三島溶岩流内地下水の年代について

馬原保典**・五十嵐敏文**・田中靖治**

Groundwater Ages of Confined Aquifer in Mishima Lava Flow, Shizuoka

Y. Mahara**, T. Igarashi**
and Y. Tanaka**

ABSTRACT

This study focused on developing a tritium and helium-3 (^3H - ^3He) dating method to survey the flow of groundwater in a large geohydrologic catchment area with groundwater basins including candidate disposal sites for wastes. The dating method is based on counting the increase of ^3He produced by beta decay of tritium in groundwater. Precise detection of ^3He is very difficult because the ratio of ^3He to ^4He is generally less than 10^{-6} for 10^{-8} ccSTP of helium dissolved in one gram of groundwater. We developed an isolating sampling method for groundwater in which atmospheric air is prevented from contacting groundwater sample and the ^3He is measured by mass spectrometry. We applied this dating method to the confined aquifer in the Mishima lava flow located in the east side of Mt. Fuji. The measured age of groundwater is aligned young to old following the groundwater flow. The groundwater in the Mishima area was grouped into two different sources based on the measured groundwater ages and the stable isotope composition (δD and $\delta^{18}\text{O}$). The movement of groundwater in the lava flow was calculated to be an approximate 16m/day based on the difference between the groundwater ages measured at two sampling sites (Izushimada and Kakitagawa) and the geographical distance. This is in good agreement with results measured by radioisotope flow meter in a geohydrologic investigation 20 years ago and calculated by Darcy's law.

key words: dating groundwater, tritium, tritiogenic helium-3, stable isotopes, Mishima Lava Flow.

1. はじめに

**電力中央研究所 我孫子研究所 原燃サイクルプロジェクト部処分チーム

廃棄物処分の環境影響評価ならびに地下水資源の開発においては、降水を含めた大きな水の循環を把

握することが重要である。その際、水の循環速度とりわけ地下での水の滞留時間と地下での異なる滞留時間の地下水の混合割合を知ることは、地下水流動評価の上できわめて意義深いことである。このため一つの方法として、地下水の水質を調べることによって地下水の流動を把握しようとする新しい技術開発の試みが近年盛んとなっている。地下水の適切な水質因子を選択すれば、地下水を包蔵する周辺岩盤の環境条件をも推定することが可能となる。その意味では、地下水に溶存してる物質は天然のトレーサーと考えることができる。

天然トレーサーを用いた地下水調査には、①溶存イオン量・溶存ガス量あるいは、重水素(D)重酸素(^{18}O)等の同位体比の変動によって地下水の流域区分や涵養源等の推定(Sugisaki, 1961: 吉岡他, 1979: 水谷・小田, 1983: Rauert et al, 1974: Burgman, et al., 1978: Rodhe, 1983)、②天然地下水中に存在する放射性核種の放射壊変の速度より地下水の年代(滞留時間)を推定(北岡, 1983: 木村, 1986: Paul, 1986: Martin, 1985: Bentley et al., 1986: Phillips et al., 1986)する方法とがある。これらの内で地下水に含まれ地下水と同一挙動をとると考えられている天然放射性トレーサー ^3H 、 ^{14}C 、 ^{36}Cl 、 ^{129}I 等(Kaufman・Libby., 1954: Kaufman, 1961)の地下水中濃度の経時変化を測定することによって地下水の滞留時間を直接推定することができるのは、放射性核種の活用による年代決定法である。地下水の年代測定に用いられる最もポピュラーな核種は、 ^3H と ^{14}C であるが、測定結果を基に直接的に地下水の流速を求める程の精度は期待できない。また、我国のように降雨量の多い地域で、浅層地下水の水循環が比較的速い場合には ^3H を用いた比較的短い地下水年代測定は有効と期待されるが、最近のように降水中の ^3H 濃度の低下が著しい場合には、同一地点において長時間(2～5年)連続測定を行わなければ地下水年代の推定は、困難となりつつある(北岡・吉岡, 1984: 本島, 1987)。このような状況を考えると、一回の測定で年代の決定が可能となるような測定法の開発が望まれる。この ^3H 法の欠点(長期連続測定、推定限界時間～数10年)をおぎない一回の測定で滞留時間としては、最長100年程度までの推定を可能とする方法として ^3H - ^3He 測定法の適用が考えられる(Torgersen et al., 1977, 1979: Mamyrin・Tolstikhin, 1984: Takaoka・Mizutani, 1987;

Soloman・Sudicky, 1991: Kamensky et al., 1991: Stute et al., 1992)。

本研究では、 ^3H - ^3He 年代測定法を三島溶岩流地下水に適用し、その他の調査結果とも組合せ、地下水の起源の同定と流域区分を試み、地下水調査の一手段として地下年代測定が有効であることを示す。

2. 地下水年代決定原理と採水・分析

2. 1 ^3H - ^3He 法年代決定原理

議論を簡単にするために図-1に示すような上下を不透水層で区切られた被圧地下水層を考える。今、ある固有のトリチウム濃度を持った降水が地下に浸透し地下水を涵養すると考える。一度地下に浸透した降水に対しては、周辺地層からの ^3H 供給は、ウラン・トリウムの含有量が少なく、中性子密度が小さな場合には、殆ど無視できる程度であり(Morrison・Pine, 1955: Andrews et al., 1989)、かつ地下水の流れがピストン流と仮定でき、そこでは流れによる混合拡散も小さいと考えると地下水の ^3H 濃度は、浸透初期の降水の ^3H 濃度と滞留時間の関数となり式(1)で表すことができる。ただし、この場合には($^3\text{He}/^4\text{He}$)比が、大気ヘリウム成分等と比べ著しく高いマントルヘリウム成分の混入がないとの暗黙の仮定も含まれている。

$$C_t = C_0 e^{-\lambda t} \quad (1)$$

ここに C_t ; 採水時の ^3H 濃度(T.U.)

C_0 ; 地下水の初期 ^3H 濃度(T.U.)

λ ; ^3H の壊変定数(1/T)

T ; 滞留時間

しかしながら初期濃度 C_0 については、最近のように降水 ^3H 濃度が10T.U.前後に低下してくると、長期間の測定を行わなければ決定することが困難となってきた。一回の測定で C_0 を決定する方法として、 ^3H が β 壊変して生成される ^3He を同時に同一試料水について測定できれば、式(2)より

$$[^3\text{He}]_{\text{tri}} = C_0(1 - e^{-\lambda T}) \quad (2)$$

C_0 を決定できる。ただし $[^3\text{He}]_{\text{tri}}$ は、 ^3H の β 壊変によって生成される ^3He 原子の数である。

(1)(2)式より地下水年代(滞留時間)Tは、次式で推定される。

図-1 ^3H - ^3He 法による地下水年代決定

Fig. 1. Determination of groundwater ages using the ^3H - ^3He dating method

$$T = 17.691n(4.01 \frac{[^3\text{He}]_{\text{tri}}}{C_t} \cdot 10^{14} + 1) \quad (3)$$

ここに $[^3\text{He}]_{\text{tri}}$ ；地下水中 ^3H の β 崩壊によって生成された ^3He 量(ccSTP/g)

$[^3\text{He}]_{\text{tri}}$ の評価ならびに式(3)の妥当性については、Mamyrin・Tolstikhin(1984)等によって詳しく論ぜられているのでそれらを参照されたい。

2. 2 地下水採水

地下水中で ^3H の β 壊変によって生成された極微量 ^3He ($\sim 10^{-14}$ ccSTP/g)を高精度で分析するには、まず生成した ^3He を逃さないよう、また大気と接触しないよう気密状態で採水する必要がある。

井戸等の中で大気との接触を遮断し採水するため、実際には、採水試料管の上下に止水弁(逆止弁)を設けそれを所定の深度まで降下させることによって採水を行う。止水弁はその降下の間は開いており、自由に地下水は採水試料管内を流れ、一度止めて採水試料管を引き上げる時には止水弁が働き、その深度での地下水試料が採水試料管内に閉じ込められる構造となっている。

採水試料管(内径8mm 銅管肉厚1mm)には、試料水の密封性能を考慮し神戸製鋼所製冷蔵庫用なまし銅管(JISH3300 C1220T-0)を使用した。本採水シ

ステムによって原位置において採水試料管内に採取された地下水は、逆止弁が働いたままの状態で地上に引き上げ、なまし銅製の採取試料管の両端を直接銅製クランプで締め付け密封する。この方法を用いるとなまし銅がクランプエッジによって引き延ばされ完全に密着し溶存ガスの漏洩と外からの大気ガスの侵入を防ぐことができる。この方法を用いると、地下水中に溶存するヘリウムは、10000年でわずか0.1%が逸散するに過ぎないと Weiss (1968)は述べている。この採水方法では、 ^3He の分析に必要な試料水量として、15ml程度の採取が可能である。

2. 3 溶存希ガス分析

^3He 分析のためには、採取した地下水試料より溶存ガスの抽出とその精製後、質量分析器へ導入し、 ^4He 絶対量と($^3\text{He}/^4\text{He}$)比を測定する。また、地下水の涵養温度ならびに過剰大気の混入判定のために、Qマスをを用いた($^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$)比の測定が必要がある。

溶存ガス抽出は、なまし銅管製の採水試料管を抽出装置に接続し、系全体を超高真空状態($\sim 10^{-8}$ mbr)とした後、採水試料管を密閉している真空系側の銅製クランプをはずし銅管の密着部分を押し上げ一度試料水をステンレス製の水容器に落とす。水容器に移された試料水から10分間高周波洗浄器を用いて溶

存ガスを追い出しながら液体窒素で冷却した活性炭上に水蒸気と共に捕取する。この抽出方法によりほぼ活性炭に溶存ガスの95%が捕取される。この抽出率は20℃で蒸留水を大気と溶解平衡にした後、地下水の採水に用いた同じ採水試料管に同じ鋼製クランプを用いて蒸留水約15mlを封入し、上記と同様の抽出操作を10個の試料に対し行い、測定した結果と理論溶解量(Weiss 1971)と比較し決定した。従って、この抽出率の中にはブランク効果を含んだ結果となっているものと解釈される。

溶存ガスを捕取した活性炭トラップを抽出装置からはずし、溶存ガス清浄化装置に接続し、一度系全体を超真空($\sim 10^{-9}$ mbr)にした後2ヶ所に設けた液体窒素で冷やしたU字管を通して水蒸気および凝縮性のガス成分を除去する。さらにチタン・ゲッターポンプによって活性ガス成分(例えば H_2 、 N_2 、 O_2 、炭化水素等)を除去した後、He分析に不要なAr、Kr、Xeの不活性ガス成分を液体窒素で冷却した活性炭上に捕取除去した後、残存ガスであるHeとNeを質量分析器(VG-5400、英国VG社製)に導入し、 4He 量および $(^3He/^4He)$ 比を同様の操作によって処理した空気試料より作成した標準He試料と比較し測定した。なお、標準空気の $^3He/^4He$ 比の値については、常に更新されてきているが、ここではSano et al. (1984)、Sano, Wakita (1985)、Graham et

al. (1987)、Poreda et al. (1988)等が用いた値 1.4×10^{-6} を採用した。写真-1に測定装置の全景を示す。

分析の測定上の精度としては、 (^4He) と $(^3He/^4He)$ 比は、各々1%と0.5%の測定誤差を含んでいる。15~17(g)の地下水中に含まれる 3He 量としては、概ね 10^{-15} ccSTP/gオーダーまで測定が可能である。なお、 4He 量の測定誤差としては、標準空気0.16cc中に含まれる 4He 量を20回づつ一定容積を持つ溶存ガス清浄化装置内に拡散させた後、バルブで清浄化装置を区切って質量分析器に導入する 4He 量を変化させながら出力と 4He 量の関係を表わす検量線を最小自乗法を用いて作成した。その時の相関係数誤差が1%程度である。また、 $(^3He/^4He)$ 比は、同一試料に対する測定上の繰り返し誤差としては、0.5%程度を含んでいる。また、 $(^{20}Ne/^4He)$ 比は、質量分析計に導入した後のHe、Ne試料をQマス(マスメートル100アルバック社製)に導入し測定した。その測定精度は、10%程度の測定誤差を含むものと思われる。この誤差の見積もりとしては、標準空気試料ならびに20℃で大気と溶解平衡に達した蒸留水から抽出した溶存He-Ne比の繰り返し測定結果とWeiss(1971)の理論溶解度比の結果と比較し推察した。なお、計測時のブランク 4He 量の評価としては、スタンダードとした標準空気パイペット0.16cc中

写真1. 溶存ガス抽出、ガス清浄化ラインと質量分析器(VG-5400)の全景

Picture 1. The whole view of the extraction line of the dissolved gases of groundwater samples, the purification unit and the mass spectrometer (VG-5400).

のHeに対する出力約0.80mVに対し、ブランクテスト時のHeに対する出力は約0.02mVである。すべての測定結果の整理においては、このブランク時出力分を差し引くことによりブランクの影響は考慮した。

3. 三島溶岩流内地下水の年代測定

3. 1 水理地質概要

蔵田(1962)、金子・落合(1966)、落合・川崎(1970)等の報告を基に三島溶岩流の構造の概要をまとめると以下のように記述できる。『玄武岩を主体とする三島溶岩流は、富士山南東斜面須山に源を発し愛鷹山、箱根山の裾合谷を流下し表層部は三島市楽寿園付近で止まっているが、一部はさらに南下し、柿田川さらに沼津方面に延びている。三島市内および柿田川の各湧泉群はこの溶岩流の末端部分に位置している』。この溶岩流の間隙率は、伊豆島田付近での測定によれば10~90%と大きく平均的には30~40%程度であり、溶岩層全体での平均透水係数は、0.029m/secと見積もられている(金子・落合、1966：落合・川崎、1970)。

3. 2 地下水採取

三島溶岩流内の地下川主流上に位置すると考えられる伊豆島田にある深井戸、自噴している三島市一番町湧泉と柿田川湧泉群および三島溶岩流地下川主流からは離れている三島市内の自噴井戸である谷田小山、竹倉、大場の6地点において、溶存ガスならびに環境同位体(δD 、 $\delta^{18}O$)分析用の地下水試料(15mℓ)を4個づつおよび 3H 分析ならびに溶存イオン分析用地下水試料として各1000mℓを採水した。 3He 分析用地下水採取は、1988年11月9~10日に行った。図-2に地下水採取地点を示す。

3. 3 地下水水質、環境同位体比および 3He 分析

①溶存イオン濃度分析；測定項目は、 Na^+ 、 K^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 HCO_3^- (以上JIS規格による分析)および Cl^- 、 SO_4^{2-} (以上イオンクロマトグラフによる分析)である。分析結果を表-1に示す。この結果を基にヘキサダイアグラム(図-2)ならびにキーダイアグラム(図-3)を描いてみると、三島溶岩地下川上に位置すると考えられる伊豆島田、一番町および柿田川湧泉は殆んどヘキサダイア

グラムの形状と大きさは一致し、キーダイアグラム上ではほとんど同じ位置にプロットされる。一方、谷田小山、竹倉、大場の地下水のそれは、前述の3地点のものとは若干異なる。谷田小山のヘキサダイアグラムは前3者とほぼ相似形であるが、大きさは大きい。このことは周辺岩盤との接触時間が長い可能性を示唆している。また、竹倉ならびに大場のヘキサダイアグラムの形状は、三島溶岩流地下水のものとは異なることから地下水系が異なるものと想定される。

②環境同位体比(δD 、 $\delta^{18}O$)分析；6地点の分析結果と富士山、箱根での降雪・降水、箱根地下水ならびに芦ノ湖の表層水の分析結果(中井・水谷、1985：Matsuo et al., 1979)とを図-4に天水線と共に示す。6地点の地下水は、ほぼ天水線上に並ぶことによりこれら地下水の起源が降水起源であると判断される。図-4の中で伊豆島田、一番町、柿田川のA群と谷田小山、竹倉、大場のB群さらには、箱根の地下水C群の地下水は、 δD 、 $\delta^{18}O$ 比に若干の差が認められる。A群とB群の違いは主に、地下水の涵養された場所の違い、例えば高度効果に起因する可能性が高い。また、B群の三島溶岩流内の地下水は、C群である箱根地区の地下水とはほぼ同程度の気温条件下で涵養された地下水と考えられるが、 δD の比が若干異なることから箱根の地下水とは起源を異にするようである。このように見ると、箱根以外の高所で涵養された地下水と考えられその起源としては富士山あるいは、愛鷹山系で涵養された地下水とも考えられる。

また、A群の地下水は、B群ならびにC群の地下水より重い同位体に富んでおり、B群(富士山系)あるいはC群(箱根山系)の地下水に平野部で降った降雨が混って出来た地下水と解釈出来る。このA群の地下水は、芦ノ湖の表層水(LA)ときわめて近い同位体比を有しており、芦ノ湖の水が深良用水によって深良川に流入し、三島の地下水の一部を涵養している可能性が高いことを考えると、主に箱根山系の地下水にによって涵養されていると解釈するのが妥当なようである。

③ 3H 濃度分析；(電解濃縮の後科技庁マニュアルによる測定)は、全地点とも10T.U以下(表-1参照)であり、最近の降水レベルとはほぼ同程度である。三島溶岩流内地下川上の3地点(6.9~9.1T.U)は、他3地点(4.5~7.0T.U)に比べ若干高いレベルにあ

図-2 地下水採取位置とヘキサダイアグラムの大きさで地下水年代・環境同位体測定結果を基にした地下水起源の分離

Fig. 2. Sampling sites of groundwater in the Mishima groundwater basin and the hexa-diagram of dissolved cations and anions, the separation of groundwater sources based on the groundwater ages dating by the $^3\text{H}+^3\text{He}$ method and the measurement of the abundance of the stable isotopes, deuterium and oxygen-18.

る。

以上の①②③の結果から、三島溶岩流地下川上に位置する伊豆島田、一番町、柿田川湧泉の地下水は同一水系の地下水であり、谷田小山、竹倉および大場の地下水とは水系が若干異なる。

3. 4 ^4He の起源とトリチウム起源 ^3He 濃度の評価

伊豆島田、一番町、柿田川湧泉、谷田小山、竹倉、

大場の各地下水について ^4He 、($^3\text{He}/^4\text{He}$)比および($^{20}\text{Ne}/^4\text{He}$)比^{*1)}の測定を行った。 ^4He 濃度は $4.6 \times 10^{-8} \sim 5.7 \times 10^{-8} \text{ccSTP/g}$ にあり、いずれの地下水試料ともに三島地域の平均気温を 15°C とした際の飽和 ^4He 溶解量 $4.55 \times 10^{-8} \text{ccSTP/g}$ よりも多い He が溶けている。従って、1気圧の大気中に含まれる He と溶解平衡に達した量以上の過剰 He の溶解が認められる。Sugisaki (1961)が明らかにした地下水中の保存性の溶存希ガス量は、降水が地下に浸

表一 1 地下水溶存イオン濃度と³H濃度分析結果

Table 1. Concentration of the dissolved ions and concentration of tritium (³H) in groundwater samples.

採水日と 測定項目 採水場所	採水日	Na ⁺ (mg/ℓ)	K ⁺ (mg/ℓ)	Ca ²⁺ (mg/ℓ)	Mg ²⁺ (mg/ℓ)	Cl ⁻ (mg/ℓ)	SO ₄ ²⁻ (mg/ℓ)	HCO ₃ ⁻ (mg/ℓ)	³ H (T.U.)
伊豆島田上水場	(1988) 11/ 9	8.8	1.2 8	1 8.0	6.0 0	5.7	1 5.2	5 4	6.9 ± 0.5
一番町湧水	(1988) 11/ 9	9.0	1.6 0	1 8.7	6.1 9	7.8	1 3.8	5 2	9.1 ± 0.5
柿田川湧水	(1988) 11/10	8.8	1.2 6	1 6.6	5.6 5	7.1	1 3.3	5 2	7.4 ± 0.5
谷田小山	(1988) 11/ 9	8.2	1.5 4	2 9.6	8.2 9	1 0.4	5.8	9 5	7.0 ± 0.5
竹 倉	(1988) 11/ 9	4.4	0.5 5	1 1.1	2.9 6	3.1	1.4	3 6	4.5 ± 0.5
大 場	(1988) 11/10	5.8	1.4 2	1 3.6	4.0 9	3.9	1.8	4 6	6.0 ± 0.5
検 出 限 界		0.1	0.0 2	0.2	0.0 2	0.1	0.5	1	0.9

図一 3 三島地下水のキーダイヤグラム

Fig. 3. Distribution of groundwater samples in the Mishima groundwater basin in the key-diagram.

図一 4 三島地下水、箱根の地下水と降水、富士山の降雪ならびに芦ノ湖表層水の環境同位体比 (δD 、 $\delta^{18}O$) の分布 (箱根地下水、降水、芦ノ湖表層水は、Matsuo (1979) より引用; 富士山の降雪は、中井・水谷 (1985) より引用)

(1 : 伊豆島田, 2 : 一番町湧泉, 3 : 柿田川湧泉, 4 : 谷田小山, 5 : 竹倉, 6 : 大場、HGW : 箱根地下水、HP : 箱根降水、LA : 芦ノ湖表層水、FS₁、FS₂、FS₃ : 富士山降雪)

Fig. 4. $\delta^{18}O$ values are plotted versus δD accompanying with the global meteoric water line. $\delta^{18}O$ and δD of groundwater samples in the Mishima basin were measured in this study. Data of the groundwater, the rainwater and the surfacewater of the Lake Ashinoko in the Hakone area were cited from Matsuo's work (1979), and data of snow at the Mt. Fuji were cited from the study of Nakai and Mizutani (1985).

(1: Izushimada, 2: Ichibancho, 3: Kagitagawa, 4: Tanitakoyama, 5: Takekura, 6: Daiba, HGW : Groundwater of Hakone, HP : Averaged Precipitation at Hakone, LA : Surface Water of the Ashinoko Lake, FS₁, FS₂, FS₃: Snow of Mt. Fuji)

透し、地中で大気との接触を遮断された時の温度での飽和溶解量を維持しているという研究成果と²⁰Neは地中での生成が無視でき、地下水中に溶解している²⁰Neはすべて大気起源と考えられる事実を基に、地下水の涵養温度を推定する。その結果、1気圧の大気中に含まれる²⁰Neの各温度での蒸留水に対する飽和溶解量と比較することによって地下水の涵養時の温度を推定できたものと、測定された²⁰Ne量が、 $2.25 \times 10^{-7} \text{ccSTP/g}(0^\circ\text{C})$ の最大飽和溶解量より多く、過剰空気が地下水の涵養時あるいは採水時に取り込まれたと思われる試料とが存在することが明らかとなった。

³H-³He法で地下水年代を推定するには、(³He/

⁴He)比が著しく高いマントル・ヘリウム成分の混入のないことを確認しておく必要がある。この点については、以下のように評価した。まず、本研究で測定されたデータ、1気圧の大気中に含まれるヘリウムと溶解平衡蒸留水データ、我国の花崗岩地帯で測定した放射壊変生成ヘリウム成分の卓越した浅層地下水データ、溶存ヘリウムの大部分を放射壊変生成ヘリウム成分で占めている非常に古い地下水年代を有しているオーストラリア大陸地下の深層地下水データ (Torgersen, Clarke 1987)、明らかにマントルヘリウム成分の混入が認められる熊本平野の地下水 (馬原, 1992) と山形県の温泉水データ、トリチウムの壊変によって(³He/⁴He)比の上昇が認められる

図-5 種々の地下水サンプルに含まれる溶存ヘリウム量($^3\text{He}/^4\text{He}$)比、($^{20}\text{Ne}/^4\text{He}$)比の関係
 1～6：三島地下水、7～10：0℃、10℃、20℃、30℃での大気ヘリウムとの溶解平衡蒸留水、
 11～16：トリチウム起源 ^3He の増加の認められる堆積岩中浅層地下水、17～20：放射壊変ヘリ
 ウム成分の蓄積により($^3\text{He}/^4\text{He}$)比の低下が認められる花崗岩中地下水、21～26： ^4He の蓄積
 により($^3\text{He}/^4\text{He}$)比低下の著しい地下水年代 10^6 年以上と見積もられているオーストラリア深層
 地下水、27～30：マントルヘリウム成分の混入の可能性が高い熊本平野地下水、31：山形県の温
 泉水、I：トリチウム起源 ^3He の増加に伴い大気ヘリウム溶解平衡水の進化の方向、II：マン
 トルヘリウム成分の増加に伴い大気ヘリウム溶解平衡水の進化の方向、III：放射壊変ヘリウム成
 分の増加に伴い大気ヘリウム溶解平衡水の進化の方向、なお、11、12、31のデータは Takaoka・
 Mizutani (1987)、21～26のデータは Torgersen・Clarke (1987) より引用した)

Fig. 5. Correlations among total content of dissolved helium, the ratio of ^3He to ^4He , and the ratio of ^{20}Ne to ^4He in various groundwater samples.

(1～6: groundwater samples in the Mishima basin, 7～10: distilled water samples equili-
 brated with atmospheric helium at 0℃, 10℃, 20℃, and 30℃, 11～16: shallow groundwater
 samples in Tertiary sediment with considerable increase of tritiogenic ^3He , 17～20: ground-
 water samples in granite area with decrease of the ratio of ^3He to ^4He caused by accu-
 mulation of radiogenic ^4He , 21～26: deep groundwater samples under the Australian con-
 tinent, which are more than 10^6 years old, with remarkable decrease of the ratio of ^3He to
 ^4He caused by accumulation of radiogenic ^4He , 27～30: groundwater samples collected in
 the Kumamoto Plain, which is suspected to be an intrusion of mantle helium component
 with high ratio of ^3He to ^4He , 31: hot-spring sample, I: evolutionary trend of distilled water
 equilibrated with atmospheric helium with increase in tritiogenic ^3He , II: evolutionary trend
 of distilled water equilibrated with atmospheric helium with increase in the mantle helium
 component, III: evolutionary trend of distilled water equilibrated with atmospheric helium
 with increase in radiogenic helium component, Data for samples 11, 12 and 31 are cited
 from Takaoka and Mizutani (1987) and data for samples 21～26 are cited from Torgersen
 and Clarke (1987)).

高岡平野の地下水(Takaoka・Mizutani, 1987)と浅層堆積岩中地下水データの三次元分布を図-5に示す。この図から本研究で測定された6個のデータは、ほぼ大気溶解平衡ヘリウムデータとトリチウム壊変による($^3\text{He}/^4\text{He}$)比の上昇($^{20}\text{Ne}/^4\text{He}$ 比は大気溶解平衡と同程度)データ域近傍に分布している。このことは、本データでは、マントルヘリウムの混入の可能性は、きわめて小さいと考えられる。

さらに、次のようなMamyrin・Tolstikhin(1984)やSano・Wakita(1985)、馬原(1992)等が、ヘリウム成分の分離に用いたのと同様なヘリウム3成分(トリチウム壊変と大気溶解混合ヘリウム成分、放射壊変ヘリウム成分、マントルヘリウム成分)の($^3\text{He}/^4\text{He}$)比、($^{20}\text{Ne}/^4\text{He}$)比の違いを活用したヘリウム三成分混合モデルを考え、各成分の混合割合の評価を試みる。

[三成分混合モデル]

$$[\text{RHe}]_s = [\text{RHe}]_{at} \cdot \text{AT} + [\text{RHe}]_m \cdot \text{M} + [\text{RHe}]_r \cdot \text{R} \quad (4)$$

$$[\text{RNe}]_s = [\text{RNe}]_{at} \cdot \text{AT} + [\text{RNe}]_m \cdot \text{M} + [\text{RNe}]_r \cdot \text{R} \quad (5)$$

$$\text{AT} + \text{M} + \text{R} = 1 \quad (6)$$

ここに、 $[\text{RHe}]$ は($^3\text{He}/^4\text{He}$)比を、 $[\text{RNe}]$ は($^{20}\text{Ne}/^4\text{He}$)比を表す。s, at, m, rは各々、測定試料、大気とトリチウム成分、マントル成分、放射壊変成分を表す。また、AT, M, Rは測定試料中に占める各ヘリウム成分の存在割合を表す。また、Sano・Wakita(1985)の研究から $[\text{RHe}]_m = 1.1 \times 10^{-5}$ 、 $[\text{RHe}]_r = 1.5 \times 10^{-8}$ 、 $[\text{RNe}]_m = [\text{RNe}]_r = 0.001$ また、 $[\text{RNe}]_{at}$ としては、推定涵養温度での1気圧の大気に含まれるヘリウムとネオンの溶解平衡時の値を用いる。さらに、ここでは $[\text{RHe}]_{at}$ は大気ヘリウム成分と溶解平衡に達した後に降水中に含まれていたトリチウムがすべて壊変して生成した ^3He が含まれると仮定した($^3\text{He}/^4\text{He}$)比を用いることにすると、 $[\text{RHe}]_{at} = 1.93 \times 10^{-6}$ となる。この値は、降水中に宇宙線起源によって生成されるトリチウムのみを含む場合(Ravoire(1970)等)の値10T.U.程度を考えている。さらに、宇宙線起源のトリチウム生成レベルがKaufman(1954)等の提案レベル(5.5T.U.)にあるとすると $[\text{RHe}]_{at} = 1.65 \times 10^{-6}$ となる。地下水中の初期トリチウム・レベルが、10T.U.と5.5T.U.の場合についてヘリウム3成分の混合割合を計算した結果を表-2に示す。また、初期トリチウムレベル

表-2 ヘリウム3成分(大気+トリチウムヘリウム、マントルヘリウム、放射壊変ヘリウム)混合モデルによって評価した試料水中ヘリウムの混合割合

Table 2. Mixing rates of helium components, which were estimated by the helium mixing model for three different helium components (atmospheric plus tritiogenic helium, mantle helium, and radiogenic helium), in groundwater samples in the Mishima basin.

ヘリウム成分割合 採水場所	5.5 T. U. の場合 (%)			10 T. U. の場合 (%)		
	大気+トリチウム成分	マントル成分	放射壊変成分	大気+トリチウム成分	マントル成分	放射壊変成分
伊豆島田	98.9	0.2	0.9	98.9	-2.3 ^{*3}	3.4
一番町湧泉	94.8	0.8	4.4	94.8	-3.2	8.4
柿田川湧泉	89.5	1.8	8.7	89.5	-0.4	10.9
谷田小山	92.9	2.7	4.4	92.9	-0.9	8.0
竹倉	95.6	0.4	4.0	95.6	-2.0	6.4
大場	97.5	1.3	1.2	97.5	-1.2	3.7

*1: 降水によって涵養された地下水中のトリチウムのすべてが、宇宙線起源によってのみ与えられると仮定した際のトリチウム濃度が5.5 T. U. (Kaufman・Libby, 1954)の場合

*2: 降水によって涵養された地下水中のトリチウムのすべてが、宇宙線起源によってのみ与えられると仮定した際のトリチウム濃度が10 T. U. (Ravoire et al., 1970)の場合

*3: マントルヘリウム成分がマイナス(-)ということは、初期トリチウム濃度が10 T. U. の場合には、マントルヘリウム成分の混入は考えられないことを意味している。

と($^3\text{He}/^4\text{He}$)比、($^{20}\text{Ne}/^4\text{He}$)比の関係を図-6のAに示す。また、降水中のトリチウムレベルは、1963年に大気圏内での熱核実験の影響により、最大約1100T.U.に達した後、急激に減少したが、関東近辺では、1970年代～1980年代前半までは、そのレベルは平均で20T.U.を上回っていた(梶根、他1980、木村、1986)。したがって、1970年代から1980年代前半の三島周辺の降水のトリチウムレベルが20T.U.程度あったと考えても大きな間違いはないものと考えられる。その場合には、表-2の初期トリチウム濃度10T.U.の結果からマントルヘリウム成分の混入の可能性はほとんどないものと考えられる。

($^3\text{He}/^4\text{He}$)比と($^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$)比の関係ならびに、($^3\text{He}/^4\text{He}$)比と ^3H 濃度との関係等を図-6に示す。図-5ならびに図-6のAでは、初期にある ^3H 濃度を持った降水によって涵養された地下水が、地中で滞留時間の増加と共に、周辺岩盤から供給されるHeの増加によって($^{20}\text{Ne}/^4\text{He}$)が初期の ^3H 濃度線上を減少する様子と実測されたデータとの関係を示しているが、この結果から判断するとこの地域の地下水がすべて降雨を起源としていることと、大きなHeの蓄積は認められないことから、非常に古い地下水の混入はあまりない比較的若い地下水と解釈される。また、図-6のDからは、各試料水中に溶

存している ^3H 起源の ^3He 量と地下水涵養時の初期 ^3H 濃度と経過時間(地下水年代)との関係が示されており、採水時点で10年前後経過していることを示している。但し、一番町の湧水のみは、その滞留時間が短く、ごく近年の降水を起源としていることが図-6のB、C、Dの結果からも理解できる。

3. 5 地下水年代の評価

地下水年代の推定方法は、Torgersen et al(1979)とSchlosser et al(1988、1989)が用いた方法によって行った。TorgersenとSchlosserの方法では、地下水の涵養時温度を推定する必要がある、ここでは前述の ^{20}Ne の溶存量より涵養温度を推定する方法を用いた。また、最大飽和溶解量より多い ^{20}Ne を含む試料については、この方法では推定できないので三島の平均気温15℃で涵養したものとして評価した。 ^3He 評価結果を基に推定した地下水年代は、表-3に示すように伊豆島田で9.9年、一番町湧泉で3.7～5.7年、柿田川湧泉で10～10.9年であった。これらの内で、一番町湧泉は、例年は11月頃より冬期(渇水期)には枯渇していることが多いが1988年は、7月～9月の長雨の影響で11月においても湧水があり、そのためにごく最近の降水がかなりの量含まれているために滞留時間を非常に短くしているものと

表-3 地下水中溶存He量、($^3\text{He}/^4\text{He}$)比($^{20}\text{Ne}/^4\text{He}$)比と地下水年代

Table 3. Concentration of the dissolved helium-4, ratio of $^3\text{He}/^4\text{He}$ and ratio of ($^{20}\text{Ne}/^4\text{He}$) in groundwater samples and the calculated ages of groundwater.

測定項目と 採水場所	地下年代 (ccSTP/g)	$^3\text{He}/^4\text{He}$	計算された地下水年代(年)		$^{20}\text{Ne}/^4\text{He}$
			Torgersenの法	Schlosserの法	
伊豆島田上水場	4.70×10^{-8}	1.65×10^{-6}	9.9	9.9	4.34 ** (8°)
一番町湧泉	5.15×10^{-8}	1.48×10^{-6}	5.7	3.7	4.35 ** (0°)
柿田川湧泉	4.60×10^{-8}	1.68×10^{-6}	10.9	10.0	3.93 ** (8°)
谷田小山	5.66×10^{-8}	1.83×10^{-6}	15.1	16.0	4.35 ** (15°)
竹倉	5.63×10^{-8}	1.62×10^{-6}	12.9	14.0	4.17 ** (15°)
大場	4.91×10^{-8}	1.75×10^{-6}	13.4	14.1	4.33 ** (15°)

*1 ; 標準空気 ($^3\text{He}/^4\text{He}$)= 1.400×10^{-6}

*2 ; 過剰空気の混入が認められるので降水中に含まれる飽和 ^4He 量を、ここでは三島の平均気温15℃での飽和溶存 ^4He 量(4.55×10^{-8} ccSTP/g)と仮定した。

*3 ; 溶存 ^{20}Ne より推定した地下水涵養温度

図一六 三島地下水サンプルの $(^{20}\text{Ne}/^4\text{He})$ 比と $(^3\text{He}/^4\text{He})$ 比、 ^3H と $(^3\text{He}/^4\text{He})$ 比、 $(^{20}\text{Ne}/^4\text{He})$ 比とトリチウム起源 ^3He 量と ^3H とトリチウム起源 ^3He 量の関係

(1: 伊豆島田, 2: 一番町湧泉, 3: 柿田川湧泉, 4: 谷田小山, 5: 竹倉, 6: 大場)

Fig. 6. Correlations among ^4He , ^{20}Ne , ^3H and tritiogenic ^3He in groundwater samples of the Misima basin are plotted: A indicates the correlation between the ratio of $(^3\text{He}/^4\text{He})$ and the ratio $(^{20}\text{Ne}/^4\text{He})$ drawing together the relation between the initial ^3H concentration of groundwater and the decrease of the ratio of $(^{20}\text{Ne}/^4\text{He})$ with the elapsing time, B indicates the correlation between the ratio of $(^3\text{He}/^4\text{He})$ and ^3H , C indicates the correlation between the ratio of $(^{20}\text{Ne}/^4\text{He})$ and the tritiogenic ^3He , D indicates the correlation between ^3H and the tritiogenic ^3He drawing together the relation between the initial ^3H concentration of groundwater and the increase of the tritiogenic ^3He with the elapsing time.

(1: Izushimada, 2: Ichibancho, 3: Kagitagawa, 4: Tanitakoyama, 5: Takekura, 6: Daiba)

予想される。一番町湧泉を除く伊豆島田と柿田川湧泉を結ぶ三島溶岩流地下川の地下水の滞留時間としては、10年前後と推定される。この結果は、落合・川崎等(1970)が、1965～1968年にかけて、 ^3H 濃度のみを指標として、核実験の降水の最大 ^3H 濃度ピークを用いた年代測定によって推定した10年以下という結果ともあまり大差ない。今回測定した範囲では、最も古い地下水年代は、谷田小山の15.1～16年であった。また、竹倉、大場の地下水が三島溶岩流地下水より若干古い年代を示すことは箱根山系の深層地下水の中には、数10年以上という滞留時間を有す地下水が存在するという落合・川崎(1970)の結果ともよい相関を持っている。

伊豆島田と柿田川湧泉群までの距離を6000mとして上記地下水年代を基に地下水の実流速を概算すると16m/dayとなる。また、伊豆島田と柿田川湧泉との直線距離6000mと2点の水頭差60m、つまり動水勾配0.01とし平均透水係数を0.029m/secとして、ダルシー流速を求めると25m/dayとなる。溶岩流の平均空隙率を30～40%程度と考えると実流速は60～80m/dayとなる。

一方、金子・落合(1966)等が、ラジオアイソトープ流速計を用いて三島溶岩流層が愛鷹山と箱根山に挟まれて最も狭くなっている伊豆島田付近で測定した流速は、0.01～800m/dayと非常に大きな幅を持っている。これらの結果と最近の三島溶岩の構造に関する研究成果(土、1990)を合わせて判断すると、地下水流としては非常に速く流れている部分と、きわめてゆるやかに流れている部分とが共存するものと考えられる。 ^3H - ^3He 法による年代測定をベースとした地下水流速と、Darcy則で求めた結果が、3～5倍の範囲で一致することから考えると過去の研究(蔵田、1962；金子・落合、1966)において述べられてきた、三島溶岩流内の地下水は、涵養源である富士山から数ヶ月で流下し流出しているとの推定結果は否定しなければならない。

一般水質・環境同位体ならびに地下水年代測定結果から判断すると、三島溶岩流内の地下水は、周辺地下水とはその涵養源を異にしており、特に箱根山系の地下水とはその起源が異なると判断できる。

その結果、三島地区の地下水は、富士山系の地下水によって涵養されている三島溶岩流地下水領域と箱根山系の地下水によって涵養されている領域とに分けられる。三島溶岩流内の地下水は、その年代は

ほぼ10年、東側の箱根山系の地下水は、それより若干古い15年前後の地下水が分布している(図-2参照)。

4. まとめ

水質・環境同位体ならびに ^3H - ^3He 法による地下水年代測定を行った結果ならびに過去の水理地質調査結果を踏まえて判断すると、三島地区の地下水の流動区分ならびに涵養源の特定が可能であるとの結論を得た。これらの結果は、今後の地下水調査においては、Darcy則を基礎とする地下水位、透水係数測定に加えて新に地球化学的観点からの環境同位体測定ならびに ^3H - ^3He 法による年代測定を加えることにより、従来からの調査手法だけでは得られない地下水の流動に関する有力な情報が得られることを示唆している。

注1： $(^{20}\text{Ne}/^4\text{He})$ は、今回の測定では、測定器の都合により $^4\text{He}(^3\text{He}/^4\text{He})$ 比とは同時に測定ができなかったため、後日、保存用別試料(同一場所、同一深度、同一日時に同じ方法で採取した)を用いて $(^{20}\text{Ne}/^4\text{He})$ 比を測定した結果である。

参 考 文 献

- 落合敏郎・川崎宏直(1970)：溶岩流地下水流動に関する研究、農業土木試験場報告第8号、67-82。
- 榎根 勇・田中 正・嶋田 純(1980)：環境トリチウムで追跡した関東ロー層中の土壌水の移動、地理学評論、53、225-237。
- 金子 良・落合敏郎(1966)：富士山ろく地域の水資源に関する研究、三島およびその周辺地域の水収支、農業土木試験場技報、A、第1号、1-22。
- 北岡豪一(1983)：トリチウムによる浅層地下水の滞留時間の推定、水温の研究、26、25-34。
- 北岡豪一・吉岡龍馬(1984)：トリチウム濃度から推定される六甲山系の水循環の速さについて、日本地下水学会誌、26、131-145。
- 木村重彦(1986)：水に含まれる放射性同位体による地中水の挙動解析、農業土木試験場報告、25号、1-19。
- 蔵田延男(1962)：静岡県三島市およびその近郊の地下水理、工業用地下水調査特報Ⅱ、工業用水、43、39-47。
- 土 隆一(1990)：富士山麓の地下水、日本地下水学会、1990年 秋季講演会講演要旨、16-19。
- 中井信之・水谷義彦(1985)：安定同位体による流域の比較

- 研究—降水・河川水・地下水の同位体比—比較河川学の研究、文部省科学研究費特定研究(I)研究成果(比較河川学60-2)52-63.
- 馬原 保典(1992): 溶存希ガス分析による熊本平野地下水の年代測定、土木学会第47回年次学術講演会講演概要集第2部、pp.582-583.
- 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源および流動状況の研究、地球化学、17、1-9.
- 本島 勲(1987): 岩盤地下水の水質・同位体調査—地下水の年代に関する検討(3)、電力中央研究所 研究報告: U86047.
- 吉岡龍馬・出井 紘・富野孝生・田中稔章・豊田恵聖・高橋正美(1979): 溶存アルゴンからみた地下水の動き(1)、京大防災研究所年報、22号 B1、1-12.
- Andrews J.N., DAVIS, S.N., Martin, J.F., Fontes, J.C., Lehmann, B.E., Loosli, H.H., Michelot, J.L., Moser, H., Smith, B. and Wolf, M., (1989): The in situ production of radioisotopes in rock materials with particular reference to the stripa granite, *Geochimica Cosmochimica Acta*, 53, 1803-1815.
- Bentley H.W., Philips F.M., Stanley N.D., Harbermehl M.A., Airey P.L., Calf G.E., Elmore D. Gore H.E. Torgersen T. (1986): Chlorine 36 dating of very old groundwater 1. The great Artesian Basin, Australia, *Water Resource Research* 22, 1991-2001.
- Burgman J.O.S. Eriksson E. Kostov L. Möller. Å (1978): Application of oxygen-18 and deuterium for investigating the origin of groundwater in connection with a dam project in Zambia (IAEA-SM-228/3), *Isotope hydrology*, Vol.1, 27-42.
- Graham, D.W., Jenkins, W.J., Kurz, M.D., and Batiza, R., (1987): Helium isotope disequilibrium and geochronology of glassy submarine basalts, *Nature*, 326, 384-386.
- Kamensky, I.L., Toharev, I.V. and Tolstikhin, I.N. (1991): ^3H - ^3He dating A case for mixing of young and old groundwaters, *Geochimica Cosmochimica Acta*, 55, 2895-2899.
- Kaufman S. and Libby, W.F. (1954): The natural distribution of tritium, *Phys. Rev.*, 93, 1337-1344.
- Kaufman J.W. (1961): Tritium as a groundwater tracer, *ASCE Transaction* pap.No.3203, 436-446.
- Mamyrin B.A. and Tolstikhin I.N. (1984): Helium Isotopes in *Nature*, pp.273, Elsevier, Amsterdam, Netherlands.
- Martin J.F., Bentley H., Elmore D. and Airey P.L. (1985): Natural iodine-129 as an environmental tracer, *Geochimica Cosmochimica Acta*, 49, 337-347.
- Matsuo, S., Kusakabe, M., Niwano, M., Hirano, T. and Oki, Y. (1979): Water budget in the Hakone caldera using hydrogen and oxygen isotope ratios, *Isotopes in Lake studies* (IAEA), 131-141.
- Morrison, P. and Pine, J. (1955): Radiogenic origin of the helium isotopes in rock, *New York Academy of Sciences*, 62, 69-92.
- Paul M: Kaufman A: Magaritz M: Fink D: Henning W: Kaim R: Kutschera W: Meirav O. (1986): A new ^{36}Cl hydrological model and ^{36}Cl systematics in the Jordan River/Dead Sea System, *Nature*, 321, 511-515.
- Philips F.M.: Bently H.W: Stanley N.D: Elmore D: Swanik G.B. (1986): Chlorine 36 dating of very old groundwater 2. The Milk River aquifer, Albarta, Canada, *Water Resources Research*, 22, 2003-2016.
- Poreda, R.J., Cerling, T.E., and Salomon, D. K., (1988): Tritium and helium isotopes as hydrologic tracers in a shallow unconfined quifer, *J. Hydrology*, 103, 1-9
- Rauert W.: Stichler W (1974): Groundwater investigations with environmental isotopes (IAEA-SM-182/24), *Isotope Techniques in Groundwater Hydrology*, Vol.1. 431-441.
- Rodhe A (1983): Groundwater contribution to stream flow in Swedish forested till soil as estimated by oxygen-18 (IAEA-SM-270/65), *Isotope hydrology*, 55-66.
- Sano, Y., Nakamura, Y., and Wakita H., (1984): Helium-3 emission related to volcanic activity, *Science*, 224, 150-151.
- Sano, Y. and Wakita, H., (1985): Geographical distribution of $^3\text{He}/^4\text{He}$ ratios in Japan: Implications for Arc tectonics and incipient magmatism, *J. Geophysical Research*, 90, B-10, 8729-8741.
- Schlosser, P., Stute, M., Dörr, H., Sonntag, C. and Münnich, K.O. (1988): Tritium/ ^3He dating of shallow groundwater, *Earth Plant. Sci. Lett.*, 89, 353-362.
- Schlosser, P., Stute, M., Sonntag, C. and Münnich, K.O., (1989): Tritogenic ^3He in shallow groundwater, *Earth Plant. Sci. Lett.*, 94, 245-256.
- Solomon, D.K. and Sudicky, A.E. (1991): Tritium and helium 3 isotope ratio for direct estimation of spatial variations in groundwater recharge, *Water Resources Res.*, 27, 2309-2319.
- Stute, M., Sonntag, C., Deák, J. and Schlosser, P. (1992): Helium in deep circulating groundwater in the Great Hungarian Plain: Flow dynamics and crustal and mantle helium fluxes, *Geochimica Cosmochimica Acta*, 56, 2051-2067.
- Sugisaki R. (1961): Measurement of effective flow velocity of groundwater by means of dissolved gases, *Am. J. Science*, 259, 144-153.
- Takaoka, N. and Mizutani, Y. (1987): Tritogenic ^3He in groundwater in Takaoka, *Earth Planet. Sci. Lett.*, 85, 74-78.
- Torgersen, T., Top. Z., Clarke W.B., Jenkins W.J. and Broecker, U.S. (1977): A new method for physical limnology-tritium/helium-3 ages-results for Lake Erie, Huron and Ontario, *Limnol. Oceanogr.*, 22, 181-193.
- Torgersen, T., Clarke, W.B., and Jenkins, W.J. (1979): The tritium/helium-3 method in hydrology, in: *Isotope Hydrology*

- ogy 1978, Vol. II, 917-930, (IAEA-SM-228/49).
- Torgersen, T., and Clarke, W. B. (1987): Helium accumulation in groundwater, III. Limits on helium transfer across the mantle-crust boundary beneath Australia and the magnitude of mantle degassing, *Earth and Planetary Science Letters*, 84, 345-355.
- Weiss, R.F. (1968): Piggyback sampler for dissolved gas studies on sealed water samples, *Deep-Sea Res.*, 15, 695-699.