

# 筑波大学陸域環境研究センター構内における地下水と 土壌水の酸素・水素安定同位体比の特徴について

Stable isotopic compositions of groundwater and soil water in the field  
at the Terrestrial Environment Research Center, University of Tsukuba

藪崎 志穂\*・田瀬 則雄\*\*・辻村 真貴\*\*

Shiho YABUSAKI\*, Norio TASE\*\* and Maki TSUJIMURA\*\*

It is necessary to make clear the formation process of the stable isotopic compositions of oxygen and hydrogen in soil water for consideration of the soil water movement. We have taken soil samples in the Terrestrial Environment Research Center (TERC) at eleven times from April 28 to November 15, 2001 and analyzed stable isotopic compositions of oxygen and hydrogen in soil water.

There are cyclic variations of the  $\delta^{18}\text{O}$  and  $\delta\text{D}$  profiles in soil water. Isotopic compositions of soil water near soil surface become isotopically heavy because of the evaporation in particular summer season, thus the isotopic heavy peak is formed near the soil surface. In fall season, there is strongly rainfall by a number of typhoons and autumn rain fronts, so relatively large amount of precipitation are supplied to the soil. At that time, the cyclic variations of the isotopes in soil water move downward wholly, but when rainfall is relatively small amount, the cyclic variations do not move clearly. This result indicate that the recharge occurs only after intense rainfall events of typhoons or autumn rain front. And as a result of the stable isotopic compositions of soil water and groundwater, the piston flow is dominantly in the soil water movement in TERC. Consequently, cyclic variations of  $\delta^{18}\text{O}$  and  $\delta\text{D}$  in soil water are caused by the evaporation in summer season and transmitted downward by the storm events.

## 1 はじめに

土壌水の挙動を明らかにすることは、近年問題となっている土壌汚染の対策や予防を行う上で重要である。土壌水の挙動を明らかにするためにはさまざまな方法が用いられているが、土壌水の酸素・水素安定同位体比を指標とする方法が主に外国の研究で用いられている。安定同位体比を用いた先駆的な研

究は、Zimmermann *et al.* (1966) によって行われた。この研究では、野外の土壌中に同位体比が重いトレーサーを投入して、時間の経過と共に土壌の採取を行い、抽出した土壌水の水素安定同位体比の移動について観測を行った。この結果、同位体比は重いピークを保ちながら下方へと浸透していることから、土壌水は piston 流的な押し出しによって浸透していることが示された。また、蒸発に伴う土壌水の同位体比の変化についての研究が Allison *et al.*

\*筑波大学大学院 地球科学研究科

\*\*筑波大学 地球科学系

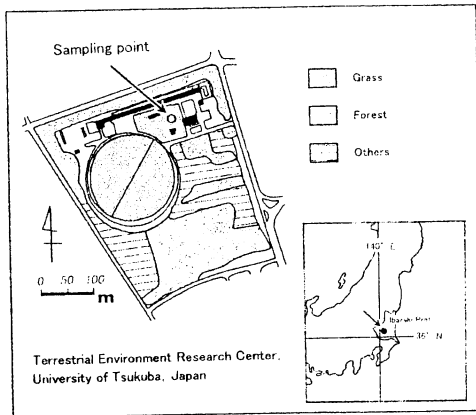


Fig.1 Sampling location map in TERC

(1983)によって行われている。この研究では、カラム内に異なった水分状態の土壌を充填させて蒸発させ、蒸発後の土壌水の同位体比のプロファイルを示している。この結果と数値的な解析によって得られたモデルと比較して考察を行い、各カラムからの蒸発量について推定が行われている。温帯地域においても土壌コアの同位体比プロファイルを明らかにした研究が行われている。McConville *et al.* (2001)では、アイルランドの土壌コアから土壌水を抽出して、 $\delta^{18}\text{O}$  と体積含水率のプロファイルを求め、土壌表層から深度約 1m までの  $\delta^{18}\text{O}$  値のプロファイルに周期的な変動が存在していることを確認した。この地域の降水の  $\delta^{18}\text{O}$  値は冬季に相対的に軽く夏季は重い値となる季節変動が生じていることから、土壌水の  $\delta^{18}\text{O}$  プロファイルの重いピークを示している深度では夏に涵養され、軽い値を示している深度の土壌水は冬に涵養されたものであることが考えられ、観測結果を用いて涵養量の推定が行われている。

日本においては、土壌水の酸素・水素安定同位体比のプロファイルを明らかにした例は少ない。藪崎 (2000) は、武蔵台地北西部に位置するローム層が厚く堆積している金子台の栗林において、12m 深度の土壌コアを採取し、コアから抽出した土壌水の酸素・水素安定同位体を測定した。その結果、同位体比プロファイルには表層から約 5m 深度まで、周期的な変動の存在が確認された。夏季の蒸発を受けた土壌水は相対的に重くなることが考えられ、Displacement flow model から求めた時間軸を同位体比プロファイルに当てはめた結果、土壌水の同位

体比の重い深度は夏季に涵養されたものであることが示された。従って、夏季に涵養された土壌水の同位体比は相対的に重い値になることが確認された。これらの結果から、土壌水の同位体比プロファイルの変動を利用することによって、土壌水の涵養時期や浸透量の推定を行うことが可能であると考えられる。しかしながら、金子台の研究では土壌コアの採取は 1 回のみしか行っておらず、同位体比の形成プロセスについては明らかにされていない。また、同様の方法を他の地域に適用するためにも、土壌水の同位体比の形成プロセスを明らかにすることが必要であると考えられる。従って、土壌コアを定期的に採取し、土壌水の同位体比の形成プロセスや時間経過による変動について明らかにした後、土壌水の挙動を推定する際に同位体比を利用することが有効と成り得るか、考察することを研究の目的とした。本報告では、陸域環境研究センターの地下水および土壌水の同位体比の時系列データを示し、それらの特徴について考察を行った。

## II 研究方法

土壌の採取は、筑波大学陸域環境研究センター (TERC) 構内に掘削された土壌断面付近において実施した (Fig.1)。土壌採取は 2001 年 4~11 月にかけて計 11 回実施した (4/28, 5/5, 6/22, 7/26, 8/25, 9/2, 9/8, 9/14, 9/24, 10/14, 11/15)。土壌は、土壌断面を 30cm ほど削除した後、上部から 5cm 深度間隔で採取した (攪乱土壌)。採取後は、蒸発が生じないように注意を払い、できるだけ時間をあけずに土壌水の抽出を行った。

土壌水の抽出は高速冷却遠心分離器 (SAKUMA 製, MODEL 50A-IVD) により、回転数 2200rpm (pF 値で約 3.0 に相当) で 1 時間抽出を行った後、8600rpm (pF 値で約 4.2 に相当) で 1 時間抽出を行い、抽出したサンプル水の酸素・水素安定同位体比の測定を実施した。酸素安定同位体比は二酸化炭素との同位体平衡法によって、水素安定同位体比は金属亜鉛を用いた還元法により気体化した後、質量分析計 (Finnigan MAT 252) で測定を行った。同位体比の値は標準平均海水 (V-SMOW) からの千分率偏差 ( $\delta$  値: ‰) で示した。測定精度は、 $\delta D$  は  $\pm 1\%$ 、 $\delta^{18}\text{O}$  は  $\pm 0.1\%$  である。

土壌の三相分布および土壌の物理性を測定するため、断面から少し離れた場所において、100cc サンプル缶を用いた土壌コアの採取を 10cm 間隔で行った (5/5, 10/14, 11/15 の計 3 回)。これらのサンプルは三相計を用いて実容積 (液相+固相) を求めた

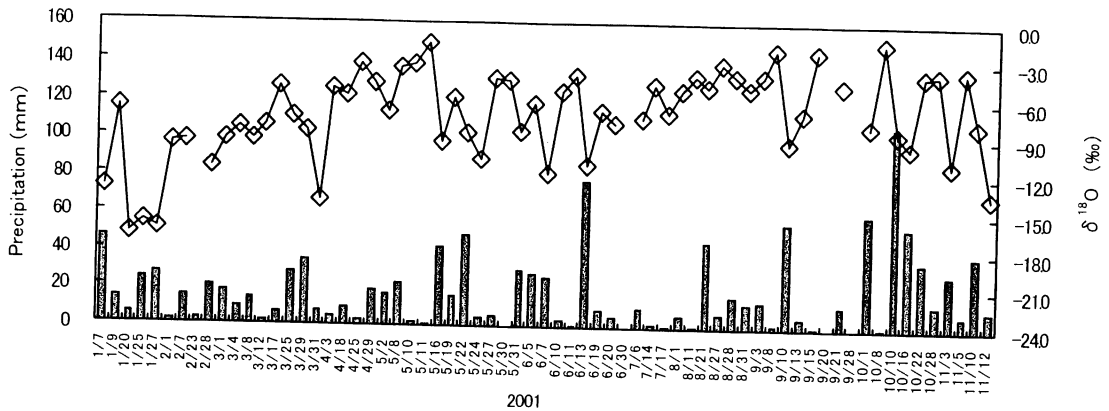


Fig.2 Time series variation of  $\delta^{18}\text{O}$  values and precipitation amount in Tsukuba in 2001

後、攪乱土壌と同様の方法で pF3.0 と pF4.2 に相当する土壌水を抽出し、続いてサンプルを恒温乾燥炉で  $105^\circ\text{C} \cdot 24$  時間乾燥させ、乾燥前の土壌重量から乾燥後の土壌重量を差し引くことにより土壌水分量を求めた。これらのデータを用いて三相分布図を作成した。抽出した土壌水についても酸素・水素安定同位体比の分析を実施し、同日に断面から採取した攪乱土壌の同位体比プロファイルとの比較を行い、データの信頼性について確認を行った。攪乱土壌(断面から採取)と非攪乱土壌(土壌コア)から抽出した土壌水の同位体比測定を実施した結果、両者ともほぼ同様の値を示す結果となった。従って、攪乱土壌から抽出した土壌水には断面横からの蒸発の影響が生じていないと考えられ、これらのデータを考察に用いることとした。さらに遠心分離器によって抽同位体比測定を行ったが、違いがみられなかったため、本研究では pF4.2 で抽出した土壌水の同位体比を代表して利用した。

また、地下水位の変動に対する土壌水の同位体比の変化を明らかにするために、土壌採取時に断面下において地下水の採水も行った。

土壌水の涵養源である降水の採取については、筑波大学構内の研究棟の屋上に蒸発を防止する構造を有した降水採水装置 (Shimada *et al.*, 1994) を設置して、1998 年 8 月から月毎、2000 年 1 月からは降水毎の採水を実施している。採水時には採取量を計測し、それぞれ酸素・水素安定同位体比の分析を実施した。月毎の降水サンプルについては、トリチウム濃度についてもあわせて測定を実施した。採取量から計算により求めた降水量を、高層気象台(つくば市、長峰)の観測データ、および陸域環境研究センター内で観測されているデータ(新村・浅沼, 2002)と比較した結果、ほぼ同様の値となっていた

ため、本研究では実際に採取した量から換算した値を降水量として使用した。

### III 結果・考察

#### 1. 降水の安定同位体比の特徴

つくばの降水(降水毎に採取したもの)の酸素と水素の安定同位体比の結果はほぼ同様の変動傾向を示していたため、代表して  $\delta^{18}\text{O}$  値の 2001 年の時系列データを Fig.2 に示した。降水の  $\delta^{18}\text{O}$  値は、 $-16.8 \sim -1.5\%$  と変動幅が大きく、明確な季節変動は現れていないが、梅雨期の降水と台風時の降水の値は、相対的に軽い(低い)値となることが示されている。このような傾向は 2000 年の降水においても確認されている(藪崎・田瀬, 2001)。また、1 月~2 月にかけて  $\delta^{18}\text{O}$  値が相対的に軽い値 ( $-15\%$  以下)となっているが、これらの期間では降雪が生じており、この影響が同位体比に現れていると考えられる。

一般的に、降水の酸素・水素安定同位体比には、降水量が多いほど軽くなる、いわゆる雨量効果が存在するとされている (Dansgaard, 1964)。また、気温の上昇と共に同位体比が重くなる温度効果の存在についても明らかにされている。つくばの降水の同位体比は、5~10 月では降水量の増加と共に  $\delta^{18}\text{O}$  値は軽くなる雨量効果が確認されるが、気温に対する依存性はみられなかった。一方、11~4 月においては、気温の低下と共に  $\delta^{18}\text{O}$  値は軽くなる温度効果の存在が確認されるが、雨量に伴う変動は顕著には生じていない(藪崎・田瀬, 2002)。つくばの降水の同位体比には以上のような季節的な変動傾向が確認され、台風時に多量にもたらされる降水の同位体比が相対的に軽いという現象は、土壌水の同位体比のプロファイルから涵養時期の推定を行う際に重

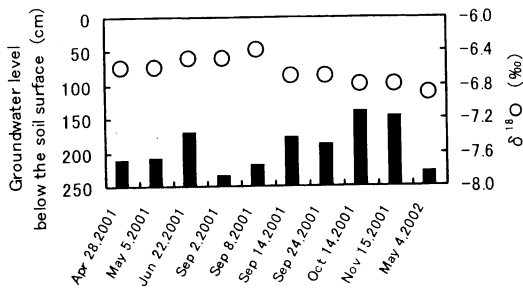


Fig.3 Time series variation of  $\delta^{18}\text{O}$  values of groundwater

(○) and groundwater level within the bore hole (■)

要な情報として用いることができると考えられる。

## 2. 断面下の地下水の同位体比

土壌を採取した土壌断面付近で採取した地下水の  $\delta^{18}\text{O}$  値と地下水位の変動を Fig.3 に示した。  $\delta^{18}\text{O}$  値の変動は  $-6.9 \sim -6.4\%$  となっており、降水の値の変動に対して変動幅は小さく、年間を通じてほぼ一定した値を示している。また、降雨に対する同位体比の変動はほとんど認められず、陸域環境研究センターの土壌においては土壌中を速く浸透する preferential flow (卓越流) の寄与は少ないことが推定される。

地下水の  $\delta$  ダイアグラムを Fig.4 に示した。この図には、土壌水の涵養源である降水の加重平均値 (1998~2001 年に月毎に筑波大学構内で採取したサンプルのデータを利用) と天水線 (Local meteoric water line) をあわせて表示した。ほぼ年間を通して、地下水の同位体比 ( $\delta^{18}\text{O}$ :  $-6.9 \sim -6.4\%$ ,  $\delta\text{D}$ :  $-46 \sim -43\%$ ) は降水の加重平均値 ( $\delta^{18}\text{O}$ :  $-8.5\%$ ,  $\delta\text{D}$ :  $-55\%$ ) よりも相対的に重い値を示している。また、天水線の傾き (7.18) に対して、降水の加重平均値と地下水の値を結ぶ回帰線の傾き (5.60) を比較すると、後者の傾きの方が小さいことが示された。土壌水や地下水において、蒸発が生じた場合の  $\delta$  ダイアグラム上の回帰線の傾きは小さくなることが確認されている (Clark and Fritz, 1997)。断面内の地下水面は、豪雨後一時的に上昇して (断面内部の底に相当する) 地表面に発生することがあるが、大部分の期間、地下水面は地表面より深部に存在しているため、地下水面からの直接蒸発が生じている可能性は少ないと考えられる。従って、陸域環境研究センターの地下水は、蒸発の影響を受けた土壌水によって涵養されている割合が高いと考えられる。

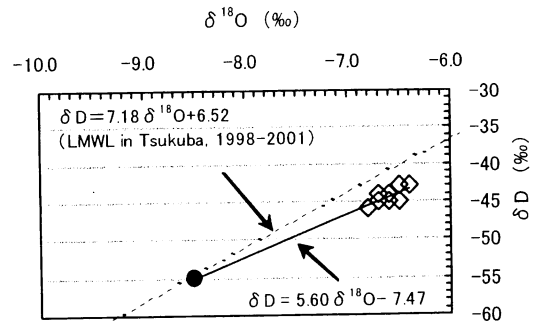


Fig.4  $\delta$  diagram of groundwater

◇ : groundwater

● : weighted mean of precipitation in Tsukuba

solid line : regression line between groundwater and weighted mean of precipitation values

broken line : Local Meteoric Water Line (LMWL) in Tsukuba from 1998 to 2001

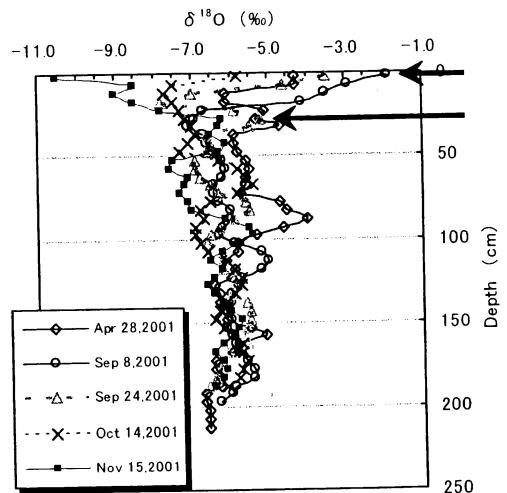


Fig.5 Vertical profiles of  $\delta^{18}\text{O}$  in soil water

## 3. 土壌水の $\delta^{18}\text{O}$ プロファイルと時系列変化

4/28, 9/8, 9/24, 10/14, 11/15 に採取した土壌水の  $\delta^{18}\text{O}$  鉛直プロファイルを図 5 に示した。この図から、地表面付近の  $\delta^{18}\text{O}$  値は  $-10.5 \sim -1.9\%$  と変動幅が大きく、降水の影響や蒸発の影響を直接受けていることが示唆されるが、深度を増すにつれ、

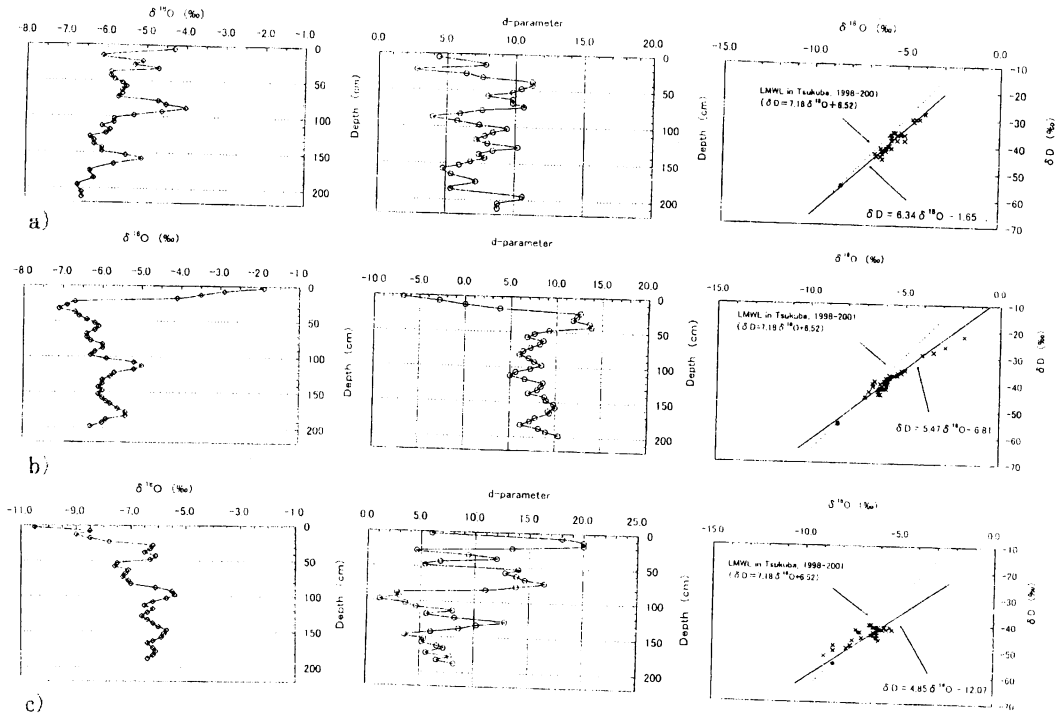


Fig.6 Vertical profile of  $\delta^{18}\text{O}$  and d-parameter, and  $\delta$  diagram

a) April 28, 2001

b) September 8, 2001

c) November 15, 2001

legend of  $\delta$  diagram as :  $\times$  : soil water  $\bullet$  : weighted mean of precipitation

solid line : regression line of soil water broken line : Local Meteoric Water Line (LMWL) in Tsukuba from 1998 to 2001

$\delta^{18}\text{O}$  値の変動幅は減少し、一定化する傾向が現れている。

一般的に湿潤地域においては、地下水の同位体比は降水の同位体比の加重平均値と近似した値となることが示されているが (Darling and Bath, 1988; Komor and Emerson, 1994; Gehrels *et al.*, 1998), TERC ではⅢ-2 でも述べたように、地下水の同位体比の方が  $\delta^{18}\text{O}$  で約 2‰ 重い値となっている。この原因として、土壤中の不飽和帯の厚さを挙げることができる。不飽和帯が厚い場合、土壤水の浸透に伴い混合や拡散等の影響を受けて土壤水の同位体比は均質化し、最終的には降水の加重平均値に近くなることが考えられる。金子台の研究例 (藪崎, 2000) では、不飽和帯は約 12m の厚さがあり、降水の同位体比の加重平均値と地下水の同位体比は近似した値を示していることから、上記の事柄を示唆している。一方、不飽和帯が薄い条件下では、同位体比はそれほど均質化することなく地下水面に達するが、地下水面上昇・下降に伴い、土壤水の同位体比は地下

水の同位体比の影響を受けるため、地下水面近傍では値が均一化していると考えられる。観測期間中における TERC の地下水位は地表面から約 150cm 深度付近まで上昇しているにもかかわらず (Fig.3), 150cm 以深の土壤水の同位体比には周期的な変動が保持されている (Fig.5)。しかしながら、大部分の期間地下水面よりも下部に位置する、飽和状態の深度 200cm 付近では、 $\delta^{18}\text{O}$  値は -6.7~-6.3‰ の値となっており、地下水の同位体比とほぼ一致している。従って、土壤水の同位体比の形成 (均一化) には地下水の同位体比が関与していることが示され、今後更に検討を行う必要があると考えられる。

個々のデータを見ると、 $\delta^{18}\text{O}$  値の重いピークを伴った周期的な変動の存在が確認され、この同位体比の重いピークは、時間の経過に従い土壤中を下方に移動する傾向が確認される。9/8 時点では、数日間降水が無く蒸発が卓越していたため、地表面付近の  $\delta^{18}\text{O}$  値は相対的に重い値を示しているが、9/24 のデータでは約 30cm 深度付近に 9/8 に形成された

と推定される同位体比の重いピークが示され、 $\delta^{18}\text{O}$  値のプロファイルは下方に移動していることが確認される (Fig.5 の←で示した部分)。これは9/10に台風15号による多量の降水があり(総降水量約72mm)、この降水が土壤中に浸透した際に土壤水の下方への押し出し的な移動が行われ、それに伴い土壤水の同位体比も下方へと移動したことが予想される。従って、土壤水の同位体比の重いピークは夏季の蒸発が活発に生じている時期に形成され、その後の多量の降水時(台風など)に下方へと移動し、このような現象によって土壤水の同位体比の周期的な変動が形成されていることが考えられる。また $\delta^{18}\text{O}$ の周期的な変動は、変動幅は減少しているもののピーク自体は保持されながら下方へと移動しており、piston流的な押し出しによる土壤水の浸透が卓越していることが示唆される。

土壤水の $\delta^{18}\text{O}$ 値とd-parameterの鉛直プロファイル、および $\delta$ ダイアグラムをFig.6に示した。春季の4/28(a)、夏季の9/8(b)、台風到来時期後の11/15(c)のデータを代表して用いた。a, b, c共に、 $\delta^{18}\text{O}$ 値が重い値を示している深度のd-parameter値は相対的に小さな値を示している。蒸発に伴いd-parameter値は減少するため、夏季の蒸発の影響を受け、 $\delta^{18}\text{O}$ 値が重い深度ではd-parameter値は低い値を示すことが金子台の研究結果からも明らかにされており、本研究地の観測結果においても同様の現象が確認された。また、 $\delta$ ダイアグラムをみると、すべての時期において土壤水の同位体比の回帰線の傾きは天水線(LMWL)に対して小さく、蒸発の影響を受けていることが示唆される。特に、蒸発の影響を強く受けている9/8では、土壤表層部の同位体比データ( $\delta^{18}\text{O}$ 値が-5.0‰より重い4データ)は、傾きが更に緩やかな直線上に沿っていることが示された。以上の結果、土壤水の酸素・水素安定同位体比およびd-parameterのデータを用いることにより、各深度の土壤水の涵養時期の推定や、土壤中で蒸発の発生している深度を推定することが可能であることが示された。更に他の期間に採取した土壤水のデータを解析することにより、この推定を明確にすることができると考えられる。

#### IV まとめと今後の課題

陸域環境研究センター内の地下水、土壤水、および大学構内で採取した降水の同位体比データを分析した結果、以下のことが明らかとなった。

①降水の同位体比は梅雨期および台風時のような降水量が多い場合に相対的に軽い値を示しており、

これらの値を土壤水の挙動を考える際のトレーサーとして用いることができると考えられる。

②地下水の同位体比は年間を通じてほぼ一定しており、土壤水の浸透には preferential flow の寄与が少ないことが示唆された。また降水の年加重平均値と比較すると地下水の同位体比は重い値を示しており、蒸発の影響を受けた土壤水によって涵養されていると考えられる。

③土壤水の酸素・水素安定同位体比には周期的な変動が確認され、重いピークは夏季の蒸発が卓越して生じている時期に土壤表層部で形成され、これがその後の台風などの多量の降水発生時に下方へと押し出されていることが考えられる。また土壤水の同位体比プロファイルの時系列データから、土壤水の浸透は piston 流的な押し出しが卓越していることが示唆された。

今後は他の時期についての土壤水の同位体比プロファイルを考察し、土壤中における同位体比の形成過程について更に考察を進める予定である。さらに、他の地域においても同様の方法を用いて土壤水の挙動を推定することが可能であるのか、確認していきたいと考えている。

#### 謝辞

本研究を行うにあたり、多くの方々にご助言、ご協力をいただきました。また、本論文の作成に際し、査読者の先生の貴重なコメントをいただきました。記して深く感謝いたします。

#### 文献

- 新村典子・浅沼順(2002):熱収支・水収支観測資料-2000年-。筑波大学陸域環境研究センター報告, 2, 41-66.
- 飯崎志穂(2000):酸素・水素安定同位体比およびトリチウム濃度を用いた土壤水の浸透速度と涵養量の推定。筑波大学環境科学研究科修士論文, 79p.
- 飯崎志穂・田瀬則雄(2001):つくば市における各降水毎の酸素・水素安定同位体比の変動特性について。日本地下水学会2001年春季講演会講演要旨, 16-21.
- 飯崎志穂・田瀬則雄(2002):降水毎の酸素・水素安定同位体比および台風上陸時の降水の同位体比の特徴について。地球惑星科学関連学会2002年合同大会。(CD-ROM版予稿集, 講演番号:H002-001)

- Allison, G. B., Barnes, C. J. and Hughes, M. W. (1983) : The distribution of deuterium and  $^{18}\text{O}$  in dry soils, 2 Experimental. *J. Hydrol.*, **64**, 377-397.
- Clark, I. and Fritz, P. (1997) : *Environmental isotopes in hydrology*. Lewis Publishers, 328p.
- Dansgaard, W. (1964) : Stable isotopes in precipitation. *Tellus*, **16**, 436-468.
- Darling, W. G. and Bath, A. H. (1988) : A stable isotope study of recharge processes in the English chalk. *J. Hydrol.*, **101**, 31-46.
- Gehrels, J. C., Peeters, J. E. M., Devries, J. J. and Dekkers, M. (1998) : The mechanism of soil water movement as inferred from  $^{18}\text{O}$  stable isotope studies. *Hydrol. Sci. J.*, **43**, 579-594.
- Komor, S. C and Emerson, D. G. (1994) : Movement of water, solutes, and stable isotopes in the unsaturated zones of two sand plains in the upper Midwest. *Water Resour. Res.*, **30**, 253-267.
- McConville, C., Kalin, R. M. Johnston, H. and McNeill, G. W. (2001) : Evaluation of recharge in a small temperate catchment using natural and applied  $\delta^{18}\text{O}$  profiles in the unsaturated zone. *Ground Water*, **39**, 616-623.
- Shimada, J., Matsutani, J., Dapaah-Siakwan, S., Yoshihara, M., Miyaoka, K. and Higuchi, A. (1994) : Recent trend of tritium concentration in precipitation at Tsukuba, Japan. *Ann. Rep., Inst. Geosci., Univ. Tsukuba*, **20**, 11-14.
- Zimmermann, U., Ehhalt, Munnich, K. O. Roether, W., Kreutz, W., Schubach, K. and Sirgel, O. (1966) : Tracers determine movement of soil moisture and evapotranspiration. *Science*, **152**, 346-347.