

令和 6 年 6 月 18 日現在

機関番号：11401

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2019～2023

課題番号：19K12293

研究課題名（和文）都市域における地下水流動の実態把握のためのマルチトレーサー手法の開発

研究課題名（英文）Development of multi-tracer method for evaluation of groundwater flow in urban area

研究代表者

林 武司（HAYASHI, Takeshi）

秋田大学・教育文化学部・教授

研究者番号：60431805

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：本研究は、多様な人間活動によって複雑に変化する都市域の地下水環境を把握する手法として、様々な物理的・化学的特性を有する指標群を併用するマルチトレーサー法を開発するための知見を得ることを目的とし、日本最大の都市域である首都圏を擁する関東平野の西部に点在する湧水、自噴井群を対象として溶存イオン、環境同位体、PPCPs、人工甘味料、微生物、年代指標の性状を把握した。これらの指標群の性状を総合的に検討した結果、各指標が有する弱点を補完してより詳細な検討が可能となることを確認し、マルチトレーサー法の有用性を示すことができた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、マルチトレーサー法の有用性を示すとともに、この手法を活用するための留意点や、検討の精度を向上させるためのアプローチについても提示した。本研究で得られた知見は、首都圏に限らず国内外の都市域における水・物質循環機構のプロセス・メカニズムの解明に資するものである。また本研究の知見は、日本の都市域における地下水環境の評価に寄与することを通じて、日本の施策である水循環基本計画や環境基本計画等の推進や、レジリエントで持続可能な都市域の構築のための防災計画・対策の検討にも寄与するものである。

研究成果の概要（英文）：This study aimed to develop a multi-tracer method by employing a range of indicators with diverse physical and chemical properties to understand the groundwater environment in urban areas, which undergoes complex changes due to various human activities. The research focused on understanding the characteristics of dissolved ions, environmental isotopes, PPCPs, artificial sweeteners, microorganisms, and age indicators in the springs and artesian wells scattered in the western Kanto Plain, which encompasses the Tokyo metropolitan area, the largest urban region in Japan. A comprehensive examination of the characteristics of these indicators demonstrated that they can complement each other's weaknesses, allowing for detailed investigation. Consequently, this study successfully illustrated the utility of the multi-tracer method.

研究分野：環境動態解析

キーワード：マルチトレーサー法 都市域 地下水流動 溶存イオン 環境同位体 PPCPs 人工甘味料 涵養年代

1. 研究開始当初の背景

日本では2014年に水循環基本法が施行され、2015年に水循環基本計画が策定された。この水循環基本計画では、流域単位での総合的・一体的な管理を基本として、健全な水循環の維持・回復の積極的な推進、持続可能な地下水の保全と利用の推進等が掲げられている。また、2018年に閣議決定された第5次環境基本計画においても、重点戦略の1つとして、環境リスク評価の観点から健全で豊かな水環境の維持・回復や化学物質のライフサイクル全体での包括的管理が掲げられている。しかし、その一方で日本では多くの都市域において、都市化の過程における土地利用の変化や河川等の地表水域の改修、地下水の開発・利用等によって地表・地下の水循環機構が大きく改変され、また生活排水や農地・工場からの汚染物質の付加等によって地表水・地下水が汚染されてきた。これらのことから、水循環基本法・水循環基本計画や環境基本計画が掲げる健全な水循環を実現するためには、都市域における地下水の流動機構や化学性状の現状を、変遷をふまえて把握することが不可欠であるといえる。

都市域における地下の水環境の変化の把握は世界的な課題であり、これまでに溶存物質の起源や地下水流動の指標として溶存イオンや環境同位体を用いる手法が様々に開発され適用されてきた。しかし、都市域における地下水環境の変化のあり方は複雑であり、個々の指標では地下水環境の実態把握が困難な場合があることも多くの事例によって示されている。2000年代以降には、医薬品・生活関連物質(Pharmaceutical and Personal Care Products, 以下PPCPs)や人工甘味料、農薬など本来は自然環境中に存在しない化学物質を指標として用いる研究事例が世界的に増加している。しかし、これらの化学物質を併用し、さらに環境同位体等と合わせて地下水環境を検討した事例はまだ乏しい。また、これらの化学物質の使用・規制の歴史や状況は国ごとに異なるため、海外での事例や手法をそのまま日本に適用することは困難である。したがって、日本の都市域に適応した地下水環境の把握・評価手法の開発が不可欠である。

2. 研究の目的

上記の背景をふまえて本研究では、様々な物理的・化学的特性を有する指標群を併用して地下水環境を把握するマルチトレーサー法を開発するために、地下水流動過程における各指標の特性や関係性を把握し、課題を検討することを目的とした。指標群については、本研究グループメンバーの先行研究の成果をふまえて溶存イオン、環境同位体、PPCPs、人工甘味料、微生物、年代指標を選定した。また対象地域については、日本最大の都市域である首都圏を擁する関東平野のなかで、本研究グループメンバーが先行研究として調査を実施し、資料、データ、知見を収集・蓄積してきた平野西部を設定した。

3. 研究の方法

関東平野西部には、南から北に向かって武蔵野台地、入間台地、東松山丘陵、荒川扇状地等が分布しており、これらの地域では、土地利用の特徴が大きく異なっている。最も南側に位置する武蔵野台地のうち東京都区部(以下、武蔵野台地(東京都区部))の土地利用は市街地を主体とするが、公園等の緑地が広がる地区や小規模な農地が点在する地区もみられる。武蔵野台地のうち埼玉県内(以下、武蔵野台地(埼玉県内))から入間台地、東松山丘陵にかけては、土地利用は大局的に市街地から郊外型へと遷移する。さらに荒川扇状地では、農地がより広くみられ畜産も行われている。本研究では、これらの地域に点在する湧水や自噴井を対象として調査を行った(図1)。なお、本研究の実

実施期間中に新型コロナウイルス感染症の流行や大雨が発生したこと等により調査計画を大きく変更せざるを得なかったため、2022年12月、および2023年11月に調査を実施した。また両調査の間に、大雨の影響等によって立ち入りを禁止された湧水や埋め立てられた湧水が生じたこと等により、調査地点を一部変更する必要があった。これらの結果として、調査地点の総数は26となった。

調査に際しては、現地にて水の物理化学性状(水温、pH、電気伝導率、溶存酸素



図1 調査地点分布図

基図はArcGISのWorld Imagery, World Boundaries and Placesを用いて作成

濃度、酸化還元電位)を測定するとともに、水試料を分析項目ごとに分取した。採取した水試料は持ち帰り、溶存イオン(Li^+ , Na^+ , NH_4^+ , K^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+} , F^- , Cl^- , NO_2^- , Br^- , NO_3^- , PO_4^{3-} , SO_4^{2-} , HCO_3^-),環境同位体(^{18}O -water, D -water, ^{15}N - NO_3 , ^{18}O - NO_3 , ^{34}S - SO_4 , ^{18}O - SO_4),PPCPs(caffeine, carbamazepine, crotamiton, diclofenac sodium, ibuprofen, N,N-diethyl-m-toluamide, sulfamethoxazole),人工甘味料(acesulfame, sucralose, Neohesperidin-dihydrochalcone, cyclohexylsulfamate, saccharin, aspartame, neotame),微生物(大腸菌,大腸菌群),年代指標(Tr, CFCs, SF_6)を測定した。なお、環境同位体の一部(^{34}S - SO_4 , ^{18}O - SO_4)と年代指標については、分析を外部機関に委託した。

また本研究では、研究対象地域の地形、地質、土地利用、上下水道の普及・整備状況、地域内の湧水や浅層地下水の化学性状等について資料、データを収集し、GIS等を用いて整理した。

4. 研究成果

4.1 土地利用に基づく地下水涵養源の検討

本研究では、研究対象地域を擁する地方公共団体が公開している土地利用や上下水道の資料、データを収集し、地下水涵養の観点から整理・検討した。

土地利用については、研究対象地域内で最も都市化が進行している東京都区部を中心に検討した。1981~2021年度の東京都区部の土地利用の推移をみると、この期間を通じて宅地の割合が最も多く(55.5~58.9%)、ついで道路等が多かった(18.9~22.2%)。ただし、宅地の建蔽率(宅地面積に対する建築面積の割合)に着目すると、建蔽率は期間を通じて46.6~51.4%で推移した。すなわち、実際に建物等に覆われている土地の面積は宅地の半分程度であり、建築面積の土地利用面積に対する割合は期間中25.9~30.4%であった。宅地のうち非建築用地の被覆状況や実態は宅地の用途等によって多様であるものの、宅地に分類されている土地の一部は降水を浸透させると考えられる。また、各区の建蔽率の推移をふまえると、東京都区部においても降水の地下浸透が面的に生じていることが強く示唆される。

上下水道については、研究対象地域内でも地域によって状況が大きく異なる。東京都区部では、上水道は1982年に普及率100%を達成した。また、水道水の配水量は1945年から1977年にかけて増加した後、減少に転じた。これに対して漏水率は、1945年には80.0%であったが1949年に30.0%まで低下し、2012年には2.0%となった。その後、漏水率はやや上昇し、3%台で推移している。この値は世界的にみても非常に低いものであるが、漏水の存在は、水道水の一部が地下水涵養源となっていることを意味する。水道漏水は年間を通じて生じ、また地下で発生するために降水に生じる蒸発等の影響を受けにくいことから、安定した地下水涵養源の1つといえる。東京都区部の下水道については、普及率は1950年には10.7%であったが、1994年に100%を達成した。他方、埼玉県川越市では、データを取得できた2019年度以降の上水道普及率は99.9%であり、有収率(給水量のうち料金収入を伴った水量の割合)は93.3~94.7%である。これに対して、同期間の下水道普及率は86.1~87.1%であり、上水道普及率より低く推移している。埼玉県深谷市では、データを取得できた2006年度以降の上水道の普及率と有収率は、それぞれ97.3~98.4%と87.2~88.0%である。また、2012年度以降の下水道普及率は53.7~58.9%である。上水道の有収率が100%とならないことは、水道水の配水過程において水の損失が生じていることを意味しており、漏水はその主な要因の1つである。両市や他の埼玉県内の地方公共団体等における上水道の有収率の推移を考慮すると、研究対象地域のうち埼玉県内の範囲においても水道漏水が広く生じ、安定した地下水涵養源の1つになっていると考えられる。

4.2 トレーサーに基づく地下水涵養源の検討

本研究にて2022年に調査を行った湧水、自噴井の全てにおいて、PPCPsや人工甘味料が検出された(林ほか,2023)。検出されたPPCPs,人工甘味料の種類は地点によって多様であるものの、この結果は前述した下水道普及率によらず、実際には研究対象地域の広い範囲において下水漏水が生じていることを意味する。下水道の整備された地域であっても下水漏水が地下水涵養源となっている事例は、本研究グループメンバーの先行研究においても確認されている(伊東ほか,2023;林,2013;黒田ほか,2007など)。この結果と、前述した土地利用、上水道の漏水率や有収率の推移をふまえると、研究対象地域では広く降水、水道漏水、下水漏水が地下水涵養源になっていると考えられる。また、水田が存在する地域では、灌漑水も地下水涵養源となりうる。例えば荒川扇状地では、荒川の水が水田の灌漑に用いられている。このように多様な水源の寄与について検討するため、本研究で採取した湧水、自噴井の ^{18}O , D の特徴を整理した。

^{18}O , D の関係(図2)をみると、湧水、自噴井は全体としてローカルな天水線(LMWL, $\text{D}=8 \text{ }^{18}\text{O}+13$)に沿って分布するものの、両同位体比は広範な値を示した。この結果は、本研究グループメンバーの先行研究(安原,2002など)の結果と整合する一方で、降水の ^{18}O , D の地域差(田上ほか,2013;田瀬ほか,1997など)では説明できない。湧水、自噴井の ^{18}O , D は、降水の ^{18}O , D の地域差に加えて各地点の地下水涵養源の違い、すなわち降水、水道漏水、下水漏水、灌漑水の混合比の違いを反映していると考えられる。例えば、武蔵野台地(東京都区部、埼玉県内)の湧水の一部は相対的に高い ^{18}O , D を有するが、これらの値は、各地域の降水の

^{18}O , D と整合的である。他方、これらの地点の推定涵養域の土地利用を考慮すると、地下水涵養源として降水の寄与が大きいと判断される。このような点をふまえると、相対的に高い ^{18}O , D は、地下水涵養源として降水の寄与が大きいことを示していると考えられる。

他方、荒川扇状地の湧水は他の地域と比較して d 値 (= $D-8 \text{ }^{18}\text{O}$) が低い傾向にあり、図上での分布傾向が異なった。これらの傾向は、降水(田上ほか, 2013; 田瀬ほか, 1997 など)や荒川河川水(稲村・安原, 2003 など)の ^{18}O , D では説明できない。ここで、荒川扇状地には水田が広がることから、蒸発の影響を受けた田面水が地下水涵養源の一部となっていることが要因として考えられる。田面水のように、蒸発の影響を大きく受けた水の ^{18}O , D は非平衡分別によって変化し、 ^{18}O , D の関係において天水線と異なる分布傾向を示す。蒸発による同位体比の変化のあり方や程度は種々の条件によって様々であるが、一般に ^{18}O , D の関係において傾き 4~5 の線に沿って分布することが知られる(山中, 2020; Mook, 2006 など)。荒川扇状地の湧水について、傾き 4~5 の蒸発線から湧水の起源となった水の ^{18}O , D を推定すると、 ^{18}O : -9.3~-8.7‰程度、 D : -61~-57‰程度となった。このような同位体比を有する水は、灌漑水として供給された荒川の水と降水の混合によって説明できる。

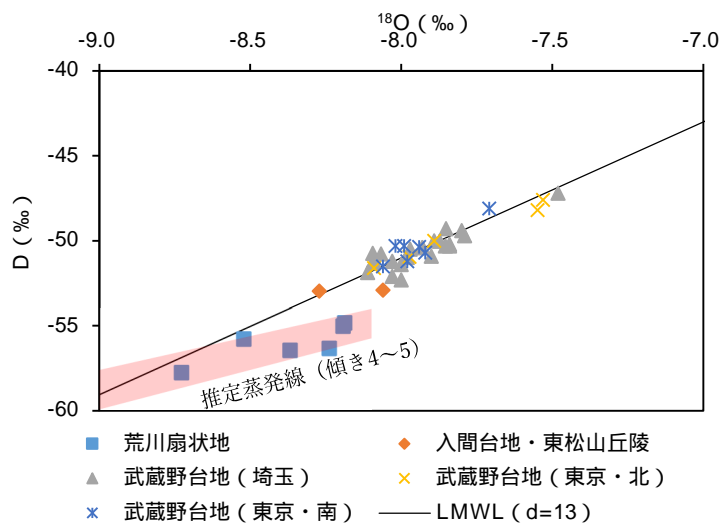


図2 湧水・自噴井の ^{18}O , D の関係
2022年, 2023年の調査結果を基に作成

4.3 トレーサーに基づく地下水の化学性状の形成メカニズムの検討

・溶存イオン

一般に、前節に示した地下水の各涵養源(降水, 水道漏水, 下水漏水, 灌漑水)は、それぞれ特徴的な化学性状を有する。このため、地下水の涵養源やそれらの混合比の差異は地下水の化学性状に多様性をもたらす。本研究では、研究グループメンバーの先行研究や既往研究等より把握した地下水の各涵養源の化学性状の特徴をふまえて溶存イオン間の関係を整理し、各溶存イオンの起源を検討した。例として、 SO_4^{2-} , Cl^- , NO_3^- の関係を図3に示す。一般に、これらの溶存イオンはいずれの地下水涵養源中にも存在するが、涵養源によって濃度や溶存比が大きく異なる。未処理下水についてはデータが限られるものの、図3から、武蔵野台地(東京都区部)の湧水については降水, 水道漏水, 下水漏水を涵養源とする3成分混合系によって溶存イオン組成が形成されていると判断される。これに対して武蔵野台地(埼玉県内)以北の湧水, 自噴井のなかには、この3成分混合系では溶存イオン組成を説明できないものが多くみられる。このような湧水, 自噴井の多くは水道水よりも高い SO_4^{2-} 濃度を有し、傾き 0.5 の直線に沿って分布する(図3左図)。また Cl^- と NO_3^- の関係においては、これらの湧水, 自噴井は各涵養源と比較して $\text{NO}_3^-/\text{Cl}^-$ 比が高い傾向を示す(図3右図)。他方、これらの地点の推定涵養域の土地利用には、農地がみられる場合が多い。このような点から、3成分混合系で説明できない湧水, 自噴井中には硫酸($(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$)など肥料由来の SO_4^{2-} , NO_3^- 等が含まれていると考えられる。さらに、荒川扇状地の湧水には特異的に SO_4^{2-} , NO_3^- 濃度の高いものがあるが、この湧水の推定涵養域では畜産が行われていることから、肥料に加えて畜産由来の SO_4^{2-} , NO_3^- 等の寄与が考えられる。

・環境同位体

地下水中の SO_4^{2-} , NO_3^- の環境同位体の性状は両イオンを構成する元素の起源によって異なるため指標として広く用いられているが、実際には、複数の起源が同程度の同位体比を有する場合も多い。他方、前述したように研究対象地域では、水道水や灌漑水の水源として河川水が使用されているが、これらの河川水には研究対象地域の上流域で排出された農業排水や下水処理水が含まれている。したがって、研究対象地域内で取水される河川水やそれらを水源に含む水道水には、上流域で排出された生活排水や肥料等に由来する SO_4^{2-} , NO_3^- が含まれていると考えられる。これらの点をふまえると、本研究対象地域のように地下水の涵養源や溶存イオンの起源がそれぞれ複数、存在する場合には、環境同位体を併用し、各涵養源・起源の特徴をふまえて環境同位体間の関係を検討する必要がある。本研究では、 SO_4^{2-} と $^{34}\text{S}\text{-SO}_4$, $^{18}\text{O}\text{-SO}_4$, NO_3^- と $^{15}\text{N}\text{-NO}_3$, $^{18}\text{O}\text{-NO}_3$ の関係を整理したうえで、これらの環境同位体間関係から SO_4^{2-} , NO_3^- の起源を検討した。 NO_3^- ,

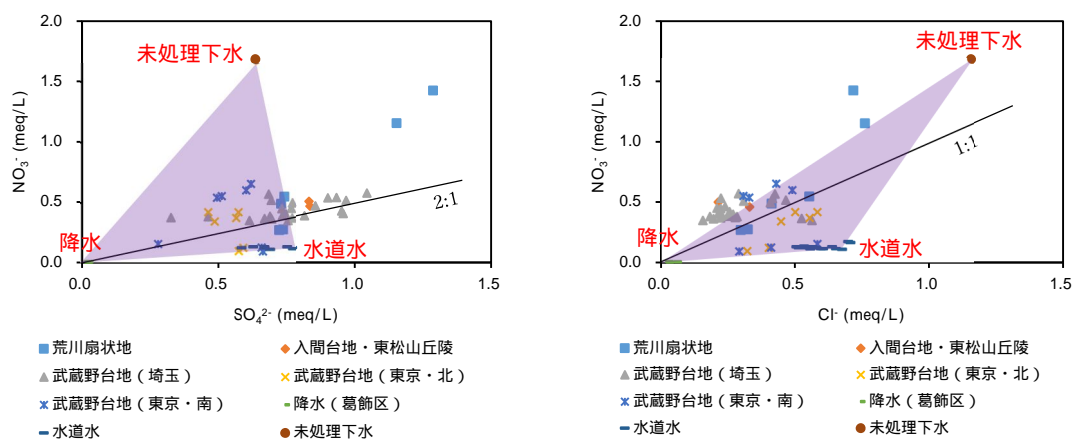


図3 湧水・自噴井の SO_4^{2-} , Cl^- , NO_3^- の関係
2022年、2023年の調査結果、伊東ほか(2023)、東京都、川越市、深谷市のデータを基に作成

$^{15}\text{N}_{-\text{NO}_3}$, $^{18}\text{O}_{-\text{NO}_3}$ の関係は、一部の地点については涵養域内において脱窒が進行していることを示している。この結果は、 NO_3^- の濃度のみでは起源の検討が十分でないことを意味する。他方、 $^{34}\text{S}_{-\text{SO}_4}$, $^{15}\text{N}_{-\text{NO}_3}$ の関係においては、地域ごとに異なる分布傾向がみられる。例えば、武蔵野台地(東京都区部)の湧水は $^{34}\text{S}_{-\text{SO}_4}$, $^{15}\text{N}_{-\text{NO}_3}$ ともに相対的に高い値を示す($2.5\text{‰} < ^{34}\text{S}_{-\text{SO}_4} < 7.5\text{‰}$, $9.3\text{‰} < ^{15}\text{N}_{-\text{NO}_3} < 18.9\text{‰}$) のに対して、荒川扇状地の湧水は、 $^{15}\text{N}_{-\text{NO}_3}$ は相対的に高い値($8.0\text{‰} < ^{15}\text{N}_{-\text{NO}_3} < 12.6\text{‰}$) を示す一方で $^{34}\text{S}_{-\text{SO}_4}$ は相対的に低い値($-0.2\text{‰} < ^{34}\text{S}_{-\text{SO}_4} < 2.5\text{‰}$) を示す。これらの結果から、湧水、自噴井中の SO_4^{2-} , NO_3^- は上下水道からの漏水と化学肥料を主な起源とし、武蔵野台地(東京都区部)では前者の寄与が大きく、武蔵野台地(埼玉県内)以北の地域では後者の寄与が大きいと考えられる。また、荒川扇状地では、これらに加えて畜産あるいは有機肥料の影響が考えられる。

・PPCPs, 人工甘味料

前述したように2022年の調査では、全調査地点においてPPCPsや人工甘味料が検出された。本研究が対象としたPPCPsや人工甘味料は様々な用途に用いられているものの、いずれも日本社会で広く使用されてきたものである。これらの物質の地下での分解・吸着性は様々であるが、研究対象地域全体としてみると、総PPCPs濃度と総人工甘味料濃度には正の相関がみられる(林ほか2023)。各地点から様々なPPCPsや人工甘味料が検出されていることをふまえると、総PPCPs濃度や総人工甘味料濃度は、各地点の涵養域内における人口規模や下水漏水量を反映していることが示唆される。また、PPCPsのうち易分解性とされるcaffeineやibuprofenが検出されたことは、これらの物質の涵養源が各地点の近傍に存在することを強く示唆する。なお、易分解性のPPCPsが検出されることは、必ずしも涵養域の規模が小さいことを意味しない。他方、検出された人工甘味料の日本での許認可年(例えば、ネオテーム:2007年、アセスルファム:2000年、スクラロース:1999年)を考慮すると、全地点において1999年以降に涵養された地下水が含まれており、16地点では2007年以降に涵養された地下水の寄与があると考えられる。このような時間スケールは、複数の年代指標(Tr , CFCs , SF_6)に基づいて推定された各地点の地下水の平均滞留時間と矛盾しない。これらの結果は、マルチトレーサー法を用いて都市域の地下水環境を理解するうえで、対象地域の土地利用等の様々な人間活動について、現状だけでなく地下水流動の時間スケールに応じた履歴を含めて把握する必要があることを示している。

4.4 まとめ

本研究で用いた指標群にはそれぞれ長所と短所があるが、本研究ではこれらの指標群を併用して総合的に検討することによって、各指標の短所を補完しあい、より精度の高い検討が可能となることが確認された。本研究の結果は、マルチトレーサー法の有用性が高いことを示すものである。ただし、マルチトレーサー法を活用するためには、地下水や溶存物質の涵養源・起源となるものの指標群の性状の把握が不可欠である。また都市域では、本研究対象地域のように地域外で様々な人為影響を受けた水が各種用水の水源として利用されている場合があることから、涵養源となる水の循環・利用の履歴をよく考慮することが重要である。他方、本研究の成果をふまえると、自然・人為の水・物質循環の諸過程において特徴的な性状を有する指標(環境DNAなど)や、水・物質循環過程において性状が保存されやすい指標(Sr 同位体など)を追加していくことにより、マルチトレーサー法の精度が向上すると考えられる。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計7件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 林 武司, 安原正也, 中村高志, 黒田啓介, 中田晴彦
2. 発表標題 関東平野西縁部における湧水群のS042-, 34S性状
3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2024年大会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 林 武司, 安原正也, 中村高志, 黒田啓介, 中田晴彦
2. 発表標題 関東平野西縁部における湧水群のマルチトレーサーの性状
3. 学会等名 日本水文科学会/水文・水資源学会2023年度研究発表会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 林 武司, 安原正也, 中村高志, 黒田啓介, 中田晴彦
2. 発表標題 首都圏西部における湧水群の質的性状の地域性と多様性
3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2023年大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 林武司, 安原正也, 中村高志
2. 発表標題 感染症の大規模流行による社会変容が都市域の水循環・物質移行に与える影響の検討
3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2022年大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 石澤芙雪, 安原正也, 李盛源, 伊東優希, 中村高志
2. 発表標題 埼玉県荒川扇状地の浅層地下水システムに関する地球化学的研究
3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2022年大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 林武司, 安原正也, 中村高志
2. 発表標題 関東平野西縁部に分布する湧水の涵養域にみられる土地利用形態の多様性
3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2021年大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 林武司, 安原正也, 中村高志
2. 発表標題 都市域における水循環機構を把握するためのマルチトレーサー法の開発
3. 学会等名 JpGU-AGU Joint Meeting 2020
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担者	安原 正也 (YASUHARA Masaya) (40358205)	立正大学・地球環境科学部・教授 (32687)	

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	中村 高志 (NAKAMURA Takashi) (60538057)	山梨大学・大学院総合研究部・准教授 (13501)	
研究分担者	中田 晴彦 (NAKATA Haruhiko) (60311875)	熊本大学・大学院先端科学研究部（理）・准教授 (17401)	
研究分担者	黒田 啓介 (KURODA Keisuke) (30738456)	富山県立大学・工学部・教授 (23201)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関