

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 21 日現在

機関番号：17301

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2014～2016

課題番号：26870448

研究課題名(和文) 85Krを用いた湧水年齢の高時間分解能での解明と実用化

研究課題名(英文) Elucidation and practical application of groundwater age with high time resolution by using Krypton-85

研究代表者

利部 慎 (KAGABU, Makoto)

長崎大学・水産・環境科学総合研究科(環境)・助教

研究者番号：20608872

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,600,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、世界的にも新しい年代トレーサーであるクリプトン85(85Kr)を用いた湧水・地下水の年齢を、従来の測定システムの改良により、高い時間分解能で推定することに成功した。熊本地域や都城盆地などの複数の研究地域で現地調査を実施し、一連の分析手法の確立と85Kr法の実用化に成功した。さらに他の年代トレーサーと同時に用いて年代推定のクロスチェックを実施することで、85Kr法の有効性の検証も行うことができた。地下水の流動過程における弱点のない85Kr法の確立により、年代測定分野に新たなインパクトを与える研究となった。

研究成果の概要(英文)：In this study, we succeeded in estimating the age of spring water and groundwater using Krypton-85 (85Kr) which is a new age tracer all over the world at high time resolution by improving the conventional measurement system. We conducted field survey in several research areas such as Kumamoto area and Miyakonojo Basin, succeeded in establishing a series of analytical methods and practical application of the 85Kr method. By using the age-cross-check at the same time with other age tracers, validity of the 85Kr method could be verified. The establishment of the 85Kr method with no weak point in the groundwater flowing process has made a new impact on the age dating field.

研究分野：水文学

キーワード：年代推定 水循環解析 硝酸性窒素の挙動予測 地下水流動

1. 研究開始当初の背景

湧水の主な起源である降水が地下に浸透し湧出するまでの時間を、湧水の年齢と考えることができる。湧水の年齢を測定することは、地域の水循環や流動機構を解明する手がかりになり得るうえ、資源管理の観点からも非常に効果的である。

本研究の最大の特色は、これまで検証例の非常に少なかったクリプトン 85 (^{85}Kr) を用いた湧水・地下水の年齢解明を、従来の測定システムの改良により、高い時間分解能で推定することである。豊富な降水量と急峻な地形を考慮すると、日本をはじめとするアジアモンスーン地域においては、相対的に水循環速度が早く 50 年未満の若い湧水・地下水が多いと考えられている。このような若い湧水・地下水の年齢の解明については、 ^3H (トリチウム)、CFCs (クロロフルオロカーボン類)、 SF_6 (六フッ化硫黄) などの複数の年代トレーサー法が提唱されている。しかし、各トレーサーには例えば ^3H では時間分解能の低下、CFCs では都市域での濃度付加および還元域での微生物による分解、 SF_6 では陸生起源の濃度付加といった短所がある。一方で、 ^{85}Kr にはこのような地下水流動過程での濃度変化の要素がないため、年齢推定の際に大きな強みを有している (表 1)。

表 1: 各年代トレーサー法の特性と分析難易度

年代トレーサー	地下水流動過程での濃度変化の可能性	必要水量と分析難易度
^3H (トリチウム)	なし (ただし、この数十年は BG 濃度に有意な変化なし)	1000mL 以上必要 煩雑
CFCs (クロロフルオロカーボン類)	都市域や工場地域での濃度付加 還元域での濃度分解	100mL 程度 容易
SF_6 (六フッ化硫黄)	都市域や工場地域での濃度付加 陸生起源の濃度付加	500mL 程度 比較的容易
^{85}Kr (クリプトン 85)	なし	10000L 程度 極めて煩雑

本課題で克服!

2. 研究の目的

地下水年代推定の分野で、世界的にも最新の手法である ^{85}Kr を用い、 ^{85}Kr 法による湧水年齢の解明手法を提示し、一連の分析システムを実用化することが本研究の目的である。

3. 研究の方法

まず、現地において湧水中に溶存する ^{85}Kr ガスを回収するための既存の分析システムを改良する。これは、将来的な実用化を見据え、従来要した現地調査時間 (約 24 時間) を半減させることが喫緊の課題であったためである。

また、新たな分析システムを用いて複数の

地域で現地調査を実施することで、一連の分析手法の確立と ^{85}Kr 法の実用化を目指す。さらに他の年代トレーサーと同時に用いて年代推定のクロスチェックを実施することで、 ^{85}Kr 法の有効性の検証も行う。

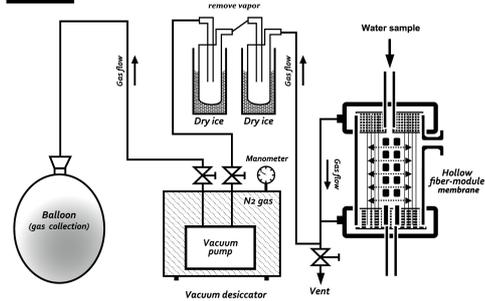
4. 研究成果

(1) 分析システムの改良

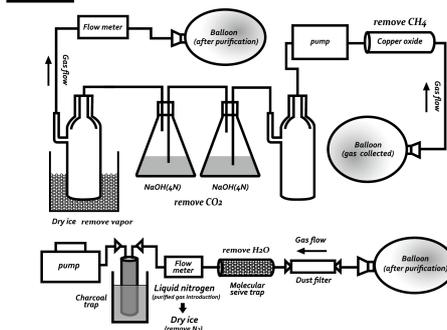
地下水中の ^{85}Kr から地下水年代を推定するためには、以下に大別される 3 つのステップ: 「地下水中の溶存ガスの抽出」、「溶存ガスに含まれる Kr の分離」、「 ^{85}Kr 濃度の測定」を要する (図 1)。

地下水に含まれる ^{85}Kr 濃度はごく微量であるため、大量の地下水 (約 10^4L) から効率的に溶存ガスを抽出する必要があり、Ohta et al. (2009) により開発されたメンブレンを用いた手法を基に現地での採水を行った。ただし、この従来のシステムでは ^{85}Kr 濃度の高い現在大気の影響が認められたことから、本研究では、純窒素で充満させた真空デシケター内に真空ポンプを入れ、外部の現在大気を取り込まないように地下水中の溶存ガスをバルーンへと採取するなど、Ohta et al. (2009) で開発されたシステムに改良を施した (図 1; Step 1)。

Step 1 Dissolved gas extraction & collection (on site)



Step 2 Kr gas separation from other dissolved gases (on site)



Step 3 Separation of ^{85}Kr gas and radio active measurement (laboratory)

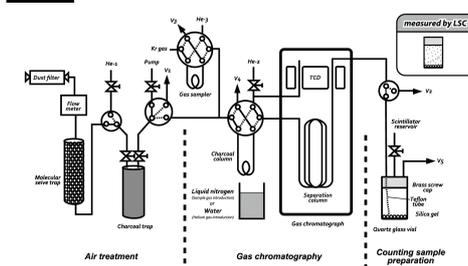


図 1: ^{85}Kr の採水から測定までの分析手法図

(2) 得られた滞留時間情報

熊本地域の涵養域、湧出域、停滞域において⁸⁵Kr濃度を測定した結果、それぞれ0.536 Bq/m³、0.067 Bq/m³、検出限界値以下となった。この濃度値と⁸⁵Krの半減期を考慮することで、ピストン流を想定した滞留時間を推定することができる。結果として、それぞれ約20年、37年、55年以上という平均滞留時間が推定された(図2)。本地域ではこれまで他の年代トレーサー(CFCs、SF₆)を用いて滞留時間推定の試みを行っているものの、特に都市域では人為起源と想定される濃度の過剰付加がみられるため、滞留時間の評価は難しかった。本研究では、このような従来の年代トレーサーの適用が困難な地域において⁸⁵Kr法による具体的な年代値が得られたことから、年代トレーサーとしての⁸⁵Krの優位性が示された。

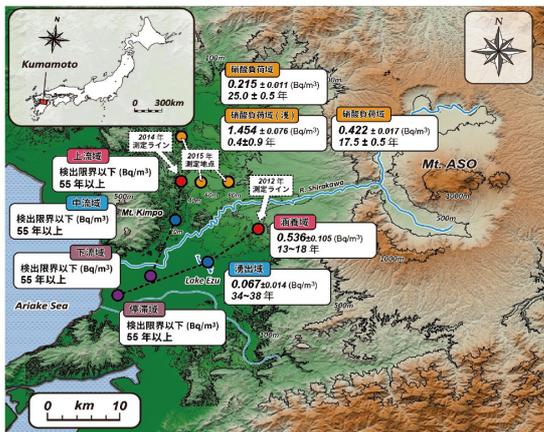


図2：熊本地域で得られた⁸⁵Kr年代分布図

ただし、熊本地域での調査では他の年代トレーサーとの滞留時間のクロスチェックができなかったため、⁸⁵Krにより得られる滞留時間の確かさを検証する必要があった。そこで、過去にCFCsやSF₆といった他の年代トレーサーにより滞留時間が得られている宮崎県都城盆地において、⁸⁵Kr法を適用した。⁸⁵Kr濃度は、上流域で1.69 Bq/m³、中流域で0.59 Bq/m³、停滞域では検出限界値以下が得られた。平均滞留時間に換算するとそれぞれ約2年、15年、55年以上となり、流動に伴い滞留時間の延びる傾向が捉えられた。

表2：都城盆地における年代推定値のまとめ

地点	年代トレーサー	
	SF ₆	⁸⁵ Kr
上流	1年	3年
中流	23年	15年
下流	60年以上	55年以上

この滞留時間は、表2に示す通り、CFCsやSF₆により推定された滞留時間と整合的であったことから、⁸⁵Kr法の確かさを示すことができた。

(3)⁸⁵Kr法で得られた滞留時間情報による数値シミュレーションの高精度化

熊本地域では、広域的な地下水位データや水質データが充実しているうえ、水文地質構造も把握されていることから、精緻な3次元数値シミュレーションが構築されている(森ほか, 2016)。このシミュレーションは、地下水位や河川水量といった量的な水文データを再現するだけでなく、硝酸性窒素や安定同位体比などの質的な水文データも考慮された構造になっている点が優れている。そのため、降水中の⁸⁵Kr履歴を本地域に与えることで、地下水中の⁸⁵Kr濃度の時間変化を推定し実測値と比較検証することができる。本研究で得られた⁸⁵Kr濃度を基にキャリブレーションすることで、シミュレーション精度の一層の向上に貢献することができた。具体的には、当初のモデルでは水循環(涵養-流動-流出)速度に裏付けがなかったが、本研究により正確な時間情報を与え、それを再現するために透水性や基盤岩層の厚さを調整する必要性が確認され、より高精度のシミュレーション構築に貢献した。

(4) 硝酸性窒素濃度の将来的な挙動推定

熊本北部地域では、農業活動に伴う窒素負荷により、地下水中に高濃度の硝酸性窒素が検出されている。県の施策により、2005年から窒素負荷削減の取り組みがなされているものの、地下水中の硝酸性窒素濃度には顕著な低減傾向が見られていない。この原因として、地表面における窒素削減対策の効果が地下水中の濃度低減という結果として現れるまでに、タイムラグがあるためと想定される。

そこで、長期的な硝酸性窒素濃度データが存在する水道水源井を対象として⁸⁵Kr法を適用した(図3)。浅井戸では、全3地点において滞留時間が最も短く、ごく最近の地下水であることが推定された。つまり、地表からの窒素負荷に鋭敏に反応する若い地下水成分が卓越していると思われ、地表面からの窒素負荷が直ちに地下水中の硝酸性窒素濃度の値として現れていることが予想される。しかしながら、2005年に策定された硝酸性窒素削減計画後も濃度は減少せず、上昇し続けている。3つの調査地点のうち削減計画の効果が最も早く現れることが期待される地点であるにもかかわらず濃度が上昇し続けているのは、削減計画後の現在も涵養域地表部からの窒素負荷が続いているためであると推察される。深井戸において推定された滞留時間は20~31年であったが、窒素負荷削減の取り組みが実施されたのが調査年の12年前であったことを考慮すると、政策の効果がまだ顕在化しておらず、施策が正しく機能してい

れば今後徐々に硝酸性窒素濃度が低減するものと推察される。

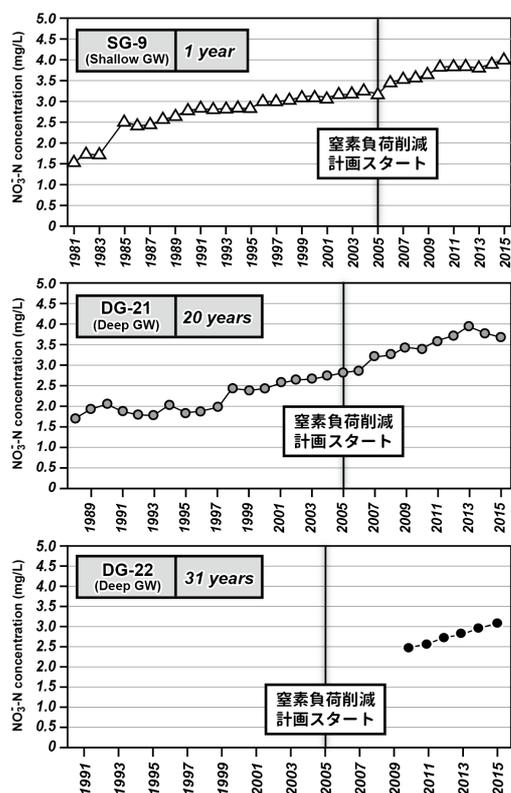


図3：熊本硝酸負荷域の3観測井における⁸⁵Kr年代と地下水中の硝酸性窒素濃度の経年変化

本研究は、他の年代トレーサーの弱点であった、地下水の流動過程における濃度分解や付加のみられない⁸⁵Kr法を確立したことで、年代測定における切り札となる役目を担い、関連分野に新たなインパクトを与える成果となった。今後は⁸⁵Kr法の適用地域を増やし、他の年代トレーサーとのクロスチェックを通して、より高精度の年代推定を目指すことが望まれる。

<引用文献>

Ohta, T., Mahara, Y., Momoshima, N., Inoue, F., Shimada, J., Ikawa R. and Taniguchi, M. (2009) Separation of dissolved Kr from a water sample by means of a hollow fiber membrane. *Journal of Hydrology*, 376, 152-158.

森 康二, 田原康博, 多田和広, 細野高啓, 嶋田純, 松永 緑, 登坂博行 (2016) 流域スケールにおける反応性窒素移動過程のモデル化と実流域への適用性検討 *地下水学会誌*, 第58巻, 63-86.

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計2件)

Kagabu M., M. Matsunaga, K. Ide, J. Shimada and N. Momoshima (2017):

Groundwater age determination using ⁸⁵Kr and multiple age tracers (SF₆, CFCs, and ³H) to elucidate regional groundwater flow systems. *Journal of Hydrology: Regional Studies*. 査読有, Vol. 12, 165-180.

井手 淨・利部 慎・細野高啓・嶋田 純 (2016): 繰り返し採水試料の CFCs (クロロフルオロカーボン類) による霧島火山群湧水の滞留時間推定 - Lumped parameter model による年代解析 - *日本水文科学会誌*, 査読有, 第46巻, 第3号, 213-231.

[学会発表](計10件)

利部 慎・伊藤沙希・嶋田 純・本田 孝・山崎安正: 地下水の水質・同位体・年代トレーサーに基づくタンザニア内陸部の岩盤地下水流動特性について. 2016年度日本水文科学会, 法政大学(東京都千代田区), 2016年10月15日.

中川 啓・渡辺貴史・藤井秀道・利部 慎: 文理融合アプローチによる長崎県島原半島における地下水汚染の改善に係る検討. 日本地下水学会 2016年秋季講演会, 長崎新聞文化ホール(長崎県長崎市), 2016年10月20日.

山本紘平・利部 慎・中川 啓: 雲仙岳の噴火直後および2016年における島原市湧水水質の比較. 日本地下水学会 2016年秋季講演会, 長崎新聞文化ホール(長崎県長崎市), 2016年10月20日.

利部 慎, 松永 緑, 小野 昌彦, 町田 功, 井川 怜欧, 嶋田 純, 百島 則幸: 柿田川湧水における⁸⁵Krを用いた地下水年代の推定. 日本地球惑星科学連合 2016年大会, AHW18-05, 幕張メッセ(千葉県千葉市), 2016年5月25日.

利部 慎, 松永 緑, 副島梨紗子, 嶋田 純: 熊本地域の硝酸性窒素の負荷域における地下水年代の推定. 日本地下水学会 2016年春季講演会, 東京農工大学(東京都府中市), 2016年5月14日.

利部 慎, 松永 緑, 嶋田 純: 若い年代トレーサーとしての⁸⁵Krの有効性. 日本地下水学会秋季講演会, 42, 多田記念大野有終会館(福井県大野市), 2015年10月13日.

Kagabu M., M. Matsunaga, T. Ishii, J. Shimada and N. Momoshima: Groundwater age determination by using ⁸⁵Kr and its verification by other hydrogeochemical age tracers. 2015 IAH Asia-Pacific Regional Meeting, Jeju (Korea). 4th April, 2015.

Matsunaga M., J. Shimada, K. Mikami, T. Hosono, M. Kagabu and K. Iwasa: The Behavior Of Nitrate In Confined Groundwater Under The Anaerobic Environment Revealed By Using 3d Groundwater Flow Simulation Based On Observed Data In Miyakonojo Basin, Japan. IAH 2014, Marrakech (Morocco). 16th September, 2014.

利部 慎・嶋田 純・松永 緑・井手 浄・井川 怜欧・小野昌彦：⁸⁵Kr により推定された熊本地域における地下水の滞留時間．日本地下水学会 2013 年秋季講演会，秋田県民会館（秋田県秋田市），2013 年 10 月 11 日．

Kagabu M., M. Matsunaga, J. Shimada, K. Mori and N. Momoshima: Groundwater age determination by using ⁸⁵Kr in groundwater -Development of on-site Kr gas extraction system and age confirmation by 3D groundwater modeling-. IAH 40th annual congress, Perth (Australia). 17th September 2013.

〔図書〕(計 1 件)

利部 慎・中田晴彦・渡辺裕太(第 4 章：地下水中の環境トレーサーからみた地下水流動状況) In: 持続可能な地下水利用に向けた挑戦-地下水先進地域熊本からの発信-(嶋田 純・上野真也編),成文堂 ,pp.53-75 , 2016 .

〔その他〕

ホームページ等

水環境科学研究室：

<http://kagabumakoto.com/index.html>

6 . 研究組織

(1)研究代表者

利部 慎 (KAGABU, Makoto)

長崎大学・水産・環境科学総合研究科

(環境)・助教

研究者番号：20608872