

平成 30 年 6 月 1 日現在

機関番号：82111

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K18760

研究課題名(和文) 酸素同位体の異常値を指標とした新たな地表水・地下水の起源推定法の開発

研究課題名(英文) Development of a method for estimating sources of surface and ground water using oxygen isotope anomaly of water

研究代表者

土原 健雄 (Tsuchihara, Takeo)

国立研究開発法人農業・食品産業技術総合研究機構・農村工学研究部門・上級研究員

研究者番号：30399365

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：茨城県における連続観測，全国スケールでの広域観測を行い， $^{17}\text{O}$ -excessの時間変動特性，空間分布特性を明らかにした。降水の $^{17}\text{O}$ -excessには，海洋上で降水が生成される環境の違い，降水過程における雨滴の再蒸発，また湧水の $^{17}\text{O}$ -excessにはこれらに加えて異なる起源の水の混合等が影響すると考えられた。また，蒸発の影響を受けるため池や田面水は，同地域の湧水より $^{17}\text{O}$ -excessが低下する傾向が見られた。得られた成果は，これまでの水素・酸素安定同位体比に加えて $^{17}\text{O}$ -excessを用いる地表水・地下水の起源推定，水循環プロセスの同定の研究への情報となり得るであろう。

研究成果の概要(英文)：The long-time observation in Ibaraki prefecture and nation-wide observation across Japan demonstrated the temporal variations and the spatial variations in  $^{17}\text{O}$ -excess of meteoric water. From these results, it is thus considered that the values of  $^{17}\text{O}$ -excess of rainwater are affected by different sources of water vapor generated over oceans and the re-evaporation of raindrops during precipitation process, and in addition to these influences, the values of  $^{17}\text{O}$ -excess of spring water are also affected by the mixing of waters with different origins. Farm pond and paddy waters, which are affected by evaporative isotopic enrichment, show relatively low  $^{17}\text{O}$ -excess values in comparison with those of surrounding spring waters. The obtained results will inform hydrological studies on estimation of origins of surface and ground water and identification of hydrological processes using  $^{17}\text{O}$ -excess as a tracer in addition to traditional stable isotope ratios of water.

研究分野：地下水水文

キーワード：酸素安定同位体 水素安定同位体  $^{17}\text{O}$  地下水 地表水 水循環

### 1. 研究開始当初の背景

水循環において水の経路や起源を知る上で、高密度な流量観測や地下水位観測網は有効であるが、経費的に現実的ではなく、水の動きを直接追跡するトレーサー法が有効な手法として用いられている。特に近年では分析技術の向上に伴い、水そのものの安定同位体である  $^2\text{H}$ 、 $^{18}\text{O}$  の軽元素に対する比が流域内の空間分布の差異、降雨イベントや季節ごとの変動特性が利用されており、その有効性が示されてきている。しかし、質量に依存した同位体比変化（平衡分別）と、蒸発等による急速な同位体比変化（動的分別）が混合した結果として、同位体比の空間分布、時間的変動が生じており、水の起源推定においては両方の分別効果の影響を正確に把握する必要がある。

上述の問題を解決するためには、新たにトレーサーを追加することが有効である。測定の困難さからほぼ手つかずであった、もう一つの重酸素 ( $^{17}\text{O}$ ) について、想定される降水の同位体分布からの“ズレ” ( $^{17}\text{O}$  異常値 =  $^{17}\text{O}$ -excess) が温度に依存せず湿度に依存した変化として現れることがここ数年で見出され、南極の氷床コアからの古気候の再現等への適用が開始された。また、測定技術面では、複雑な前処理を必要とする質量分析器による測定とは異なり、近赤外のレーザー光を用いた測定法が考案され、効率的な  $^{17}\text{O}$  の測定が可能となった。温度に依存せず降水・水蒸気の起源を推定することが可能な  $^{17}\text{O}$  異常値を用いることで、湛水した貯水や田面水からの再蒸発した水の記録、夏季と冬季の降水の区別、陸源性と海洋性の降水の区別の可能性が示された。

### 2. 研究の目的

本研究は、既存の水の安定同位体に加えて、新たに  $^{17}\text{O}$  異常値 ( $^{17}\text{O}$ -excess) を観測し、その時間変動特性、空間分布特性を明らかにするとともに、地表水・地下水の起源推定における指標としての有用性を示すことを目的としている。

### 3. 研究の方法

本研究では、 $^{17}\text{O}$ -excess の時間変動・季節変動特性、空間分布特性を把握するため、茨城県での連続観測、全国規模での広域の観測を実施した。

#### (1) 茨城県における連続観測

茨城県つくば市において降水、河川水（谷田川）、田面水、地下水の採取、稲敷市において田面水、灌漑用水の採取を行った。調査期間は2014年4月～2015年3月であり、採水頻度はおおむね1週間に1度であった。降水については各月の月末に計12回の採取を行い、採取器の設置期間の平均日数は30日であった。なお、田面水、灌漑用水については灌漑期間（つくば市：5～9月、稲敷市：4～8月）のみを対象としている。

#### (2) 国内の広域観測

全国の複数地点で降水を連続観測することは現実的ではないため、降水の同位体比の積分値として代替可能な湧水を対象とした。また蒸発の影響が同位体比に表れることが予想される湖沼のうち、農業農村地域の重要な水源の一つである農業用ため池を対象とした。観測対象は北海道から沖縄までの41道府県の湧水等80地点、農業用ため池等73地点である（図1）。名水百選、ため池百選に選定された各地域を代表する湧水、ため池等から対象を選定した。また、一部のため池の下流側に位置する水田において、田面水の採取を行った。採水を2015～2017年にかけて行い、採水時期は一部の地点を除き、主に水田農業におけるかんがい期間にあたる7～8月であった。

#### (3) 分析方法

採取した試料水について、 $\delta\text{D}$ 、 $\delta^{18}\text{O}$ 、 $\delta^{17}\text{O}$  を、波長スキャンキャピティリングダウン分光法（WS-CRDS）を採用した Piccaro 社製 L2140-i により測定し、それら測定値より  $d$ -excess ( $=\delta\text{D} - 8\delta^{18}\text{O}$ )、 $^{17}\text{O}$ -excess ( $=\ln(\delta^{17}\text{O}+1) - 0.528 \times \ln(\delta^{18}\text{O}+1)$ ) を求めた。 $\delta\text{D}$ 、 $\delta^{18}\text{O}$ 、 $\delta^{17}\text{O}$  の測定誤差はそれぞれ 0.5‰、0.05‰、0.05‰ 以下、 $^{17}\text{O}$ -excess の測定誤差は 10 per meg 以下であった。

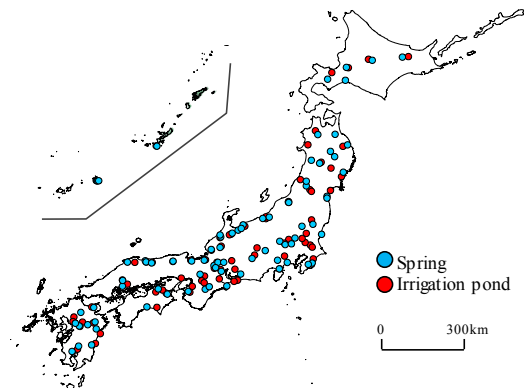


図1：湧水・ため池採水地点位置図

### 4. 研究成果

#### (1) 茨城県での連続観測結果

大気中の水蒸気と蒸発した水蒸気と同位体比が同一の状態（定常状態）であり、蒸発が唯一の同位体比変化の要因であると仮定した場合には、 $\delta^{18}\text{O}$  と  $^{17}\text{O}$ -excess は負の相関、 $d$ -excess と  $^{17}\text{O}$ -excess は正の相関を有することが解析的に示されている。水循環における水の同位体比変化が蒸発によってのみ支配されるわけではないが、本研究においてもこの関係は見られ、 $\delta^{18}\text{O}$  と  $^{17}\text{O}$ -excess には負の相関が見られた（図2）。 $^{17}\text{O}$ -excess の多くは正の値を示したが、田面水において負の  $^{17}\text{O}$ -excess 値が多く観測されており、田面水で蒸発の影響が強いことが示唆される。

$d$ -excess が増加するにつれて  $^{17}\text{O}$ -excess も

増加する傾向にある。両者を直線回帰した場合の傾き 1.2 per meg/%は、熱帯地域の降水において観測された 0.75 ~ 1.04 per meg/%よりやや大きい。d-excess と  $^{17}\text{O}$ -excess の回帰直線の傾きは蒸発が生じた環境の湿度が低いほど大きくなるため、本研究での傾きの値は熱帯地方で観測された傾きよりも大きくなっていると推測される。

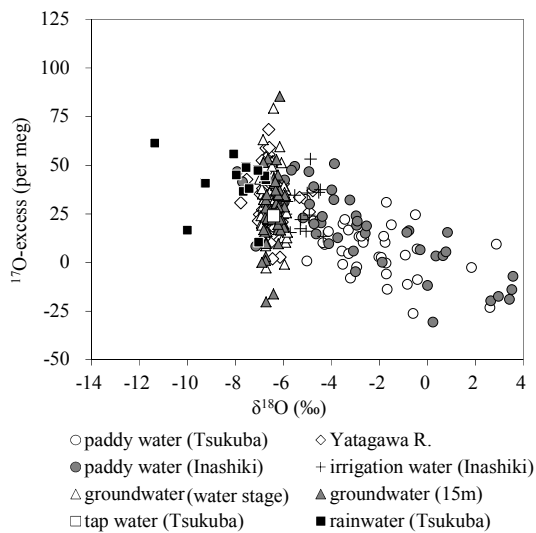


図 2：茨城県の降水、地表水、地下水の  $\delta^{18}\text{O}$  と  $^{17}\text{O}$ -excess の関係

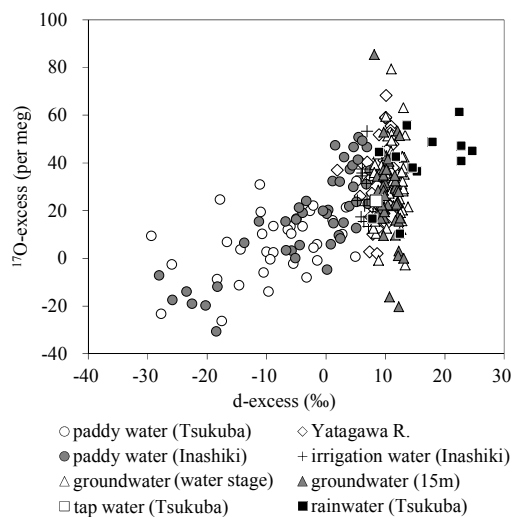


図 3：茨城県の降水、地表水、地下水の d-excess と  $^{17}\text{O}$ -excess の関係

降水の  $^{17}\text{O}$ -excess は 10 ~ 61 per meg を示し、降水量加重平均は 40 per meg であった。これは世界各地の降水、雪、地表水の平均値 37 per meg と同程度の値である。降水の  $^{17}\text{O}$ -excess は夏季に減少し、秋から冬にかけてやや高い値を示す傾向にあり、弱いながらも d-excess と類似した変動が認められる。冬季と夏季の降水の d-excess の違いは、洋上の実効相対湿度の違いから説明できる。すなわち、冬季は洋上の大気に対して海面水温が高いため実効相対湿度が下がり、動的同位体分別が卓

越する。この結果、夏季に比べて相対的に高い d-excess の水蒸気が生成され、高 d-excess の降水となる。また、海上の水蒸気の湿度と  $^{17}\text{O}$ -excess の間にも負の相関関係が報告されている。このため、冬季に洋上においては動的同位体分別が卓越し、生成される水蒸気の  $^{17}\text{O}$ -excess が高くなり、高  $^{17}\text{O}$ -excess の降水となると考えられる(図 4)。また、つくば市の降水については雨滴の再蒸発の可能性が示唆されている。雨滴の再蒸発は動的同位体分別の過程であるため、蒸発後の雨滴の  $^{17}\text{O}$ -excess は減少すると考えられる。これは、夏季の降水での  $^{17}\text{O}$ -excess の低下の要因の 1 つと考えられる。

$^{17}\text{O}$ -excess, d-excess の経時変動パターンが類似していたことは、つくば市の降水の同位体比形成には洋上で水蒸気生成等の動的同位体分別のプロセスが支配的で、平衡同位体分別の影響が相対的に小さかったことを示していると考えられる。

稲の移植直後は、田面水は大気にさらされるために蒸発量が大きい。稲体の生長に伴い水田が被覆されるにつれて水田からの蒸発量が減少する。このため田面水の  $^{17}\text{O}$ -excess は生育初期に低下する傾向にあり(図 5)、蒸発の影響を強く受けて変化していることがわかる。

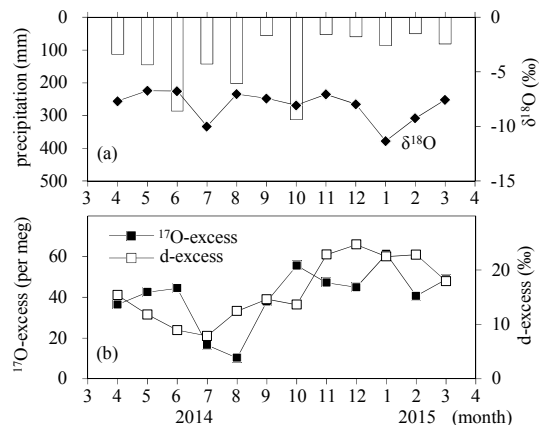


図 4：降水の同位体の経時変動；(a)  $\delta^{18}\text{O}$ 、月別降水量、(b) d-excess、 $^{17}\text{O}$ -excess

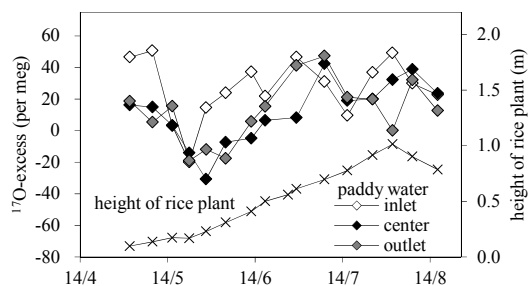


図 5：田面水の  $^{17}\text{O}$ -excess の経時変動

## (2) 国内の広域観測結果

湧水の  $^{17}\text{O}$ -excess は低緯度でやや低い値を示すが(図 6)、ため池の  $^{17}\text{O}$ -excess の空間分布の特徴は湧水ほど明瞭ではなかった(図 7)。

これは、ため池の水の同位体比が蒸発の影響を受けて変化しており、その変化の程度がため池によって異なることが要因と考えられる。

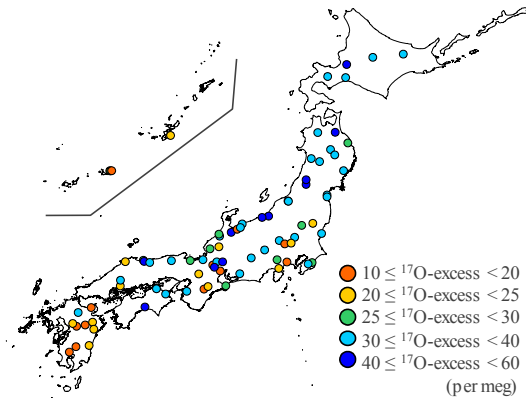


図 6：湧水の  $^{17}\text{O}$ -excess 分布

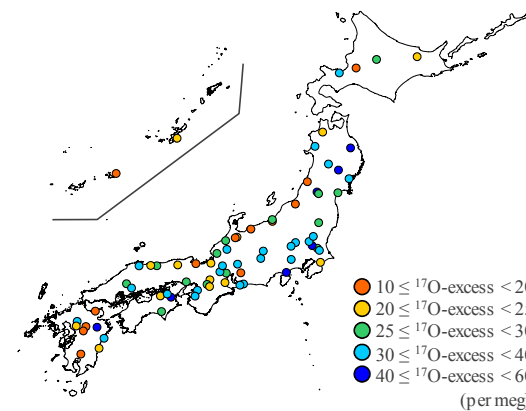


図 7：ため池の  $^{17}\text{O}$ -excess 分布

広域の  $\delta^{18}\text{O}$  と  $^{17}\text{O}$ -excess の間には緩い負の相関関係が見られる(図 8)。この相関関係は茨城県における連続観測で見られたものと同様である。全国の湧水の  $^{17}\text{O}$ -excess の平均値は 30 per meg であり、各国の天然水の平均値 ( $35 \pm 16$  per meg) よりやや低い値を示した。ため池の  $^{17}\text{O}$ -excess の平均値は湧水よりやや小さく 28 per meg であり、田面水の平均値は 22 per meg と最も小さい値を示した。茨城県での連続観測の結果と同様、田面水の低い  $^{17}\text{O}$ -excess は蒸発による動的同位体分別の影響と考えられる。

広域の d-excess と  $^{17}\text{O}$ -excess の関係を図 9 に示す。蒸発の影響を大きく受ける田面水は、より d-excess,  $^{17}\text{O}$ -excess が低い傾向にある。しかし、湧水、ため池の d-excess と  $^{17}\text{O}$ -excess はわずかに正の相関を示すものの、その関係は明瞭ではない。蒸発が同位体組成に影響する唯一の過程であると仮定するなら d-excess と  $^{17}\text{O}$ -excess は連動して変化するはずである。一方、異なる d-excess 値を持つ水が混合した場合、混合割合が線形であるのに対し、 $^{17}\text{O}$ -excess の場合は混合割合が非線形となる。

このため d-excess と  $^{17}\text{O}$ -excess の関係には、蒸発以外に異なる同位体比を有する水の混合等の水文過程が影響していると考えられた。これらを検証するためには、単一の水源から構成されるであろう比較的小規模な集水域の湧水と複数の起源の影響が想定される湧水との観測結果の比較を行うことが必要である。また、気候区分や夏季と冬季で降水量・降水パターンが異なる地域等、条件の異なる地域でさらに観測データを蓄積・比較し、 $^{17}\text{O}$ -excess の地域性について明らかにすることも今後の課題といえる。

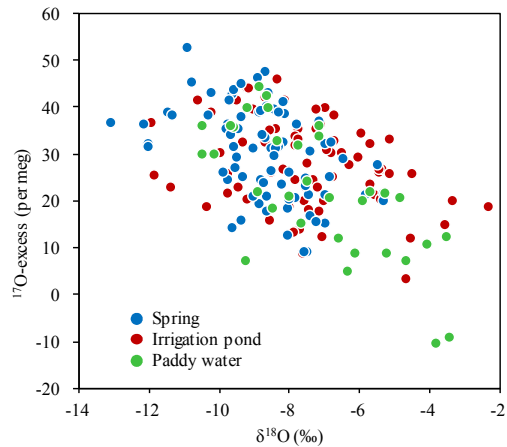


図 8： $\delta^{18}\text{O}$  と  $^{17}\text{O}$ -excess の関係

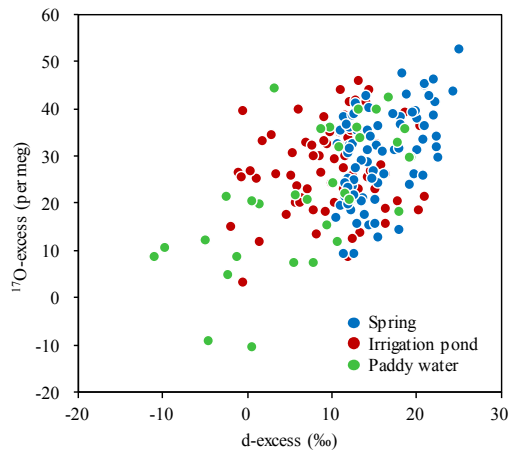


図 9：d-excess と  $^{17}\text{O}$ -excess の関係

温度ではなく湿度に依存する変数である  $^{17}\text{O}$ -excess の陸域の天然水の季節変動特性、全国規模での空間分布特性はわが国で初めての知見である。これらの観測結果より、降水の  $^{17}\text{O}$ -excess には、海洋で降水が生成される環境の違い、降水過程における雨滴の再蒸発、また湧水の  $^{17}\text{O}$ -excess にはこれらに加えて異なる起源の水の混合等が影響すると考えられた。得られた成果は、これまでの水素・酸素安定同位体比に加えて  $^{17}\text{O}$ -excess を用いる地表水・地下水の起源推定、水循環プロセスの同定の研究への情報となり得るであろう。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 1 件)

土原健雄, 吉本周平, 白旗克志, 石田 聡 (2016): 茨城県の水田農業地域における降水, 地表水, 地下水の  $^{17}\text{O}$ -excess および水素・酸素安定同位体比, 農業農村工学会論文集, 302, pp.1\_185-1\_194 (査読有).

〔学会発表〕(計 9 件)

Tsuchihara, T., Shirahata, K., Yoshimoto, S., Ishida, S. (2017): Comparative study of regional distributions of stable isotopic ratios of hydrogen and triple oxygens in spring water and irrigation-pond water across Japan, 44th Annual Congress of IAH.

土原健雄, 奥山武彦, 吉本周平, 白旗克志, 石田 聡 (2017): 地すべり地での融雪水の浸透の把握に向けた環境同位体・水質変動の観測, 平成 29 年度農業農村工学会大会講演会.

土原健雄, 吉本周平, 白旗克志, 石田 聡 (2016): 地下水と農業用ため池の水素・酸素安定同位体比組成の地域性についての検討, 日本地下水学会 2016 年秋季講演会.

Tsuchihara, T., Okuyama, T., Yoshimoto, S., Shirahata, K., Ishida, S. (2016): Stable isotope-based investigation of infiltration effect of snow melting water on the groundwater in the large landslide block, Japan, 43rd Annual Congress of IAH.

土原健雄, 奥山武彦, 吉本周平, 白旗克志, 石田 聡 (2016): 異なる時期の河川水の水素・酸素安定同位体比からみた地すべり地の地下水涵養域の検討, 平成 28 年度農業農村工学会大会講演会.

土原健雄, 吉本周平, 白旗克志, 石田 聡 (2016): 異なる地域の農業用ため池および湧水の水素・三酸素安定同位体比, 第 53 回アイソトープ・放射線研究発表会.

Tsuchihara, T., Okuyama, T., Yoshimoto, S., Shirahata, K., Ishida, S. (2015): Sulfur hexafluoride and environmental isotope-based investigation of the groundwater flow in landslide slope of agricultural land area in Japan, 42nd Annual Congress of IAH.

土原健雄, 吉本周平, 白旗克志, 石田 聡 (2015): 水田地域における降水・地表水・地下水の水素・酸素安定同位体比及び  $^{17}\text{O}$ -excess の分布特性, 平成 27 年度農業農村工学会大会講演会.

土原健雄, 吉本周平, 白旗克志, 石田 聡 (2015): 茨城県における降水, 地表水, 地下水の  $^{17}\text{O}$ -excess の分布と水素・酸素安定同位体比との関係, 日本地下水学会 2015 年春季講演会.

## (1) 研究代表者

土原 健雄 (TSUCHIHARA Takeo)

国立研究開発法人農業・食品産業技術総合研究機構・農村工学研究部門・地域資源工学研究領域・上級研究員

研究者番号: 30399365

## 6. 研究組織