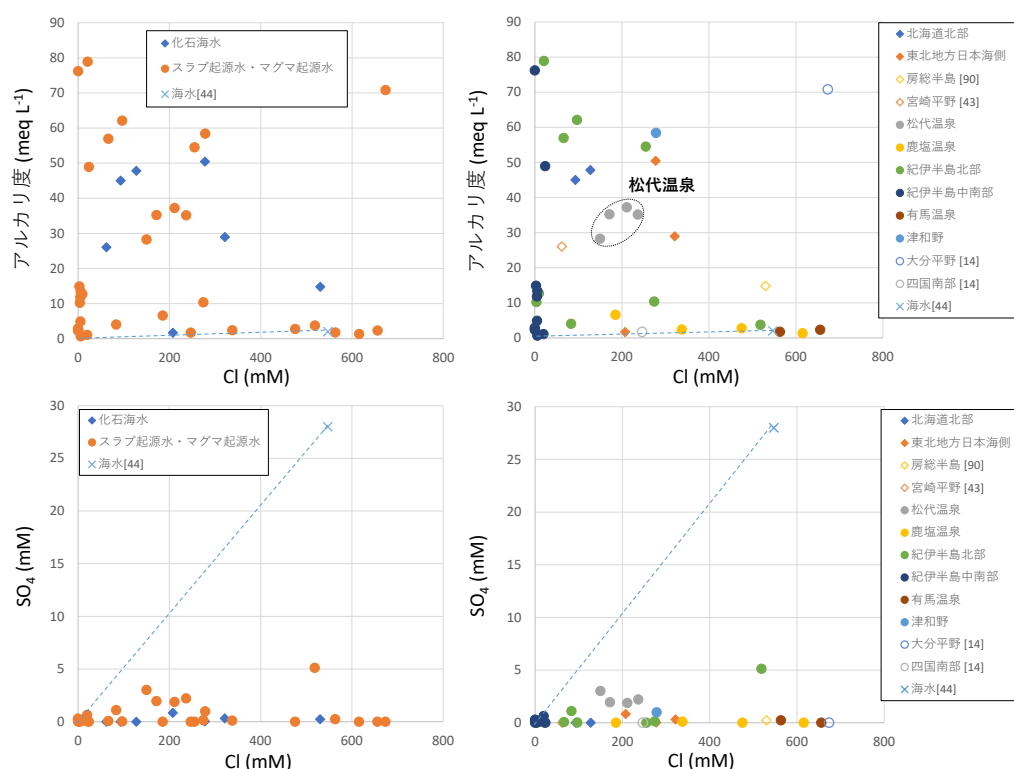


Fig. 6 Relationship between Cl and major ions (continued)

スラブ起源水と判定される地下水のうち、 Li/Cl が閾値より低い3点は紀伊半島北部の地下水である。本稿では詳細な位置を図示していないが、これらは比較的海岸に近い温泉から得られたものであり、海水の混合率が大きく Li/Cl が低い値となったものと考えられる。地域別にみると、松代温泉、鹿塩温泉で得られた水は直線状にプロットされ、有馬温泉の水は互いに近い位置にプロットされている。主要溶存元素の一部と同様に、影響領域の範囲を評価するのに利用可能と考えられる。

BはLiと同様に熱履歴を受けた地下水の判別に利用できると期待されるが[54]、起源別に整理することはできない。一方で、地域別にみるとそれぞれ直線関係や互いに近い位置にプロットされており、影響領域の範囲を評価するのに利用可能と考えられる。

Sr濃度は、化石海水では海水と淡水の混合線やか、やや高い位置にプロットされている一方で、スラブ起源水とされる水のほとんどが化石海水よりも高い。Sr濃度は化石海水とスラブ起源水の判別に利用できる可能性がある。ただし、Srは2価の陽イオンとして溶存し、CaやMgなどと同様に、粘土との陽イオン交換や、炭酸塩の生成などを起こし、水質形成の影響を強く受けると考えられる元素である。CaやMgはFig. 6に示した通り、スラブ起源水と化石海水の判別はできていない。Srの判別指標としての適用性を明らかにするためには、SrがCaやMgとは異なる挙動を示すメカニズムの解明が必要と考えられる。また、Sr濃度も地域別にみるとそれぞれ直線関係や互いに近い位置にプロットされる場合があり、影響領域の範囲を評価するのに利用可能と考えられる。

NH_4 濃度は、化石海水とスラブ起源水・マグマ起源水を

比較すると化石海水が全体にやや高い値を示している。 NH_4 濃度は化石海水とスラブ起源水の判別に利用できる可能性がある。地下水中の NH_4 の起源は一般に地層中に含まれる有機物の分解とされ、N化学種の中でも酸化還元電位が低い場合に優勢種となる。深層の堆積岩中で長い滞留時間をもつ化石海水は NH_4 濃度が高くなるものと考えられる。スラブ起源水の NH_4 濃度について詳細に検討した事例はなく、今後の検討が必要である。

Brは、化石海水が海水やスラブ起源水と比べて高い濃度を持つ。スラブ起源水・マグマ起源水は海水と同程度から低い値を示している。またIは図では判別しがたいが、海水と比べてスラブ起源水・マグマ起源水も化石海水も高い濃度を持っている。BrやIは堆積物中の有機物に濃縮されている場合があり、有機物の分解に伴って地下水に溶け込むため、地下水中のBr、I濃度が高くなるといわれている。産業技術総合研究所[23]は、マントルや火山ガス凝集水、堆積物の間隙水、海水の Br/Cl 、 I/Cl がそれぞれ異なることを利用してSuminoほか[57]が流体包有物の起源に関して行った検討を参考に、東北日本で採取された地下水の起源解明とスラブ起源水の混合比率の算出を行った。その結果から、火山に近い地点で採取された地下水ほど、マントルや火山ガス凝集物に関連付けられる鉱物脱水流体の含まれる割合が大きいことを示した。そこで、本研究で得られた地下水や、既往の研究でスラブ起源水・マグマ起源水とされる地下水等を用いて Br/Cl - I/Cl 図上にプロットし、どの程度深部流体の分類ができるか検討を行った(Fig. 8)。図の端成分は産業技術総合研究所[23]、小林ほか[96]による。

化石海水・油田かん水は海底堆積物端の近くにプロットされる。またスラブ起源水・マグマ起源水は Br/Cl が海水

よりも低い領域にプロットされているものが多い。その一方で、紀伊半島北部・中南部のデータの一部分は Br/Cl の低い領域にプロットされるが、その多くは海水と海底堆積物の混合線付近にプロットされている。スラブ起源水・マグマ起源水と堆積岩中の I や Br の影響を受けた地下水が混合していると解釈できる。

Fig. 8 は混合線からはみ出すものもあり、必ずしも明瞭に分類できていないが、Br と I を用いて海底堆積物、海水、鉱物脱水流体の 3 成分で深部流体の分類と混合が説明できる可能性が示唆される。

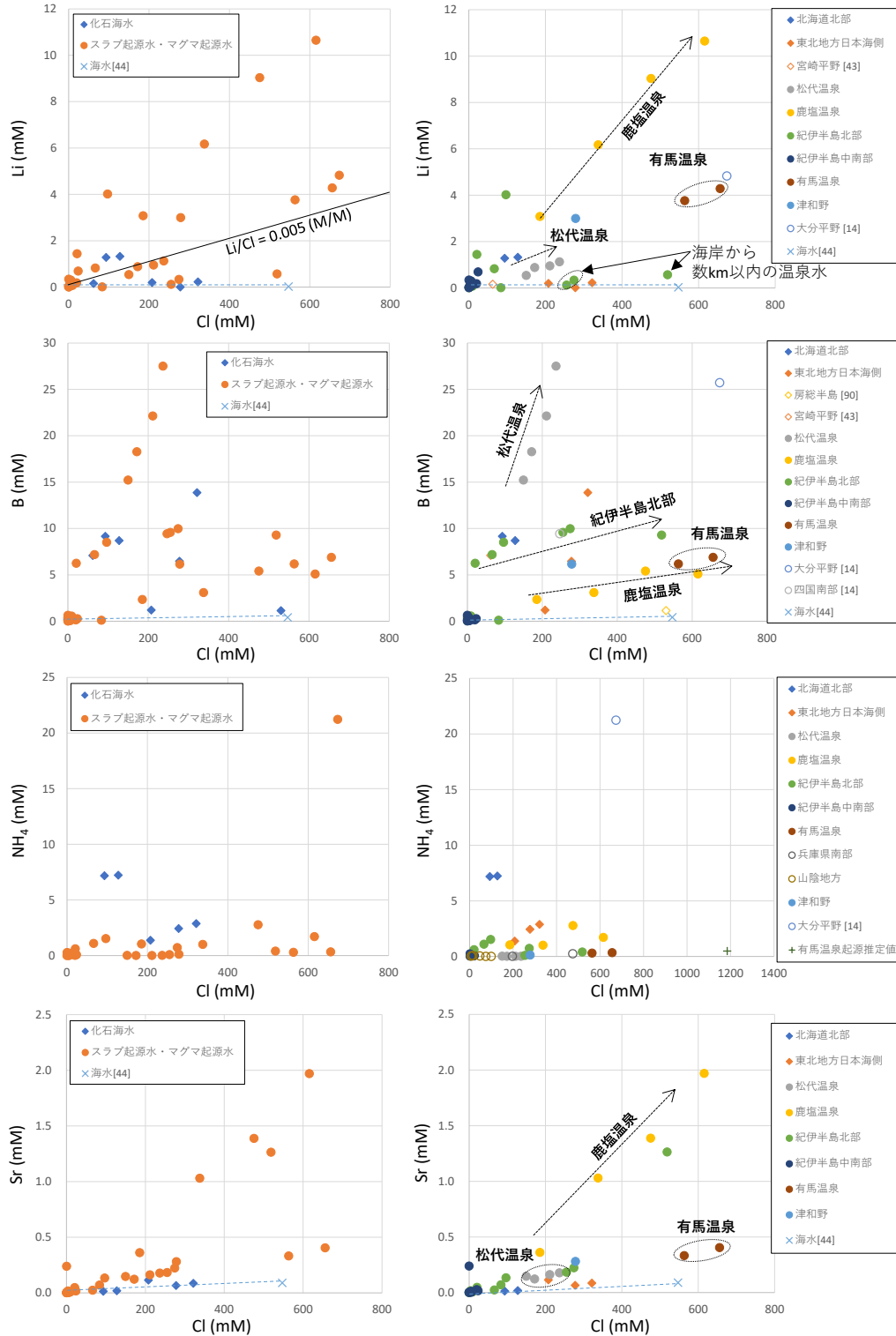


Fig. 7 Relationship between Cl and minor ions

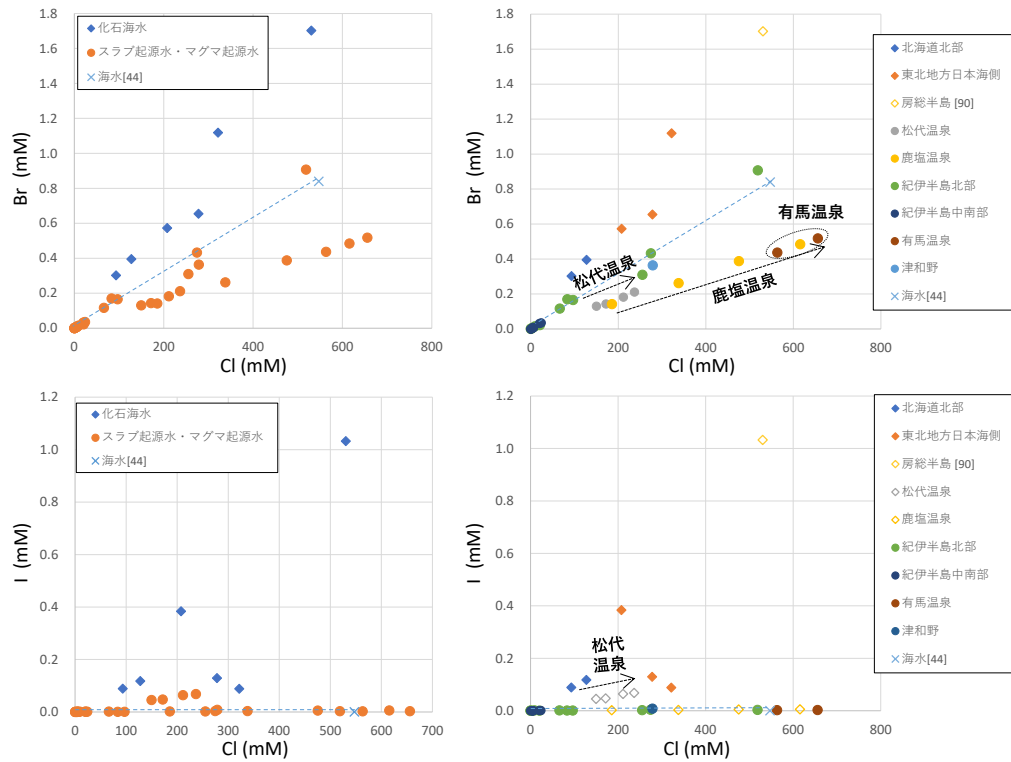
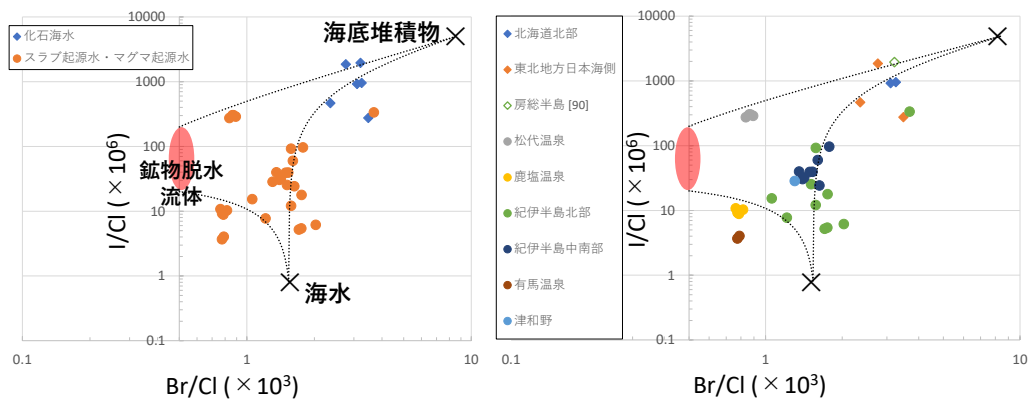


Fig. 7 Relationship between Cl and minor ions (continued)



| 端成分 | Br/Cl | I/Cl | 文献 |
|--------|-----------------------|---|------|
| 鉱物脱水流体 | 0.5×10^{-3} | $30 \times 10^{-6} \sim 110 \times 10^{-6}$ | [23] |
| 海底堆積物 | 8.4×10^{-3} | 4900×10^{-6} | [96] |
| 海水 | 1.54×10^{-3} | 0.84×10^{-6} | |

Fig. 8 Relationship between Br/Cl and I/Cl

3.2.4 炭化水素ガス

スラブ起源水・マグマ起源水に含まれる溶存ガスは CH_4 に比べて CO_2 が多く、化石海水・油田かん水は CH_4 が主であると言われている。 CH_4/CO_2 を Fig. 9 に示す。

化石海水とされるものは CH_4 が優勢である。マグマ起源水である松代温泉は CO_2 が優勢である。スラブ起源水では紀伊半島北部、有馬温泉、津和野において CO_2 が優勢であるが、鹿塩温泉、紀伊半島中南部、四国地方において化石海水並みの CH_4/CO_2 となっている。ここで、スラブ起源水で CH_4/CO_2 の高い鹿塩温泉、紀伊半島中南部、四国地方は Table 5 に示した通り、いずれもほかの地域に比べて N_2 ガス濃度が高い。一方で、他の地域では N_2 濃度はそれほど高くない。天然ガス中の N_2 ガスの起源は地下深部での有機物の熱分解や浅部での微生物の働きによると言われており [81]、 N_2 ガスを多く含むスラブ起源水は堆積岩中の有機物の影響を受けた地下水が混合している可能性がある。

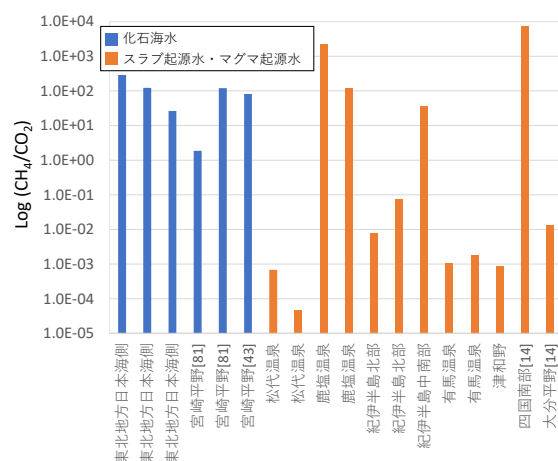


Fig. 9 Composition of gases

Table 6 Comparison of features of each deep-seated fluid

| 判別指標 | | スラブ起源水 | 化石海水 |
|----------|----------------|---|--|
| 溶存元素組成 | 降水・海水との比較 | <ul style="list-style-type: none"> 降水よりCl濃度が高い。 海水よりMg/Clが低い場合が多い。 海水よりSO_4/Clが低い。 海水よりBr/Clが低い。 | <ul style="list-style-type: none"> 降水よりCl濃度が高い。 海水よりMg/Clが低い。 海水よりSO_4/Clが低い。 海水よりBr/Cl, I/Clが高い。 |
| | スラブ起源水と化石海水の比較 | <ul style="list-style-type: none"> Li/Clがモル比で0.005以上を示す場合が多い。 I/Clは化石海水より低い場合が多い。 Sr濃度が化石海水よりも高い場合が多い。 NH_4濃度が化石海水より低い場合が多い。 | <ul style="list-style-type: none"> Li/Clは海水より高く、スラブ起源水よりも低い。 モル比で0.005以上を示す場合もある。 Br/Cl, I/Clがスラブ起源水より高い。 |
| 水の安定同位体比 | 降水・海水との比較 | <ul style="list-style-type: none"> 淡水と比較して$\delta^{18}\text{O}$が高い。 海水と比較してδDが低く、$\delta^{18}\text{O}$が高い。 | <ul style="list-style-type: none"> 降水と比較して高いδDを持つ。 海水と比較して、δDが同程度からやや低い。$\delta^{18}\text{O}$は高い場合も低い場合もある。 |
| | スラブ起源水と化石海水の比較 | <ul style="list-style-type: none"> 化石海水と比べ低いδDをもつ。 | <ul style="list-style-type: none"> スラブ起源水と比べて高いδDを持ち、$\delta^{18}\text{O}$は同程度から低い。 |
| He同位体比 | 大気との比較 | <ul style="list-style-type: none"> 大気 ($R/R_a=1$) と比較して高い。ただし、スラブ沈み込み深度の浅い地域では、He同位体比が低い場合がある。 地下水に、核実験の影響など、人為的な^3Hが高濃度に含まれていた履歴のある場合、放射壊変で生成する^3HeによりHe同位体比が高くなることがある。 | <ul style="list-style-type: none"> 大気 ($R/R_a=1$) と比較して低い場合が多い。 |
| | スラブ起源水と化石海水の比較 | <ul style="list-style-type: none"> 一般にスラブ起源水の方が高いHe同位体比を示すが、東北地方日本海側では高いHe同位体比を持つ化石海水がある。 | |
| 溶存ガス組成 | — | <ul style="list-style-type: none"> CO_2が主成分の場合が多い。CH_4が主成分の場合もあるが、その場合N_2の混合率が高い。 | <ul style="list-style-type: none"> CH_4が主成分。 |

3.2.5 起源判別フローおよび影響領域の検討

本研究にて検証した深部流体の溶存物質の特徴を Table 6 にまとめる。スラブ起源水と化石海水とに分け、それぞれについて海水との比較と、スラブ起源水、化石海水との相互の比較を記載した。

既往の研究では、海水との比較が多いが、化石海水とスラブ起源水を比較することで、Mg や SO_4 が海水と比べて低いなど化石海水の特徴とされていたものが、スラブ起源水にも当てはまることを示すことができた。また、従来から指摘されていた Li/Cl, Br/Cl, I/Cl に加え、Sr, NH_4 がスラブ起源水の特徴を示す可能性を見出した。また、溶存ガ

ス組成において、 CH_4 が主成分のスラブ起源水は N_2 を多く伴う可能性のあることが分かった。

溶存元素組成は、貯留層や帯水層の岩石等の影響を受けることから地域性が高いと考えられるが、Cl, He, 水の安定同位体比については、比較的水岩石相互作用の影響を受けづらく、地下水混合の様子が反映されやすい物質である。そこで、化石海水、スラブ起源水、海水と淡水を定性的に判別するフロー図を作成した (Fig. 10)。まず、地下水を採取・分析して水質分析を行う。Cl 濃度がその付近の地表水や浅層地下水と比較して高い場合は、降水のみを起源とする地下水とは考えづらいことから、深部流体が混合してい

る可能性が高い。次に He 同位体比を比較する。Cl 濃度が淡水程度で、He 同位体比が大気値である 1 R/R_a 程度から低い値を示した場合は降水起源の水を主とする地下水とすることができる。Cl 濃度が淡水程度であるにもかかわらず高い He 同位体比を示す場合は、³H の寄与[92]か、あるいは Morikawa ほか[13]の示すように、マントル起源の He であるが水とは別に移動したものが混合している可能性がある。Cl 濃度が高い場合で He 同位体比の高いものは、スラブ起源水が混合している可能性が高い。さらに、水の安定同位体比と比較することで、降水由来の地下水の混合の程度を知ることができる。ただし、東北地方日本海側で見られる化石海水のように高 He 同位体比で、マントル起源物質が含まれている可能性が高いが、現在マントル起源物質を供給されているのか、過去に影響したものが残存しているのか明らかではない場合もある。Cl 濃度が高く、He 同位体比が大気程度や、それより低い場合は化石海水や海水の可能性が高い。この場合は水の安定同位体比を用いるこ

とで判別可能である。Fig. 10 に加え、Table 6 に示した指標を併せて確認することで起源水推定の確度は高まるものと考えられる。

影響領域については、K, Mg, Ca, Li, B, Sr, Br, I 濃度が互いに近い地域の採水地点で近い値を示す、あるいは Cl 濃度に対して直線関係を示したことから、これらの濃度を用いて深部流体の影響領域を評価できる可能性があると考えられた。例えば、深部流体の影響があると考えられる地域で複数のボーリング孔を掘削し、深度ごとに試料を得ることができれば、これらの濃度の違いから、3 次元的な影響領域の情報を得ることが可能と考えられる。一方で、地表で得られた湧水や、湧水深度が不明な温泉井などで得られたものは、平面的な評価にとどまるものと考えられる。地下水は浸透流だけではなく、地層内の割れ目等の水みちに依存して流動することから、深部流体の影響領域の評価は、地質構造と併せて検討することが必要と考えられる。

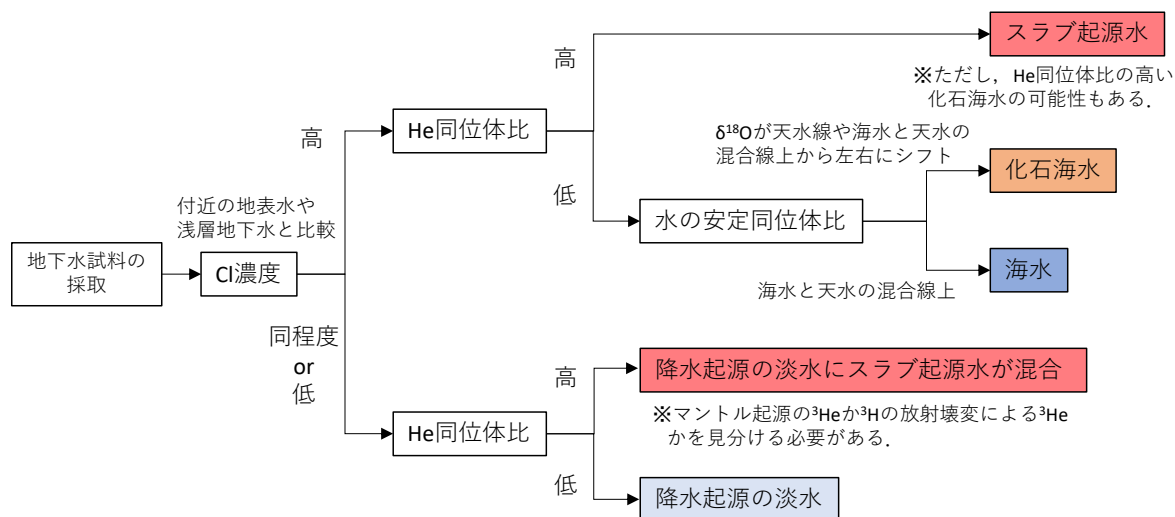


Fig. 10 Qualitative classification flow diagram for discrimination of deep-seated fluids

なお、今回扱ったマグマ起源水は松代温泉のみであることから、マグマ起源水の判別は Table 6 と Fig. 10 の検討に加えていない。松代温泉は、化石海水や海水との比較において、スラブ起源水と同様に分類される。マグマ起源水はスラブ起源水と同じく高温での水岩石相互作用を経て生成された地下水であることから、類似した化学的性質を持つものと考えられるが、マグマ起源水と化石海水の判別がスラブ起源水と同様に扱えるか否かは、マグマ起源水についての事例を拡充して検討を行う必要がある。

地下水は流動する過程で、帯水層の岩盤等との水岩石相互作用や起源の異なる地下水同士の混合により水質は変化する。このため、いずれの判別指標も単独で深部流体の起源を決定するものではない。起源水の決定には地質条件との比較、地下水流動解析、地下水年代との比較などが必要となると考えられる。一方で、今回の起源水の分類や、判別指標の探索結果は、採取した地下水の化学的情報だけでもある程度の判別が可能であり、これらを用いて、深部流体の有無、種類の判別、それを踏まえた起源の解明、影響領域の評価などの調査計画の効率的な立案が可能となる

と考えられる。

4 まとめ

既往文献の調査から、深部流体の溶存物質の特徴と用語の整理を行った。また、既往文献調査と採水調査結果から、深部流体の形成機構と起源水の定義を行い、判別指標となり得る溶存物質の適用性の検討を行った。その結果から、深部流体をスラブ起源水、マグマ起源水と化石海水の3つに分類するとともに、それぞれの水質の特徴をまとめ、スラブ起源水と化石海水について判別方法の検討を行った。溶存物質を用いて定性的ではあるが起源水の推定が可能であること、深部流体の影響領域の評価に利用できる可能性を示すことができた。また、地表付近で採取される地下水は、水岩石相互作用や起源の異なる地下水同士の混合を受けていることから、起源水の決定には、より多くの種類の元素や同位体等に加え、地質条件、地下水年代など別の指標を加えて総合的に判断する必要があると考えられた。

謝辞

本研究は、経済産業省資源エネルギー庁の委託事業「平成30～令和2年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業（JPJ007597）（地質環境長期安定性評価技術高度化開発）」の一環として実施しました。採水調査は各地の温泉施設や坑井の所有者のご協力を得て実施しました。採水作業にあたっては、電力中央研究所の大山隆弘氏、清水洋平氏（現：ダイヤモンドコンサルタント）にお世話になりました。経済産業省資源エネルギー庁ご担当各位ならびに採水の許可を下さった温泉施設の関係各位、作業に協力して下さった皆様に感謝いたします。

参考文献

- [1] 総合資源エネルギー調査会：最新の科学的知見に基づく地層処分技術の再評価—地質環境特性および地質環境の長期安定性について—，平成26年5月(2014).
https://www.meti.go.jp/committee/sougouenergy/denryoku_gas/genshiryoku/chisou_shobun_wg/report_001.pdf (accessed 2022-02-07).
- [2] 産業技術総合研究所：概要調査の調査・評価項目に関する技術資料．地質調査総合センター研究資料集 no.459 (2007).
- [3] 産業技術総合研究所：概要調査の調査・評価項目に関する技術資料—立地要件への適合性とその根拠となる調査結果の妥当性—．地質調査総合センター研究資料集 no. 560 (2012).
- [4] 経済産業省資源エネルギー庁：「科学的特性マップ」の説明資料．(2017).
https://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/kagakutekitokuseimap/maps/setsumei.pdf (accessed 2021-12-22).
- [5] 益田春恵：地球深部の窓—有馬温泉．温泉科学 **61**, pp.203-221 (2011).
- [6] Tanaka, K., Koizumi, M., Seki, R. and Ikeda, N. Geochemical study of Arima hot-spring waters, Hyogo, Japan, by means of tritium and deuterium. *Geochemical Journal* **18**, pp.173-180 (1984).
- [7] Masuda, H., Sakai, H., Chiba, H. and Tsurumaki, M.: Geochemical characteristics of Na-Ca-Cl-HCO₃ type waters in Arima and its vicinity in the western Kinki district, Japan. *Geochemical Journal* **19**, pp.149-162 (1985).
- [8] Matsubaya, O., Sakai, H., Kusachi, I. and Satake, H.: Hydrogen and oxygen isotopic ratios and major element chemistry of Japanese thermal water systems. *Geochemical Journal* **7**, pp.123-151 (1973).
- [9] Kusuda, C., Iwamori, H., Nakamura, H., Kazahaya, K. and Morikawa, N.: Arima hot spring waters as a deep-seated brine from subducting slab, *Earth, Planets and Space* **66**: 119 (2014).
- [10] 松葉谷治, 酒井 均, 鶴巻道二：有馬地域の温泉，鉱泉水の水素と酸素の同位体比について．岡山大学温泉研究所報告 **43**, pp.15-28. (1974).
- [11] Ono, A., Sano, Y., Wakita, H. and Giggenbach, F.: Carbon isotopes of methane and carbon dioxide in hydrothermal gases of Japan. *Geochemical Journal* **27**, pp.287-295 (1993).
- [12] 田中和広, 東田優記, 村上裕晃：紀伊半島の中央構造線付近に見られる深部流体と地質・地質構造．日本水文科学会誌 **43**, pp.137-150 (2013).
- [13] Morikawa, N., Kazahaya, K., Takahashi, M., Inamura, A., Takahashi, H., Yasuhara, M., Ohwada, M., Sato, T., Nakama, A., Handa, H., Sumino, H. and Nagao, K.: Widespread distribution of ascending fluids transporting mantle helium in the fore-arc region and their upwelling process: Noble gas and major element composition of deep groundwater in the Kii Peninsula, southwest Japan. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **182**, pp.173-196 (2016).
- [14] 網田和宏, 大沢信二, 西村光史, 山田誠, 三島壮智, 風早康平, 森川徳敏, 平島崇男：中央構造線沿いに湧出する高塩分泉の起源-プレート脱水流体起源の可能性についての水文化学的検討-. 日本水文科学会誌 **44**, pp.17-38 (2014).
- [15] 村上裕晃, 田中和広：島根県津和野地域に分布する高塩濃度地下水の地球化学的特徴と湧出機構．地下水学会誌 **57**, pp.415-433 (2015).
- [16] 松葉谷治, 酒井均, 日下部実, 佐々木昭：長野県の温泉についての同位体化学的調査報告.岡山大学温泉研究所報告 **50**, pp.17-24 (1980).
- [17] 益田晴恵, 橋爪伝, 酒井均：鹿塩地域に湧出する塩水の季節変動とその要因について．地球化学 **22**, pp.149-156 (1988).
- [18] Kusuhara, F., Kazahaya, K., Morikawa, N., Yasuhara, M., Tanaka, H., Takahashi, M. and Tosaki, Y.: Original composition and formation process of slab-derived deep brine from Kashio mineral spring in central Japan. *Earth, Planets and Space* **72**:107, <https://doi.org/10.0086/s40623-020-01225-y> (2020).
- [19] 網田和宏, 大沢信二, 杜建国, 山田誠：大分平野の深部に賦存される有馬型熱水の起源.温泉科学 **55**, pp.64-77 (2005).
- [20] Iwamori, H.: Transportation of H₂O and melting in subduction zones. *Earth and Planetary Science Letters* **160**, pp.65-80 (1998).
- [21] 片山郁夫, 平内健一, 中島淳一：日本列島下での沈み込みプロセスの多様性．地学雑誌 **119**, pp.205-223 (2010).
- [22] 風早康平, 高橋正明, 安原正也, 西尾嘉朗, 稲村明彦, 森川徳敏, 佐藤 努, 高橋 浩, 北岡豪一, 大沢信二, 尾山洋一, 大和田道子, 塚本 斉, 堀口桂香, 戸崎裕貴, 切田 司：西南日本におけるスラブ起源深部流体の分布と特徴．日本水文科学会誌 **44**, pp.3-18 (2014).
- [23] 産業技術総合研究所：平成27年度原子力発電施設等安全技術対策委託費(自然現象等の長期予測に関する

- 予察的調査)事業, 平成 27 年度報告書. 平成 28 年 3 月 (2016).
- [24] 産業技術総合研究所: 平成 28 年度原子力発電施設等安全技術対策委託費(自然現象等の長期予測に関する予察的調査)事業, 平成 28 年度報告書. 平成 29 年 3 月 (2017).
- [25] 風早康平, 高橋正明, 尾山洋一, 安原正也, 長谷川昭: スラブ起源流体—その分布, 成因と地震活動の関連について—. 地質調査総合センター研究資料集 no.610, pp.10-13 (2015).
- [26] Tatsumi, Y., Suenaga, N., Yoshioka, S., Kaneko, K. and Matsumoto, T.: Contrasting volcano spacing along SW Japan arc caused by difference in age of subducting lithosphere., *Scientific Reports*, <https://doi.org/10.1038/s41598-020-72173-6> (2020).
- [27] 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 **48**, pp.17-33 (2006).
- [28] 長谷川琢磨, 中田弘太郎, 近藤浩文, 五嶋慶一郎, 村元茂則, 富岡祐一, 後藤和幸, 柏谷公希: 沿岸域における地下水の流動性の年代測定による評価. 地学雑誌 **122**, pp.116-138 (2013).
- [29] 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**, pp.229-237 (2000).
- [30] Mahara, Y., Ohta, T., Tokunaga, T., Matsuzaki, H., Nakata, E., Miyamoto, Y., Mizokuchi, Y., Tashiro, T., Ono, M., Igarashi, T. and Nagao, K.: Comparison of stable isotopes, ratios of $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ and $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in brine and deep groundwater from the Pacific coastal region and the eastern margin of the Japan Sea. *Applied Geochemistry* **27**, pp.2389-2402 (2012).
- [31] 太秦康光, 那須義和: 油田塩水と温泉水の化学成分の比較. 日本化学雑誌 **81**, pp.401-404 (1960).
- [32] 松波武雄: 北海道の高濃度塩化物泉について. 地下資源調査所報告 **64**, pp.17-30 (1992).
- [33] 鈴木隆広, 柴田智郎: 北海道, 日本海側北部の温泉資源. 北海道立地質研究所報告 **15-20** (2007).
- [34] 岩月輝希, 石井英一, 新里忠史: 北海道幌延地域における深部地球化学環境の長期変遷シナリオ構築. 地学雑誌 **118**, pp.700-716 (2009).
- [35] Nakata, K., Hasegawa, T., Oyama, T., Ishii, E., Miyakawa, K. and Sasamoto, H.: An evaluation of the long-term stagnancy of porewater in the Neogene sedimentary rocks in Northern Japan. *Geofluids*, Article ID 7823195 (2018).
- [36] 加藤進, 梶原義照: 新潟地域油・ガス田付随水の酸素および酸素の同位体組成. 石油技術協会誌 **51**, pp.113-122 (1986).
- [37] 早稲田周, 岩野裕継, 竹田伸従: 地球化学からみた天然ガスの成因と熟成度. 石油技術協会誌 **67**, pp.3-15 (2002).
- [38] 加藤進: 秋田地域の油・ガス田の地層水の地球科学. 地下水学会誌 **56**, pp.299-307 (2014).
- [39] 加藤進: 新潟地域における油・ガス田地層水の地球化学. 石油技術協会誌 **83**, pp.257-266 (2018).
- [40] 相川嘉正: 千葉県の温泉の化学-温泉およびガス田付随水の化学成分-. 温泉科学 **42**, pp.22-34 (1991).
- [41] 板寺一洋, 菊川城司, 小田原啓: 神奈川県の大深度温泉水の起源. 温泉科学 **59**, pp.320-339 (2010).
- [42] 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**, pp.112-134 (2012).
- [43] 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—. 温泉科学 **59**, pp.295-319 (2010).
- [44] 国立天文台: 理科年表 2021 机上版, 丸善 (2020).
- [45] 松葉谷治: 酸素および酸素同位体比からみた温泉水の起源. 温泉科学 **31**, pp.47-56 (1981).
- [46] Umeda, K., Asamori, K., Kusano, T.: Release of mantle and crustal helium from a fault following an inland earthquake. *Applied Geochemistry* **37**, pp.134-141 (2013).
- [47] Matsumoto, T., Kawabata, T., Matsuda, J., Yamamoto, K. and 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**, pp.221-230 (2003).
- [48] 新エネルギー・産業技術総合開発機構: 地熱開発促進調査報告書 No. 37 本宮地域. 平成 6 年 3 月 (1994).
- [49] 上原大二郎, 石丸恒存, 棚瀬充史, 小川康雄, 鍵山恒臣: MT 法におけるファーストリモートリファレンス処理の効果と紀伊半島南部地域の深部比抵抗構造. 応用地質 **44**, pp.164-174 (2003).
- [50] Umeda, K., Ogawa, Y., Asamori, K. and Oikawa, T.: Aqueous fluids derived from a subducting slab: Observed high ^3He emanation and conductive anomaly in a non-volcanic region, Kii Peninsula southwest Japan. *Journal of Volcanology and Geothermal Research* **149**, pp.47-61 (2006).
- [51] 新エネルギー・産業技術総合開発機構: 全国地熱資源総合調査(第 3 次)広域熱水流動系調査 昭和 63 年度鶴見岳地域 流体地化学調査報告書 要旨 (1989).
- [52] 大沢信二: 大分平野に産する深層熱水中の炭酸成分の起源. 大分県温泉調査研究会報告 **52**, pp.21-26 (2001).
- [53] Togo, Y., Kazahaya, K., Tosaki, Y., Morikawa, N., Matsuzaki, H., Takahashi, M. and Sato, T.: Groundwater, possibly originated from subducted sediments, in Joban and Hamadori areas, southern Tohoku, Japan. *Earth, Planets and Space* **66**:131 (2014).
- [54] You, C.-F., Castillo, P.R., Gieskes, J.M., Chan, L.H. and Spivack, A.J.: Trace element behavior in hydrothermal experiments: Implications for fluid processes at shallow depths in subduction zones, *Earth and Planetary Science Letters* **140**, pp.41-52 (1996).

- [55] James, R.H, Allen, D.E. and Seyfried Jr, W.E.: An experimental study of alteration of oceanic crust and terrigenous sediments at moderate temperatures (51 to 350°C): Insights as to chemical process in near-shore ridge-flank hydrothermal systems. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **67**, pp.681-691 (2003).
- [56] 西尾嘉朗: リチウム同位体による地殻流体研究の新展開—地殻活動の全貌解明に向けて—. *日本水文科学会誌* **43**, pp.119-135 (2013).
- [57] Sumino, H., Burgess, R., Mizukami, T., Wallis, S.R., Holland, G. and Ballentine, C.J.: Seawater-derived noble gases and halogens preserved in exhumed mantle wedge peridotite. *Earth and Planetary Science Letters* **294**, pp.163-172 (2010).
- [58] 産業技術総合研究所: 平成 25 年度核燃料サイクル施設安全対策技術調査等(放射性廃棄物処分安全技術調査等のうち地層処分に係る地質評価手法等の整備(地質関連情報の整備)),平成 25 年度事業報告書,平成 26 年 3 月(2014).
- [59] 日本地熱学会: 2.1 探査技術. 地熱エネルギーハンドブック, 日本地熱学会地熱エネルギーハンドブック刊行委員会(編), pp.22-98 (2014).
- [60] 村松容一, 谷口無我, 千葉仁, 奥村文章, 大場武: 糸魚川—静岡構造線南部およびその東域における高塩化物泉の成因—中央構造線に分布する鹿塩高塩化物泉の成因の類似性—. *温泉科学* **66**, pp.70-88 (2016).
- [61] 酒井拓哉, 大沢信二, 山田誠, 三島壮智, 大上和敏: 温泉水・温泉付随ガスの地球化学データから見た大分県山香温泉の生成機構と温泉起源流体. *温泉科学* **63**, pp.164-183.
- [62] 奥澤保, 塚原弘昭: 松代群発地震地域に湧出する深層地下水. *地震* **53**, pp.241-253 (2001).
- [63] Okuyama, Y., Funatsu, T., Fujii, T., Takamoto, N. and Tosha, T.: Mid-crustal fluid related to the Matsushiro earthquake swarm (1965-1967) in northern Central Japan: Geochemical reproduction. *Tectonophysics* **679**, pp.61-72 (2016).
- [64] Ogawa, Y., Ichiki, M., Kanda, W., Mishina, M. and Asamori, K.: Three-dimensional magnetotelluric imaging of crustal fluids and seismicity around Naruko volcano, NE Japan. *Earth, Planets and Space* **66**, 158 (2014).
- [65] 本島公司: 化石水の産状と地球化学—坑内水を中心に—. *日本鉱業会誌* **78**, pp.205-210 (1962).
- [66] 杉崎隆一: 地下水の起源と由来—その化学的考察—. *用水と廃水* **5**, pp.877-889 (1963).
- [67] 山本荘毅: 新版地下水調査法. 古今書院 (1983).
- [68] 今橋正征, 加藤尚之, 高松信樹, 相川嘉正: 千葉県を中心とした地域の温鉱泉水およびガス田付随中の臭化物およびヨウ化物イオン含量. *温泉科学* **46**, pp.69-78 (1996).
- [69] 三田勲, 樋口康則, 樋口朋之: ヨウ素を含有するかん水の濃集機構. *日本海水学会誌* **60**, pp.91-97 (2006).
- [70] 村松容一: 関東平野南西部,石狩低地帯,新潟平野における塩化物泉の水質形成機構(予察)—続成変質による間隙水の進化—. *温泉科学* **67**, pp.64-78 (2017).
- [71] 村松容一: 日本の水溶性ガス田におけるかん水の水質形成機構(予察)—続成変質による間隙水の進化—. *温泉科学* **68**, pp.66-83 (2018).
- [72] Bottomley, D.J., Katz, A., Chan, L.H., Starinsky, A., Douglas, M., Clark, I.D., and Raven, K.G.: The origin and evolution of Canadian Shield brines: evaporation or freezing of seawater? New lithium isotope and geochemical evidence from the Slave craton. *Chemical Geology* **155**, pp.295-320 (1999).
- [73] Bottomley, D.J., Chan, L.H., Katz, A., Starinsky, A., and Clark, I.D.: Lithium isotope geochemistry and origin of Canadian Shield brines. *Groundwater* **41**, pp. 847-856 (2003).
- [74] Shouakar-Stash, O., Alexeev, S.V., Frapce, S.K., Alexeeva, L.P. and Drimmie, R.J.: Geochemistry and stable isotopic signatures, including chlorine and bromine isotopes, of the deep groundwaters of the Siberian Platform, Russia. *Applied Geochemistry* **22**, pp.589-605 (2007).
- [75] Sano, Y. and 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**, (B10), pp.8729-8741 (1985).
- [76] Wakita, H., Sano, Y., Urabe, A., Nakamura, Y.: Origin of methane-rich natural gas in Japan: formation of gas fields due to large submarine volcanism. *Applied Geochemistry* **5**, pp.263-278 (1990).
- [77] 北逸郎, 滝沢英夫, 長谷川英尚, 荒屋敷龍一, 長尾敬介, 上田晃: 深部地層中の He の移動現象と天然ガスの起源. *石油技術協会誌* **62**, pp.80-89 (1997).
- [78] Sakata, S., Sano, Y., Maekawa, T. and Igari, S.: Hydrogen and carbon isotopic composition of methane as evidence for biogenic origin of natural gases from the Green Tuff basin, Japan. *Organic Geochemistry* **26**, pp.399-407 (1997).
- [79] Sano, Y., Kinoshita, N., Kagoshima, T., Takahata, N., Sakata, S., Toki, T., Kawagucci, S., Waseda, A., Lan, T., Wen, H., Chen, A., Lee, H., Yang, T., Zheng, G., Tomonaga, Y., Roulleau, E. and Pinti, D.: Origin of methane-rich natural gas at the West Pacific convergent plate boundary. *Scientific Reports* **7**, 15646 (2017).
- [80] 早稲田周, 岩野裕継: ガス炭素同位体組成による貯留層評価. *石油技術協会誌* **72**, pp.585-593 (2007).
- [81] 加藤進, 早稲田周, 岩野裕継: 宮崎県の水溶性天然ガス田における地球科学,石油技術協会誌 **76**, pp.244-253 (2011).
- [82] Sano, Y., Marty, B.: Origin of carbon in fumarolic gas from island arcs. *Chemical Geology* **119**, pp.265-274 (1995).
- [83] Umeda, K., McCrank, G.F. and Ninomiya, A.: Helium isotopes as geochemical indicators of a serpentinized fore-arc mantle wedge. *Journal of Geophysical research* **112**, B10206, doi:10.1029/2007JB005031 (2007).

- [84] Mahara, Y., Ohta, T., Tokunaga, T., Matsuzaki, H., Nagao, K., Nakata, E., Miyamoto, Y. and Kubota, T.: Pore-water mobility: Distribution of $\delta^{37}\text{Cl}$, $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$, $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ and dissolved ^4He concentration in the core drilled in the Mobara gas field, Japan. *Nuclear Instruments and Methods in Physics research B* **294**, pp.597-601 (2013).
- [85] 日本原子力研究開発機構・電力中央研究所: 平成30年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業, 地質環境長期安定性評価技術高度化開発報告書. 平成31年3月 (2019).
- [86] 日本原子力研究開発機構・電力中央研究所: 平成31年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業, 地質環境長期安定性評価技術高度化開発報告書. 令和2年3月 (2020).
- [87] 日本原子力研究開発機構・電力中央研究所: 令和2年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業, 地質環境長期安定性評価技術高度化開発報告書. 令和3年3月 (2021).
- [88] Sano, Y., Tominaga, T., Nakamura, Y. and Wakita, H.: $^3\text{He}/^4\text{He}$ ratios of methane-rich natural gases in Japan. *Geochemical Journal* **16**, pp.237-245 (1982).
- [89] 宮川和也, 女澤徹也, 望月陽人, 笹本広: 幌延深地層研究計画で得られた地下水の水質データ(2017年度～2019年度). JAEA-Data/Code 2020-001 (2020).
- [90] Kamei, G., Yusa, Y. and Arai, T.: A natural analogue of nuclear waste glass in compacted bentonite. *Applied Geochemistry* **15**, pp.141-155 (2000).
- [91] Shimizu, A., Sumino, H., Nagao, K., Notsu, K. and Mitropoulos, P.: Variation in noble gas isotopic composition of gas samples from the Aegean arc, Greece. *Journal of Volcanology and Geothermal Research* **140**, pp.321-339 (2005).
- [92] Mahara, Y., Ohta, T., Morikawa, N., Nakano, T., Tokumasu, M., Hukutani, S., Tokunaga, T. and Igarashi, T.: Effects of terrigenous He components on tritium-helium dating: A case study of shallow groundwater in the Saijo Basin. *Applied Geochemistry* **50**, pp.142-149 (2014).
- [93] 早稲田周, 中井信之: 中部日本・東北日本における天然水の同位体組成. *地球化学* **17**, pp.83-91 (1983).
- [94] Mizota, C. and Kusakabe, M.: Spatial distribution of δD - $\delta^{18}\text{O}$ values of surface and shallow groundwaters from Japan, south Korea and east China. *Geochemical Journal* **28**, pp.387-410 (1994).
- [95] Togo, Y., Takahashi, Y., Amano, Y., Matsuzaki, H., Suzuki, Y., Terada, Y., Muramatsu, Y., Ito, K. and Iwatsuki, T.: Age and speciation of iodine in groundwater and mudstones of the Horonobe area, Hokkaido, Japan: Implications for the origin and migration of iodine during basin evolution. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **191**, pp.165-186 (2016).
- [96] 小林真大, 角野浩史, 遠山知亜紀: マントル物質のハロゲン組成にみられるスラブ起源流体の痕跡. *地学雑誌* **124**, pp.445-471 (2015).