酸素および水素の安定同位体比と水質から見た 長野県松本盆地中・南部地域の広域地下水流動系*

小宮洋行**・中屋眞司***・益田晴恵****・日下部実*****

Groundwater Flow System in the Central and South Part of Matsumoto Basin, Nagano, Estimated from Oxygen and Hydrogen Stable Isotope Ratios and Water Quality

Hiroyuki KOMIYA**, Shinji NAKAYA***,
Harue MASUDA**** and Minoru KUSAKABE*****

Abstract

The Matsumoto Basin, which is located in a high land with altitude of 550m to 750m surrounded by high mountains, depends considerably on groundwater for domestic, agricultural, industrial and urban uses. An understanding of recharge zone and the flow path of the groundwater provides important strategy into the resource management and prevention of groundwater contamination.

We investigated stable isotope of oxygen and hydrogen and water quality of groundwater in order to identify the recharge zones and flow paths in the Matsumoto Basin. All stable isotope data fell on a meteoric line widely. The spatial distributions of the oxygen and hydrogen stable isotopic ratios, water quality and altitude effect against oxygen stable isotope of groundwater indicate that flow systems of shallow groundwater and deep groundwater, five recharge zones and seven flow paths are distinguishable in the study region. The four flow paths of shallow and deep groundwater system are along

* 日本地下水学会2001年秋季講演会口頭発表 (2001年10月11日)

** 信州大学大学院工学系研究科 (現在 ドリコ株式会社)
Graduate School of Engineering, Shinshu University (Now, Drico Co. Ltd)

*** 信州大学工学部社会開発工学科
Department of Civil Engineering, Faculty of Engineering, Shinshu University

**** 大阪市立大学大学院理学研究科地球学教室
Department of Geosciences, Graduate School of Science, Osaka City University

***** 岡山大学固体地球研究センター
Institute for Study of the Earth's Interior, Okayama University

river flows. The two flow paths through each of two inferred faults, which are covered by the alluvial thin layer, are estimated by lower $\delta^{18}\text{O}$ and δD values. A flow path through an inferred fault into the deeper aquifer is estimated by the comparison of water compositions and the stable isotope data of the deep groundwater with those of the shallow groundwater.

Key Words : groundwater, oxygen and hydrogen stable isotopic ratios, recharge zone, flow path, fault

要 旨

山岳部に囲まれた標高550m から750m の高地にある松本盆地は、家庭用水や農業、工業、都市用水を地下水にかなりの部分依存している。そこで、地下水の涵養域や流動経路を理解することが、水資源管理や汚染の防止に重要である。松本盆地の涵養域や流動経路を同定するために地下水の水素および酸素の安定同位体比と水質を調べた。全ての安定同位体比は天水線に沿った広範囲にプロットされた。水素および酸素の安定同位体比と水質の空間分布および酸素の安定同位体の高度効果は、浅層と深層の流動系と5つの涵養域、7つの流動経路が本研究領域で識別可能であることを示している。浅層と深層の帯水層を通る4つの流動経路は河川の流れに沿っている。薄い沖積層で覆われた各々2つの推定断層を経由する流動経路が低い水素および酸素の安定同位体比から推定される。推定断層を経由して深層の帯水層へ移動する1つの流動経路が深層の水質と安定同位体比と浅層のそれらを比較することによって推定される。

キーワード：地下水、酸素および水素の安定同位体比、涵養域、流動経路、断層

1. はじめに

広域の地下水流動を解明するには、涵養源と流動経路といった地下水流動系を支配する基礎的な流動特性（ここでは、1次広域流動特性と呼ぶ）を調べる必要がある。これらの1次広域流動特性は、帯水層構造や断層、河川系などの水理地質構造や降雨、蒸発散などの自然条件、土地利用や揚水などの人為的条件に制約される。小領域の流動系の場合は、水理地質構造の調査に基づき水位分布や地盤の透水係数などの物理量データから物理的に流動系を評価する手法が有効であるが、平野や盆地規模の広域地下水流動系に物理的手法を適用して1次広域流動特性を評価するには困難が多

い。それに対し、溶存成分に関する水質データや環境同位体を利用して地下水流動を評価する手法は、物理的手法では評価が困難である地下水の涵養源・流域区分・混合などの流動過程・滞留時間の評価や汚染物質の挙動を明らかにする可能性がある。そのような観点から、1980年代以降、水質データや環境同位体などの地球化学的手法を用いた地下水流動評価が盛んになり、我が国で行われた研究の中では、富山平野の地下水の涵養源と流動系を明らかにした一連の研究（水谷・小田、1983；加藤ほか、1984；水谷ほか、1987；水谷ほか、2001）はこの手法の有用性をよく表している。また、現在でもこの手法は広く利用されている（例えば、長江、1996；池田ほか、2000）。

日本アルプスなど周辺の山地を涵養源とする松本盆地の豊富な地下水は、農業・工業・都市域の水資源として古くから利用されている。松本地域においては行政が中心になり、従来型の地下水流動調査はたびたび行われてきた（例えば、松本鑿泉工業（株）、1993；南安曇郡水資源対策協議会、1994）。また、調査対象地域周辺では、松本トンネル掘削に伴い岩盤内の地下水流動の推定に地球化学的手法が用いられている（井伊・三沢、1994）。しかし、松本盆地全体で流動系や利用形態について検討された例はほとんどない。盆地内の地下水の流動系を明らかにすることは、地下水利用や保全などの観点からも重要な課題であるが、水循環の立場からも山間から盆地へ流入する河川水と地下水がどのような流動経路を持ち、どのような過程で水質進化するのかを明らかにするうえで興味のある課題である。特に、松本盆地内には糸魚川―静岡構造線系の断層とそれらから派生した複数の断層が伏在する。このような水理地質構造下では、地下水流動場が不均質になり、複雑な流動経路が形成されることが予測され、従来の物理的な測定のみによる評価は困難である。そこで地球化学的手法を用いた流動評価が有効であると考えられる。

松本盆地中・南部地域を対象に1999年9月～12月に行った第1回目の調査では、地下水47試料と河川水8試料を採取し、溶存主要成分と微量成分から本地域の一般的な水質組成と断層付近での特徴ある水質組成について検討した（中屋ほか、2000）。本研究では、第1回目の調査をもとに同地域において、99ヶ所の地下水と24ヶ所の河川水、さらに涵養源と考えられる盆地周囲の山岳地帯の表流水を採取し、主要成分化学組成と酸素および水素の安定同位体比を明らかにした。それらの結果に基づいて、松本盆地中・南部地域の地下水涵養源と広域流動系の解明を試みた。

2. 地形・地質

2.1 盆地の概要

図1に調査対象地域である松本盆地の位置と今回の調査を行った盆地中南部地域の試料採水地点を等高線とともに示した。

松本盆地は長野県のほぼ中央部に位置し、南北の幅が約50km、東西の幅は4～14kmと細長く、西側には3,000m級の飛騨山脈（北アルプス）が、東側には2,000m級の筑摩山地が連なる。盆地内の対象地域の標高はおよそ550～750mである。

盆地西方からは飛騨山脈（北アルプス）中の標高3,000m付近に源を発する梓川と鉢盛山（標高2,446m）付近に源を発する鎖川が北東方向に向かって流れ、南方からは経ヶ岳（標高2,296m）付近を源とする奈良井川と東山（標高1,429m）付近を源とする田川が北に向かって流れている。また、盆地東方からは三才山（標高1,605m）付近を源とする女鳥羽川、美ヶ原（標高2,034m）付近に源を発する薄川（すすき川）、盆地西側の標高1,500～1,800mの筑摩山地に源を発する宮入川、牛伏川等がほぼ西に向かって流れている。これらの河川は合流し、調査地域内の北側で犀川となり北に向って流れる。

梓川、鎖川、奈良井川が山間から盆地部へ流出する地点から扇状地地形が発達している。また、女鳥羽川と薄川が盆地に流出する地域においても小規模ながら扇状地地形の発達が見られる。

調査地域には糸魚川―静岡構造線の一部と考えられている松本盆地東縁断層や牛伏寺断層などが盆地の東側を北西―南東方向に走っている。図1には調査地域に分布する糸魚川―静岡構造線系断層やその他、推定断層が示されている（仁科ほか、1985；通商産業省、1995；国土地理院、1999a；国土地理院、1999b）。名称が与えられていない推定断層については便宜的にF-A、F-B、F-Cと名付けた。これらの断層以外にも、糸魚川―静岡構造線系断層から派生した多数の断層が伏在していると考えられる。

対象地域は、第三紀、中新統の砂岩、泥岩、礫岩の互層の上に400m以上の厚い沖・洪積世の砂礫岩が堆積した地質構造をしており、表1のように7礫層（更新世）と沖積層に区分されている（酒井、1982）。対象地域のほとんどの地域は砂礫層が主体の帯水層で構成され、透水性は比較的大きいと考えられる。

図1 調査地域

Fig.1 Location of study area.

表1 松本盆地の地層層序と断面図(酒井(1982)を改編)

Table 1 Geological formation in the Matsumoto Basin.

地質時代	地 層		岩 相	地形面	研究上の区分
完新世	沖積層 扇状地堆積物		砂・礫・粘土	氾濫源 新規扇状地	浅層 地下水
更新世 後期	森口礫層		砂・礫・粘土	河岸段丘	
	波田礫層		砂・礫・粘土		
	更新世 中期	中山泥炭層		シルト・泥炭・砂・礫	丘陵
赤木山礫層		砂・礫・泥炭			
片丘礫層		泥炭・砂・礫(風化)			
梨ノ木礫層		泥炭・砂・礫(風化)			
更新世 前期	塩嶺累層		溶岩 火山碎屑岩	山地	
鮮新世	基盤 岩類	第三 紀層	砂岩・泥岩 凝灰岩・閃緑岩		
先第三 紀		中古 生層	花崗岩・石灰岩 粘板岩・チャート		

(A-A' cross-section in Figure1)

W ←
→ E

LEGEND

- Alluvium
- Moriguchi Conglomerate layer
- Hata Conglomerate layer
- Nakayama Peat deposits
- Nashinoki Conglomerate layer
- Tertiary formation

} 100m

0
1
2
3km

(A-A' cross-section in Figure1)

3. 方法

3.1 試料採取

地下水試料の採取は、湧水や常時稼動している既存の井戸を対象として、99ヶ所を対象に実施した。このうち13ヶ所は農耕期のみ稼動する井戸である。1993年に実施された調査(松本鑿泉工業(株)、1993)では、冬期(2月)の地下水位が夏期(8月)に比べ、最大20m程度低いことが報告されている。水質の違いは測定されていない

め定かでないが、変動があることは一般的に知られている。このため、できるだけ同期間で採取を行うこととし、2000年7月11日~11月2日で実施した。試料のNo.1~No.47は1999年に実施した調査(中屋ほか、2000)と同一の井戸で採水を行った。しかし、今回の調査ではそのうちNo.6とNo.47で採水ができなかった。そのため、試料番号は1~101である。

採水した中で湧水は、No.1、2、9、38、39、48の5ヶ所、自噴井はNo.27、42の2ヶ所であった。

また、No. 9、26、48は鉱泉水であり、No. 4、5、61、62、63は温泉水であった。

河川水試料は、A～Xのアルファベットで示した。L～Pは2000年7月28日に、Q～Sは2000年8月3日に、その他は2000年10月31日～11月4日に採水を実施した。

また、本調査地域の東西の山岳地帯を流れる表流水を15ヶ所で採水した。

表1に示した地層区分に基づき、井戸のストレーナ位置と深度、柱状図データにより地下水の帯水層区分を行った。また、湧水は地表面の地層とし、自噴井は井戸深度で決定した。

帯水層区分を行った地下水のうち、上部三層に帯水する地下水を浅層地下水とし、それ以深の地層に帯水する地下水を深層地下水とした。上部三層は新規扇状地と河岸段丘を形成する堆積物であるが、それ以深では丘陵と山地を形成する堆積物である(酒井、1982)。なお、上部三層の層厚は、盆地中央部の最も厚みがあると考えられる付近で120mに達する。

3.2 分析方法

(1) 現地測定

採水地点にてpH、電気伝導度、水温、pH4.8アルカリ度を測定した。

pHの測定にはガラス電極法を用いた。また、電気伝導度は市販の電気伝導度計を用い、得られた値から、18℃の値に換算して利用した。試水の水温は、これらの測定装置の付属温度センサーの値を用いた。アルカリ度は、HClで滴定を行い、pH4.8アルカリ度とし、 HCO_3^- とした。なお、採水した試料のpHの範囲は5.9～8.9であった。

(2) 実験室における溶存成分分析

採水した試料は実験室に持ち帰り、以下の項目を次の方法で測定した。

Na^+ と K^+ は、原子吸光光度計にて測定した。 Ca^{2+} と Mg^{2+} はEDTA溶液によるキレート滴定法にて測定した。 Cl^- 、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- -Nと F^- はサプレッサーカラム式イオンクロマトグラフィーを用い測定した。なお、陰・陽イオンの総当量の差異から分析精度は2～5%である。

(3) 酸素と水素の安定同位体比の測定法

水素同位体比(D/H)は、真空ライン中で680℃

に加熱した金属ウランを用いて、水を水素ガスに還元(Friedman & Smith, 1958)した後、McKinney型質量分析計で測定した。また、酸素同位体比($^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$)は二酸化炭素交換法(Epstein & Mayeda, 1953)を用いて、McKinney型質量分析計で測定した。

測定値は、標準海水(SMOW)からの千分偏差(δ ‰)で示した。

$$\delta(\text{‰}) = \left(\frac{R_{\text{sample}}}{R_{\text{SMOW}}} - 1 \right) \times 1000 \quad (1)$$

ただし $R = \text{D}/\text{H}$ または $R = ^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$ である。分析における測定精度は前処理と計測時に生じるものを合わせて水素同位体比で $\pm 1\%$ 以内、酸素同位体比で $\pm 0.1\%$ 以内である。

4. 結果

4.1 溶存化学成分

試料の溶存化学成分をヘキサダイアグラムで表した。河川水は図2に、浅層地下水は図3に、深層地下水は図4に各々表した。図2には松本鑿泉工業株式会社(1993)による1993年8月の地下水位測定値を元に作成した地下水位等高線も示した。

河川水では、ほとんどの試料が Ca^{2+} - HCO_3^- 型のパターンを示す。いずれの河川でも、上流側では溶存成分が少なく、下流側でやや大きくなる傾向がある。上流には民家がほとんど存在しない田川(No. K)や人口密集地を通らない梓川・鎖川・奈良井川・薄川・宮入川・塩沢川などは溶存成分量が特に少ない。これらの河川水は、大気や土壌中の CO_2 に由来する HCO_3^- が陰イオンの主成分であり、海塩を起源とする Cl^- と大気汚染の影響で増加する SO_4^{2-} の降水由来の陰イオン成分(半谷・小倉、1985)は非常に少ない。また、大気や土壌中の CO_2 が土壌中の炭酸塩やケイ酸塩に作用して Ca^{2+} が溶出する(半谷・小倉、1985)ため、本地域の河川水のほとんどの試料が Ca^{2+} - HCO_3^- 型のパターンを示していると考えられる。

湯川や女鳥羽川の水質は Ca^{2+} - HCO_3^- 型であるが、 Na^+ と SO_4^{2-} の濃度が高い傾向がある。これらの河川の流域には浅間温泉をはじめ、 Na^+ と

図2 河川水のヘキサダイアグラムおよび地下水位標等高線図（単位：海拔 m）
（地下水位等高線は、1993年8月の松本鑿泉工業（株）、（1993）による測定値を元に描いている。）

Fig. 2 Hexa diagram of surface waters and Contour lines of groundwater table above sea level (m).

図3 浅層地下水のヘキサダイアグラム
 Fig. 3 Hexa diagram of shallow groundwaters.

図4 深層地下水のヘキサダイアグラム

Fig. 4 Hexa diagram of deep groundwaters.

SO₄²⁻に富む温泉が複数存在する。湯川や女鳥羽川には、これらの温泉水が混入していると考えられる。

浅層地下水(図3)のほとんどの試料が、河川水と同じCa²⁺-HCO₃⁻型の特徴を持つ。一般的に溶存成分濃度は低く、特に、梓川・鎖川・奈良井川の流域に分布する地下水に低いものが多い。

帯水層ごとに区分した水質にもやや特徴が見られる。沖積層を帯水層とする地下水は、採取地点ごとの水質のばらつきが大きい。その下位の森口礫層からの地下水も水質変化が大きい。これらの2層を帯水層とする地下水で、浅間温泉などのある調査地域の北東部に分布するものに、Na⁺とSO₄²⁻濃度が高いものが多い。

一方、波田礫層では一部例外はあるが、大きな水質組成の変化はなく、どれもCa²⁺-HCO₃⁻型である。

深層地下水(図4)の水質組成は多様性に富んでいる。中山泥炭層を帯水層とする地下水は調査地域の南半部では、上位の波田礫層中の地下水と似通った成分濃度と組成を示すが、北半部では、Na⁺とCl⁻やSO₄²⁻が多い。一方、南部にも梨ノ木礫層を帯水層とする地下水が分布する。この帯水層とその上位にあって調査地域南部にだけ分布する赤木山礫層を帯水層とする地下水には、浅層地下水と似た特徴を持つものと、北部の深層地下水に似た特徴を持つものがある(No.9、27、66、67)。No.9、27、66、67はいずれも断層直上に採取地点があって、F-B断層上にあるNo.27、67と牛伏寺断層上にあるNo.9、66は各々似た成分組成と濃度を示す。

4.2 酸素と水素の安定同位体比

地下水と河川水の $\delta^{18}\text{O}$ と δD の関係を図5に示した。

地下水では $\delta^{18}\text{O}$ が-12.5~-10‰の範囲に、 δD は-84~-72‰の範囲にある。河川水も地下水とほぼ同じ範囲にプロットされ、 $\delta^{18}\text{O}$ が-12.7~-10.1‰、 δD は-87~-70‰である。図に示されるように、調査地域の地下水と河川水の $\delta^{18}\text{O}$ と δD の関係はCraig (1961)の示す天水線の式(1)と式(2)(Matsubaya et al., 1973)の間にある。ただし、試料No.73は、式(1)と式(2)で示

した天水線から外れている。これは、蒸発の効果によるものだと考えられる。これについては、後述する。

$$\delta\text{D} = 8\delta^{18}\text{O} + 10 \quad (2)$$

$$\delta\text{D} = 8\delta^{18}\text{O} + 17 \quad (3)$$

式(1)と(2)の切片はd値として知られている(Dansgaard, 1964)。日本各地の天水について、一般に知られているd値は17であるが(Matsubaya et al., 1973)、本研究で得られた結果はこれより小さい。

5. 考察

5.1 溶存化学成分

河川水の水質から判断して、本調査地域の降水は、標高の高い山脈に囲まれた内陸にあるため海塩の影響が少なく、大都市圏から隔たっているために大気汚染の影響もあまりないと解釈できる。その降水が、地下浸透する過程で、わずかにCO₂の水和反応に伴う陽イオンの溶出過程を経ただけで表面流出したものが本地域の河川水である。

浅層地下水は調査地域東半部でやや溶存成分濃度が高い。図2から地下水位等高線に直交する方向に地下水流動が生じていると考ええると、浅層地下水は各河川系に平行した流動が推定される。さらに、松本市街地西方で合流し、北へ流れているものと考えられる。

深層地下水においても、調査地域東半部で溶存成分濃度が高い。松本市街地付近の中山泥炭層に帯水する地下水は上流側に分布する下位の梨ノ木礫層と第三紀堆積層に帯水する地下水の混入の影響を受けている可能性がある。

5.2 酸素と水素の安定同位体比

(1) 酸素と水素の安定同位体比の関係

式(1)と(2)の切片(d値)は、海水が非平衡の状態蒸発して水蒸気ができる時の動力学的な同位体効果を表しており、水蒸気団の生成時に決まり、その後の降水過程では変化しないと考えられている(Dansgaard, 1964)。地球的規模で見た場合には、切片が平均10になるが、気候条件が異なると、地域的に異なった値を示す。このことを利用して、d値を水蒸気団の生成環境を表す指標と

図5 地下水と河川水の $\delta^{18}\text{O}$ - δD 図Fig. 5 Relationship between $\delta^{18}\text{O}$ and δD .

して用いることができる（早稲田・中井、1983）。 d 値は非平衡化での急速な蒸発を受けるほど大きくなるが、この値に最も影響を与える要因は相対湿度で、相対湿度が低いほど蒸発速度は速くなり、 d は大きくなる（Merlivat and Jouzel, 1979）。中部日本における地表水の d 値は太平洋側から日本海側に向かって10~20以上の値まで変化する（早稲田・中井、1983）。この変化は太平洋側からの d 値の低い水蒸気団と日本海側からの d 値の高い水蒸気団の支配の強さの地域による違いを反映している（早稲田・中井、1983）。富山平野の降水の d 値は、夏期の10~5、冬期の30程度と季節により大きな変動を示すが（水谷・佐竹、1997）、これは夏期には太平洋から、冬期には日本海からの水蒸気の供給を受けているためであると解釈されている（佐竹、1986）。後述するように、地表水や浅層の地下水の同位体組成は、降水とは異なり均質化する。富山平野での研究結果に基づいて解釈すると、本調査地域の涵養源となる降水は、年

間を通じて太平洋側からの気団の影響をより大きく受けているものと推定される。

また、 $\delta^{18}\text{O}$ と δD の関係は、降水過程において、切片（ d 値）は変化せず、傾き8の線に沿って変動するだけである。この変動は、緯度・内陸・高度・季節などの要因による（Dansgaard, 1964）。高度効果は、本調査地域のような後背地に標高の高い山脈を有する場合には重要である。たとえば、早稲田・中井（1983）は北アルプスの八方尾根で、同じ日に標高（800~1,800m）を変えながら新雪を採取し、採取高度と $\delta^{18}\text{O}$ の関係を検討している。彼らの結果に基づくと、100m 高度が上がると $\delta^{18}\text{O}$ は0.3‰小さくなる。同様に、地表水や降水起源の地下水の同位体組成も涵養源の高度効果の影響を強く受けている。この効果による同位体比の変動幅は、富山平野の河川では、100m 高くなるに伴って、 δD で-1.9‰、 $\delta^{18}\text{O}$ で-0.24‰程度と見積もられている（水谷・佐竹、1997）。また、名古屋・御岳・高山で観測された結

果からは、100m上昇するごとに、 δD で -2.0% 、 $\delta^{18}O$ で -0.25% と見積られている（早稲田・中井、1983）。また、Mizota and Kusakabe (1994)は、日本および中国東部、韓国の浅層地下水や河川水の $\delta^{18}O$ および δD の分布を示し、中部日本のそれらの値は高度効果により周辺の地域よりも低いことを示している。

降水の同位体組成の変動幅は地域的要因に支配されるが、一般的に季節変動をすることが多い。しかし、地表水や天水起源の地下水の同位体比は、年間を通じてほとんど変動しない。たとえば、早稲田・中井 (1983) は富士山麓の湧水の酸素同位体比を1年間連続観測した結果、ほとんど変動していないことを示しているし、富山平野を流れる河川の同位体組成も $\delta^{18}O$ で2%程度、 δD で最大10%程度しか変化しない（水谷・佐竹、1997）。

井伊・三沢 (1994) では、松本盆地の地下水の δD は $-83\sim-73\%$ 付近に集中していることを報告している。降水に比べて、地表水や地下水が安定した同位体組成を示すのは、地下水が浸透する過程で、十分同位体組成の均質化が行われていること（早稲田・中井、1983）、あるいは河川水も均質化した後の地下水の流入量が多いことを示していると解釈されている（水谷・佐竹、1997）。

富山平野の黒部川の同位体組成は、集水域である北アルプスの影響を強く受けており、平野の降水に比べ低い値を示している（佐竹ら、1984）。

このように、地下水や河川水はそれぞれ水文条件を反映した同位体組成を持つものと考えることができる。これらの特徴を利用すると、地下水の涵養源や流動経路を判断できる可能性がある。

(2) 酸素・水素安定同位体比からみた地下水涵養と流動系

浅層と深層地下水に分けて、 $\delta^{18}O$ と δD の等値線図を作成した（図6～図9）。ここでは等値線図に直交する方向は流動方向に調和的であると考えて考察を進める。また、図10に本調査地域を囲む東西の山岳部で採水した15ヶ所の表流水について測定した $\delta^{18}O$ 値－高度関係を中部日本の地表水の酸素同位体比に見られる高度効果図（早稲田・中井、1983）にプロットして示した。15ヶ所の表流水の測定値は、実際の採水標高とその沢

に流入することが可能な集水域の最大標高の範囲で表した。

(a) 高度効果

図10から判断すると、山岳部の沢水の $\delta^{18}O$ －高度関係は、早稲田・中井 (1983) が示した中部日本の地表水の $\delta^{18}O$ の高度効果図とほぼ一致する。また、調査地域の東側山地と西側山地の値を比較すると両者の分布に偏りがなかったことがわかる。このため、本地域において東西斜面による安定同位体比の差は無視できる程度だと考えられる。

調査地域内で採取した河川水の $\delta^{18}O$ と δD についても、高度効果について考察できる。図6、7に示すように梓川がもっとも低い値（ $\delta^{18}O=-12.6\%$ 、 $\delta D=-87.0\%$ ）を示し、田川がもっとも高い値（ $\delta^{18}O=-10.8\%$ 、 $\delta D=-72.4\%$ ）を示している。梓川上流の上高地（標高1,600m）付近の $\delta^{18}O$ は $-13.7\sim-13.2\%$ の範囲にあり、上高地の集水域の標高は1,600～3,000mの範囲（平均2,300m）にあると思われる。一方、田川の集水域は1,200～1,400mの範囲（平均1,300m）にある。両河川の集水域の平均値の差は約1,000mと見積ることができる。上高地付近の $\delta^{18}O$ と田川上流の $\delta^{18}O$ の差は約2.5～3.0%であることから、本地域の高度効果は100m上昇する毎に0.25～0.30%減少することがわかる。この結果は、早稲田・中井 (1983) が示した結果とほぼ一致する。また、その他の河川もそれぞれの集水域の高度を反映した同位体組成を示している。

(b) 浅層地下水と河川水

浅層地下水の $\delta^{18}O$ と δD の等値線図を各々図6と図7に示した。また、河川水と浅層地下水の関係を示すために河川水の採水地点に安定同位体比を記した。どちらの図からも梓川流域で軽い同位体組成を持つ水の分布が卓越し、塩沢川と田川の合流地点より南東の方向から重い同位体組成を持つ水が下流（北西方向）に向かって浸透していることが明らかである。また、奈良井川の東側で、かつ薄川より南を流れている河川の流域では一般に重い同位体組成を持つ地下水が分布する傾向がある。梓川に沿った軽い同位体を示す地下水と田川・奈良井川に沿った重い同位体を示す地下水の中間的な同位体組成を持つ地下水が鎖川に

図6 浅層地下水の $\delta^{18}\text{O}$ 等値線図

Fig. 6 $\delta^{18}\text{O}$ contour lines of shallow groundwaters.

図7 浅層地下水の δD 等値線図

Fig. 7 δD contour lines of shallow groundwaters.

図8 深層地下水の $\delta^{18}\text{O}$ 等値線図

Fig. 8 $\delta^{18}\text{O}$ contour lines of deep groundwaters.

図9 深層地下水の δD 等値線図

Fig. 9 δD contour lines of deep groundwaters.

図10 中部日本の地表水の $\delta^{18}\text{O}$ と標高の関係 (実線は本研究領域東側山岳部の表流水測定値、破線は本研究領域西側山岳部の表流水測定値、白丸は早稲田・中井 (1983) による測定値を示す)

Fig.10 Relationship between the altitude and $\delta^{18}\text{O}$ of surface water in Central Japan. (Solid lines show the measurements at the eastside mountainous district from the this study. Broken lines show the measurements at the westside mountainous district from the this study. Open circles show the measurements from Waseda and Nakai (1983).)

沿って流れている。

河川水の $\delta^{18}\text{O}$ と δD についても、浅層地下水と似た傾向を示す。梓川がもっとも低い値 ($\delta^{18}\text{O} = -12.6\text{‰}$ 、 $\delta\text{D} = -87.0\text{‰}$) を示し、田川がもっとも高い値 ($\delta^{18}\text{O} = -10.8\text{‰}$ 、 $\delta\text{D} = -72.4\text{‰}$) を示している。集水域がほぼ一致する女鳥羽川と薄川 (700~2,000m) は $\delta^{18}\text{O} = -11.9 \sim -11.7\text{‰}$ 、 $\delta\text{D} = -81.7 \sim -81.3\text{‰}$ を示し、和泉川・宮入川・牛伏寺川・塩入川 (850~1,500m) は $\delta^{18}\text{O} =$

$-11.5 \sim -11.4\text{‰}$ 、 $\delta\text{D} = -79.3 \sim -78.1\text{‰}$ を示す。また、奈良井川 (680~2,300m) は $\delta^{18}\text{O} = -11.2\text{‰}$ 、 $\delta\text{D} = -77.4\text{‰}$ を示し、鎖川 (680~2,500m) は $\delta^{18}\text{O} = -11.8\text{‰}$ 、 $\delta\text{D} = -80.8\text{‰}$ を示す。調査地域東南部の河川水は比較的重い同位体組成であり、鎖川と奈良井川は田川と梓川の間的な組成を持つ河川水である。

梓川付近の地下水は $\delta^{18}\text{O} = -12.3 \sim -12.0\text{‰}$ 、 $\delta\text{D} = -83.8 \sim -82.0\text{‰}$ を示す。これは梓川の河

川水試料 No.H に比べて若干高い値である。しかし、梓川以外に低い同位体組成を供給する供給源は考えられないことおよび、同位体比の等値線図から梓川の伏流水によって形成されていると考えられる。溶存成分を考えた場合も、図2に示した試料 No.H の水質組成と図3に示した梓川付近の浅層地下水の組成は似た組成を示している。以上のことから、梓川付近の地下水は梓川の集水域で涵養された地下水の伏流水で、梓川が盆地に流出する付近から広がる扇状地堆積物中に帯水層を形成している。

最も重い同位体組成を持つ地下水は塩沢川流域と田川との合流点付近の No.7、73 の付近に分布する。No.7 ($\delta^{18}\text{O} = -10.2\%$ 、 $\delta\text{D} = -72.5\%$) は、近傍の田川の試料 No.R ($\delta^{18}\text{O} = -10.3\%$ 、 $\delta\text{D} = -72.0\%$) とほぼ一致する。また、両試料の溶存成分組成もほぼ一致する。このことから、No.7 は田川の影響を強く受けていると考えられる。一方、No.73 ($\delta^{18}\text{O} = -10.0\%$ 、 $\delta\text{D} = -74.6\%$) は、付近を流れる塩沢川 ($\delta^{18}\text{O} = -11.5\%$ 、 $\delta\text{D} = -78.2\%$) の同位体組成とは明らかに違う。図5で示したように、No.73 は天水線を外れている。No.73 付近は水田地帯であるが、例えば水田の田面水は蒸発によって濃縮し、重い同位体組成になることが知られている (水谷ほか、2001)。このような過程で台地において重い同位体組成になった水が地下に浸透していることが考えられる。

女鳥羽川と薄川の downstream 付近には、梓川流域の地下水には及ばないが、軽い同位体組成を持った地下水 ($\delta^{18}\text{O} = -11.5 \sim -11.1\%$ 、 $\delta\text{D} = -79.6 \sim -77.4\%$) が分布する。これは比較的同位体組成の軽い女鳥羽川、薄川の伏流水と考えられる。また、溶存成分組成では他の地域の浅層地下水と比較すると Na^+ と SO_4^{2-} を多く含んでいる。このことから、より深層の浅間温泉群などの地下水が混入している可能性が考えられる。

奈良井川と鎖川に沿った地下水は $\delta^{18}\text{O}$ で $-11.6 \sim -11.0\%$ 、 δD で $-78.0 \sim -76.0\%$ を示す。これは奈良井川および鎖川の同位体組成と似ており、両河川の伏流水と考えられる。

所々に周辺の地下水より軽い同位体組成を持った地下水が分布する。たとえば、田川上流にある鉱泉 No.48 ($\delta^{18}\text{O} = -11.7\%$ 、 $\delta\text{D} = -77.7\%$)

や No.83 ($\delta^{18}\text{O} = -11.2\%$ 、 $\delta\text{D} = -77.5\%$)、奈良井川下流の No.76 ($\delta^{18}\text{O} = -11.4\%$ 、 $\delta\text{D} = -79.8\%$) などである。No.48 と No.83 は、同位体組成が似ている。また、溶存成分組成も陰イオンの存在比率と Mg^{2+} の含有量が似ており、周辺の浅層地下水と比較すると成分が多い。田川の同位体組成と比較すると $\delta^{18}\text{O}$ で 1% 程度、 δD で 5% 程度 No.48、83 が軽い値を示している。これは、田川の伏流水により遠く標高の高いところに涵養源を持つ水が混入していると考えられる。

一方、田川に沿い梓川との合流地点に向かって、重い同位体組成を持つ水が島状に連なっている。これは特に図7に示した δD の等値線図に明瞭に見られる。また、その同位体組成は下流に向かって軽くなる。No.60 の女鳥羽川との合流点付近では、田川・塩沢川流域と同じ重い同位体組成を示す。このことから田川と奈良井川流域の地下水は塩沢川から田川流域へ向かう西向きの流れを持つ地下水の同位体組成が支配的である。また、奈良井川と鎖川流域の地下水と田川沿いの地下水の合流地点付近では、No.60 に比べ同位体組成が小さく、No.3・17 などでは、田川より鎖川・奈良井川の同位体組成に近い。また、さらに下流では、梓川流域からの地下水の混入によって、同位体組成はさらに軽くなる。

以上のことから、浅層では、①東方向の流動経路を持つ梓川沿いの地下水 ②鎖川・奈良井川に沿った北方向の流動経路を持つ地下水 ③田川中流部および塩沢川周辺の台地を涵養源とする重い同位体比組成を持った地下水 ④南西方向の流動経路を持つ女鳥羽川流域からの地下水の少なくとも 4 経路の地下水の流動経路が識別できる。それらは、地下水位等高線に直交する方向から推定される流動方向と調和的である (図2 参照)。

(c) 深層地下水

深層地下水の $\delta^{18}\text{O}$ と δD の等値線図 (図8 および図9) は、浅層地下水のものとは大きく異なっている。調査地域の北東部に分布する薄川断層上の温泉から浅間温泉にかけての第三紀層の地下水 (No.4、5、61) は、安定同位体比が小さく、溶存成分組成も一致する。これらの温泉 (泉温 40°C 程度) は $\delta^{18}\text{O}$ で $-12.4 \sim -12.3\%$ 、 δD で $-84.0 \sim -81.9\%$ である。これらの地下水、図10から本地

域の1,000m付近の沢水(集水域は1,000~2,000m間にある)と酸素同位体組成が一致する。これらの温泉水は浅層のものとは異なり、涵養源が遠く、後背地である美ヶ原付近を涵養源とし、熱源により暖められた深層の地下水であると推察される。また、断層付近に存在することから、薄川断層に沿って上昇してきたものと考えられる。一方、同断層上のNo.62(泉温=25℃、 $\delta^{18}\text{O} = -11.9\%$ 、 $\delta\text{D} = -82.7\%$)はこれらの温泉に比べ $\delta^{18}\text{O}$ 値が0.5%程度高い値を示し、溶存成分組成が大きく異なる。このことから、例えば涵養源が異なる地下水と混合した温泉水が水質進化の過程(硫酸還元など)を経ていると考えられる。同位体の等値線図に従えば、その他の女鳥羽川流域の地下水(No.16、28、29、35、40、41)は浅層地下水と同様に女鳥羽川に沿って流れていると考えられる。これらの地下水は薄川断層付近の温泉(No.62)と同様の水質進化をしている。

田川に沿っては、同位体比の小さい地下水と大きい地下水が混在している。特に、F-B断層南端のNo.67とNo.27(自噴)では同位体比が周囲の地下水に比べ小さいことから、標高の高い地点で涵養されたと考えられるが、涵養源の特定は困難である。

また、これより下流(No.53、57など)で、重い同位体の浅層地下水(図6、図7のNo.73、No.7)とはほぼ同じ同位体組成を持つ地下水が出現する。その多くは中山泥炭層を帯水層としている。このうち、No.53、57($\delta^{18}\text{O} = -10.7 \sim -10.6\%$ 、 $\delta\text{D} = -73.2 \sim -72.9\%$)が最も大きい同位体比を示し、そこから西南方向の奈良井川流域まで長くのびる島状の分布(No.53、57、46、58、77)をしている。さらにNo.53から北方への伸びも(No.90)現れている(図8および図9)。これらの島状の分布域は、同じ同位体組成を持つ田川と塩沢川近傍の浅層地下水(No.7、73)より北側にある。両者の分布域の境界付近にはF-B断層がある。また、F-B断層は西側が上盤になる正断層であり、浅層地下水の流動方向はNo.73からNo.7へ向う方向で(図6および図7)この断層に直行する方向にある。したがって、図11に示すように、塩沢川と田川の合流地点付近の浅層地下水がF-B断層の傾斜方向に沿って、断層西側の下位の帯水層

に流入しその後、北方への流動が生じていると考えられる。

奈良井川、鎖川付近の地下水(No.44、55、56、14、13、37、10)は浅層地下水と同様に奈良井川、鎖川に沿って流れているものと考えられる。

5.3 地下水の分類とその特徴

以上の結果、本調査で分析した地下水は、帯水層、主要溶存成分、 $\delta^{18}\text{O}$ 、 δD をもとに5つの涵養源に分類できる。推定した5つの地下水涵養源の分布を図12に示す。

- I 梓川の集水域にあたり、梓川が盆地に流出する付近で涵養された地下水。調査地域の北西部の沖積層・森口礫層・波田礫層を涵養する。
- II 鎖川と奈良井川の集水域にあたり、両河川が盆地に流出する付近で涵養された地下水。鎖川流域の方が、同位体比が小さいが、これは鎖川の集水域が奈良井川よりも高地にあることに起因する。浅層では、主として波田礫層を涵養しているが、鎖川と奈良井川の合流地点より下流では上位の森口礫層と沖積層を涵養している。また、中山泥炭層も涵養している。
- III 田川中流部および塩沢川周辺の台地を涵養源としている地下水。これらは、調査地域内では最も安定同位体比が大きい。主として、波田礫層を帯水層としているが、下流では森口礫層にも存在する。下位では、中山泥炭層・赤木山礫層を主に涵養している。
- IV 薄川と女鳥羽川の上流の美ヶ原を涵養源とする地下水。主として、浅間温泉周辺の第三紀層に帯水する温泉水である。
- V 女鳥羽川・薄川の集水域にあたり、両河川が盆地に流出する付近で涵養された地下水。主として、森口礫層・中山泥炭層・梨ノ木礫層中の地下水を涵養している。

各々の地下水の溶存成分組成の特徴とその要因を以下に述べる。

IとIIの主成分組成は $\text{Ca}^{2+}\text{-HCO}_3^-$ 型であるが、溶存成分濃度が小さい。これらの地下水は比較的流動速度が速く、地下水中の滞留時間が短いものと考えられる。

IIIの多くは $\text{Ca}^{2+}\text{-HCO}_3^-$ 型であるが、総溶存成分濃度はI・IIより高い。

IVは薄川断層の周辺の温泉水で $\text{Na}^+ - \text{SO}_4^{2-}$ 型である。長野県中部から北部には中央隆起帯と呼ばれる第三紀中新世～第四紀完新世の火成活動地域があり、浅間温泉はこの南西端に位置する（飯島、1987）。そのため、第三紀層はこのあたりでは海底に堆積した火山性堆積物である。海成堆積物中にはイオウが濃集していることがしばしばある（益田・三田村、1998）。還元性の堆積物では、その多くは黄鉄鉱や白鉄鉱などの硫化鉱物として固定されているが、これらが酸化的地下水と接触することで高濃度の SO_4^{2-} が溶出し、 $\text{Na}^+ - \text{SO}_4^{2-}$ 型形成していることが考えられる。また、調査地域中央部のNo.63も同様の水質進化をたどったと考えられる。

Vのうち浅層地下水は $\text{Ca}^{2+} - \text{HCO}_3^-$ 型で、 SO_4^{2-} 濃度が少し高い。一方、深層（中山泥炭層、梨ノ木礫層、第三紀層）の地下水は $\text{Na}^+ - \text{HCO}_3^-$ 型で溶存成分濃度が高く、 Cl^- に富むものも見られ

る。梨ノ木礫層中や中山泥炭層中の地下水などは、薄川断層付近の温泉活動の影響を受けていると考えられる。また、田川上流の鉱泉（No.48）がこのグループと化学組成が似ている。その下流にあるNo.83もNo.48の影響を受けていると考えられる。

所々で溶存成分濃度の高い地下水が出現する（No.9、27、66、67）。これらはいずれも断層直上か近傍にあり、地下水の流動経路として断層が用いられている可能性が指摘できる。

5.4 地下水流動系と断層規制

これまでに検討した涵養源と化学組成から調査地域の広域地下水流動系を整理した（図13）。

浅層の地下水は上述のようにおおむね河川の流動方向に沿って移動している。合流地点が下流側にある川ほど地下水の供給源として規模が大きい。深層を流れる地下水でも同様な流動系を持つ

図11 F-B断層を横切る地下水の流れのモデル（酒井（1982）を参考に加筆）

Fig.11 Schematics of groundwater flow model across the F-B fault (added after Sakai, 1982).

が、梓川上流に涵養源を持つ地下水の存在状態は試料が得られていないことから不明である。

また、本調査地域の田川近傍の断層 (F-B) は、地下水が下向きに流れる経路となっている。F-B 断層の東側では浅層地下水の採水点が少なく、有力な帯水層が波田礫層とそれより上位の地層にはない可能性がある。しかし、そこで採取された地下水は蒸発により重い同位体組成となっている。一方、中山泥炭層に帯水する深層地下水は断層を境にして同位体組成が変わり、断層の東側で軽い同位体組成を持ち、西側で重い同位体組成となる対照的な分布をなす。このことから、F-B 断層より東側で浅層に帯水している重い同位体組成を持った地下水が、F-B 断層で下向きに流れ、下位の中山泥炭層および赤木山礫層に混入したと考えられる (図11参照)。

薄川断層は、熱源の影響を受けた天水起源の温

泉水の上昇経路となっている可能性が考えられる。

また、断層は遠方で涵養された地下水の流動に関わる可能性がある。たとえば、No.67は赤木山礫層中にあるが、周囲の同一の帯水層に比べると明らかに軽い同位体組成を持つ。この地点は赤木山断層と F-B 断層の交叉点にある。この地点より標高の高い南側へは、断層の延長が確認されていないし、東側では複数の断層が存在する。そのため、涵養源の方向を特定できないが、断層が軽い同位体組成を持つ地下水の流動に関わっている可能性が考えられる。

6. まとめ

本研究は、松本盆地中・南部地域の地下水と河川水などの溶存成分濃度、酸素と水素の安定同位

図12 松本盆地中・南部地域の地下水涵養源と流動経路

Fig.12 Groundwater recharge zones and flow paths in Matsumoto Basin.

図13 松本盆地中・南部地域の地下水流動経路

Fig.13 Groundwater flow paths in Matsumoto Basin.

体比の空間分布から地下水の涵養源および広域地下水流動系について考察した。得られた結果をまとめると次の通りである。

1. 松本盆地中・南部地域の地下水ならびに温・鉱泉水は全て天水起源である。
2. 浅層地下水では、河川の流れに沿うように地下水も流動しており、河川の合流地点付近で地下水も合流している。
3. 梓川付近の地下水は梓川の集水域で涵養された地下水の伏流水で、梓川が盆地に流出する付近から広がる扇状地堆積物中に帯水層を形成している。
4. 田川中流部および塩沢川周辺の地下水は、田川中流部および塩沢川周辺の台地を涵養源としている。
5. 薄川断層上の温泉から浅間温泉にかけての第三紀堆積物中の温泉水の涵養源は薄川と女鳥羽川の上流の美ヶ原である。薄川断層は、熱源の影響を受けた温泉水の上昇経路となっている可能性がある。
6. 女鳥羽川・薄川周辺の地下水は女鳥羽川・薄川の伏流水で両河川が盆地に流出する付近で涵養される。また、薄川断層上の温泉水の混入が考えられる。
7. 奈良井川・鎖川付近の地下水は、両河川が盆地に流出する付近で涵養された地下水である。
8. 田川近傍の断層 (F-B) は断層東側の重い同位体組成を持つ浅層地下水を断層の傾斜方向に沿って、断層西側の下位の帯水層に流動させる経路になっている。
9. 田川近傍の断層 (F-B) と赤木山断層は遠方に涵養源を持つより深層の地下水の流動経路として関わっている可能性がある。

参考文献

井伊博行・三沢伸也 (1994) : 松本トンネルの湧水とその周辺地下水の水質について。日本地下水学会誌、**36**、13-29。
 飯島南海夫 (1987) : 長野県の温泉と地質。温泉化学、**37**、131-144。
 池田光良・操上広志・三浦均也 (2000) : 地下水温と安定同位体比から推定した十勝平野の地下水流動系。

日本地下水学会誌、**42**、3-26。
 加藤 聡・水谷義彦・内田啓男・飯田忠三 (1984) : 富山県庄川扇状地浅層地下水の水系区分。地球化学、**18**、29-35。
 国土地理院 (1999a) : 都市圏活断層図 松本。(財) 日本地図センター発行。
 国土地理院 (1999b) : 都市圏活断層図 諏訪。(財) 日本地図センター発行。
 酒井潤一 (1982) : 松本平地盤図。(社) 長野県建築士会 松筑支部・(社) 長野県建築設計事務所協会松筑支部・松筑建築安全協会発行、24-38。
 佐竹 洋・向井利明・水谷義彦 (1984) : D、T、¹⁸O から見た北陸地方の降水と河川水の水文学的特徴。富山大学トリチウム科学センター研究報告、**3**、45-56。
 佐竹 洋 (1986) : 富山における降水・降雪の安定同位体およびトリチウムの動態。地球化学、**20**、90-92。
 通商産業省工業技術院地質調査所 (1995) : 糸魚川-静岡構造線活断層系ストリップマップ。通商産業省工業技術院地質調査所発行。
 長江亮二 (1996) : 濃飛流紋岩および阿武隈花崗閃緑岩などの酸性岩地帯の地下水の一般溶存成分・安定同位体比とトリチウム濃度およびガス分析による地下水の水循環および水質変化の推定。日本地下水学会誌、**38**、51-79。
 中屋眞司・小宮洋行・出口博貴・益田晴恵 (2000) : 地下水の水質から見た松本盆地周辺活断層の水理。日本地下水学会春季講演会講演要旨、12-15。
 仁科良夫・松島信幸・赤羽貞幸・小坂共栄 (1985) : 長野県の活断層-活断層分布図と資料一。信州大学理学部紀要、**20**、171-198。
 半谷高久・小倉紀雄 (1985) : 第3版 水質調査法。丸善株式会社、224-260。
 益田晴恵・三田村宗樹 (1998) : 大阪府北摂地域のヒ素含有地下水の原因物質の究明と形成機構。平成9年度日本生命財団研究奨励助成報告書。62-63。
 松本鑿泉工業株式会社 (1993) : 平成4年度松本市地下水調査委託報告書その1。1-10。
 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。
 水谷義彦・佐竹 洋・高島秀樹 (1987) : 富山県庄川扇状地地下水の滞留時間。地球化学、**21**、49-54。

- 水谷義彦・佐竹 洋 (1997): 地下水のかん養源の指標としての河川水の水素および酸素同位体組成. 日本地下水学会誌、**39**、287-297.
- 水谷義彦・佐竹 洋・山邊綾子・宮地ひろみ・間瀬暢彦・山代嘉代子 (2001): 扇状地浅層地下水の水素および酸素同位体比. 日本地下水学会誌、**43**、3-11.
- 南安曇郡水資源対策協議会 (1994): 南安曇地区地下水位集計解析報告書.
- 早稲田周・中井信之 (1983): 中部日本・東北日本における天然水の同位体組成. 地球化学、**17**、83-91.
- Craig H. (1961): Isotopic Variations in Meteoric Waters. *SCIENCE*, **133**, 1702.
- Dansgaard W. (1964): Stable isotopes in precipitation. *Tellus*, **16**, 436-468.
- Epstein S. and Mayeda T. (1953): Variation of ^{18}O content of waters from natural sources. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **4**, 213-224.
- Friedman I. and Smith R.L. (1958): The deuterium content of water in some volcanic glasses. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **15**, 218-228.
- Matsubaya O., Sakai H., Kusachi I. and Satake H. (1973): Hydrogen and oxygen isotopic ratios and major element chemistry of Japanese thermal water system. *Geochemical Journal*, **7**, 123-151.
- Merlivat L. and Jouzel J. (1979): Global Climatic Interpretation of the Deuterium-Oxygen 18 Relationship for Precipitation. *Journal of Geophysical Research*, **84**, 5029-5033.
- Mizota C. and Kusakabe M. (1994): Spatial distribution of δD - $\delta^{18}\text{O}$ values of surface and shallow groundwaters from Japan, south Korea and east China. *Geochemical Journal*, **28**, 387-410.

(受付: 2002年9月16日、受理: 2003年1月12日)