

鳥取県大山火山中腹に湧出する地下水の流動系

—同位体地球化学的情報からみた地下水の履歴—

井上 睦夫・小林 俊則・中村 昇・
大谷 恵子・中島 剛・小村 和久

Groundwater flow system in Daisen volcano body

— Inferences of groundwater hydrology from isotope geochemistry —

Mutsuo INOUE, Toshinori KOBAYASHI, Noboru NAKAMURA,
Keiko OHTANI, Takeshi NAKASHIMA and Kazuhisa KOMURA

日本水文科学会誌 第33巻 第4号 別刷

2003年 11月

Journal of Japanese Association of Hydrological Sciences

Vol. 33, No. 4 November 2003

鳥取県大山火山中腹に湧出する地下水の流動系

— 同位体地球化学的情報からみた地下水の履歴 —

井上 睦夫*¹・小林 俊則*²・中村 昇*^{2,3}・大谷 恵子*²・中島 剛*⁴・小村 和久*¹

Groundwater flow system in Daisen volcano body

— Inferences of groundwater hydrology from isotope geochemistry —

Mutsuo INOUE*¹, Toshinori KOBAYASHI*², Noboru NAKAMURA*^{2,3},Keiko OHTANI*², Takeshi NAKASHIMA*⁴ and Kazuhisa KOMURA*¹

Abstract

Volcanoes generally have a large water storage capacity and hold many springs, so the groundwater flow system in volcanic areas plays an important role in hydrology. In order to investigate the hydrological circumstances of volcanic water, we collected groundwater flowed out at ~1200 m above sea level at Daisen Volcano, Tottori, Japan from Apr. 2000 to Jan. 2002 and measured $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio and concentrations of dissolved ions (Na^+ , K^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+} , Sr^{2+} , Cl^- , NO_3^- and SO_4^{2-}) in the samples together with analyses of its reservoir rock and precipitation.

Concentrations of cations (particularly alkaline earth metals) in Daisen groundwater samples are systematically higher compared to those of precipitation of Yonago City (adjacent location) though anion concentrations substantially remain unchanged. The results also indicate relatively constant $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios, ranging from 0.70519 to 0.70525, which are similar to those of the reservoir rock (dacite; 0.70512, 0.70516). On the other hand, precipitation sampled in the same seasons at Tottori City shows $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios (0.70886 ~ 0.71044) much higher than those of Daisen groundwater. From these results, we suggest that the dissolved metal species and Sr isotopes in Daisen groundwater were not originated from precipitation but produced basically by water/bedrock interaction during the migration of water.

In addition, the preliminary approach of low background γ -ray spectrometry was also carried out for Daisen groundwater. It was found that the activity of ^{22}Na ($t_{1/2}=2.6$ y) was below the detection limit of our measurement ($<3 \times 10^{-4}$ dpm/l) suggesting that the residence time of the ground water is >10 years.

Key words : groundwater flow system, Daisen volcano, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio, γ -ray spectrometry, residence time

キーワード : 地下水流動系, 大山火山, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比, γ 線測定, 滞留時間

* 1 金沢大学自然計測応用研究センター Institute of Nature and Environmental Technology, Kanazawa University

* 2 神戸大学理学部地球惑星科学科 Department of Earth and Planetary Sciences, Faculty of Science, Kobe University

* 3 神戸大学自然科学研究科構造科学 Department of Mathematical and Material Science, Graduate School of Science and Technology, Kobe University

* 4 鳥根県産業技術センター無機材料科 Division of Inorganic Material, Shimane Institute for Industrial Technology

1. はじめに

地下水は、地殻表層部を構成する様々な帯水層に存在するが、その流動系は地形ごとに全く異なる特性をもつことが知られている。火山体表層の高い浸透性から、火山にもたらされる降水は、そのほとんどが火山体内に取り込まれ、その後は地下水として厚く堆積した溶岩や火山砂礫層などからなる帯水層を流動する。豊富な降水量および高い貯水能力から、山麓部に広がる湧水群や湖、さらには河川などへの水源となることから、火山体の地下水流動系は、水文学的に重要な位置を占める。特に環太平洋造山帯に位置し、多くの火山を抱える日本においては、なおざりにできない研究課題であろう。これまで地下水の様々な現地調査、流動シミュレーションなどにより、多くの分野からのアプローチがなされてきた（例えば、Yamamoto, 1995；谷口, 1998）。

特に、ここ30年にわたる同位体水文学 (Isotope Hydrology) の発展にともない、地下水に含まれる様々な元素の同位体組成が、化学組成同様、いわば地下水の“履歴書”の役割を果たしてきた。例えば、地下水の酸素、水素など軽元素の安定同位体比 ($^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$ 比, D/H 比) の分別は、湧出、流動過程をさかのぼり、涵養時における降水の情報を保存している (Coplen, 1993；水谷・小田, 1983)。また、主に岩石起源であるストロンチウム (Sr) の同位体組成 ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比) は、地下への涵養以降の地下水の履歴に重要な知見をもたらしてきた (中野, 1993)。

一方、地下水の滞留時間は、その地下水の流動環境などにより非常に大きな幅を持ち ($<1\text{d} \sim 10^5\text{y}$)、トリチウム (^3H ; 半減期, $t_{1/2} = 12.4\text{y}$)、炭素-14 (^{14}C ; $t_{1/2} = 5730\text{y}$)、ラドン-222 (^{222}Rn ; $t_{1/2} = 3.8\text{d}$)、さらには塩素-36 (^{36}Cl ; $t_{1/2} = 3.0 \times 10^5\text{y}$) といった放射性核種が、それぞれの半減期に対応した時間軸を提供してきた (山田ほか, 1986；Snow and Spalding, 1997；Bentley et al., 1986)。しかし特定の核種に限定した議論は、不

確定要素を多く残すことは否めず、より詳細な地下水流動系の解明には、これまでに適用例のない核種を含むできるだけ多くの核種からのアプローチがのぞまれる。例えば、最近の極低レベル放射能測定技術の技術進歩にともない、大気上層部で生成され、降水とともに地表にもたらされる宇宙線生成核種、ナトリウム-22 (^{22}Na ; $t_{1/2} = 2.6\text{y}$) が、10年スケールでの陸水循環の天然トレーサーとして注目されつつある (Ohtsuka et al., 2002)。しかしながら、河川水、湖水などに比較し、その長い滞留時間から、 ^{22}Na 濃度が著しく低いであろう地下水への適用は、期待されながらも未だになされてはいない。

本研究では、鳥取県・大山火山の中腹、標高1200 m 地点と、涵養域からの流動距離を短くして湧出する地下水を試料として用い、その起源である降水、さらには大山火山主要構成岩石 (デイサイト質岩石) との $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比および化学組成の比較から、地下水の涵養、岩石との反応から湧出過程にいたる組成変動を調査した。それに加え、この標高の高い湧出地点から、比較的短い滞留時間および単純な流動系が見込まれる大山中腹地下水に対し、極低バックグラウンド γ 線測定の適用を試みた。

本稿では、これら地球化学的挙動、半減期などの異なる複数の元素および同位体の情報から、大山火山地下水の空間的・時間的情報、例えば、地下水/岩石相互作用のメカニズム、滞留時間などを議論し、地下水流動系のイメージを構築する。

2. 試料と実験

2.1. 試料

2.1.1 大山火山

鳥取県・西部に位置する大山火山は、第四紀の西南日本火山帯に属する、中国山地最高峰 (弥山、標高1729 m) の火山である。東西約35 km、南北約30 km、総体積120 km³ を超える複成火山であり、詳細な地質に関しては、他に報告されている (津久井, 1984)。主峰である弥山、および

烏ヶ山、山鉾峰などの溶岩円頂丘が、山体中央部を構成し、さらに火山砕屑物が、直径 30 km にもわたる広大な裾野を形成している。大山火山は更新生中期に活動を開始し、少なくとも 2 万年前まで活動を続けたとされ、その活動期を通じて、大量のデイサイト質の火砕物および溶岩を噴出したと考えられている。大山本体が溶岩が固結した形態を示すのに対し、その山麓に向かうにつれ火砕流や火山灰からなる堆積層があり、特に標高 200 m 以下においては、他の火山同様に多くの湧水群が存在する。

大山火山の位置、さらに本研究に用いた地下水、岩石および降水試料の採取地点を Fig. 1 に示した。

2.1.2 地下水試料

本研究においては、大山中腹に湧出する地下水の化学組成および $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比、さらにはそれらの季節変動を調べるため、プラスチックボトルに詰められ、市場に出回っている飲料水を地下水試料として使用した（2000 年 6 月より 2002 年 1 月に

採取された 29 試料）。これら地下水は、烏ヶ山の山頂から南に 1 km ほど離れた山腹、標高約 1200 m 地点（鳥取県日野郡江府町）に自噴するものである（Fig. 1）。豊富に湧出するこの湧水は、飲料水用として地元の人々に親しまれているほか、商用飲料水として店頭販売もされている。この飲料水は、一様に 120℃ の蒸気中で 10 秒間の加熱滅菌処理が施されていることから、加熱処理の化学組成への影響を調べるため、2 回（2000 年 11 月 15 日および 2001 年 7 月 25 日）にわたり同湧出地点にて地下水 (pH6.8) を直接採取した。これら未処理試料と、加熱処理済み試料の溶存イオン濃度を比較した結果、その大部分 (Na^+ , K^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+} , Sr^{2+} , Cl^- および SO_4^{2-}) においては、それぞれ測定誤差範囲内で一致するなど、ほとんど加熱処理の影響がみられないことが確認された。例外的に、 NO_3^- 濃度に関しては、処理により 20% 程度上昇したが、これが処理過程の何に起因するのかは明らかでない。 NO_3^- 濃度に関しては議論の余地があるにせよ、他の化学組成については、処理済み地下水においても、元の化学組成がほぼ

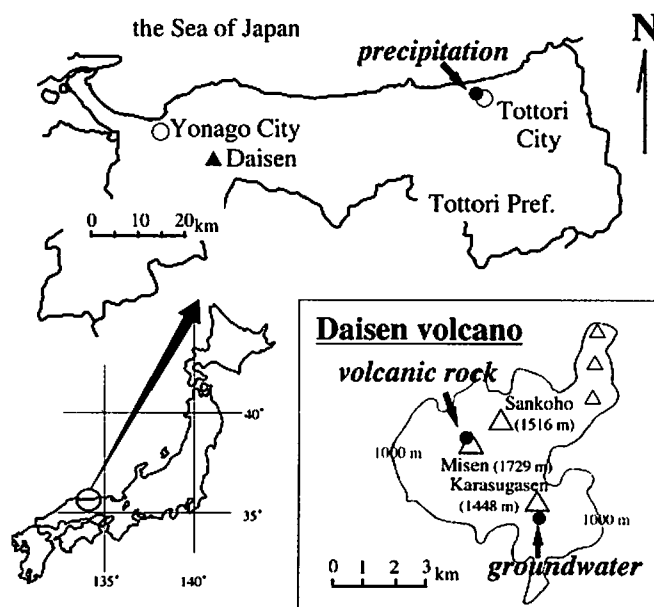


Fig. 1 Location of Daisen volcano and the sampling site of precipitation (upper), and the sampling sites of groundwater and volcanic rocks in Daisen area, Tottori Prefecture (lower-right).

保存されていると考えられる。

さらに、極低バックグラウンド γ 線測定用試料として、大山中腹の同一採取地点で地下水 300 l を採取した (2001 年 7 月 25 日)。大山中腹地下水との比較のため、石川県・白山を源とする手取川の中流域、主に新第三紀流紋岩質溶岩から構成される手取溪谷に湧出する地下水 (石川県鳥越村・弘法池の水) 300 l を、同様の手法で採取した (2001 年 10 月 13 日)。

2.1.3 岩石・降水試料

本研究では、地下水の起源である降水、さらに地下水の化学組成、同位体組成に大きく寄与する採取地域を主に構成する岩石試料も採取した。今回は大山地下水を湧出した烏ヶ山 (1448 m) の後背地 (北西 \sim 3 km 地点) に位置する弥山で回収された新鮮なデイサイト質の新期溶岩を使用した (Fig. 1)。隣接する烏ヶ山と弥山では、構成鉱物および噴出時期が類似していることから (津久井, 1984)、ここでは同一とみなす。さらにこの溶岩の全岩試料を適当な粒度に破碎し、ハンドピッキングで斜長石斑晶を分離した。

降水試料は、降雪採取用ヒーター付きの環境庁仕様酸性雨ろ過式採取装置を使用し、回収されたものである。鳥取市内において、2000 年を中心に各月ごとに採取された 10 試料を、Sr 同位体比分析用として使用した。本稿で議論に用いた降水の化学組成については、(Sr 濃度を除き) すでに報告されている米子市・降水の測定データ (木村ほか, 1998, 1999, 2000) から引用した。

2.2. 実験

2.2.1 化学組成分析

地下水および降水試料は、分析前に全て 0.45 μ m フィルターでろ過した。主要溶存陽イオン (Na^+ , K^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+}) 濃度については、誘導結合型プラズマ発光分光分析計 (Induced Coupled Plasma - Atomic Emission Spectrometer, ICP-AES; 島津社製 ICPS-1000IV) (一部イオンクロマトグラフィー; 日立社製, LaChrom) を、微量元素であ

る Sr に関しては、誘導結合型プラズマ質量分析計 (Induced Coupled Plasma - Mass Spectrometer, ICP-MS; SHIMADZU ICPM-8000) (一部 ICP-AES; ICPS-1000IV) を使用し、測定をおこなった。

また主要な陰イオン (Cl^- , NO_3^- , SO_4^{2-}) 濃度に関しては、イオンクロマトグラフィー (LaChrom) による定量をおこなった。

2.2.2 Sr 同位体比分析

以下に述べる手順で、大山中腹地下水 13 試料、降水 6 試料、さらにはデイサイト質岩石全岩および全岩から分離した斜長石斑晶試料の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比の精密測定をおこなった。

地下水および降水試料に関しては、それぞれ 3 ml および 10 \sim 40 ml を 0.45 μ m フィルターでろ過した後、HF, HClO_4 を加え、蒸発、乾固した。岩石試料については、全岩 1.66 mg, 2.19 mg, 斜長石 6.60 mg に HF, HClO_4 を加え、加熱溶解した後、そのうち 2 \sim 6% を分取し、乾固した。

これら地下水、降水および岩石試料を 1M HCl 100 μ l に再度溶解した後、陽イオン交換樹脂 (AG50WX-12, 200-400 mesh) を用いて Sr を化学分離した。この Sr のうち 20 \sim 50 ng を目安に、5 A で 25 分間空焼きしたタングステン (W) フィラメントに塗布した。この際にはタンタル酸化物 (Ta_2O_5) 懸濁液を活性剤として用いた (Birck, 1986)。測定には、マルチコレクタ方式の表面電離型質量分析計 (Thermal Ionization - Mass Spectrometer, TI-MS; Finnigan Mat-262) を使用した。

試料処理段階における Sr のブランクは、 $< \sim 5 \times 10^{-2}$ ng と見積もられるが (我々の実験室のブランクレベル; Nakamura et al., 1989)、これが $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比の測定結果に与える影響は、本測定の場合、無視できる程度である。質量分析計による地下水、降水試料の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比の測定誤差は、およそ 0.02% ($2\sigma_m$) であった。また本研究過程において、10 回にわたり測定した Sr 同位体標準試料 (SRM 987) の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比の平均値は、 0.710247 ± 0.000009 ($2\sigma_m$) であった。

2.2.3 極低バックグラウンド γ 線測定

2001年7月25日、大山の地下水湧出地点の現地で、300 lの地下水を0.45 μ mフィルターでろ過した後、イオン交換樹脂（オルガノ製 Amberlite 系樹脂；強酸性陽イオン交換樹脂 IR-120B と強塩基性陰イオン交換樹脂 IRA-410 の2:1 混合物）により、溶存イオンを吸着した。これを研究室に持ち帰り、4M HCl 溶液で樹脂より吸着イオンを抽出し、それを乾固したものを γ 線測定用試料 (*D-I*; 14.9 g) とした。地下水においては、ウラン (U) 系列核種など周囲の岩石からの溶出核種を除き、放射性核種の放出する γ 線は極めて微弱であることが考えられる。 γ 線測定は、石川県小松市・尾小屋地下測定室（水深換算 270 m; 270 meters water equivalent）内に設置した、セミプレナ型の極低バックグラウンド γ 線測定用ゲルマニウム (Ge) 半導体検出器 (EURISYS EGSP 2800-20-R) を使用した。この γ 線測定は、地下水採取13日後より8日間（8月6～14日）おこなった。弘法池の水の地下水に関しても、同様の手順で試料を作製 (*K-I*; 27.0 g)、2001年10月29日から11月5日にわたり γ 線測定をおこなった。地下水採取から*D-I*および*K-I*試料作製にいたるナトリウム (Na) の回収率は、95%前後と見込まれる（我々の実験室の平均値）。試料採取法に関しては、Ohtsuka et al., (2002) に、尾小屋地下測定室に関しては、Komura (1997) に詳しい。

カリウム (K) の存在度の高い試料では、天然放射性核種、 ^{40}K ($t_{1/2} = 1.28 \times 10^9$ y) から放出される 1461 keV の γ 線がコンプトン効果をもたらし、そのバックグラウンドレベルを引き上げる要因となる。より正確な ^{22}Na 濃度の検討のため、大山の地下水試料 (*D-I*) に対し、陽イオン交換樹脂 (DOWEX 50W-X8, 100-200 mesh) を用いた K 除去処理をおこなった後、再度乾固し、 γ 線測定用試料 (*D-II*; 4.25 g) とした。大山中腹地下水の採取段階から化学処理過程を経て、*D-II* 試料作製にいたる Na の回収率は、77%であった。*D-II* 試料に関しては、地下水採取286日後より8日間（2002年5月7～15日）にわたり、尾小屋地下測定室

において γ 線測定をおこなった。*D-II* の測定には、より検出効率の高い、同軸型 Ge 検出器 (EURISYS EGPC 90-220-R) を使用した。

3. 結果と考察

本研究で使用した大山中腹地下水および岩石試料、さらに鳥取市・降水の、主要溶存イオン濃度、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比の測定結果を、Table 1 にまとめた。

3.1. 大山中腹地下水の化学組成

地下水は、降水が地下に浸透し、帯水層を流動しているものであり、その化学組成は降水に元々含まれている成分に、周囲の岩石からの溶出成分が加わるにより決定される。採取地域ごとに地下水の化学組成が大きく異なるのは、主に岩石からの溶存成分の違いを反映しているためである。この岩石/地下水相互作用は、地下水の器となる帯水層の構成岩石、さらには流動速度といった地下水の流動環境を反映し、これは地形により大きく異なる。

地形は、火山地域（火山山麓・溶岩台地・火山性開析台地・火山島）、海岸平野（砂丘・海岸小平野・洪積台地・扇状地性平野・構造盆地平野）、内陸盆地（山間構造盆地・扇状地性盆地・河岸段丘）および山地丘陵（第三系丘陵・石灰岩台地・中生界山地）などに分類がなされ、地下水は、これら地形を反映する様々な流動系を示す（地下水ハンドブック、1980）。大山など火山体における地下水流動系に関しては、火山岩の割れ目や火山礫層などの帯水層に、多量の降水（例えば、大山に近い鳥取県米子市の年間降水量 \sim 2000 mm に対し、大山山頂では \sim 4000 mm）を起源とする地下水が蓄えられ、流動していると特徴づけられている。これら火山体中の地下水流動帯は、上部涵養帯、中部流動帯および下部湧出帯に分類されるが（Yamamoto, 1995）、今回の大山中腹地下水は、その標高の高い湧出地点から、人為的影響にほとんどさらされおらず、主に地下水の涵養、流動過程の情報を保存していると考えられる。

Table 1. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio and chemical compositions of groundwater, precipitation and reservoir rock from Daisen area, Tottori Prefecture.

	Sampling date	Na ⁺	Mg ²⁺	Ca ²⁺	Sr ²⁺	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$	
		(mg/l)	(mg/l)	(mg/l)	(mg/l)	(mg/l)	(mg/l)	(mg/l)	atom. ratio (2 σ)	$\delta^{87}\text{Sr}$ (‰)*
Daisen groundwater										
D-17	2000. 4. 10	3.72	1.34	2.31	0.020	4.54	n. d.	2.59	0.705192 ± 0.000011	-5.65
D-1	2000. 6. 2	3.71	1.36	2.39	0.023	4.39	2.04	2.55	n. d.	
D-2	2000. 7. 19	3.69	1.39	2.37	0.019	4.60	2.13	2.71	n. d.	
D-3	2000. 8. 9	3.74	1.41	2.38	0.019	4.39	2.01	2.57	n. d.	
D-4	2000. 8. 20	3.73	1.34	2.40	0.019	4.35	2.00	2.53	n. d.	
D-5	2000. 8. 23	3.69	1.35	2.40	0.023	4.37	1.88	2.53	n. d.	
D-6	2000. 8. 29	3.72	1.42	2.40	0.019	4.39	2.00	2.55	n. d.	
D-7	2000. 8. 31	3.70	1.42	2.39	0.019	4.38	2.01	2.57	n. d.	
D-8	2000. 9. 19	3.71	1.38	2.42	0.019	4.37	1.98	2.59	n. d.	
D-9	2000. 10. 6	3.75	1.37	2.40	0.019	4.35	1.91	2.54	n. d.	
D-10	2000. 10. 9	3.70	1.41	2.39	0.023	4.32	1.90	2.52	n. d.	
D-11	2000. 10. 11	3.70	1.35	2.38	0.019	4.35	1.97	2.51	n. d.	
D-12	2000. 10. 24	3.71	1.42	2.40	0.019	4.44	1.96	2.57	n. d.	
D-13	2000. 10. 27	3.67	1.40	2.40	0.019	4.37	1.96	2.53	n. d.	
D-14	2000. 11. 15	3.70	1.32	2.37	0.018	4.34	1.99	2.47	n. d.	
D-15	2000. 12. 5	3.68	1.42	2.42	0.019	4.35	2.01	2.50	n. d.	
D-16	2000. 12. 6	3.69	1.34	2.38	0.018	4.35	1.95	2.48	n. d.	
D-18	2001. 5. 30	3.86	1.35	2.35	0.017	4.38	n. d.	2.56	0.705230 ± 0.000015	-5.60
D-19	2001. 7. 21	3.65	n. d.	2.37	n. d.	4.33	n. d.	2.54	0.705185 ± 0.000015	-5.66
D-20	2001. 7. 23	3.73	1.40	2.35	0.020	4.35	n. d.	2.56	0.705214 ± 0.000011	-5.62
D-21	2001. 7. 30	3.76	n. d.	2.36	n. d.	4.33	n. d.	2.57	0.705211 ± 0.000013	-5.62
D-22	2001. 8. 2	3.79	n. d.	2.40	n. d.	4.30	n. d.	2.57	0.705222 ± 0.000015	-5.61
D-23	2001. 8. 13	3.73	1.40	2.37	0.018	4.32	n. d.	2.61	0.705240 ± 0.000013	-5.58
D-24	2001. 9. 1	3.72	n. d.	2.37	n. d.	4.24	n. d.	2.50	0.705213 ± 0.000013	-5.62
D-25	2001. 9. 14	3.52	1.26	2.19	0.019	4.18	n. d.	2.33	0.705241 ± 0.000014	-5.58
D-26	2001. 9. 18	3.57	n. d.	2.32	n. d.	4.15	n. d.	2.36	0.705251 ± 0.000015	-5.57
D-27	2001. 11. 7	3.69	1.42	2.35	0.019	4.15	n. d.	2.54	0.705202 ± 0.000014	-5.64
D-28	2001. 12. 18	3.73	1.46	2.39	0.021	4.21	n. d.	2.58	0.705194 ± 0.000014	-5.65
D-29	2002. 1. 18	3.82	1.44	2.40	0.020	4.95	n. d.	2.66	0.705252 ± 0.000012	-5.57
D-NT**	2000. 11. 15	3.69	1.32	2.37	0.019	4.33	1.63	2.45	n. d.	
precipitation (Tottori City)***										
P-1	2000. 4.	3.07	0.45	1.62	0.0071	5.32	2.79	4.04	0.708857 ± 0.000016	-0.48
P-2	2000. 5.	0.45	0.16	1.75	0.0049	0.82	2.85	4.15	0.710439 ± 0.000016	1.75
P-3	2000. 6.	0.20	0.04	0.21	<0.0005	0.37	1.51	1.32	n. d.	
P-4	2000. 7.	0.26	0.06	0.18	<0.0005	0.34	0.85	1.02	n. d.	
P-5	2000. 8.	2.01	0.28	0.63	0.0038	3.21	3.28	3.63	0.708860 ± 0.000016	-0.48
P-6	2000. 9.	1.27	0.17	0.14	<0.0005	2.27	0.99	2.16	n. d.	
P-7	2000. 10.	1.56	0.20	0.21	<0.0005	2.69	1.08	2.55	n. d.	
P-8	2000. 11.	3.33	0.41	0.27	0.0030	5.69	1.07	2.52	0.709363 ± 0.000014	0.23
P-9	2000. 12.	7.49	0.93	0.60	0.0080	13.21	1.88	5.02	0.709322 ± 0.000015	0.17
P-10	2001. 10.	n. d.	n. d.	n. d.	0.0018	n. d.	n. d.	n. d.	0.709054 ± 0.000017	-0.21
reservoir rock[†]										
		SiO ₂	Al ₂ O ₃	CaO	Na ₂ O	Fe ₂ O ₃	MgO	K ₂ O	$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$	
		(wt. %)	(wt. %)	(wt. %)	(wt. %)	(wt. %)	(wt. %)	(wt. %)	atom. ratio (2 σ)	$\delta^{87}\text{Sr}$ (‰)*
W. R. 1**	2002. 10.	64.93	17.43	4.73	4.48	4.07	1.83	1.72	0.705163 ± 0.000015	-5.69
W. R. 2**	2002. 10.								0.705120 ± 0.000016	-5.75
Pl.***	2002. 10.								0.705123 ± 0.000013	-5.75

* "n. d." denotes "not determined".

** $\delta^{87}\text{Sr}$ value (‰) was obtained from the following equation,

$$\delta^{87}\text{Sr} (\text{‰}) = \left[\frac{(^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr})_{\text{sample}}}{(^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr})_{\text{STD}}} - 1 \right] \times 1000, \text{ and } (^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr})_{\text{STD}} \text{ value is } 0.70920 \text{ (seawater).}$$

*** sample without treatment for drinking.

† Concentrations of Na⁺, Mg²⁺, Ca²⁺, Cl⁻, NO₃⁻ and SO₄²⁻ are from the Annual report of Tottori Pref. Inst. Pub. Health Sci. (2001).

‡ Chemical composition was obtained by X-ray Fluorescence Spectrometer.

§ dacite whole rock from Daisen.

¶ plagioclase phenocryst separated from the Daisen dacite.

2000年の大山中腹地下水の主な溶存イオン濃度の経時変動を、鳥取県・米子市の降水組成とともに、Fig. 2に示した。降水（溶存性成分）組成に関しては、最近数年の季節変動に大きな変化がみられないことから、1997年4月から2000年3月の3年間にわたる各月ごとの平均値（木村ほか、1998、1999、2000）を使用した。冬期に高濃度を示す降水組成の大きな季節変動に対し、大山中腹地下水の溶存イオン濃度は、有意な変化のみられない安定したものであった。さらに2000年には、地下水採取場所より西南方向～20 km地点を震源とする鳥取県西部地震（2000年10月6日）

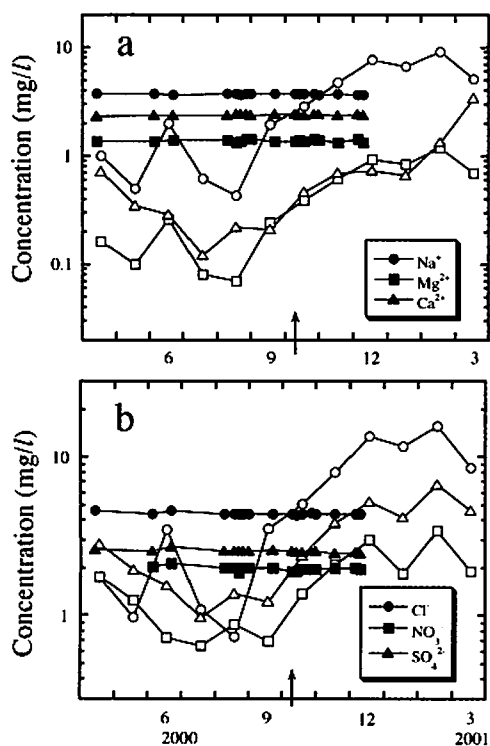


Fig. 2 Temporal variations of a) Na^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+} and b) Cl^- , NO_3^- , SO_4^{2-} concentrations in Daisen groundwater (solid symbols) and precipitation (open symbols) during the period from Apr. 2000 to Mar. 2001.

The arrow indicates the date of the 2000 Tottori-ken Seibu earthquake (2000. 10. 6).

Precipitation data are the weighted mean values from Apr. 1997 to Mar. 2000 in Yonago City, Tottori Pref.

マグニチュード7.3) が起き、大山においても、弥山山頂の三角点がずれ落ちるなど、その被害にさらされた。地震に伴う地殻表層部の活動により、地下水の化学組成が変動する例も報告されているが (Tsunogai and Wakita, 1995; 井上ほか, 2000)、大山中腹地下水ではそのような傾向はみられない。

地下水の涵養から湧出過程にいたる化学組成の変化を調べるため、大山中腹地下水と米子市の降水の溶存イオン濃度を、Fig. 3に比較した。ここで地下水組成に関しては、湧出地点で2000年11月15日 (K濃度のみ2001年7月25日:0.61 ppm) に直接採取した未処理水の、降水については1997年3月からの3年間にわたる月別降水量の重み付き年間平均組成 (Sr濃度に関しては、ICP-MSによる2000年4～12月試料の測定結果からの見積もり) を使用した。 Cl^- , NO_3^- および SO_4^{2-} といった陰イオンにおいては、その地下水/降水の濃度比 (R) (0.8～1.2) から、地下水と降水の年間平均組成が近い値であることが分かる。一方、陽イオン、特にアルカリ土類金属元素には、大きな濃度比がみられることから (Na^+ , 1.2; K^+ , 2.5; Mg^{2+} , 3.5; Ca^{2+} , 3.9; Sr^{2+} , ~10)、周囲の岩石からの選択的な溶出が推測される。

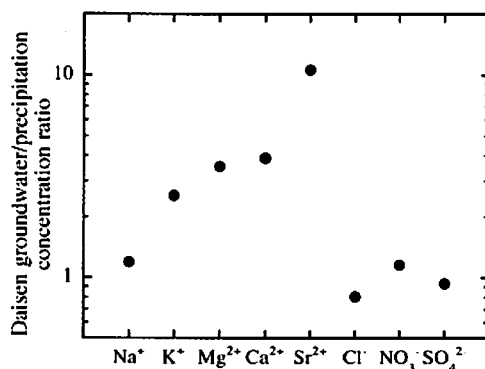


Fig. 3 Concentration ratios between Daisen groundwater and precipitation.

Data of groundwater were represented by those for untreated water sample (2000. 11. 15) and data of precipitation are the weighted mean values from Apr. 1997 to Mar. 2000 in Yonago City (Kimura et al., 1998, 1999, 2000).

高い標高に湧出する地下水は、一般的に滞留時間（流動距離）が短く、岩石との反応が進んでいないとされる。他の火山山麓地域に湧出する地下水の、主要溶存イオン濃度 (Na^+ , 2.5 ~ 14.0 mg/l, 平均 6.6 mg/l; Mg^{2+} , 1.4 ~ 8.1 mg/l, 平均 3.5 mg/l; Ca^{2+} , 5.2 ~ 61.1 mg/l, 平均 13.8 mg/l; 阿蘇山麓および周辺地域の湧水群; 島野, 1987) や Sr 濃度 (0.06 ~ 6 mg/l; 平均 1.4 mg/l; 国内火山地域の湧水; Notsu et al., 1991) に比べ、大山中腹の地下水は、顕著に低い値を示す。大山山頂より中腹にいたる流動域では、地下水は、降水にみられた化学組成の季節変動の均一化を得た一方で、その組成の特徴を部分的に残すなど、降水からの進化、すなわち岩石との相互作用の初期段階にあることが考えられる。

3.2. 大山中腹地下水の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比

地下水の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比は、地下水に溶存する Sr の起源、さらには履歴の異なる地下水の混合などを探るうえでの非常に有効なトレーサのひとつとして、これまで多くの知見をもたらしてきた (例えば, McNutt et al., 1990; 井上ほか, 2000)。大山の地下水と降水 (鳥取市) の関連を探るため、2000 年および 2001 年におけるこれら $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比の変動を、Fig. 4 に比較した。

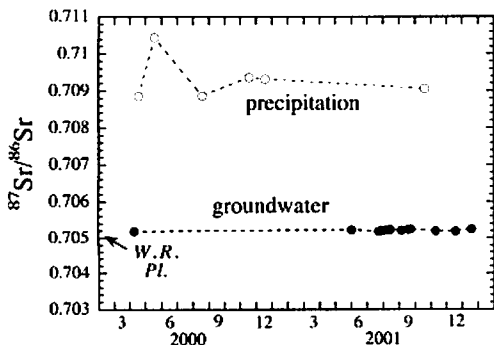


Fig. 4 Comparison of $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio between Daisen groundwater and the precipitation of Tottori City. W. R. and Pl. are the $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ values of dacite whole rock (0.70516, 0.70512) and plagioclase phenocryst from dacite (0.70512), respectively.

降水の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比については、長野県・川上盆地での報告例があり (0.706 ~ 0.711)、海水塩 (~ 0.709)、中国大陸からの黄砂 (~ 0.711) といった降水に含まれる Sr の起源が議論された (Nakano and Tanaka, 1997)。今回の降水 (米子市) 試料においては、各月の Na と Cl 濃度には、明らかな相関がみられるなど (1997 年 4 月 ~ 2000 年 3 月; 相関係数, $r^2 = 0.998$; 試料数 $n = 36$; 木村, 1998, 1999, 2000)、溶存イオンの海水塩起源を支持する。 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比 (0.70886 ~ 0.71044) に関しても川上盆地の降水と同様、春先に大きな値がみられる他は、海水に近い値を示す傾向がみられた (標準海水試料からの $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比のずれ, $\delta^{87}\text{Sr}$ 値が, $-0.48 \sim 1.75\%$, Table 1)。試料数が少なく明言できないが、基本的には降水に対する海水塩の寄与、例外的に $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比の高い 2000 年 5 月の試料 (0.71044; $\delta^{87}\text{Sr} = 1.75\%$) においては、黄砂の影響が推測される。これら降水の測定結果に対し、大山中腹地下水の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比は、変動幅の小さい低めの値 (0.70519 ~ 0.70525) を示すなど、共通点はみられなかった。地下水の滞留時間が明らかでなく、降水試料との採取時期が重なっていないこともあるが、先述した Sr の地下水/降水濃度比 ($R = \sim 10$, Fig. 3) 同様、降水が地下水中の Sr の主な供給源ではないことを示唆する。

新第三紀および第四紀火山に得られる地下水の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比 (0.703 ~ 0.708; 平均 0.705) は、日本の堆積岩や変成岩地域に湧出する地下水 (0.706 ~ 0.712) に比べ低い値を示し、これは帯水層を構成する火山岩の同位体比を反映しているとされる (Notsu et al., 1991)。大山中腹地下水の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比 (0.70519 ~ 0.70525) も、その流動および湧出地域を構成するデイサイト質岩石 (0.70516, 0.70512) やそれに含まれる斜長石 (0.70512)、さらにはこれまでに報告のある大山火山の構成岩石の値 (0.70491 ~ 0.70522; Matsuhisa and Kurasawa, 1983; 0.7050; 永尾・西川, 1980) に類似することから (Fig. 4)、地下水の溶存 Sr に関しては、周囲の岩石からの溶出が考えられる。火成岩の主要斑晶鉱物である斜長石は、最も風化にさらされやすい造

岩鉱物であり、野外調査およびシミュレーション実験の結果からも、地下水中のSrの起源として斜長石があげられてきた (Li et al., 1989; 高木ほか, 2001)。斜長石は、それぞれカルシウム(Ca)を多く含むアノーサイト (anorthite; $\text{CaAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$) およびNaを多く含むアルバイト (albite; $\text{NaAlSi}_3\text{O}_8$) の端成分から成る固溶体であり、地下水との反応においては、アノーサイトの溶解速度が著しく大きいとされる (1 mm³ 立方体結晶が25°C, pH5の水に溶けきるまでの寿命; アノーサイト 1.1×10^5 y, アルバイト 5.8×10^5 y; Lasaga, 1997)。このアノーサイトの選択的溶解は、先述したように、降水に比較しSrなどアルカリ土類金属元素が高濃度を示す大山中腹地下水の化学組成 (Fig. 3) からも支持される。さらに、Cl⁻などの陰イオンについては、斜長石中にその供給源が求めにくいことから、Fig. 3にみられる降水と類似した地下水の陰イオン濃度とも矛盾がない。大山中腹地下水の⁸⁷Sr/⁸⁶Sr比および化学組成は、大山火山の主要構成岩石とされるデイサイト中の斜長石、特にアノーサイト成分の降水への溶出で説明が可能である。

3.3. 地下水へのγ線測定の適用

火山山頂から山麓にいたる地下水の滞留時間に関しては、これまで主に地下水中の³H濃度に基づく議論がなされてきた。例えば、山梨県・八ヶ岳火山 (2899 m) の地下水においては、山頂部より標高1000 m帯にかけ、<1 ~ 60年 (³H法; 垣内・丸井, 1994)、また熊本県・阿蘇山麓の地下水で7 ~ 74年 (³H-³He法; Mahara and Igarashi, 1993) という滞留時間が報告されている。本論文では、大山中腹地下水の滞留時間および流動環境を探るうえでの指標核種として、²²Na (1274 keV; $t_{1/2} = 2.6$ y) およびセシウム-137 (¹³⁷Cs; 662 keV; $t_{1/2} = 30.2$ y) に注目した。大山および弘法の池の地下水における、これら核種のエネルギー領域のγ線スペクトルを、Fig. 5に示した。

²²Naは、その短い半減期から、大気核実験起源のものは既に壊変しており、現在では大気上層部におけるアルゴン (Ar) の核破砕反応で生成され

た宇宙線生成起源核種のみが得られる (Cigna et al., 1970; Hasebe et al., 1981)。本研究の結果、大山地下水試料、D-I、さらにK (⁴⁰K) 除去処理のなされたD-IIにおいては、²²Naに検出限界以下までの減衰がみられた (Fig. 5a)。γ線測定における放射性核種の検出限界は、測定時間(t)および目的核種におけるスペクトルのベースライン(B)、ピーク領域の幅(n)、検出器の検出効率(ε)から見積もることができる (Nir-El, 2001)。大山地下水試料、D-IおよびD-IIの²²Naの最低検出濃度は、それら測定条件 ($t = 10000$ min; $n_{D-I} = 12$, $n_{D-II} = 15$ ch; $\epsilon_{D-I} = 2$, $\epsilon_{D-II} = 4\%$; $B_{D-I} = 15$, $B_{D-II} = 1.5$ counts/ch) から、それぞれ、0.33 dpm, 0.06 dpm (disintegrations/min, 1分間あたりの壊変数) と計算される。Kの

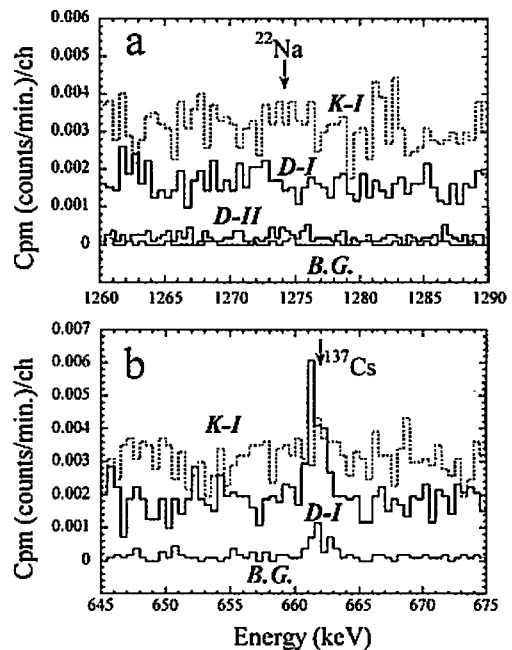


Fig. 5 Low background γ -ray spectra of a) 1260 ~ 1290 keV and b) 645 ~ 675 keV regions in water samples. The arrows indicate the energy of ²²Na (1274 keV) and ¹³⁷Cs (662 keV), respectively.

D-I and K-I show groundwater from Daisen and Koubo, respectively (0.5 keV/ch of gain). D-II shows the treated sample obtained after removal of ⁴⁰K (together with ¹³⁷Cs) from D-I by chemical separation (0.4 keV/ch). B. K. represents the background level.

除去、さらには検出効率の高いGe検出器の使用から、*D-II*における ^{22}Na の検出限界値は、*D-I*の20%以下にまで低減がなされた。この*D-II*の ^{22}Na 濃度は、化学処理過程におけるNaの回収率(77%)および採取後の壊変(286日経過、81%に減衰)から、採取時の62%への低減が見込まれる。大山中腹地下水、300 lに含まれる ^{22}Na 量の上限值、0.06 dpm (*D-II*)に、これらを考慮すると、 $\sim 3 \times 10^4$ dpm/l以下という濃度が見積もられる。

降水の ^{22}Na 濃度は、長期的には1950～60年代における大気圏内核実験、短期的(季節的)には気団の影響にさらされ、たとえ同一地点においても、その値は一定しているとは言いがたい。例えば、同じ日本海側(福井市)にもたらされる降水中の ^{22}Na 濃度に関しては、冬期に大きくなる季節変動を示しながらも、1980年代後半から90年初旬において、 $\sim 1 \times 10^2$ dpm/lという年平均値が報告されている(Tokuyama et al., 1993; Tokuyama and Igarashi, 1998)。大山中腹地下水の ^{22}Na 濃度は、すでに核実験起源の影響のみられないこの降水の100分の3以下ということになる。半減期2.6年の ^{22}Na においては、10年が経過すると濃度が最初の14分の1程度に減少し、20年では200分の1以下とそのほとんどが消滅する。現在のところ、大山地下水を涵養した降水の ^{22}Na 濃度、さらに溶存 ^{22}Na の岩石との相互作用の影響など、地下水の滞留時間の見積もりには、不確定要素が多く残されていることは否めない。ここで降水に含まれ地表にもたらされた ^{22}Na (1×10^2 dpm/l)が、地下への浸透後も地下水と流動を共にするという単純な流動を仮定した場合、大山中腹地下水は、その涵養から少なくとも10年が経過していることが推測される。

^{22}Na の年代幅にある程度重なり、現在最も頻繁に利用されている地下水滞留時間の指標として ^3H 濃度があげられる。本研究に使用した大山および弘法の池の地下水(採取日は、それぞれ2002年8月6日、2001年10月13日)に関しては、それぞれ 38 ± 11 dpm/l (5.3 ± 1.5 T. U.)および 27 ± 12 dpm/l (3.8 ± 1.7 T. U.)という ^3H 濃度が得ら

れており(我々の研究グループの未発表データ)、これは現在の降水レベル(千葉、2～7 T. U.;放射線医学総合研究所・安全研究成果情報データベース)に相当する。すなわちこれらの地下水は、大気圏核実験で大気中に放出された ^3H の影響がある程度収まった1970年代後半以降の比較的新しい降水に由来していることが推測される。大山および弘法の池の地下水の ^{22}Na の測定結果は、この ^3H 濃度とも矛盾せず、さらなる時間軸決定への制約をもたらした。

また表層地下水の流動過程への新たな降水の涵養は、それら降水による希釈効果など地下水の化学組成に顕著な影響をもたらす場合がある(糸山, 1984)。大山中腹地下水の ^{22}Na が検出限界以下であったことは、流動過程への大規模な降水の涵養を否定する。

一方、フォールアウト核種である ^{137}Cs は、 ^3H や ^{36}Cl 同様、かつての核実験や1986年チェルノブイリ原子力発電所事故により生成、大気中に放出されたものである。 ^{22}Na に比べ、長い半減期($t_{1/2} = 30.2$ y)をもつことから、いまだその大部分は表層土壤中に保持されている。今回の γ 線測定では、Fig. 5bにみられるように、石川県・弘法池の水に比べ、大山中腹地下水に ^{137}Cs が有意に検出された(化学処理過程における回収率を100%とした場合、 $\sim 1 \times 10^3$ dpm/l)。

地下水に含まれる核種、特に ^{137}Cs は、地下水の浸透・流動過程における粘土鉱物とのイオン交換反応の影響などにより、必ずしも地下水と流動を共にせず(Tamari et al., 1982; Serne et al., 1979)、その挙動を探るのは困難であるとされる。さらに、周囲の構成岩石など双方の地下水の流動環境が異なることから、単純には比較しにくい、大山地下水に検出された ^{137}Cs は、この地下水が表層土壤中を通過した際に溶出したものであると考えられる。

地下水の滞留時間を含む流動系のより詳細な議論には、今後、起源および地球化学的挙動の異なる複数の放射性核種を用いた総合的な評価が期待されよう。

4. まとめ 一大山中腹地下水の履歴一

大山火山中腹(標高 1200 m 地点)に湧出する地下水と、その近辺の降水の化学組成との比較から、地下水流動過程における周囲の岩石からのアルカリ土類金属元素の選択的溶出が示唆された。さらに大山地下水の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比(0.70519 ~ 0.70525)は、降水($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr} = 0.70886 \sim 0.71044$)とは大きく異なり、大山のデイサイト質岩石組成(全岩, 0.70516, 0.70512; 斜長石, 0.70512)に近いことが明らかとなった。大山火山の涵養域にもたらされた多量の降水は、火山体内を流動する際、デイサイトを構成する斜長石、特にアノーサイトと選択的に反応したとする単純なモデルで、説明が可能である。

また大山中腹地下水においては、 ^{137}Cs が検出されたが($\sim 1 \times 10^3$ dpm/l)、 ^{22}Na は検出限界以下($< \sim 3 \times 10^4$ dpm/l)にまで減衰していることが明らかになった。これは大山地下水の表層土壌部の通過および10年以上の滞留時間で説明される。

今後、極低バックグラウンド γ 線測定に耐えるブランクレベルの確立(化学処理過程での汚染の低減)、より多量(例えば、 10^3 l以上)の地下水試料の使用、さらには検出効率の高い(試料をほぼ4 π の立体角で覆うことができる)井戸型Ge検出器の適用により、 ^{22}Na は、 $<10 \sim 30$ 年の地下水の滞留時間をカバーしうる貴重な指標核種となり得よう。

謝 辞

金沢大学・山本政儀教授、佐藤努博士および査読者の方には、貴重な助言を頂きました。

神戸大学・山下勝行博士、沼田雅彦博士には、TI-MS、ICP-AESおよびイオンクロマトグラフィーの、石川県保健環境センターの方には、ICP-MSの使用の際に、お世話になりました。環境科学技術研究所・大塚良仁氏には、地下水の γ 線測定用サンプラーをお借りしました。金沢大学・鈴木敦

雄博士および鳥取県・西伯郡在住の吉木慎人氏には、地下水試料のサンプリングなどにご協力いただきました。鳥取県衛生研究所には、鳥取市で採取された降水試料($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比測定用)を提供していただきました。

地下水の ^3H 濃度測定においては、名古屋大・小金澤孝之氏、緒方良至博士、核融合科学研究所・佐久間洋一教授、および富山大・佐竹洋教授にお世話になりました。

ここにあらためて謝意を表します。

参考文献

- 糸山東 - (1984) 降水による地下水水質の変動, 地球化学 **18**, 15-19.
- 井上睦夫・杉本幸司・中村 昇・小村和久 (2000) 1995年兵庫県南部地震前後における神戸地下水中のSr同位体比および親石元素組成の変化, 地球化学 **34**, 91-101.
- 垣内正久・丸井敦尚 (1994) ハヶ岳の湧水および地下水のトリチウム濃度, ハイドロロジー **24**, 93-106.
- 木村義明・若林健二・田中長義・洞崎和徳・田中卓実・坂田裕子 (1998) 鳥取県における降水成分調査について(第8報), 鳥取県衛生研究所報 **38**, 59-64.
- 木村義明・洞崎和徳・西尾直子・坂田裕子・尾田善夫 (1999) 鳥取県における降水成分調査について(第9報), 鳥取県衛生研究所報 **39**, 62-67.
- 木村義明・佐々木順一・西尾直子・尾田善夫 (2000) 鳥取県における降水成分調査について(第10報), 鳥取県衛生研究所報 **40**, 61-66.
- 鳥野安雄 (1987) 阿蘇山周辺地域における湧泉の分布と若干の性状について, ハイドロロジー **17**, 99-110.
- 谷口真人 (1998) 「地下水涵養と流出」II, 火山地域における地下水涵養と流出, 日本水文学会誌 **28**, 105-110.
- 高木真理・田中剛・浅原良浩・青木和弘・天野健治 (2001) ストロンチウム同位体の挙動から見

- た岩石の化学風化：釜石鉱山の地下水による水-岩石反応の研究. 地球化学 **35**, 61-72.
- 地下水ハンドブック (1980) 地形調査. (地下水ハンドブック編集委員会), 建設産業調査会, pp.233-242.
- 津久井雅志 (1984) 大山火山の地質. 地質学雑誌 **90**, 643-658.
- 鳥取県衛生研究所 (大気騒音科) (2001) 酸性雨調査結果について. 鳥取県衛生研究所報 **41**, 100-101.
- 末尾隆志・西川純一 (1980) 山陰地域の鮮新世三朝層群中の火山岩の Sr 同位体比と起源物質. 岩石鉱物鉱床学会誌 **75**, 323-328.
- 中野孝教 (1993) 水分トレーサーとしての Sr 同位体. ハイドロロジー **23**, 67-82.
- 水谷義彦・小田松尚 (1983) 安定同位体比による富山県庄川扇状地地下水のかん養原および流動状況の研究. 地球化学 **17**, 1-9.
- 山田芳宗・飯 幹夫・加藤岩夫・阪上正信 (1986) トリチウムによる陸水の地球化学的研究. 地球化学 **20**, 93-97.
- Bentley, H. W., Phillips, F. M. and Davis, S. N. (1986) Chlorine-36 in the terrestrial environment. In Handbook of Environmental Isotope Geochemistry. Vol. 2. Terrestrial Environment B (eds. P. Fritz and J. Ch. Fontes), Amsterdam, Elsevier, pp.427-480.
- Birck, J. L. (1986) Precision K-Rb-Sr isotopic analysis: Application to Rb-Sr chronology. Chem. Geol. **56**, 73-83.
- Cigna, A. A., Clemente, G. F. and Giorcelli, F. G. (1970) Cosmogenic and artificial Na-22 levels in rainwater. Health Physics **18**, 379-382.
- Coplen, T. B. (1993) Uses of environmental isotopes. REGIONAL GROUND-WATER QUALITY (e. d. W. M. Alley), Van Nostrand Reinhold, pp.227-254.
- Hasebe, N., Doke, T., Kikuchi, J., Takeuchi, Y. and Sugiyama, T. (1981) Observation of fallout rates of atmospheric ^7Be and ^{22}Na produced by cosmic rays - Concerning estimation of the fallout rate of atmospheric ^{26}Al . J. Geophys. Res. **86**, 520-524.
- Komura, K. (1997) Challenge to detection limit of environmental radioactivity. Proceedings of 1997 International Symposium on Environmental Radiation (eds. T. Tsujimoto and Y. Ogawa), pp.56-75.
- Lasaga, A. C. (1997) Kinetic theory in the earth sciences (ed. Hollander, H. D.). Princeton University Press. 811p.
- Li, W., Franklyn, M. T., McNutt, R. H., Schwarcz, H. P., Gascoyne, M., Kamineni, D. C. and Frapé, S. K. (1989) A Sr isotopic study of the Eye-Dashwa Lake pluton, Ontario and the Lac du Bonnet pluton, Manitoba: plagioclase/water reaction. In: water-Rock Interaction WRI-6 (ed. D.L. MILES), A.A. Balkema Publ., pp.441-444.
- Mahara, Y. and Igarashi, T. (1993) Survey of groundwater flow in a volcanic aquifer by the ^3H - ^3He dating method. "Selected papers on Environmental hydrogeology" (ed. Y. Sakura), IAH, **4**, pp.173-183.
- Matsuhisa, Y. and Kurasawa, H. (1983) Oxygen and strontium isotopic characteristics of calc-alkalic volcanic rocks from the central and western Japan arcs: evaluation of contribution of crustal components to the magmas. J. Volcanol. Geotherm. Res. **18**, 483-510.
- McNutt, R. H., Frapé, S. K., Fritz, P., Jones, M. G. and MacDonald, I. M. (1990) The $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ values of Canadian shield brines and fracture minerals with applications to groundwater mixing, fracture history, and geochronology. Geochim. Cosmochim. Acta **54**, 205-215.
- Nakamura, N., Yamamoto, K., Noda, S., Nishikawa, Y., Komi, H., Nagamoto, H., Nakayama, T. and Misawa, K. (1989) Determination of picogram quantities of rare-earth elements in meteoritic materials by direct-loading thermal ionization mass spectrometry. Anal. Chem. **61**, 755-762.

- Nakano, T. and Tanaka, T. (1997) Strontium isotope constraints on the seasonal variation of the provenance of base cations in rain water at Kawakami, central Japan. *Atmospheric Environment* **31**, 4237-4245.
- Nir-EI, Y. (2001) Minimum detectable activity in gamma-ray spectrometry—Statistical properties and limits of applicability. *The Radiation Protection Journal*, **80**, S22-S25.
- Notsu, K., Wakita, H. and Nakamura, Y. (1991) Strontium isotopic composition of hot spring and mineral spring waters, Japan. *Applied Geochemistry* **6**, 543-551.
- Ohtsuka, Y., Yamamoto, M., Sasaki, K. and Komura, K. (2002) Cosmogenic radionuclide ^{22}Na as an index in evaluating residence time of lake water. *Radioprotecton-colloques*, **37**, C1, 63-68.
- Serne, R. J., Rai, D. and Relyea, J. F. (1979) Preliminary results on comparison of adsorption-desorption methods and statistical techniques to generate K_d predictor equations. *Proc. of the Workshop on the Migration of long-lived radionuclides in the Geosphere*, OECD, 63-77.
- Snow, D. D. and Spalding, R. F. (1997) Short-term aquifer residence times estimated from ^{222}Rn disequilibrium in artificial-recharged ground water. *J. Environ. Radioactivity* **37**, 307-325.
- Tamari, Y., Inoue, Y., Tsuji, H. and Kusaka, Y. (1982) An analysis of the chemical compositions of groundwaters utilizing a leaching technique. An application to the Rokko Mountains and their surroundings. *Bull. Chem. Soc. Jpn.* **55**, 3760-3765.
- Tokuyama, H., Onishi, M. and Matsuura, H. (1993) Environmental background level of cosmic ray produced ^{22}Na . *J. Environ. Radioactivity* **21**, 213-218.
- Tokuyama, H. and Igarashi, S. (1998) Seasonal variation in the environmental background level of cosmic-ray-produced ^{22}Na at Fukui City, Japan. *J. Environ. Radioactivity* **38**, 147-161.
- Tsunogai, U. and Wakita, H. (1995) Precursory chemical changes in ground water: Kobe earthquake, Japan. *Science* **269**, 61-63.
- Yamamoto, S. (1995) *Volcano body springs in Japan*. Kokon-Shoin, 264p.

(受付 2003年4月10日)

(受理 2003年7月17日)

この論文に対する討論を2004年5月31日まで受け付けます。