

## ボーリング調査により採取された地下水の $^{14}\text{C}$ 濃度 —花崗岩地域における調査例—

高橋 浩・風早康平・稲村明彦・塚本 斉・森川徳敏・安原正也・高橋正明  
(産業技術総合研究所 深部地質環境研究センター)

中村俊夫・太田友子・丹生越子  
(名古屋大 年代測定総合研究センター)

要旨—花崗岩帯における2本のボーリング調査によって得られた地下水試料の炭素同位体組成の変化について、水質データとともに議論した。この2つのボーリング地点は、4~5km 以内の同一岩体にあるにもかかわらず、水質、同位体データは異なる傾向を示した。これは、裂隙の連結性と関わりがあり、裂隙水には表層や地下深くからの流体が混入していることが示された。それらの混入の割合は、裂隙の連結性が高いサイトで大きなものであった。水そのものと、溶存している炭素成分の混入率は同一のものではなく、得られた  $^{14}\text{C}$  濃度から算出する年代値は、裂隙水がトラップされた時期や平均滞留時間を示すものではないが、 $\delta\text{D} \cdot \delta^{18}\text{O}$  の結果とあわせて考えると、裂隙水がトラップされてから非常に長い時間が経過しており、その後に徐々に水が入れ替わっているようなプロセスが示唆された。

### はじめに

地下水流動を正確に把握するためには、地下水が涵養されたのは、どこで、それはいつだったのか、どこを通過して運ばれてきたのか、といった命題を定量的に解決していかなければならない。これには多角的な解析が必要であるため、水質データに加えて同位体を利用したアプローチを行った。

本報告では、花崗岩地域におけるボーリング調査で得た地下水試料の解析結果について炭素同位体を中心に紹介する。花崗岩地域のような固い岩体での地下水の流れは、断裂の有無や岩質のわずかな違いにより生じた“水みち”と呼ばれる連続した間隙を通ると予想される。このような“水みち”が、鉛直方向に繋がっているものなのか、繋がっているとしたらどの程度の規模であるのか、また、地下水はどの程度の滞留時間で流れているのか、裂隙の安定性の評価といった事柄について、明確な知見が得られていない。本報告では、それらを明らかにするための第一歩となるデータの紹介を行う。

### 調査地域・方法

ボーリング調査は、東西南部の阿武隈山地北中部の福島県安達郡白沢村と福島県田村郡三春町の2地点において行った(以後、白沢サイト・三春サイトと呼ぶ)。著者らは、ボーリング地点周辺地域において、地質・地質構造および河川水の調査を行っている。この地域には、飯野-小浜線と呼ばれるN-S系の断裂系集中域があり、その断裂系集中域と重複して、河川水・浅層地下水の水素-酸素同位体比( $\delta\text{D} \cdot \delta^{18}\text{O}$ )に低同位体異常があることがわかっている。これらに異常を示す地点の分布は表

層の地質の分布と一致しない。著者らは、より高い標高の山岳地帯で涵養された地下水が地下の断裂系を通じて移動し、N-S系の断裂系集中域に沿って流出した概念モデルを提唱している。

白沢サイトは、飯野-小浜線の延長上の近傍にあり、河川水・浅層地下水の水質・同位体比に異常が顕著に認められた地域にあり、三春サイトは、移ヶ岳などの高標高地域からWNW-ESE方向に伸びる顕著なリニアメントの近傍である。白沢サイトでは、周辺部の断裂系が複雑に発達していることから、気泡式ボーリング工法による深度140mの掘削を実施した。三春サイトでは、通常工法の清水掘りによる180mの掘削を行った。各サイトでは、裂隙水の原位置採水（原位置の水圧を保った状態で直接採水）を行った。同時に、水圧・水温・水質などに関する水質検層を行った。三春サイトでは、原位置採水時の採水区間内の水圧変化が観測されず、裂隙の相互連結性が高く、裂隙そのものも開いている傾向が強いと考えられる。従って、裂隙水の移動が容易な高透水路を形成していると予想される。一方、白沢サイトでは、全ての採水区間で水圧が低下し、裂隙が確認されても採水が不可能な深度が5つあった。このことから、白沢サイトの断裂系は断裂相互の連結性が低く、裂隙そのものも閉じている傾向が強いと考えられ、裂隙水の移動が困難な難透水路を形成していると予想される。

採水試料への掘削水や孔内洗浄水（どちらも河川水を利用）の混入に伴う水質・同位体組成の変化を評価するために、孔内注入水にトレーサーとしてヨウ化アンモニウムを添加した（濃度：約50ppm）。白沢サイトでは深度6mにおいて浅層地下水を、30m・60m・76m・103m・124m・136mの6深度で裂隙水の採水を行った。裂隙水は、全掘削終了後に採水区間をダブルパッカー法により、上部パッカーに連結した真空容器へ採取した。白沢サイトで採取された裂隙水のうち、124m深度のものは、試料水に含まれる掘削水の混入率が非常に高いことから、本報告の議論ではデータを用いない。三春サイトでは、深度18mにおいて浅層地下水を、41m・60m・80m・100m・132m・174mの6深度で裂隙水の採水を行った。各採水区間はシングルパッカー法（孔底まで）もしくはダブルパッカー法により、上部パッカーに連結された真空引きされた容器へ採水を行った。

水試料の一般・微量水質組成および $\delta D$ 、 $\delta^{18}O$ 、トリチウム濃度、溶存炭素の $\delta^{13}C$ と $^{14}C$ 濃度測定を行った。水質分析はイオンクロマトグラフ法に基づいて分析され、 $\delta D$ ・ $\delta^{18}O$ は平衡法を用いた。これらの測定は産業技術総合研究所に設置の装置を用いて行った。トリチウム測定は、三菱マテリアル株式会社に分析を依頼した。

全炭酸の $\delta^{13}C$ は産業技術総合研究所に設置の自動前処理装置が接続された連続フロー型の質量分析計を用いて測定した。この装置は、リン酸を入れたバイアル瓶に水試料を注射器で導入することで、溶存炭酸をガス態の $CO_2$ として $\delta^{13}C$ を測定するものである。 $^{14}C$ 濃度は、名古屋大学年代測定総合研究センターに設置のガラスラインで前処理を行い、加速器質量分析計で測定を行った。前処理は、試料水に塩化ストロンチウムを添加し、沈殿した炭酸ストロンチウムをリン酸で反応させて、 $CO_2$ とした後にグラファイト化する手法を用いた。

## 結果・考察

掘削水の影響は、トレーサーとして添加したヨウ素の濃度を基準に補正している。もともとの裂隙水にはヨウ素が含まれないと考えられるため、ヨウ素が掘削水の混入を示す指標となるのであるが、白沢サイトの102mと136mの2深度については、それより浅層の3深度と比べて非常に高い掘削水の混入率を示している。この混入率を用いて掘削水の影響を補正すると、136mの裂隙水のトリチウム濃度が負の値を示してしまう。原因は不明であるが、掘削水の混入率を過大評価している様である。そこで、136mの裂隙水のトリチウム濃度が0となるような掘削水の混入率を求め、136mの裂隙水の水質・同位体データを補正する際に利用した。また、トリチウムを利用して求めた混入率とヨウ素

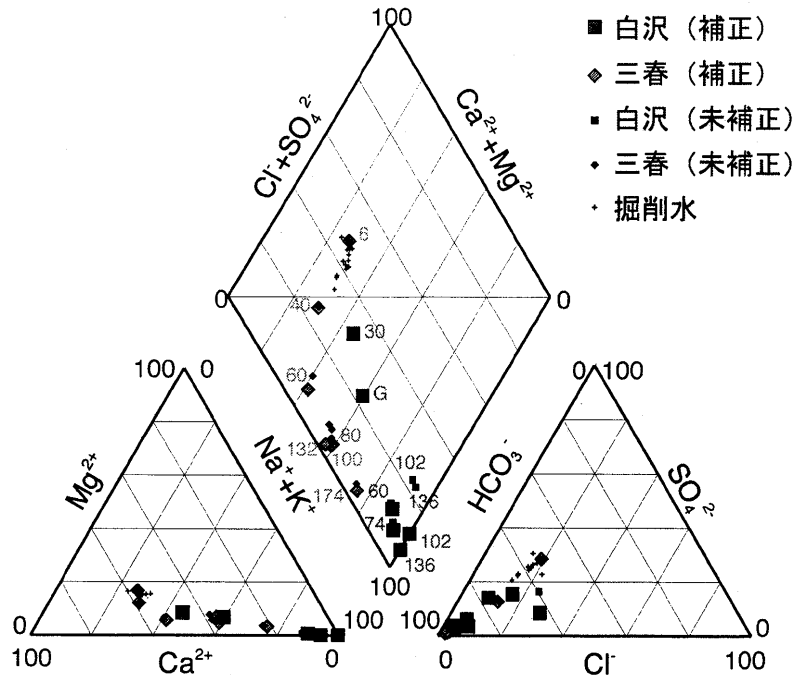


図 1. ポーリング試料水と掘削水の水質データ  
Fig. 1 Trilinear diagram of sample water and antifriction water

を基準として求めた混入率の違いを利用して、102mの深度での混入率を再計算した。

裂隙水の水質データをトリリニアダイアグラムに示す(図1)。ダイアグラム上には掘削水の影響の補正前後のデータを掘削水のデータとともにプロットしている。補正を行った後のデータは補正前の裂隙水と掘削水のデータを直線で結んだ延長上にプロットされるはずであるが、白沢サイトの102mと136mについては、直線上から外れており、掘削水の影響補正が完全でないことがわかる。ヨウ素による補正が過大評価であったことや、トリチウムを用いた補正も完全とまらない原因の一端は、気泡式のポーリング工法にあるかもしれない。図2に裂隙水の水質変化をヘキサダイアグラムを用いて示す。白沢サイトでは30m以浅と60m以深で、三春サイトでは40m以浅と80m以深で明瞭な水質の違いが見られる。浅層には滞留時間の比較的短いCaHCO<sub>3</sub>型の地下水が存在する。一方で深層には、滞留時間が長く進化の進んだ地下水に多く見られるNaHCO<sub>3</sub>型の水質組成が示されている。

水質データは、深層ほど進化の進んだ水があることを示しているが、2つのサイトで進化の度合いが異なる(図2)。δ<sup>13</sup>Cの鉛直変化も2つのサイトで大きく異なる(図3)。白沢サイトでは浅層から深層までの各深度の間のδ<sup>13</sup>Cの変化が小さく、地下水中の炭酸成

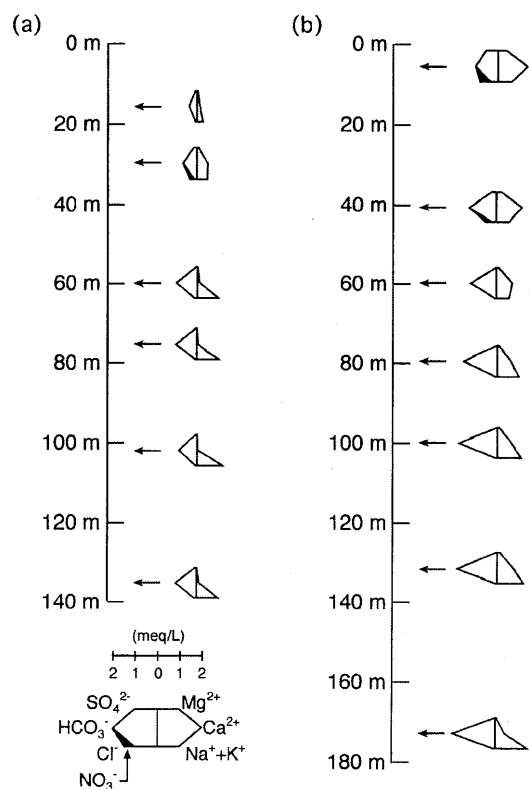


図 2. 白沢サイト(a)と三春サイト(b)の水質変化の鉛直プロフィール  
Fig. 2 Hexadiagram of sample water at Shirasawa site (a) and Miharu site

分の起源としては、生物起源  $\text{CO}_2$  の地下水への溶け込みが主なものであると考えられる。

一方で、三春サイトでは、浅層地下水から41mの裂隙水まででは $\delta^{13}\text{C}$  の変化はほとんど見られないが、それより深層になるとどんどん値が大きくなっている。三春サイトの41m以浅の水質進化は、図1のダイアグラム上では炭酸成分が増加する傾向を示しており、それよりも深層や白沢サイトの傾向とは違っている。この炭酸成分の増加は、生物起源  $\text{CO}_2$  に由来する炭酸の付加によるもので、比較的短い時間で起こったものと考えられる。41mより深い深度では、深層ほど $\delta^{13}\text{C}$  が大きくなっており、土壌  $\text{CO}_2$  とは違う成分の寄与が示唆される。この変化の原因として炭酸塩の溶解や岩石との反応、地下深くからの流体の混入が考えられる。本研究地域の地質は大規模な花崗岩体であり、掘削地点の周囲には炭酸塩岩や炭素の起源となるような堆積岩がないため、これらの成分からの炭素の寄与は無視できると考えられる。

残りの地下深くからの流体は、沈み込んだスラブから脱水した海洋堆積物中の間隙水が主体であると考えられ、掘削地点の周囲でも寄与があるものと思われる。そこで、深部から混入する流体の寄与を取り除いた成分の $\delta^{14}\text{C}$  を、同位体マスバランスにより求めた。深部流体の炭素同位体比を $\delta^{14}\text{C}=-1000\%$ 、 $\delta^{13}\text{C}=-5\%$ とし、元来、裂隙水に含まれていた炭素の $\delta^{13}\text{C}$  を $-20\%$ （生物起源）と仮定した。同位体マスバランスによる解析の前後の $\delta^{14}\text{C}$  から計算した「見かけの年代値」を図4へ示す。この年代値は、裂隙水がトラップされた時期や平均滞留時間を示すものではないと考えられるため、「見かけの年代」としている。深部からの流体の影響を除去する前は、2つのサイトの見かけの年代値に大きな差はなく、深度が増すにつれて年代値も古くなっていく傾向を示したが、深部からの流体の影響を除去すると、白沢サイトの方が三春サイトよりもやや古い年代を示すようになった。三春サイトでは、最下層の裂隙水であってもトリチウムが検出されていることや（図5）、 $\delta\text{D} \cdot \delta^{18}\text{O}$  が深度ごとに大きな変化を示さないことから（図6）、鉛直方向の水の混合があることがわかる。三春サイトの裂隙の方が白沢サイトの裂隙よりも高い連結性を示すために、混合（混入）の頻度や程度が大きくなり、トリチウムが最下層でも検出され、 $\delta\text{D} \cdot \delta^{18}\text{O}$  の鉛直変化が小さいものと考えられる。

三春サイトでのこの水の動きは、トリチウムの半減期（12.3年）を考慮すると、数十年以内の比較的最近に生じたと考えられる。ただし、深層ほど古い $^{14}\text{C}$  年代を示すということは、深層水の炭素濃度が表層水に比べて大きく、水に比べて炭素成分の入れ替わりの程度が小さいためと考えられる。しかしながら、見かけの年代が10000年よりも古いことを考慮すると、表層水の混入が頻繁に起こっていたとは考えにくい。つまり、裂隙が高い連結性を示しているとしても、最近数十年以内に生じたと思われる表層水の混合は、常時起こっているのではなく、地震などのイベントに関連して生じていることが推察される。

白沢サイトでは、裂隙が閉鎖傾向にあるが、 $\delta^{13}\text{C}$  が深層ほど徐々に高くなる。これが深部からの流体の流入によるものであるならば、鉛直方向の混合が全くないとは言いきれない。しかしながら、深層でトリチウムが検出されないことや $\delta\text{D} \cdot \delta^{18}\text{O}$  のプロファイルが深度とともに徐々に変化するパタ

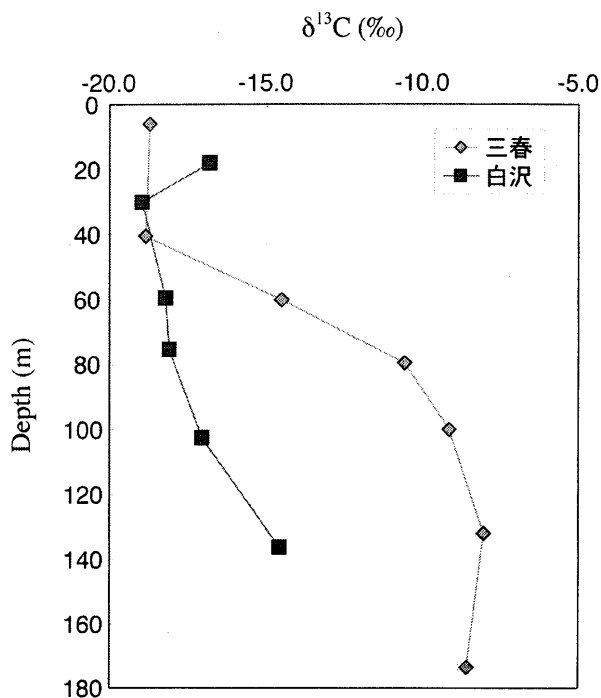


図3.  $\delta^{13}\text{C}$  の鉛直プロファイル  
Fig. 3 The vertical  $\delta^{13}\text{C}$  profiles of sample water

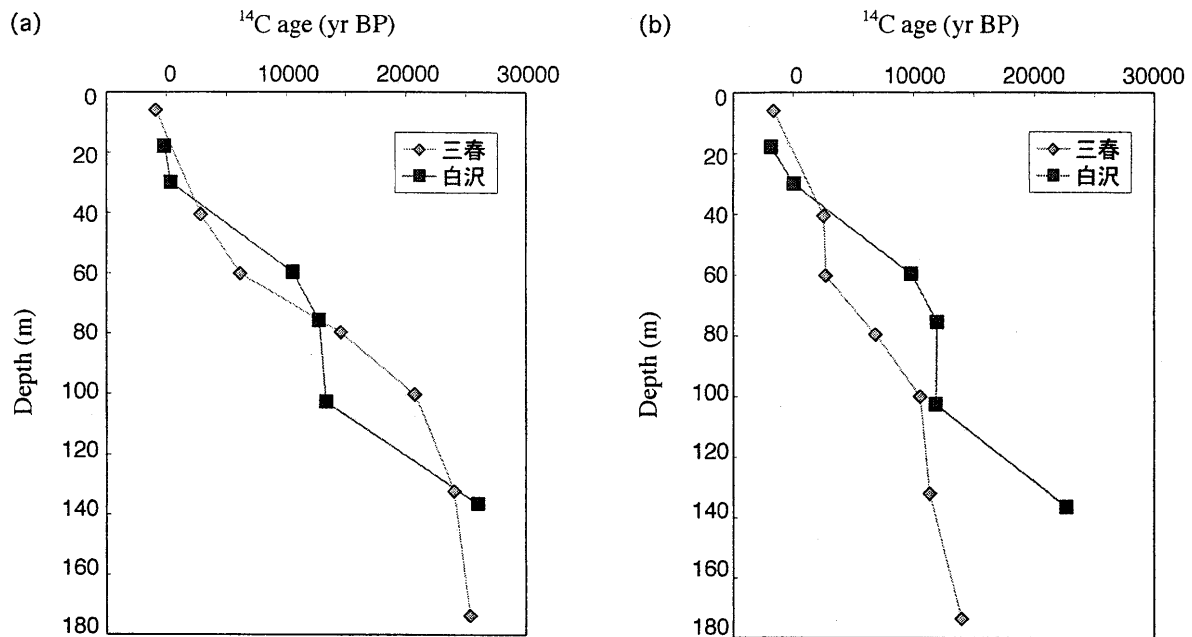


図4. 裂隙水の見かけの年代値. 深部からの炭素の寄与を取り除く前 (a) と取り除いた後 (b)  
Fig. 4 The apparent  $^{14}\text{C}$  age of sample water before (a) and after (b) eliminating of the deep source carbon

ーンを示していることから、混合の程度は非常に小さいものと考えられる。裂隙水の採水が不可能であった区間のひとつの 130m 深度のボーリングコアには、断裂の表面がほとんど変質しておらず、緑泥石化も見られないような新鮮な断層破碎帯が見られた。原位置採水が不可能であったことなどを考慮すると、この深度付近の断層破碎帯には未だ応力が集中しており、断裂・裂隙としては完全に閉鎖していると考えられる。このことと、裂隙水の鉛直混合があまり起きていないことは調和的な結果である。103m と 136m の間の年代ギャップが 10000 年以上あるが、これらの深度に挟まれている 130m 深度で裂隙が閉鎖していると考えられることから、103m と 136m の間の水の混合が極端に少なく、年代値のギャップが大きくなったという可能性もある。

このような鉛直方向の混合が起こる頻度や程度は正確にはわからないが、裂隙水は、古くからトラップされていた成分と表層水や深部からの流体といった後からの混入成分が混ざり合って形成されていることがわかる。その混入の程度は、白沢サイトでは非常に小さいが、三春サイトでは無視できないほど大きい。この2地点は同一岩体であり、4~5km しか離れていないが、裂隙系の地下水の安定性は大きく異なることがわかった。一般に、 $\delta\text{D} \cdot \delta^{18}\text{O}$  がともに小さくなるのは、乾燥や寒冷の気候の時代であることが知られている。白沢サイトの深層に残されている低い  $\delta\text{D} \cdot \delta^{18}\text{O}$  は、例えば最終氷期といったような時代の水がトラップ

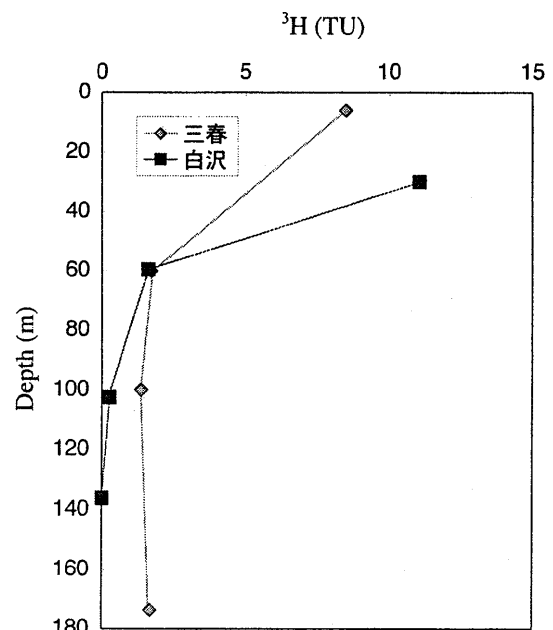


図5. トリチウム濃度の鉛直プロファイル  
Fig. 5 The vertical profiles of Tritium concentration.

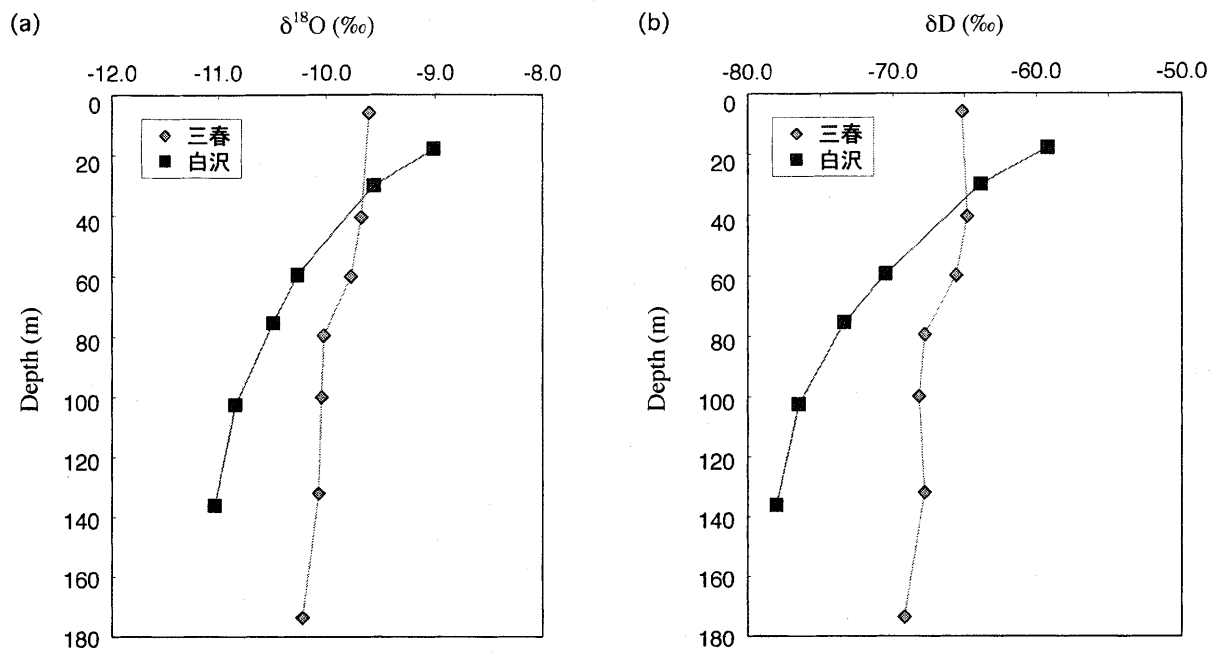


図6. 裂罅水の酸素 (a) -水素 (b) 同位体比の鉛直プロファイル  
 Fig. 6 The vertical profiles of  $\delta^{18}\text{O}$  and  $\delta\text{D}$  of sample water

されていることを示唆している。従って、裂罅水がトラップされてから数万年規模の時間が経過しているが、その後に徐々に水が入れ替わっているようなプロセスが考えられる。

## <sup>14</sup>C concentration of groundwater in cracks using the drilling survey -Case of granitic province-

\*Hiroshi A. Takahashi, Kohei Kazahaya, Akihiko Inamura, Hitoshi Tsukamoto, Noritoshi Morikawa,  
Masaya Yasuhara, Masaaki Takahashi (Geological Survey of Japan, AIST)

Toshio Nakamura, Tomoko Ohta and Etsuko Niu,  
(Center for Chronological Research, Nagoya University)

### Abstract

Chemical nature or origin of groundwater in cracks has been poor understood because of difficulties on collection of water samples preserving its natural conditions. Little is known on the quantification on stability and mean residence time of crack water also. We conducted a study on the flow parameter and/or processes of groundwater in cracks by drilling two bore holes for collection of water samples, and analysis using the the multi-isotopic approach. The drill sites have set in a granitic province called Abukuma in Fukushima prefecture, and drill holes 140m- and 180m-deep were made. In situ sampling of waters at 6 depths for each drill holes are done with the single or double packer method.

Chemical type of groundwater has changed at depth 40m, the shallower groundwater is categorized as Ca-HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> type with slight NO<sub>3</sub> contamination whereas deeper groundwater has Na-HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> type. Bicarbonate concentration becomes greater in deeper level suggesting that older groundwater is placed in deeper cracks. Stable isotope composition of water showed that all the sample water is meteoric origin. However, the δD at deeper level has significantly low values (20‰ lower than the present one). Obviously those groundwater do not originate from the present one.

The δ<sup>13</sup>C values of total dissolved carbon from two sites, Shirasawa and Miharu, show different profiles vertically. The δ<sup>13</sup>C profiles indicate that carbon at the Shirasawa site is derived from biogenic source, but that at the Miharu site is influenced from other sources, such as "crustal fluid" upwelling from a deep geologic environment. The contribution of crustal fluid can be canceled using the carbon isotopic mass balance, and the δ<sup>14</sup>C value of crack water excluding deep source contribution was evaluated. The apparent <sup>14</sup>C date calculated using the evaluated δ<sup>14</sup>C value is getting older to deeper depth at both sites.

At the Miharu site, the tritium is detected even at depth of 180m, indicating that relatively young water has mixed in the crack water. As the vertical profiles of δD and δ<sup>18</sup>O show the very small change, implying the vertical mixing of crack water, shallow surface water and deep crustal fluid. However, the result beyond the 10000 yrBP in the apparent <sup>14</sup>C date suggests that the carbon mixing does not frequently occurred.

As for the Shirasawa site, vertical profiles of δD and δ<sup>18</sup>O show large changes. The deeper the crack water, the lower the δD and δ<sup>18</sup>O values are represented. Groundwater with very low δD and δ<sup>18</sup>O values is likely recharged in an ice age. The apparent <sup>14</sup>C date also show that the older age of carbon in the crack water than 10000 or 20000 yrBP. The evidence shows that crack water can be trapped for a very long period even at shallow depth (80-180m).

---

\* Phone: +81-29-861-2486, Fax: +81-29-861-3749, e-mail: h.a.takahashi@aist.go.jp

研究発表等（平成 15 年度）

<誌上发表>

Takahashi, H. A., Kazahaya, K., Shinohara, H. and Nakamura, T. "Application of radiocarbon to detect a deep source CO<sub>2</sub> in soil air." NIMB, in press.

<学会発表>

Takahashi, H. A., Kazahaya, K., Shinohara, H., Morikawa, N. and Nakamura, T. "The spatial variation of volcanic carbon dioxide contribution in soil air at Unzen Volcano, SW Japan" 23rd General Assembly of the International Union of Geodesy and Geophysics, Sapporo, Jun. 30 – Jul. 1, 2003.

Takahashi, H. A., Kazahaya, K., Shinohara, H., Morikawa, N. and Nakamura, T. "Escape of magmatic carbon dioxide to soil air at Unzen Volcano, SW Japan: detection using isotopic signature" 18th International Radiocarbon Conference, Wellington, Sep. 1–5, 2003.

Takahashi, H. A., Kazahaya, K., Shinohara, H., Konohira, E. and Nakamura, T. "Carbon isotopic fractionation between soil air and emitted CO<sub>2</sub> from ground surface" 18th International Radiocarbon Conference, Wellington, Sep. 1–5, 2003.

高橋 浩・風早康平・篠原宏志・中村俊夫・森川徳敏・稲村明彦・安原正也「雲仙火山における地下水流動（3）：炭素同位体および土壌 CO<sub>2</sub> による考察」地球惑星科学関連学会 2003 年合同大会，幕張メッセ国際会議場，2003/05/26–29.