

花崗岩地域の地下水の地化学的特徴

佐々木宗建¹

Munetake Sasaki (2004) Geochemical features of groundwaters in granitoids. *Bull. Geol. Surv. Japan*, vol. 55(11/12), p.439 - 446.

Abstract: Geochemistry of groundwaters in granitoids of Japan and those of Baltic and Canadian shields was reviewed in order to construct a basis which is available for future extraction and investigation of thermal anomaly and hydrothermal waters in granitic areas without volcanic activity. Groundwaters in granitoids derived from meteoric water are generally Ca•Na-HCO₃ type, low in salinity (<1 g/l), slightly acidic to neutral and oxidized at shallow levels and Na-HCO₃ type, low in salinity, slightly alkaline (pH<10) and reduced at deep levels with the exception of more varied geochemistry at areas where fossil or present seawater has infiltrated or fluids derived from magma or hot rocks have been left. Groundwaters in the shields are generally Ca(•Na)-Cl type and highly saline (>300 g/l) at deep levels. The following tasks to be solved are necessary for more detailed understanding of geochemistry of groundwaters in granitoids: i) quantitative evaluation of water-rock interaction process using a geochemical simulator and ii) identification of origin, genesis and mobilization mechanisms for saline groundwaters at deep levels.

Keywords: Granitoids, groundwaters, shield brines, geochemistry.

要 旨

本邦及び北欧・北米の楕状地の花崗岩中に賦存する地下水の基本的な性状を文献調査により整理し、今後非火山性の花崗岩地域における熱・熱水の異常を抽出・評価するにあたっての、基礎を構築した。花崗岩中の天水起源の地下水は低塩濃度 (<1 g/l) であり、浅部では弱酸性・中性、酸化性、Ca・Na-HCO₃型の水質であるが、深部では弱アルカリ性 (pH < 10)、還元性、Na-HCO₃型の水質となる。ただし、過去に生じていた変質鉱物との相互作用や、海水・化石海水の流入あるいはマグマ・高温岩体由来する地下水の残留によっては、水質が多様化・高塩濃度化し得る。楕状地の花崗岩中の地下水は、深部で高塩濃度 (>300 g/l) のCa(・Na)-Cl型の水質である。花崗岩中の地下水の基本的な性状をより詳細に把握するためには、今後、1) 流体-岩石反応過程の定量的な検討と、2) 深部における高塩濃度の地下水の起源と成因及び移動機構についての検討とが、必要であると思われる。

1. はじめに

放射性核廃棄物の地層処分 (深度 < 1 km) が対象とする地域は、岩種を基に花崗岩地域と堆積岩地域とに大別される。このうち花崗岩地域を対象とした調査・研究は、海外では北米カナダ楕状地 (ホワイトシエル地域)、北欧バルティック楕状地 (スウェーデンのスト

リパ・エスポ両地域、フィンランドのオルキオト・オンカロ両地域) 及びアルプス造山帯 (スイスのグリムゼル地域) において、本邦では岩手県釜石・岐阜県東濃両地域において、進められている (島崎ほか, 1995; 吉田, 2003; Olsson, 2004)。楕状地の花崗岩は、先カンブリア時代に形成されたものであり、変動が少なく、力学的に強固で、かつ、透水性が低いと考えられ、また、ナチュラルアナログとしてのウラン鉱床の形成にも関係し (島崎ほか, 1995; 吉田, 2003)、深部には高塩濃度 (> 300 g/l) の地下水を賦存する場合がある (Fritz and Frape, 1987)。一方、アルプス造山帯を対象とされている花崗岩は、標高 1,700 m の山岳域に分布する約 2 億年前に形成された岩体であり、造山運動に伴う断層系の発達と流体流動の観点からの調査・研究が進められている (吉田, 2003)。これらに対し、本邦の花崗岩の多くは年代的に新しい白亜紀・第三紀の形成である (久城ほか, 1989)。また、本邦は大陸縁辺の島弧であり、プレートの沈み込みに伴う火山・地震活動の激しい造山帯に属するため、地下水の流動は地質構造や断層系に支配されて複雑であり、賦存する地下水は天水・海水・化石海水・地熱地帯におけるマグマや高温岩体由来するものなど様々であると考えられている (核燃料サイクル開発機構, 1999a)。

本稿では、文献調査を通じて、本邦及び楕状地の花崗岩中に賦存する地下水の基本的な性状を概観・整理し、それらをより詳細に理解・把握するための、流体地化学の観点からの今後の検討課題を抽出した。

¹地圏資源環境研究部門 (Institute for Geo-Resources and Environment, GSJ)

本稿での文献調査の結果は、非火山地域における熱・熱水の異常を今後抽出・評価する上で（風早ほか，2004；阪口・玉生，2004），基礎となることが期待される。

2. 花崗岩中の地下水の基本的な性状

花崗岩の表層部は一般に風化作用（物理・化学・生物学的）を被っている（歌田，1995；千木良，2002）。花崗岩の風化作用と降水起源の地下水の性状変化との関係は多数の解説書にまとめられている（例えば，北野，1975；ホランド，1979；半谷，1988；鹿園，1997；日本地下水学会，2000；アンドリュースほか，2003）。近年，井戸水に関するデータの収集・解析（瀬尾・清水，1992）や調査研究用の深部坑井の掘削・調査（核燃料サイクル開発機構，1999a）が進み，本邦における地下約1 kmまでに賦存する降水起源の地下水の性状が明らかにされつつある。また，地下水のpHと酸化還元状態は，放射性廃棄物のキャニスターの耐久性に影響を及ぼすため，それらの推定・把握が，地層処分におけるニアフィールドでの課題となっている（核燃料サイクル開発機構，1999a）。

以下に，花崗岩の化学的風化と降水起源の地下水の性状の深度変化との関係を取りまとめた。

2.1 造岩鉱物の化学的風化の過程

花崗岩とは，カリ長石・斜長石・石英及び有色鉱物を主成分とする優白質粗粒完晶質岩と定義され，磁鉄鉱・チタン鉄鉱・黄鉄鉱・燐灰石・ジルコンなどの副成分を伴う。また，花崗岩は過去に変質作用（続成・熱水）を被っており，炭酸塩鉱物・硫化物・硫酸塩鉱物・沸石類・フッ化物などの種々の変質鉱物を伴う。一般に，造岩鉱物の化学的風化に対する抵抗力は，高温で晶出した鉱物で弱く，低温で晶出した鉱物で強い。そのため，地表水が花崗岩へ流入すると，斜長石が溶解してスメクタイト，イライト，カオリナイト，ギブサイトを，黒雲母が溶解して加水黒雲母，パーミキュライトまたはスメクタイト，カオリナイト，ギブサイトをそれぞれ順に生成する（木宮，1975；日本地下水学会，2000）。斜長石はCaに富むものの方がNaに富むものよりも変質しやすい（鹿園，1999）。また，カリ長石と石英とは風化が相当に進行しても残存している（北川，1999）。このような風化鉱物の生成順序は，結晶粒間や空隙の分布など花崗岩の岩石としての物理的性質に強く依存するので，例えば斑レイ岩中の角閃石が花崗岩中の長石より風化され難いなど，相違を生じる場合がある（八田，1990）。本邦における風化帯の厚さは，現在形成されつつあるものでは土壌の下に数10 cm程度の発達認められるのみであるが，中新世・鮮

新世の頃の高温・多雨な気候下で形成されたと考えられる化石風化殻では表層から数10 mに達するもの（木宮，1975，1991）や200 mに達するもの（徳山，1993）が認められている。

2.2 地下水の水質形成過程

本邦における降水は一般に，溶存成分量が数 mg/l 程度であり，大気中の二酸化炭素や酸素とは平衡状態にある（建設産業調査会，1998）。ただし，酸性雨・風成塵あるいは蒸発海水の影響を受けた降水では，溶存成分量が数10 mg/l程度にまで増加している（玉置ほか，1991）。降下して河川水や湖水となった地表水は，土壌・地層・岩石中の成分を溶出し，その溶存成分量を100 mg/l程度にまで増加する（建設産業調査会，1998；日本地下水学会，2000）。地表水の水質は一般に，陽イオンでは $\text{Ca} > \text{Na} > \text{Mg}$ ，陰イオンでは $\text{HCO}_3 > \text{SO}_4 > \text{Cl}$ である（北野，1975）。花崗岩へ流入した地表水は，最表層ではCa・Mg- HCO_3 型の水質を示し（金井ほか，1998），深部へ向かつてはCa・Na- HCO_3 型を経て，Na- HCO_3 型の水質へと変化する（核燃料サイクル開発機構，1999a）。本邦の井戸水では，Ca・Na- HCO_3 型からNa- HCO_3 型への水質変化は深度約200 m以深に認められる（瀬尾・清水，1992）。この水質変化の間に地下水のpHは，大気中の二酸化炭素と平衡にある弱酸性から，弱酸性・中性（Ca・Na- HCO_3 型に対応）を経て，弱アルカリ性（ $\text{pH} < 10$ ，Na- HCO_3 型に対応）へと上昇する（核燃料サイクル開発機構，1999a）。

地下水のCa・Na- HCO_3 型への水質変化は，斜長石の溶解によるCa・Na成分の増加とスメクタイトの生成によるMg成分の低下に，Na- HCO_3 型への水質変化は，(i) 増加したCa成分と地下水中の HCO_3 成分との反応による方解石の沈殿に伴うCa（・ HCO_3 ）濃度の低下，及び，(ii) スメクタイトとのイオン交換によるCa濃度の低下・Na濃度の上昇に，起因すると考えられている（一國ほか，1982；半谷，1988；笹本ほか，1996；鹿園，1999）。花崗岩中に過去の変質作用によって方解石が生成している場合には，地下水がこれを溶解してCaと HCO_3 濃度を上昇するため，Ca・Na- HCO_3 型地下水の形成に寄与する（White *et al.*，1999）。この方解石の溶解は，その溶解速度が珪酸塩鉱物に比較して数オーダー速い（Rimstidt，1997）ことから，地下水の流入の比較的早期に生じると推定される。また，花崗岩中に沸石類が生成しているとCa・Na成分のイオン交換反応を通じてNa- HCO_3 型地下水の形成に寄与し（大木・平野，1967；笹本ほか，1996），また，有色鉱物が多い場合にはそれらの溶解によって地下水中のMgと SiO_2 濃度とが増加すること（玉利ほか，1988；鹿園，1999）が知られている。

2.3 地下水の酸化還元過程

地表水は大気中の酸素の溶存によって酸化的環境下にあるが、地下水は還元的環境下にあると推定されている (Stumm and Morgan, 1996). 東濃・釜石両地域では、花崗岩中の地下水の酸化還元状態が坑井や坑道を用いて原位置で測定され、地下水の酸化還元反応機構が具体的に検証されている (核燃料サイクル開発機構, 1999a). これらの両地域での地下水の酸化還元反応には、(1) 鉄が関与する過程 (黄鉄鉱・磁鉄鉱の溶解・酸化による赤鉄鉱や水酸化鉄の生成と二価鉄を含む緑泥石による緩衝: $E_h = \text{約} 0 \text{ mV}$) と、(2) 硫黄が関与する過程 (磁鉄鉱の酸化を介した地下水中の硫酸イオンの水硫イオンへの変化: $E_h = -260 \sim -385 \text{ mV}$) とがあり、両過程には鉄還元菌と硫酸還元菌による微生物学的作用が関係している. 鉄の化学種による酸化還元反応は風化作用が著しい深度において、硫黄の化学種による酸化還元反応は Na-HCO_3 型地下水が賦存する深度において、それぞれ卓越している.

2.4 地下水の滞留年代

花崗岩中の地下水の滞留年代は、地下水や鉱物中の放射性同位元素の濃度比や、地下水中の地化学成分の濃度変化などを基に、推定されている. 放射性同位元素を基いた推定値としては、恵那山トンネル (被り深さ $0.5 \sim 1 \text{ km}$) で採取された地下水で $4 \sim 7$ 千年 (石橋・山田, 1986), 釜石地域 (深度 $300 \sim 500 \text{ m}$) の地下水で $1 \sim 3$ 千年 (核燃料サイクル開発機構, 1999b), 東濃地域 (深度 1 km 付近) の地下水で約 1 万年のオーダー (核燃料サイクル開発機構, 1999a) などがある. また、地下水中の地化学成分の濃度変化を基にした事例として、地下水が石英やオパールと化学的平衡に到達する時間を約 $3 \sim 300$ 年と試算し、採取した地下水がこれらの鉱物に飽和しているか否かを検討し、滞留年代が試算値より新しいか古いかを判断した例 (鹿園, 1999), などがある.

2.5 地下水の性状の多様化

花崗岩中の地下水の性状を前述以上に多様化させる機構として、(1) 過去に生じていた変質鉱物との相互作用、(2) 海水・化石海水の流入あるいは (3) 地熱地帯におけるマグマ・高温岩体由来の地下水の残留、などが考えられる. 以下に若干の事例を示す.
(1) 過去に生じた変質鉱物との相互作用の事例として、花崗岩中に生成していた硫化鉱物を地下水が溶解・酸化することで SO_4 型に水質変化することが知られている (森田ほか, 1991).
(2) 海水・化石海水を起源とする地下水は、海岸部・島嶼部及び周囲に海成層が分布する地域の花崗岩中に流入・賦存することがあると考えられる. このうち化石

海水の性状は変化に富み (Sakai and Matsubaya, 1974), 例えば、東濃地域の花崗岩中の化石海水は Na-Cl 型の水質 (塩濃度 $< 1,550 \text{ mg/l}$) であるが (核燃料サイクル開発機構, 2003), 群馬県下谷川温泉は化石海水が、グリーンタフ中の硬石膏を溶脱して花崗岩へと流入し湧出しているために $\text{Ca} \cdot \text{Na-SO}_4 \cdot \text{Cl}$ 型の水質 (塩濃度 $< 1,700 \text{ mg/l}$) を示している (酒井・松葉谷, 1985).

(3) マグマ・高温岩体由来の温泉・鉱泉水の性状は多種多様であり (Sasada *et al.*, 2000), 熱水活動の時空間的な変遷によっても変化する (Shinohara, 1994). 高温の花崗岩やその近傍に賦存する流体は、浅部では高塩濃度の液相と低塩濃度の気相とに分離しており (Fournier, 1987), 深部では $0.4 \sim 40 \text{ wt\%}$ あるいはそれ以上と様々な塩濃度で CO_2 成分に富む (Roedder, 1984) と推定されている. 実際に、岩手県葛根田地域では熱源花崗岩の内部 ($> 2 \text{ km}$, $> 500^\circ\text{C}$) から高塩濃度 ($55 \text{ wt\%}$) の流体が採取されている (Kasai *et al.*, 1998).

2.6 地表水からの地下水の水質形成過程の推定

前述したように、花崗岩中の降水起源の地下水は基本的に、浅部では弱酸性・中性の $\text{Ca} \cdot \text{Na-HCO}_3$ 型であり、深部では弱アルカリ性の Na-HCO_3 型である. そのため、花崗岩地域では、以下に述べるように、地表水から地下水の水質形成過程が推定できる. Garrels (1967) は、花崗岩の風化を斜長石のモンモリロナイト化とカオリナイト化で近似し、原岩中の斜長石の組成に応じて形成される地下水の Na/Ca 成分比と $\text{HCO}_3/\text{SiO}_2$ 成分比が異なることを指摘した. 一方、スメクタイトによる $\text{Ca} \cdot \text{Na}$ 成分のイオン交換反応が地下で卓越している場合には、Garrels (1967) に推定されるより高い濃度の Na 成分が検出される (例えば、六甲山地のトンネル湧水: 笠間・鶴巻, 1971; 鈴鹿・布引山地のトンネル湧水: 三木・吉沢, 1977). また、White *et al.* (1999) は、地表水の $\text{Ca} (\cdot \text{HCO}_3)$ 成分が多い場合には、浅部における方解石の風化溶解が卓越していること、溶存する Ca と Na 成分が原岩中の斜長石の組成に対応している場合には、方解石の選択的溶解が生じ難い透水性の低い深部において斜長石の風化溶解が卓越していると推定できることを示した. したがって、これらを参考に、地下水の水質形成過程が、浅部における方解石の溶解であるのか、深部における斜長石の風化 (モンモリロナイト化やカオリナイト化) であるのか、あるいは、スメクタイトによるイオン交換反応であるのかを、地表水から推定することができる.

また、地下水への CO_2 ガスの供給が多い地域では、 $\text{CO}_2 - \text{HCO}_3$ 成分間の緩衝によって地下水の pH (< 8) が低く維持されるので、 $\text{Ca} \cdot \text{Na-HCO}_3$ 型地下水が形成

されやすい(六甲山地:笠間・鶴巻, 1971). これに対し, CO_2 ガスの供給が少ない地域では, Na-HCO_3 型地下水が形成されやすい(例えば, 山梨県富士川上流:高松ほか, 1981;阿武隈山地:一国ほか, 1982). そのため, 前者の水質が特徴的に認められる花崗岩地域では, 化学的風化の過程で形成された地下水が湧出しているのか, 降水以外の起源の CO_2 ガスが地下水層に供給されているのかに, 留意する必要がある. 両者を正確に区別するためには, 当該地域における地表水の地化学成分の変動範囲を情報収集し, また, 地表水や変質鉱物についての各種同位体や微量成分元素の調査・研究を行い(例えば, 東濃地域の方解石: Iwatsuki *et al.*, 2002; 六甲山地の湧水: Nakajima and Terakado, 2003), 流体-岩石反応過程に関する実験・解析結果(例えば, 主成分: Savage *et al.*, 1993; 同位体: Zuddas *et al.*, 1995, Seimille *et al.*, 1998)などを参考に, 検討を行う必要がある.

3. 楯状地の地下水の性状

バルティック・カナダ両楯状地の花崗岩の深部に賦存する地下水は, 非常に高塩濃度 (>300 g/l), $\text{Ca}(\cdot\text{Na})\text{-Cl}$ 型の水質, 及び, 酸素・水素同位体比が海水より軽いかつ水素同位体比が天水より重いこと, を特徴とする (Fritz and Frape, 1987). この地下水の産状及び起源と成因の詳細を以下にまとめた.

3.1 高塩濃度の地下水の産状

バルティック楯状地には以下の4種類の地下水が賦存していると考えられている (Nurmi *et al.*, 1988; Laaksoharju *et al.*, 1999). すなわち, (1) 表層に賦存する天水起源の低塩濃度の $\text{Ca} \cdot \text{Na-HCO}_3 \cdot \text{SO}_4 \cdot \text{Cl}$ 型の地下水, (2) 氷河期の融水, (3) 沿岸部 (深度 50 ~ 200 m) に賦存する完新世頃の残留海水を起源とするやや高塩濃度 ($1 \sim 10$ g/l 及び > 10 g/l) の $\text{Ca} \cdot \text{Na-Cl}$ 型の地下水, 及び, (4) 内陸部の深部に賦存する $\text{Na} \cdot \text{Ca}(\cdot\text{Mg}) \cdot \text{Cl}(\cdot\text{SO}_4)$ 成分に富む高塩濃度の地下水, である. 内陸部の深部に賦存する高塩濃度の地下水は, さらに次の3つに細分される (Nurmi *et al.*, 1988). (i) 深度 300 ~ 900 m に賦存し天水や氷河融水との混合によって低塩濃度化 ($1 \sim 10$ g/l 及び > 10 g/l) した地下水, (ii) 深度 1 ~ 2 km に賦存する滞留性と推定される高塩濃度 (< 40 g/l) の地下水, (iii) コラ半島の先カンブリア時代 - 古生代の堆積岩を起源とする変成岩中に掘削されたロシアの超深度掘削井 (Kola-SG3) で採取された, 更に深部 (深度 < 12 km, 温度 < 200 °C) に賦存する非常に高塩濃度 (< 300 g/l) の地下水, である. これら高塩濃度の各地下水間の遷移境界は比較的シャープである (Nurmi *et al.*, 1988). 内陸部に位

置するスウェーデン・ストリパ地域の花崗岩では, 浅部 (< 300 m) の地下水は低塩濃度 (< 230 mg/l) で Ca-HCO_3 型, 深部 (0.7 ~ 1.2 km) の地下水は高塩濃度 ($< 1,250$ mg/l) で $\text{Na} \cdot \text{Ca-Cl}$ 型である (Nordstrom *et al.*, 1989). これに対し, 沿岸部に位置するエスポ地域では, 天水・氷河融水・海水・深部に賦存する高塩濃度の地下水が認められている (Laaksoharju *et al.*, 1999). また, ロシアの超深度掘削井で明らかにされた地下水性状は以下のものであった (Kozlovsky, 1984). 地表下 800 m (緑色片岩相) までは天水起源で塩濃度は 1 g/l 以下であり, その上部では Ca-HCO_3 型, 下部では $\text{Ca-Cl} \cdot \text{SO}_4$ 型であった. 深度 0.8 ~ 4.5 km (緑れん石・角閃石相) では塩濃度 50 ~ 150 g/l, $\text{Ca} \cdot \text{Na-Cl}$ 型, 深度 4.5 ~ 5.9 km (緑れん石・角閃石相) では CO_2 ガスを伴い塩濃度 200 ~ 300 g/l, Ca-Cl 型, 深度 5.9 ~ 6.9 km (緑れん石・角閃石相) では CO_2 ガスを伴い塩濃度 300 g/l 以上, Na-Cl 型であった. 深度 6.9 km 以深では塩濃度 (< 300 g/l) が低下し, 深度 6.9 ~ 9.2 km (緑れん石・角閃石相) では $\text{Na} \cdot \text{Ca-Cl}$ 型, 深度 9.2 km 以深 (緑れん石・角閃石相及び角閃岩相) では $\text{Ca} \cdot \text{Mg} \cdot \text{Na-Cl}$ 型であった.

一方, カナダ楯状地の花崗岩中に賦存する地下水は, 深度 200 m 以浅では塩濃度約 1 g/l で Ca-HCO_3 型, 深度約 1 km 付近までの高角断裂中では塩濃度 10 g/l までの $\text{Na} \cdot \text{Ca-HCO}_3$ 型あるいは $\text{Ca} \cdot \text{Na-HCO}_3$ 型, 深度約 2 km 付近までの低角の断層やせん断帯では非常に高塩濃度 (> 300 g/l) で $\text{Ca} \cdot \text{Na-Cl}$ 型を示す (Frape *et al.*, 1984; Frape and Fritz, 1987). この塩濃度の深度方向の変化のメカニズムは, 岩盤の透水性が浅部の 10^{-9} m/s 以上から深度 1,000 m 付近までの $10^{-13} \sim 10^{-11}$ m/s へと低下することから, 浅部 (深度 300 m まで) では移流, 深部 (深度 300 m 以深) では濃度拡散によると推定されている (Gascoyne *et al.*, 1987).

3.2 高塩濃度の地下水の起源と成因

楯状地の花崗岩中の高塩濃度の地下水の起源と成因について, 80 年代には, 原地性 (autochthonous) と外来性 (allochthonous) の両方の可能性が考えられていた (Fritz and Frape, 1987). 原地性での地下水の高塩濃度化の機構としては, 流体-岩石反応に伴う造岩鉱物の水和・Cl 成分の溶出や流体包有物の内容物の溶出・放射性元素を含む造岩鉱物による間隙水の放射性壊変が (Nordstrom *et al.*, 1989), 一方, 外来性の高塩濃度化の機構としては, 堆積盆の高塩濃度の地下水の流入・古生代や中生代の海水の流入・先カンブリア時代の熱水や変成水の残留・マントル由来の流体の流入など (Kozlovsky, 1984; Frape and Fritz, 1987; Nurmi *et al.*, 1988; Bottomley *et al.*, 1994) がそれぞれ考えられていた. 90 年代になると, 楯状地の地下

水の調査・研究が進み、高塩濃度の地下水は、原地性の機構で生成するにはその賦存量があまりに多量であり、また、その水質が岩相にも地域にも関係なく相互に類似していることが判明し、外来性(海水に由来)であるとの見方が優勢になった(Bottomley *et al.*, 1999; Kloppmann *et al.*, 2002)。高塩濃度のCa-Cl型地下水は、楯状地のみでなく堆積盆(Hanor, 1994)や南極大陸(Matsubaya *et al.*, 1979)にも賦存し、その高塩濃度化の機構として蒸発岩の溶解、海水の蒸発あるいは凍結、泥岩によるろ過の効果などが推定されていた(Rosenthal, 1997)。これらの機構のうち海水の蒸発と凍結の過程はNa/Cl-Br/Cl成分比で区別することができ、Herut *et al.* (1990)は楯状地の地下水の成分比は海水の凍結で高塩濃度化した傾向を示すことを指摘した。一方、Bottomley *et al.* (1994)は、Br/Cl比とBr同位体比の検討を基に、楯状地の高塩濃度の地下水は古生代(デボン紀)に海水の蒸発残液が流入したものであると推定した。最近では、断裂系の水理学的な調査・研究結果を踏まえて、更新世に大陸氷河の縁辺部で凍結によって高塩濃度化した海水が、氷河の下底部に沿って内陸部へと進入し、重力沈降によって形成された断裂系を通じて深部へと浸透した、との見解が提示されている(Starinsky and Katz, 2003)。

3.3 高塩濃度の地下水の水質形成過程

高塩濃度の地下水の水質は、酸素やSr同位体比の検討を基に、低温下における二次的な変質鉱物との相互作用によって形成されたと推定されている(Frape *et al.*, 1984)。高塩濃度の地下水は海水に比べてCa成分が多く、MgとK成分が少ない(Frape *et al.*, 1984; Frape and Fritz, 1987)。そのため、海水を起源とする地下水からの高塩濃度のCa($\cdot$ Na)-Cl型地下水への変化は、海水の蒸発または凍結による高塩濃度化、凍結の場合にはミラバイト及びハイドロハライトの析出によるNa成分の低下(Herut *et al.*, 1990; Bottomley *et al.*, 1999)、アルバイト化によるNa成分の固定、アルバイト化及びドロマイイト化によるCa成分の放出、緑泥石化によるMg成分の低下(Bottomley *et al.*, 1999)、スメクタイトのイライト化と二次的な長石の生成及び粘土鉱物への吸着によるK成分の低下(Bottomley and Clark, 2004)、などに起因したと考えられている。カナダ楯状地の深部に賦存する高塩濃度の地下水は、Ca濃度は浅部では方解石に、深部では石膏に、活動的断層ではドロマイイト-アンケライトに、非常に高塩濃度のものでは塩化カルシウム水和物によってコントロールされ、Mg濃度は原岩組成と緑泥石の生成によって、Na濃度は曹長石化や粘土鉱物の生成によってコントロールされていると推定されている(Frape *et al.*, 1984)。

3.4 高塩濃度の地下水の酸素・水素同位体比の特徴

高塩濃度の地下水の酸素・水素同位体比の端成分は、 $\delta D = -20 \sim 0\%$ 、 $\delta^{18}O = -10 \sim -7\%$ 、と推定されている(Frape and Fritz, 1987)。Clark and Fritz (1999)は、このような酸素・水素同位体比の特徴は、岩石中の珪酸塩鉱物の水和によって形成されたと推定した。また、Kloppmann *et al.* (2002)は、その特徴が岩相や全岩組成あるいは地下水の塩濃度とは関係しないようにみえることから、岩石全体ではなく断裂中の特定の鉱物組み合わせによってコントロールされていると推定した。そこで、Kloppmann *et al.* (2002)は、地化学的な数値計算を基に海水が酸素同位体比を低下しかつ水素同位体比を増減する過程を検討し、低温下における、スメクタイトやカリ長石の溶解とこれに伴うカオリナイトや水酸化鉄の沈殿、あるいは、方解石の溶解とドロマイイトの沈殿など、変質鉱物の溶解と晶出のベアーによる、地下水の酸素・水素同位体比の特徴の形成を示唆している。

4. 今後の検討課題—まとめにかえて—

本稿では、文献調査を通じ、本邦及び北欧・北米の楯状地の花崗岩中に賦存する地下水の基本的な性状をとりまとめた。すなわち、花崗岩中の地下水が降水起源の場合には、浅部では弱酸性・中性のCa $\cdot$ Na-HCO₃型で酸化的状態にあり、深部では弱アルカリ性のNa-HCO₃型で還元的状态にある。この基本的な性状は、過去に生じていた変質鉱物との相互作用、海水や化石海水の流入、あるいは、マグマ・高温岩体に由来する地下水の残留によって、多様化・高塩濃度化し得る可能性がある。また、楯状地では深部に高塩濃度のCa($\cdot$ Na)-Cl型地下水が賦存している。本邦における花崗岩中の地下水性状の多様化・高塩濃度化の可能性とその過程をより詳細に明らかにするためには、以下のような検討が今後必要であると思われる。

(1) 地下水性状の多様化の範囲の検討

花崗岩地域における降水起源の地下水の性状は、珪酸塩鉱物の溶解と変質鉱物の生成、粘土鉱物や沸石類によるイオン交換反応、方解石を代表とする過去に生じていた変質鉱物との相互作用、及び、鉄や硫黄種による酸化還元反応などによって形成されている。そのため、地域あるいは水系毎に地下水性状と造岩・変質鉱物の産状・種類を文献調査し、地化学シュミレータを用いるなどして、上述のような流体-岩石反応過程を定量的に把握し、地下水性状がとり得る多様化の範囲を整理する必要がある。

(2) 深部における高塩濃度の地下水の賦存の可能性の検討

熱・熱水の異常が認められない非火山性の花崗岩地

域であっても、地質・水文学的履歴によっては、海水・化石海水の流入あるいはマグマ・高温岩体に由来する地下水の残留によって、深部で地下水が高塩濃度化している可能性がある。そのような高塩濃度の地下水が実際に深部に賦存しているか否かを推定するためには、地下水の塩濃度や電気伝導度などの深度プロファイルを文献調査し、深度や温度に応じた高塩濃度の地下水の移動機構を整理し、合わせ高塩濃度の地下水の起源と成因とを整理する必要がある。

謝辞：本稿は、原子力発電環境整備機構の産業技術総合研究所への委託研究の研究成果を修正・再構成したものである。ここに記して謝意を表する。また、このような情報収集の機会を与えて下さった産業技術総合研究所の玉生志郎氏、参考文献について御助言下さった同所の茂野 博氏、情報収集に御協力下さったK2エンジニアリング株式会社の笠井加一郎氏、並びに、査読を通じて原稿の構成や最新の情報をご助言・ご教示下さった同所の高橋正明氏に、厚くお礼申し上げます。

文 献

- アンドリュース, J.・プリンプルコム, P.・ジッケルズ, T.・リス, P. (2003) 地球環境化学入門 (渡辺正訳). シュプリンガー, 264p.
- Bottomley, D. J. and Clark, I. D. (2004) Potassium and boron co-depletion in Canadian Shield brines: evidence for diagenetic interactions between marine brines and basin sediments. *Chem. Geol.*, **203**, 225-236.
- Bottomley, D. J., Gregoire, D. C. and Raven, K. G. (1994) Saline groundwaters and brines in the Canadian Shield: Geochemical and isotopic evidence for a residual evaporate brine component. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **58**, 1483-1498.
- Bottomley, D. J., Katz, A., Chan, L. H., Starinsky, A., Douglas, M., Clark, I. D. and Raven, K. G. (1999) The origin and evolution of Canadian Shield brines: evaporation or freezing of seawater? New lithium and geochemical evidence from the Slave craton. *Chem. Geol.*, **155**, 295-320.
- 千木良雅弘 (2002) 群発する崩壊. 近未来社, 228p.
- Clark, I. D. and Fritz, P. (1999) Environmental Isotopes in Hydrogeology. *Levis, CRC Press*, 328p.
- Fournier, R. O. (1987) Conceptual models of brine evolution in magmatic-hydrothermal systems. *USGS Prof. Paper*, **1350**, 1487-1506.
- Frape, S. K. and Fritz, P. (1987) Geochemical trends for groundwaters from the Canadian Shield. In Fritz, P. and Frape, S. K., eds., *Saline Water and Gases in Crystalline Rocks* (Geological Association of Canada Special Paper, no. 33), 19-38.
- Frape, S. K., Fritz, P. and McNutt, R. H. (1984) Water-rock interaction and chemistry of groundwaters from the Canadian Shield. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **48**, 1617-1627.
- Fritz, P. and Frape, S. K., eds. (1987) *Saline Water and Gases in Crystalline Rocks* (Geological Association of Canada Special Paper, 33).
- Garrels, R. M. (1967) Genesis of some ground waters from igneous rocks. In Abelson, P. H. ed., *Researches in Geochemistry*, vol. 2 (John Wiley & Sons, Inc.), 405-420.
- Gascoyne, M., Davison, C. C., Ross, J. D. and Pearson, R. (1987) Saline groundwaters and brines in plutons in the Canadian Shield. In Fritz, P. and Frape, S. K., eds., *Saline Water and Gases in Crystalline Rocks* (Geological Association of Canada Special Paper, no. 33) 53-68.
- Hanor, J. S. (1994) Origin of saline fluids in sedimentary basins. In Parnell, J., ed., *Geofluids: Origin, Migration and Evolution of Fluids in Sedimentary Basins* (Geological Society Special Publication, no. 78) 151-174.
- 半谷高久 (1988) 地球化学入門, 丸善株式会社, 211p.
- 八田珠郎 (1990) 風化の化学—野外と実験室—. 化学と鉱業, **43**, 247-252.
- Herut, B., Strinsky, A., Katz, A. and Bein, A. (1990) The role of seawater freezing in the formation of subsurface brines. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **54**, 13-21.
- ホランド (1979) 大気・河川・海洋の化学—環境科学特論— (山県 登訳). 産業図書株式会社, 318p.
- 一国雅己・鈴木励子・鶴見 実 (1982) 水—岩石相互作用の生成物としてのアルカリ性鉱泉水. 地球化学, **16**, 25-29.
- 石橋弘道・山田憲夫 (1986) トンネル湧水の湧出機構と水質—恵那山トンネルの場合—. ハイドロロジー, **16**, 18-26.
- Iwatsuki, T., Satake, H., Metcalfe, H., Yoshida, H. and Hama, K. (2002) Isotopic and morphological features of fracture calcite from granitic rocks of the Tono area, Japan: a promising paleohydrogeological tool. *Applied Geochemistry*, **17**, 1241-1257.
- 核燃料サイクル開発機構 (1999a) わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第2次取りまとめ—. サイクル機構

- 技術資料, JNC TN1410 99-020-024.
- 核燃料サイクル開発機構 (1999b) 釜石原位置試験総括報告書. JNC TN7410 99-001.
- 核燃料サイクル開発機構 (2003) 高レベル放射性廃棄物の地層処分技術に関する研究開発—平成14年度報告—. JNC TN1400-2003-004.
- 金井 豊・関 陽児・上岡 晃・金沢康夫・月村勝宏・濱崎聡志・中嶋輝允 (1998) 水と表層物質の相互作用による水質について—福島・茨城県における湧水・地表水の調査例—. 地質調査所月報, **49**, 425-438.
- Kasai, K., Sakagawa, Y., Komatsu, R., Sasaki, M., Akaku, K. and Uchida, T. (1998) The origin of hypersaline liquid in the Quaternary Kakkonda Granite, sampled from well WD-1a, Kakkonda geothermal system, Japan. *Geothermics*, **27**, 631-645.
- 笠間太郎・鶴巻道二 (1971) 六甲山地のトンネル湧水状況とその水質. 応用地質, **12**, 16-28.
- 風早康平・安原正也・高橋正明 (2004) 熱水と地下水—地質の長期安定性評価への課題—. 月刊地球, **26**, 423-429.
- 建設産業調査会 (1998) 改定地下水ハンドブック. 1503p.
- 木宮一邦 (1975) 花こう岩類の物理的風化指標としての引張強度—花こう岩の風化・第1報—. 地質学雑誌, **81**, 349-364.
- 木宮一邦 (1991) 地質学から見た岩石風化. 応用地質, **32**, 22-31.
- 北川隆司 (1999) 花崗岩のマサ化のメカニズムと斜面崩壊. 粘土科学, **39**, 37-44.
- 北野 康 (1975) NHKブックス92, 水の科学. 日本放送出版協会, 205p.
- Kloppmann, W., Girard, J.-P. and Negrel, P. (2002) Exotic stable isotope compositions of saline waters and brines from the crystalline basement. *Chem. Geol.*, **184**, 49-70.
- Kozlovsky, Y. A. (1984) *The Superdeep Well of the Kola Peninsula*. Springer-verlag, New York, 558p.
- 久城育夫・荒巻重雄・青木謙一郎 (1989) 日本の火成岩. 岩波書店. 206p.
- Laaksoharju, M., Tullborg, E.-L., Wikberg, P., Wallin, B. and Smellie, J. (1999) Hydrological conditions and evolution at the Aspo HRL, Sweden. *Applied Geochemistry*, **14**, 835-859.
- Matsubaya, O., Sakai, H., Torii, T., Burton, H. and Kerry, Knowles (1979) Antarctic saline lakes—stable isotopic ratios, chemical compositions and evolution. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **43**, 7-25.
- 三木一美・吉沢 甫 (1977) トンネル湧水の水質分析によるその発生形態同定について. 土木学会論文報告集, **265**, 47-60.
- 森田誠也・島田 純・長 久 (1991) 深部結晶質岩中の地下水の化学的特性とその挙動(その1)—岩手県釜石鉾山大峰地域における地下水の水質と分類—. 応用地質, **32**, 11-22.
- Nakajima, T. and Terakado, Y. (2003) Rare earth elements in stream waters from the Rokko granite area, Japan: effect of weathering degree of watershed rocks. *Geochem. Jour.*, **37**, 181-198.
- 日本地下水学会 (2000) 地下水水質の基礎 "名水から地下水汚染まで". 理工図書, 189p.
- Nordstrom, D. K., Ball, J. W., Donahoe, R. L. and Whitmore, D. (1989) Groundwater chemistry and water-rock interactions at Stripa. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **53**, 1727-1740.
- Nurmi, P. A., Kukkonen, I. T. and Lahermo, P. W. (1988) Geochemistry and origin of saline groundwaters in the Fennoscandian Shield. *Applied Geochemistry*, **3**, 185-203.
- Olsson, O. (2004) The role of the Aspo hard rock laboratory, a generic URL, in the Swedish radioactive waste management programme. *Abstracts, international conference on JNC underground research laboratory project in Mizunami and Horonobe, Japan*, 1-5.
- 大木靖衛・平野富雄 (1967) 炭酸物質を含む溶液系でのCa-沸石と方解石の安定関係. 柴田秀賢教授退官記念論文集, 168-174.
- Rimstidt, J. D. (1997) Gangue mineral transport and deposition. In Barnes, H. L. (ed.), *Geochemistry and Hydrothermal Ore Deposits* (3rd ed.) (John Wiley & Sons, New York), 487-515.
- Roedder, E. (1984) Fluid Inclusions (*Reviews in Mineralogy*, no. 12). *Mineralogical Society of America*, 646p.
- Rosenthal, E. (1997) Thermomineral waters of Ca-chloride composition: review of diagnostics and of brine evolution. *Environmental Geol.*, **32**, 245-250.
- Sakai, H. and Matsubaya, O. (1974) Isotopic geochemistry of the thermal waters of Japan and its bearing on the Kuroko ore solutions. *Econ. Geol.*, **69**, 974-991.
- 酒井幸子・松葉谷治 (1985) 群馬県下谷川温泉の地化学的特徴およびその起源. 日本地熱学会誌, **7**, 99-110.
- 阪口圭一・玉生志郎 (2004) 熱水系が地層処分地に及

- ぼす影響評価のための基礎研究. 月刊地球, **26**, 430-436.
- Sasada, M., Taguchi, S. and Hedenquist, J. W., eds. (2000) Special Issue, Japanese Geothermal Systems Developments in the 1990s. *Geothermics*, **29**, 123-311.
- 笹本 広・瀬尾俊弘・油井三和・佐々木康雄 (1996) 釜石鉱山における地下水の地球化学的研究 (I). 動力炉・核燃料開発事業団, PNC TN8410 96-203.
- Savage, D., Bateman, K., Milodowski, A. E. and Hughes, C. R. (1993) An experimental evaluation of the reaction of granite with streamwater, seawater and NaCl solutions at 200°C. *Jour. Volcano. Geotherm. Resear.*, **57**, 167-191.
- Seimbille, F., Zuddas, P. and Michard, G. (1998) Granite-hydrothermal interaction: a simultaneous estimation of the mineral dissolution rate based on the isotopic doping technique. *Earth, Planet., Sci., Lett.*, **157**, 183-191.
- 瀬尾俊弘・清水和彦 (1992) 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, JNC TN7410 92-017.
- 鹿園直建 (1997) 地球システムの化学. 東京大学出版会, 319p.
- 鹿園直建 (1999) 鉱物-雨水・地下水反応による地下水の水質形成と風化作用の解釈. 粘土科学, **38**, 145-152.
- 島崎英彦・新藤静夫・吉田鎮男 (1995) 放射性廃棄物と地質科学. 東京大学出版会, 389p.
- Shinohara, H. (1994) Exsolution of immiscible vapor and liquid phases from a crystallizing silicate melt: implications for chlorine and metal transport. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **58**, 5215-5221.
- Starinsky, A. and Katz, A. (2003) The formation of natural cryogenic brines. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **67**, 1475-1484.
- Stumm, W. and Morgan, J. J. (1996) *Aquatic Chemistry, chemical equilibria and rates in natural waters (3rd ed.)* (John Wiley and Sons, New York), 1022p.
- 高松信樹・下平京子・今橋正征・吉岡龍馬 (1981) 花崗岩地帯湧水の化学組成に関する一考察. 地球化学, **15**, 69-76.
- 玉置元則・加藤拓紀・関口恭一・北村守次・田口圭介・大原真由実・森 淳子・若松伸司・村野健太郎・大喜多敏一・山中芳夫・原 宏 (1991) 日本の酸性雨の化学. 日本化学会誌, 1991(5), 667-674.
- 玉利祐三・辻 治雄・日下 譲 (1988) 岩質と陸水の水質との関係-岩石の溶出実験による解析-. 地球化学, **22**, 139-147.
- 徳山 明 (1993) 深層風化. 土と基礎, **41** (5), 59-61.
- 歌田 実 (1995) 地下深部における岩石の変質. 放射性廃棄物と地質科学 (島崎英彦・新藤静夫・吉田鎮男編). 東京大学出版会, 276-308.
- White, A. F., Bullen, T. D., Vivit, D. V., Schulz, M. S. and Clow, D. W. (1999) The role of disseminated calcite in the chemical weathering of granitoid rocks. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **63**, 1939-1953.
- 吉田英一 (2003) 地下環境機能. 近未来社, 174p.
- Zuddas, P., Seimbille, F. and Michard, G. (1995) Granite-fluid interaction at near-equilibrium conditions: experimental and theoretical constraints from Sr contents and isotopic ratios. *Chem. Geol.*, **121**, 145-154.

(受付: 2004 年 10 月 1 日; 受理: 2004 年 12 月 16 日)