

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 6 月 18 日現在

機関番号：13601

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2010～2012

課題番号：22560509

研究課題名（和文）化学トレーサーによる循環地下水の複数流動経路の分離と地下水年齢の同時決定法

研究課題名（英文）Simultaneous separation and dating of groundwater flow paths using chemical tracers in multi-groundwater flow system in water cycle

研究代表者

中屋 眞司（NAKAYA SHINJI）

信州大学・工学部・教授

研究者番号：70313830

研究成果の概要（和文）：

本研究では、水中の SF<sub>6</sub> と CFCs トレーサー濃度を測定して滞留時間(年代)を決定するシステムを作製し、水中の酸素と水素の安定同位体トレーサー (<sup>18</sup>O, <sup>2</sup>H) と組み合わせて、見えない地下水の流動を可視化する方法を試みた。様々な地域の湧水や井戸水など地下水に適用した結果、SF<sub>6</sub> と (<sup>18</sup>O, <sup>2</sup>H) トレーサーとを組み合わせると、50 年以下の比較的若い循環地下水について流動経路の分離と各経路の移動・滞留時間(年代)を同時に決定する有効な方法になることが明らかになった。また、都市域で見つかる過大な水中 CFC 濃度の新たなトレーサー能をみつけた。

研究成果の概要（英文）：

This study aims to apply a multiple tracer method using SF<sub>6</sub> and CFCs dating tracers and stable isotopes of oxygen and hydrogen (<sup>18</sup>O, <sup>2</sup>H) to specify the groundwater flow paths with developing the dating system. Applying the multiple tracer method to groundwater samples from springs and wells in many areas, our findings demonstrate the usefulness of our multiple tracer method as a tracer method for simultaneous separation and dating of groundwater flow paths in multi-groundwater flow system in water cycle. We found the new traceability of CFCs with over recorded values in groundwater in urban areas.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	2,800,000	840,000	3,640,000
2011年度	300,000	90,000	390,000
2012年度	600,000	180,000	780,000
年度			
年度			
総計	3,700,000	1,110,000	4,810,000

研究分野：工学、水資源学

科研費の分科・細目：土木工学・水工学

キーワード：地下水

## 1. 研究開始当初の背景

申請者は、自然にある水のトレーサー機能を持つ酸素と水素の安定同位体比 ( $\delta^{18}\text{O}$  と  $\delta\text{D}$ ) を多数の地下水(井戸水)について測り、

両同位体比の関係とその空間分布に対し、流動にともなう水の混合モデルを適用すれば、混合した結果として得られる安定同位体比測定値から複数の涵養源の異なる流動経路

(水みち)を分離できることを明らかにした(Nakaya et al., 2007(Water Resour. Res.)). しかし、地下水の流動経路分離にとどまり、個々の経路の流動履歴など時間については分からないという課題が残った。

一方、化学トレーサーとして、50年以下の比較的若い循環地下水の年齢を高精度で決定する研究は1980年代から始まり、水中のクロロフルオロカーボン類(CFCs)や六フッ化硫黄(SF<sub>6</sub>)の濃度を測定し、ヘンリーの法則を用いてそれらの濃度を大気条件に換算し、大気中の過去のCFCs濃度・時間記録、SF<sub>6</sub>濃度・時間記録から水の年齢を高精度(±1年)で決定する方法が開発され(例えば、Busenberg and Plummer, 1992; Law and Watson, 2001)、ようやく利用されつつある。

平野や盆地では、涵養源と流動経路の異なる複数の地下水系が合流し、流動にともなって部分的に、あるいは完全に混合している。そのため、高精度の測定で得られた水の年齢は、複数の経路の水の混合の割合によって決まることになる。これでは流動系の流動履歴を明らかにできない。

また、地下水の滞留時間と溶存成分の関係について、野外調査データが十分、研究されていないため、地質由来の溶存成分の時間挙動が明らかにされていない。

## 2. 研究の目的

- 1) 水中のSF<sub>6</sub>を利用する年代測定システムを開発し、野外の循環地下水の年代決定に適用する。
- 2) 申請者が開発した水中の酸素と水素の安定同位体比を利用した地下水流動経路分離法を、50年以下の比較的若い循環地下水について高精度で測定されたCFCsやSF<sub>6</sub>濃度に適用して、流動経路の分離と各経路の移動・滞留時間(年代)を同時に決定する方法を開発する。
- 3) 野外で起こっている岩石-水相互反応、地質由来の溶存成分と滞留時間の関係を解明する。

## 3. 研究の方法

水中のSF<sub>6</sub>を利用する年代測定システムを新たに作製し、比較的年齢の若い(滞留時間0~50年)地下水の年代測定を行うため、多くの地域の多様な地質に存在する地下水を湧水や井戸から採水し、実験室に持ち帰って年代測定を実施した。同時に、 $\delta^{18}\text{O}$ と $\delta\text{D}$ や主要溶存成分濃度の測定も行い、関係性を調べ、流動経路の分離を図った。水中のSF<sub>6</sub>とCFCsの濃度から、地下水の流れがピストン流モデルと混合流モデルのどちらがあるか検討した。

## 4. 研究成果

- 1) 水中のSF<sub>6</sub>濃度のパージ&トラップ法によるガスクロマトグラフィ測定システムを作製し、地下水について、±1年の精度で0~50年の滞留時間を測定できることを確かめた。
- 2) 長野県佐久地域の上水道水源となっている第四紀火山岩分布地域の湧水と井戸水など70箇所の地下水や、同地域の低平地の洪積・沖積砂礫帯水層中の浅層井戸110箇所および湧水7箇所、沖縄本島の農業用水となっている琉球石灰岩分布地域の湧水と井戸水など40箇所の地下水、宮城県内に一様に分布する井戸水と湧水の合計177箇所、バングラデシュの沖積帯水層中の浅層井戸の13の地下水の年代測定を実施したところ、90%以上の個所でSF<sub>6</sub>年代測定が可能であった。それに対し、松本盆地の洪積・沖積砂礫帯水層中の浅層および深層井戸43箇所のうち、SF<sub>6</sub>年代測定が可能な地点は50%で、CFCs(CFC-12, CFC-11, CFC-113)については、10~25%であった。その他の地域でも、都会ではCFC年代決定率は低かった。
- 3) 水中のSF<sub>6</sub>とCFCs濃度から、地下水の流れがピストン流モデルと混合流モデルのどちらがあるか検討した結果、火山岩分布地域および石灰岩分布地域では、概ね、地下水流はピストン流モデルで説明できた。それに対し、盆地の帯水層中では、地下水の流れはピストン流モデルも混合流モデルもどちらも混在していると推定されたが、CFCs濃度からの年代決定率が低いため、さらなる研究が必要と考えられる。
- 4) 都市域、特にハイテク工場が分布する地域では、CFCの人為付加により、CFC濃度が過大な地下水が多くみられた。CFC濃度の増加とともに、NO<sub>3</sub>-N濃度が増加していた。
- 5) ( $\delta^{18}\text{O}$ と $\delta\text{D}$ )とSF<sub>6</sub>、CFCs年代トレーサーを組み合わせ検討したところ、山地域で涵養された地下水は、盆地の地下まで、地下を経由してくる場合と、河川伏流水として移動してくる場合、河川で運ばれた水が再涵養して地下水になる場合が識別できる新たな可能性を示した。
- 6) 滞留時間が長くなるにつれて、火山岩分布地域の地下水では、ケイ酸(SiO<sub>2</sub>)が増加し、石灰岩分布地域では、CaとHCO<sub>3</sub>が増加しており、その地域や流域の鉱物の溶解速度が見積もれた。また、これらの溶存成分は、地下水の流動トレーサーの1つになり得る。
- 7) ヒ素溶存地下水について、地下水の流速に大きな変動がないような期間では、滞留時間の増加につれて自然(地質)由来のヒ

素濃度の増加が線型的に起こることが推定された。

#### 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 3 件)

- 1) Shinji Nakaya, Haruyasu Natsume, Harue Masuda, Muneki Mitamura, Dipak Kumar Biswas, Ashraf A. Seddique, Effect of groundwater flow on forming arsenic contaminated groundwater in Sonargaon, Bangladesh, *Journal of Hydrology*, 409, 724-736, 2011. doi:10.1016/j.jhydrol.2011.09.006. 査読有  
<http://hdl.handle.net/10091/16078>
- 2) Seddique, A. A., Masuda, H., Mitamura, M., Shinoda, K., Yamanaka, T., Nakaya, S., Ahmed, K. M., Mineralogy and geochemistry of shallow sediments of Sonargaon Bangladesh and implications for arsenic dynamics: Focusing on the role of organic matter, *Applied Geochemistry*, 26(4), 587-599, 2011. doi:10.1016/j.apgeochem.2011.01.016 査読有
- 3) 牧野和哉・益田晴恵・三田村宗樹・貫上佳則・陀安一郎・中屋眞司, 水質から見た大阪市内とその周辺の地下水の涵養源, *地下水学会誌*, 52(2), 153-167, 2010. 査読有

[学会発表] (計 20 件)

- 1) Shinji Nakaya, Hideto Aoki, Trace-ability of SF<sub>6</sub> and CFCs for Groundwater Flow in Matsumoto Basin, Japan, 日本地球惑星科学連合 2013 年大会, 2013. 5. 22, 千葉.
- 2) Harue Masuda, Ayaka Matsuyama, Kohei Yoshimoto, Shigeshi Fuchida, Kaoru Watanabe, Katsuki Okabayashi, Yusuke Katsuki, Yuki Mizuno, Shinji Nakaya, Tsuyoshi Shintani, Phan Hoan Minh Ha, Shuto Aoki, Ryo Hirasawa, Reo Ikawa, Atsunao Marui, Teruyuki Maruoka, Geochemical characteristics of groundwater and its flow system in Miyagi Prefecture, 日本地球惑星科学連合 2013 年大会, 2013. 5. 22, 千葉.
- 3) 青木秀斗, 中屋眞司, 地下水流動の可視化に向けた年代トレーサー-SF<sub>6</sub> および CFCs の適用性に関する研究, 日本地下水学会 2013 年春季講演会, 2013. 5. 18, 千葉.
- 4) 新村陽介, 中屋眞司, 伊東章裕, 山寄寛之, 平澤遼, ファン ホアン ミン ハ,

遅 海, 青木秀斗, 新谷毅, 化学トレーサーによる信州佐久平の浅層地下水の汚染の広がり と 河川水 と の 交 流, 日本地下水学会 2013 年春季講演会, 2013. 5. 18, 千葉.

- 5) 山寄寛之, 中屋眞司, 伊東章裕, 新村陽介, 水収支式による信州佐久平流域の循環地下水資源量の間接測定, 日本地下水学会 2013 年春季講演会, 2013. 5. 18, 千葉.
- 6) 新谷毅, 中屋眞司, ファン ホアン ミン ハ, 青木秀斗, 平澤遼, 益田晴恵, 松山彩華, 吉本幸平, 淵田茂司, 渡部薫, 岡林克樹, 香月雄介, 水野友貴, 井川怜欧, 丸井敦尚, 化学トレーサーによる仙台平野の地下水資源調査と汚染ポテンシャル, 日本地下水学会 2013 年春季講演会, 2013. 5. 18, 千葉.
- 7) Shinji Nakaya, Hideto Aoki, Phan Hoang Minh Ha, Yoshiki Iwai, Akihiro Itoh, Takanori Nakano, Harue Masuda, Shunsuke Maeda, Katsuki Okabayashi, Ashraf A. Seddique, Noritoshi Morikawa, Jun Yasumoto, Takuji Nakano, Relationship between Geogenic Solute Concentration and Residence Time in Groundwaters, 日本地球惑星科学連合 2012 年大会, 2012. 5. 22, 千葉.
- 8) ファン ホアン ミン ハ, 中屋眞司, 青木秀斗, 中野孝教, 安元純, 中野拓治, 年代トレーサー-SF<sub>6</sub> と CFCs による火山岩地域および石灰岩地域の循環地下水の年代測定について, 日本地下水学会 2012 年春季講演会, 2012. 5. 26, 千葉.
- 9) 中屋眞司, 岩井慶貴, 青木秀斗, 中野孝教, 化学トレーサーによる長野県佐久地域の水源域の雨水の涵養と地下水流動について, 日本地下水学会 2012 年春季講演会, 2012. 5. 26, 千葉.
- 10) 伊東章裕, 中屋眞司, 青木秀斗, 中野孝教, 湧水を用いた信州佐久平流域の循環地下水資源量の直接推定の試み, 日本地下水学会 2012 年春季講演会, 2012. 5. 26, 千葉.
- 11) 石原彰人・中屋眞司, 水源域の地下水涵養量の推定の試み, 日本地下水学会 2011 年秋季講演会, 94-97, 2011. 10. 20, 広島.
- 12) 中屋眞司, トレーサーを組み込んだ地下水流動モデル, 2011 年度日本地球化学会第 58 回年会, 259, 2011. 9. 16 (招待講演), 札幌.
- 13) 益田晴恵, 前田俊介, 岡林克樹, 三田村宗樹, 中屋眞司, 森川徳敏, バングラデシュ・シュナルガオ地域のヒ素汚染地下水の涵養年代, 2011 年度日本地球化学会第 58 回年会, 2011. 9. 16, 札幌.
- 14) 青木秀斗・中屋眞司, CFC 年代トレーサー

- 一による松本盆地の浅層地下水系の滞留時間の推定, 日本地下水学会 2011 年春季講演会, 74-77, 2011. 5. 28, 筑波.
- 15) 中屋眞司・岩崎勝巳, CFC 年代トレーサーによる松本盆地の硝酸態窒素汚染地下水の滞留時間の推定, 日本地下水学会 2011 年春季講演会, 78-81, 2011. 5. 28, 筑波.
- 16) Shinji Nakaya, Harue Masuda, Noritoshi Morikawa, Masahito Watarai, Hideto Aoki, Muneki Mitamura, Shunsuke Maeda, katsuki okabayashi, Ashraf A. Seddique, Residence Time estimation for the Highly Arsenic Contaminated Groundwater in Sonargaon, Bangladesh, 日本地球惑星科学連合 2011 年大会, 2011. 5. 27, 千葉.
- 17) 中屋眞司, 夏目治泰, 益田晴恵, 三田村宗樹, Dipak K. Biswas, Ashraf A. Seddique, バングラデッシュ・ソナルガオにおけるヒ素汚染地下水の流動経路とホットスポットの関係, 日本地下水学会 2010 年秋季講演会, 244-247, 2010. 11. 12, 東京.
- 18) 柴田広志, 中屋眞司, 清水裕太, SWAT モデルを用いた大阪平野、淀川流域の水文解析, 日本地下水学会 2010 年春季講演会, 60-65, 2010. 5. 29, 東京.
- 19) Shinji Nakaya, Haruyasu Natsume, Harue Masuda, Muneki Mitamura, Biswas Kumar Dipak, Effect of Groundwater Flow on Forming Arsenic Contaminated Groundwater in Sonargaon, Narayanganj, Bangladesh, 日本地球惑星科学連合 2010 年大会, AHW018-02, 2010. 5. 28 (招待講演), 千葉.
- 20) Jun Yasumoto, Shinji Nakaya, Satoshi Nakada, Masahiro Takahashi, Makoto Taniguchi, Shin-ichi Onodera, Muneki Mitamura, Shinya Nakamura, Simulation of submarine groundwater discharge to Osaka Bay, 日本地球惑星科学連合 2010 年大会, AHW018-06, 2010. 5. 28 (招待講演), 千葉.

[図書] (計 2 件)

- 1) 中屋眞司, 共立出版, 地下水流動 モンスーンアジアの資源と循環 (谷口真人編著), 2011, pp65-85.
- 2) 中屋眞司, 古今書院, アジアの都市と水環境 (谷口真人・吉越昭久・金子慎治編著), 2011, pp60-72.

[産業財産権]

○出願状況 (計 1 件)

名称: 地下水資源の解析方法

発明者: 中屋眞司

権利者: 信州大学

種類: 特許

番号: 特願 2012-209427

出願年月日: 平成 24 年 9 月 24 日

国内外の別: 国内

6. 研究組織

(1) 研究代表者

中屋 眞司 (NAKAYA SHINJI)

信州大学・工学部・教授

研究者番号: 70313830