

平成22年 5月14日現在

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2007～2009

課題番号：19300304

研究課題名（和文） 富士山周辺湧水の年代測定と地下水流動系の解明

研究課題名（英文） Groundwater dating and groundwater flow system of Mt. Fuji

研究代表者

田瀬 則雄（TASE NORIO）

筑波大学・大学院生命環境科学研究科・教授

研究者番号：40133011

研究成果の概要（和文）：

地下水の流動系の解明に時間情報は不可欠となってきたが、わが国では分析の問題もあり、必ずしも十分でなかった。本研究では、核実験起源のトリチウム、そのトリチウムと壊変してできたヘリウム、塩素 36、さらに人為起源であるフロンガスをトレーサーとして、富士山周辺の地下水、湧水の年代測定を行い、各測定法の整合性、長所・短所、課題などを検討するとともに、他のトレーサー情報とともに富士山の地下水流動系について考察した。

研究成果の概要（英文）：

To clarify groundwater flow systems, residence time or age of waters besides recharge and discharge processes, flow pass etc. are required. This study aimed to establish chlorine 36 and CFC methods by comparing with tritium and tritium/helium method and revealing their applicabilities accuracies and conditions. With other tracers, the groundwater flow system of Mt. Fuji has been analyzed.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	5,400,000	1,620,000	7,020,000
2008年度	3,000,000	900,000	3,900,000
2009年度	1,900,000	570,000	2,470,000
年度			
年度			
総計	10,300,000	3,090,000	13,390,000

研究分野：総合領域

科研費の分科・細目：地理学・地理学

キーワード：水文、滞留時間、年代測定、湧水、地下水流動系、富士山、塩素 36、フロンガス

## 1. 研究開始当初の背景

50年位までの“新しい地下水”の年代測定には、これまで核実験（+自然）起源のトリチウム（ $^3\text{H}$ 法）、そのトリチウムと壊変してできたヘリウム（ $^3\text{H}/^3\text{He}$ 法）、フロンガス（CFC法）などが利用されてきている。核実験起源の $^{36}\text{Cl}$ 、原子力産業起源の $^{85}\text{Kr}$ や $\text{SF}_6$ なども一部で利用行われているが、機器や分析法に課題があるため普及していない。現在、世界的には $^3\text{H}/^3\text{He}$ 法とCFC法の二法が主流となっているが、わが国では馬原ほか(1993)の一例を除いて行われていない。当初、わが国には絶対年代を特定できる手法を恒常的に維持している研究・調査機関は残念ながら存在せず、早急に整備の必要があった。

地下水の流動系の解明に時間情報は不可欠となってきた。地下水の流動系は、涵養、流動（経路）、流出、そして流速や滞留時間により特徴づけられる。これまでの流動系における時間解析は、わが国では分析の問題もあり、必ずしも十分でなかった。しかし、水資源としての水量の問題だけでなく、水質形成や汚染物質の動態（輸送や浄化など）の解明でも、時間情報が必須となってきた。

したがって、わが国においても、精度よく、安価で容易に年代を測定できる手法を定着させることで、地下水流動系およびそれに伴う物質の動態の調査、研究を一層推進することができる。

## 2. 研究の目的

本研究では、富士山を主な研究地域とし、複数のトレーサーを利用した年代測定法 $^{36}\text{Cl}$ 法、CFC法、 $^3\text{H}/^3\text{He}$ 法>を確立、適用し、地下水、湧水の絶対年代を求めることを目的とする。これらの方法で、同一のサンプルを測

定し、各測定法の精度、長所、短所を明らかにする。また、ケイ素の時間情報についても検討する。これらの年代を考慮して、富士山の地下水流動系を解明する。

## 3. 研究の方法

年代測定については、 $^{36}\text{Cl}$ およびCFCsによる方法の実用化を試みた。また、 $^3\text{H}/^3\text{He}$ 法による分析では、 $^3\text{He}$ の分析をドイツのブレーメン大学へ委託し、 $^3\text{H}$ については、筑波大学で分析した。

$^{36}\text{Cl}$ の分析に関しては、1 mg 以上の Cl を含む試料水に  $\text{HNO}_3$  および  $\text{AgNO}_3$  を加え、 $\text{AgCl}$  の沈殿を生成させる。なお、Cl 濃度が低い試料については、陰イオン交換樹脂を用いて吸着・溶離することで、事前に濃縮を行う。 $\text{AgCl}$  を  $\text{NH}_4\text{OH}$  に溶解させ、飽和  $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$  溶液を加えることで、 $\text{BaSO}_4$  として硫黄の除去を行う。その後、超純水およびエタノールで  $\text{AgCl}$  を洗浄し、 $120^\circ\text{C}$  で乾燥させる。これを用いて、筑波大学研究基盤総合センター応用加速器部門において加速器質量分析法（AMS）により  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  比を測定する。 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl} = 1.60 \times 10^{-12}$  の標準試料を用いて測定値の規格化を行い、測定精度は 2% 以内、検出限界は  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl} = 1 \times 10^{-15}$  程度である。分析の詳細は Sasa *et al.* (2010) を参照されたい。年代は、 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  の時系列を再現し決定 (Tosaki *et al.*, 2008) したが、現在のバックグラウンド分を除いて再現した  $^{36}\text{Cl}$  濃度の時系列と分析値を比較して決定する方法を検討している。

CFCs の分析は Busenberg & Plummer (1992) に則り、分析ラインを構築した。Purge and trap 法により地下水・湧水サンプルから CFCs を抽出・回収し、ガスクロマトグラフに導

入する前処理ラインを作成した。約40 mL の水サンプルをラインに導入し、N<sub>2</sub> ガスによってサンプルをバブリングしCFCs を抽出し、温度約-40 °Cでトラップし、ガスクロマトグラフ（島津製作所GC-8AIE）に導入する。本方法により、ほぼ100 %のCFCs が抽出でき、CFC-11、CFC-12、およびCFC-113 の測定精度は各々0.10 %、0.23 %、1.38 %である。年代の決定は、かん養温度と気圧によりヘンリーの溶解平衡式より大気濃度を推定し、今回は北半球のバックグラウンド濃度（IAEA, 2006）と比較して行った。分析および年代決定の詳細については浅井・辻村（2010）を参照されたい。

図1に示した11地点において複数の方法により年代測定を行った。

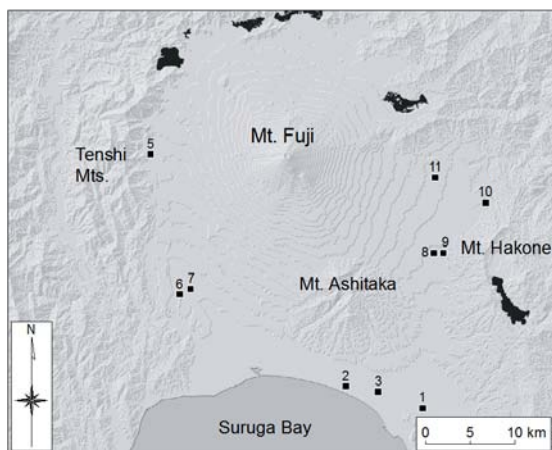


図1 異なる方法で年代を測定した地点

また、各帯水層の特徴を示す一般水質、滞留時間の指標の一つと考えられるケイ素、かん養高度の情報を持つ酸素・水素安定同位体比、地表からの肥料の影響を示す硝酸イオンと窒素安定同位体比なども分析し、総合的に地下水流動系について考察した。

#### 4. 研究成果

複数の方法で年代を測定した結果は、いくつかの例外を除いて、おおむね同様の年代、滞留時間を示した。大きな差が出たのは、火山起源と考えられるヘリウムが図1の地点2

と6で検出された。また、CFCsについては、局地的な汚染と考えられる現在の大気濃度以上の値を示す地点が多く存在したため、4地点でのみ年代が決定できた。

本研究では、図2に示す富士山周辺の湧水・地下水を対象として、<sup>36</sup>ClとCFCsを適用して地下水年代の測定を行った。

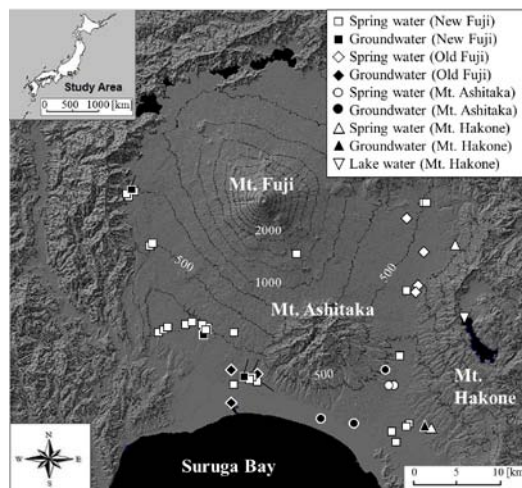


図2 地下水および湧水の年代測定地点

<sup>36</sup>Clの場合、核実験による1950-1957年の降水量上昇期と、それ以降1980年代にかけての下降期があり、1950-1980年の情報を得ることができる。過去の<sup>3</sup>Hを用いた研究から、主な湧水・地下水は下降期に涵養されたものと考え、核実験起源<sup>36</sup>Clを用いて推定を行ったところ、東麓では25-35年、南東麓では20年以下、南麓では25年以下、西麓では~30年という結果となった（図3）。1965年から1995年の先行研究で測定された代表的な湧水の<sup>3</sup>H濃度を降水の<sup>3</sup>H濃度の時系列変化と比較すると、南東麓・南麓よりも東麓・西麓において高い値を示しており、滞留時間がより長いことが示唆される。そのため、得られた年代は妥当なものと考えられる。

南麓における地下水の<sup>36</sup>Cl濃度に注目すると、酸素同位体比が低く高標高で涵養されたもので値が低く、酸素同位体比が高くなるに

つれて値が高くなる傾向がみられた。このことから、南麓の主要な帯水層の地下水は、50年前後の年代をもっていることが示唆される。

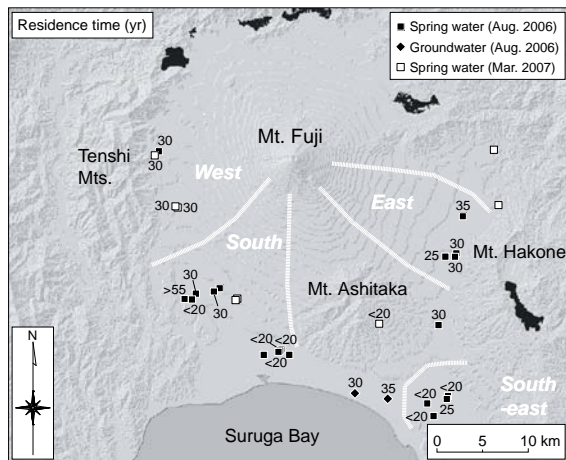


図3  $^{36}\text{Cl}$ により推定した地下水の滞留時間

一方、CFCsによる結果では、多くの湧水が大気中濃度を上回る値を示し、工場などからの汚染が大きな制約条件となることが明らかとなった。年代の推定が可能であった地点の中で、東麓では $^{36}\text{Cl}$ による推定結果と矛盾しない結果だったものの、愛鷹山周辺の自噴井では50年以上と推定され、 $^{36}\text{Cl}$ による30-35年という結果と整合しなかった。原因の1つとして、 $^{36}\text{Cl}$ では降水量の下降期を利用して推定を行ったが、実際には上昇期に相当する可能性も考えられた。この点は今後の課題であるが、 $^3\text{H}$ など他の同位体やCFCsを含めて総合的に判断する必要があると考えられる。

上記の課題を解決する方法の1つとして、同一地点での $^{36}\text{Cl}$ の時間変化をさらに今後数年観測していくことが有効であると考えられる。これにより、降水量上昇期と下降期のどちらに相当するかの判断ができる可能性がある。また、本研究ではピストン流を仮定して推定を行ったが、 $^{36}\text{Cl}$ の時間変化の観測から、この仮定の妥当性を検証することもできると考えられ、実際の流動過程を考慮したより確

かな地下水年代の推定につながると考えられる。

滞留時間や年代は、基本的にピストン流を仮定しているが、表層からの混入を示す硝酸イオンがかなりの深度まで認められることもあり、このプロセスを解明し、評価に反映する必要がある。このためには、富士山の地下水流動系および湧水の湧出機構については、すでに土(2007)や安原ほか(2007)などで、鉛直断面的には明らかになっているが、水平方向の連続性の問題などとも関連した帯水層の構造(クリンカー)の同定も必要である。また、大量の湧水を供給できる機構として、貯留体の存在などの検討もかん養機構と関係して解明しなければならないと考えている。

## 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7件)

① Sasa, K., Takahashi, T., Tosaki, Y., Matsushi, Y., Sueki, K., Tamari, M., Amano, T., Oki, T., Mihara, S., Yamato, Y., Nagashima, Y., Bessho, K., Kinoshita, N., and Matsumura, H. (2010) Status and research programs of the multinuclide accelerator mass spectrometry system at the University of Tsukuba. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, 268, 871-875.(査読有)

② Tosaki, Y., Massmann, G., Tase, N., Sasa, K., Takahashi, T., Matsushi, Y., Tamari, M., Nagashima, Y., Bessho, K. and Matsumura, H. (2010): Distribution of  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  in a river-recharged aquifer: Implications for the fallout rate of bomb-produced  $^{36}\text{Cl}$ . Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 268,

1261-1264.. [doi:10.1016/j.nimb.2009.10.148](https://doi.org/10.1016/j.nimb.2009.10.148)  
(査読有)

③浅井和由・辻村真貴(2010) : トレーサーを用いた若い地下水年代測定法－火山地域の湧水へのCFCs年代推定法の適用－. 日本水文科学会誌, 39, 67-78. (査読有)

④Massmann, G., Pekdeger, A., Dunnbier, U., Heberer, T., Richter, D., Sultenfus, J. and Tosaki, Y. (2009): Hydrodynamic or hydrochemical aspects of anthropogenic and naturally induced bank filtration-examples from Berlin/Brandenburg. *Grundwasser*, 14, 163-177. <http://dx.doi.org/10.1007/s00767-009-0112-2> (査読有)

⑤ Tosaki, Y., Tase, N., Yasuhara, M., Nagashima, Y., Sasa, K. and Takahashi, T. (2008): An estimate of local bomb-produced  $^{36}\text{Cl}$  fallout using the depth profile of groundwater in the Tsukuba Upland, central Japan. *Hydrological Research Letters*, 2, 9-13. [doi:10.3178/hr1.2.9](https://doi.org/10.3178/hr1.2.9) (査読有)

⑥風早康平・安原正也・高橋 浩・森川徳敏・大和田道子・戸崎裕貴・浅井和由 (2007) : 同位体・希ガストレーサーによる地下水研究の現状と新展開. 日本水文科学会誌, 37, 221-252. [doi:10.4145/jahs.37.221](https://doi.org/10.4145/jahs.37.221) (査読有)

⑦ Tosaki, Y., Tase, N., Massmann, G., Nagashima, Y., Seki, R., Takahashi, T., Sasa, K., Sueki, K., Matsuhira, T., Miura, T., Bessho, K., Matsumura, H. and He, M. (2007): Application of  $^{36}\text{Cl}$  as a dating tool for modern groundwater. *Nuclear Instruments and Methods in*

*Physics Research B*, 259, 479-485. [doi:10.1016/j.nimb.2007.02.096](https://doi.org/10.1016/j.nimb.2007.02.096)  
(査読有)

[学会発表] (計7件)

① Gmati, S., Tase, N., Tsujimura, M., Groundwater flow system and nitrate contamination process in the southwestern foot of Mt. Fuji. 2009年度日本水文科学会学術大会, 熊本大学, 2009年10月3-4日.

②藪崎志穂・田瀬則雄, 富士山周辺の湧水, 河川水等の水質特性について. 2009年度日本水文科学会学術大会, 熊本大学, 2009年10月3-4日.

③ K. Sasa, T. Takahashi, Y. Nagashima, Y. Tosaki, K. Sueki, T. Amano, Y. Yamato, N. Kinoshita, H. Matsumura, K. Bessho, Y. Matsushi, Progress of an accelerator mass spectrometry system at the Tsukuba 12UD pelletron tandem accelerator facility. 11th International Conference on Heavy Ion Accelerator Technology, Venezia, Italy, June 8 - 12, 2009.

④ Tosaki, Y., Tase, N., Sasa, K., Takahashi, T., Nagashima, Y., Estimation of groundwater residence time using bomb-produced  $^{36}\text{Cl}$ : a case study on spring waters from Mt. Fuji, Japan. The XXXVI IAH Congress, Toyama International Conference Center, Japan, October 26-31, 2008.

⑤戸崎裕貴・田瀬則雄・笹 公和・高橋 努・長島泰夫, 核実験起源の $^{36}\text{Cl}$ から推定される富士山麓湧水の滞留時間. 第10回AMSシンポジウム, 東京大学, 2008年3月7日.

⑥戸崎裕貴・田瀬則雄・笹 公和・高橋 努・長島泰夫, 核実験起源  $^{36}\text{Cl}$ から推定した富士山周辺の湧水の滞留時間. 2007年度日本水文科学会学術大会, 青山学院大学, 2007年10月9日.

⑦辻村真貴・大田清宏・浅井和由・長谷川和宏・嶋田 純・谷口真人, CFCsを用いた地下水の滞留時間推定. 第20回(2007年度)水文・水資源学会総会・研究発表会, 名古屋大学, 2007年7月26日.

[その他]

ホームページ等

<http://www.tac.tsukuba.ac.jp/~ams/mt-fuji.html>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

田瀬 則雄 (TASE NORIO)

筑波大学・大学院生命環境科学研究科・教授

研究者番号 : 40133011

### (2) 研究分担者

辻村 真貴 (TSUJIMURA MAKI)

筑波大学・大学院生命環境科学研究科・准教授

研究者番号 : 10273301

笹 公和 (SASA KIMIKAZU)

筑波大学・大学院数理物質科学研究科・講師

研究者番号 : 20312796

藪崎 志穂 (YABUSAKI SHIHO)

立正大学・地球環境科学部・助教

研究者番号 : 60447232

戸崎 裕貴 (TOSAKI YUKI)

筑波大学・大学院生命環境科学研究科・助教

研究者番号 : 80533215