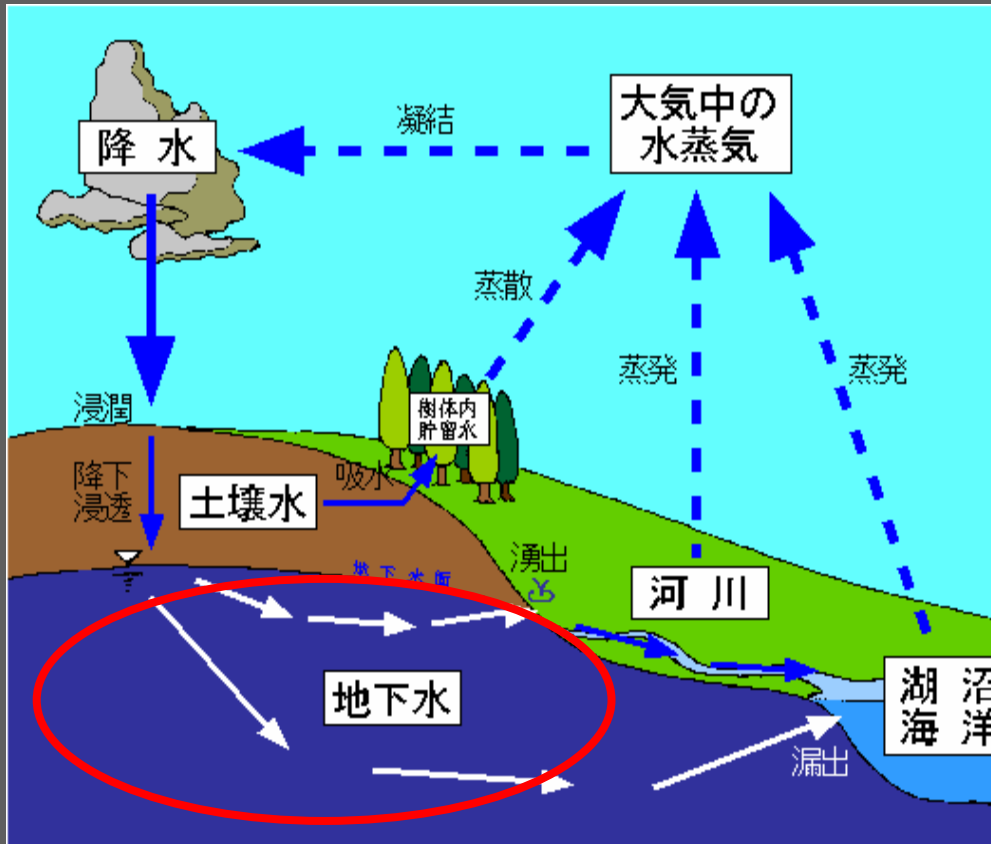


CFCsを用いた地下水の滞留時間 推定に関する基礎研究

筑波大学大学院環境科学研究科
大田 清宏

地下水の滞留時間



- 滞留時間は、降水の降下浸透による涵養から、河川や湧水に湧出するまで、または採水時までと定義できる

図. 水循環の概念図(筑波大学水文科学分野HPより)

地下水の滞留時間推定の意義

- 滞留時間推定によって、経路情報に加え、積分値としての平均流速が明らかになる
- 時間スケール情報が追加され、情報量が飛躍的に増加する
- さらなる地下水の流動系の把握

地下水の滞留時間推定

- 滞留時間の推定は、地下水流動系の把握、地下水資源の利用や開発を行う上で重要
- 比較的深度の浅い浅層地下水については、滞留時間が数年から数十年程度と比較的短いことが多い
- 浅層地下水の滞留時間を詳細に求めることが重要
- 滞留時間推定には、水に含まれる溶存物質や同位体をトレーサーとして用いる方法が有効である
- 複数のトレーサーを用いる推定

トリチウムによる滞留時間推定

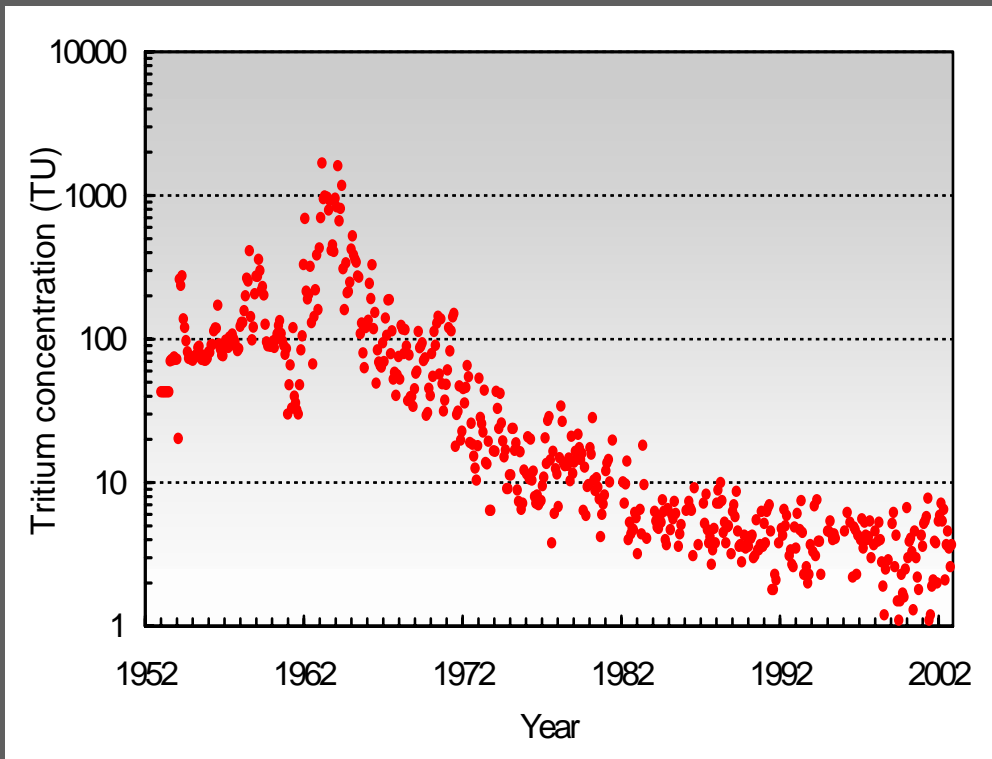
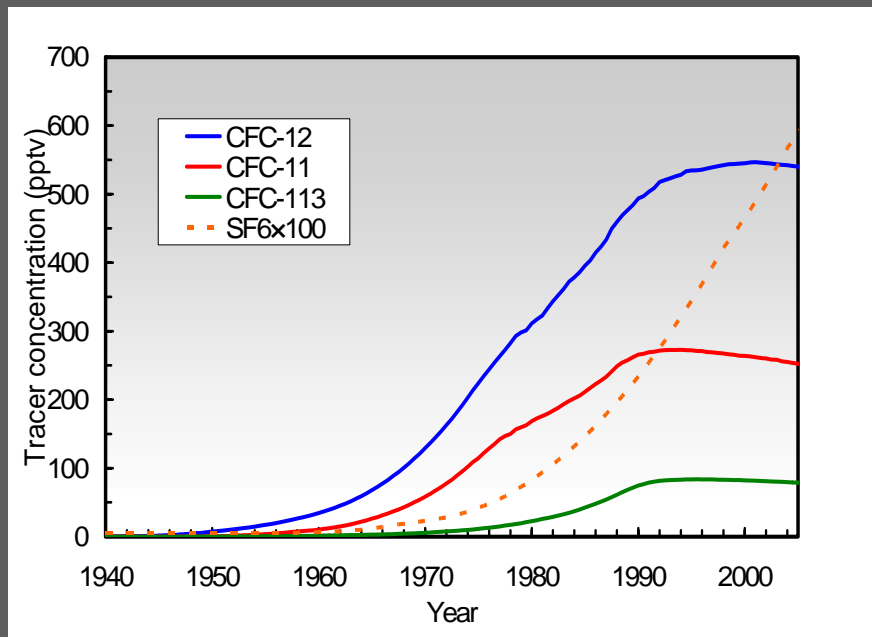


図. 降水のトリチウム濃度の推移(Shimada *et al.*, 1994; 藪崎ほか, 2003)

- 従来は ^3H (半減期12.43年)が有効なトレーサーとして用いられてきた
- 国内の降水 ^3H 濃度はほぼ天然レベルまで低下
- 最近涵養された水の滞留時間推定に支障をきたす可能性がある
- 代替トレーサーとして $^3\text{H}/^3\text{He}$, ^{85}Kr , ^{36}Cl , SF_6 等があるが国内の研究例が少ない

CFCs (chlorofluorocarbons : フロン類) の利用

- CFC-11 (CCl_3F , trichlorofluoromethane)
- CFC-12 (CCl_2F_2 , dichlorodifluoromethane)
- CFC-113 ($\text{C}_2\text{Cl}_3\text{F}_3$, trichlorotrifluoroethane)



- CFCsは非常に安定した物質で、大気中の寿命が長い
- CFCsの大気中濃度は1950年代以降1990年代初めまで、ほぼ単調に増加している

図. 大気中のCFC濃度の推移(USGS, HP公開データ)

大気中のCFCs濃度

- 大気中のCFCs濃度は北半球、南半球それぞれで広域的に比較的均一である
- CFCsは非常に有効なトレーサーである

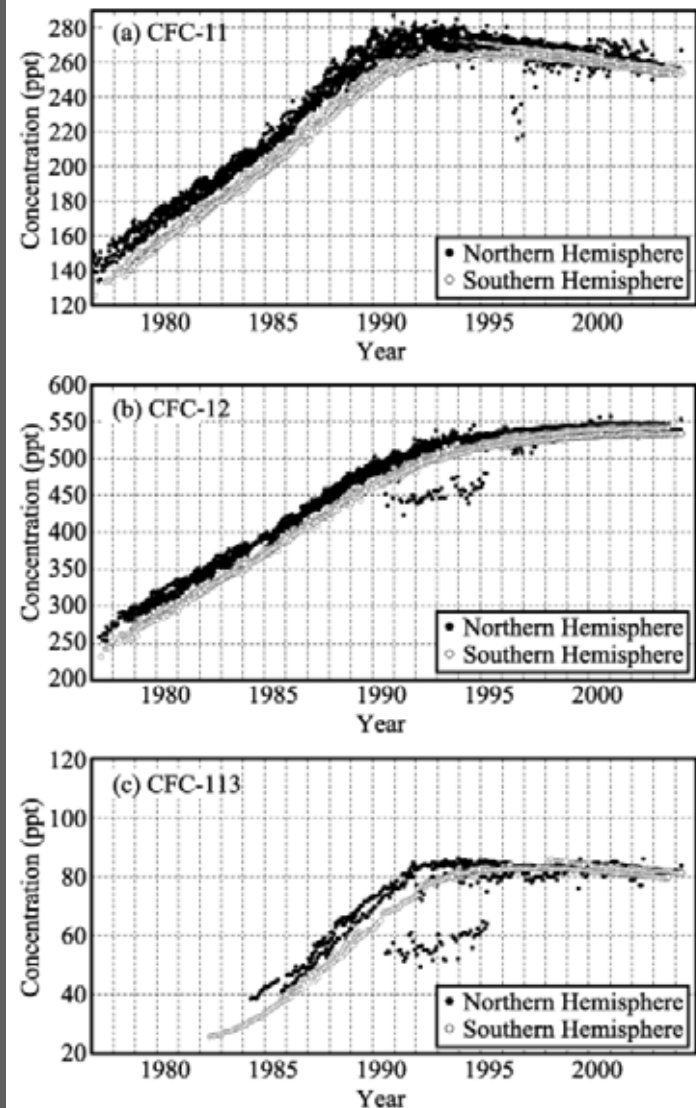


図. 北半球・南半球の観測点における大気中のCFC濃度の推移(気象庁, 2005)

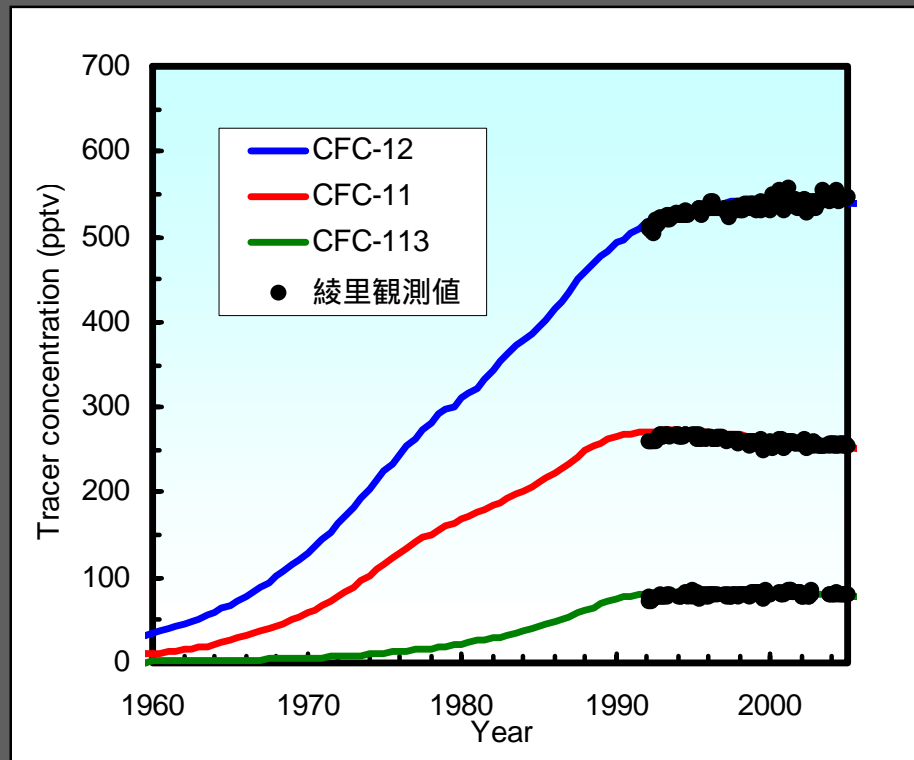


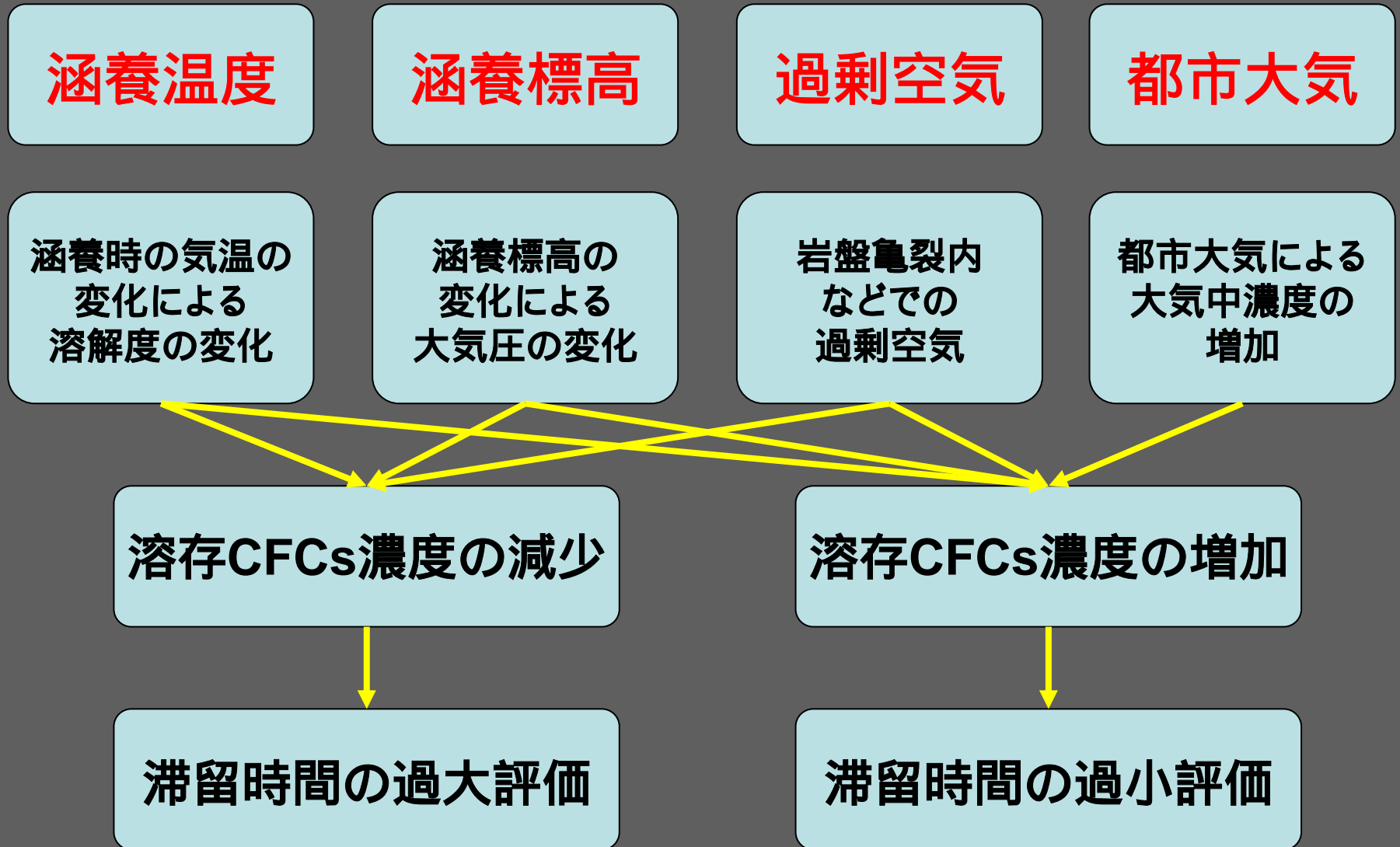
図. 大気中のCFC濃度の推移と綾里における観測値 (USGSおよび気象庁, HP公開データ)

CFCsによる滞留時間推定

- インプットの大気の濃度が既知である
- 地下水が涵養時に不飽和帯中の大気を含む大気と溶解平衡の状態となる
- 地下水流動の過程において涵養時の濃度が変化しないことを前提とする
- 地下水サンプル中のCFCs濃度から、溶解平衡の法則を用いて涵養時の大気中濃度を求め、既知の大気中濃度の推移と比較・参照することで推定する (Plummer and Busenberg, 2000)

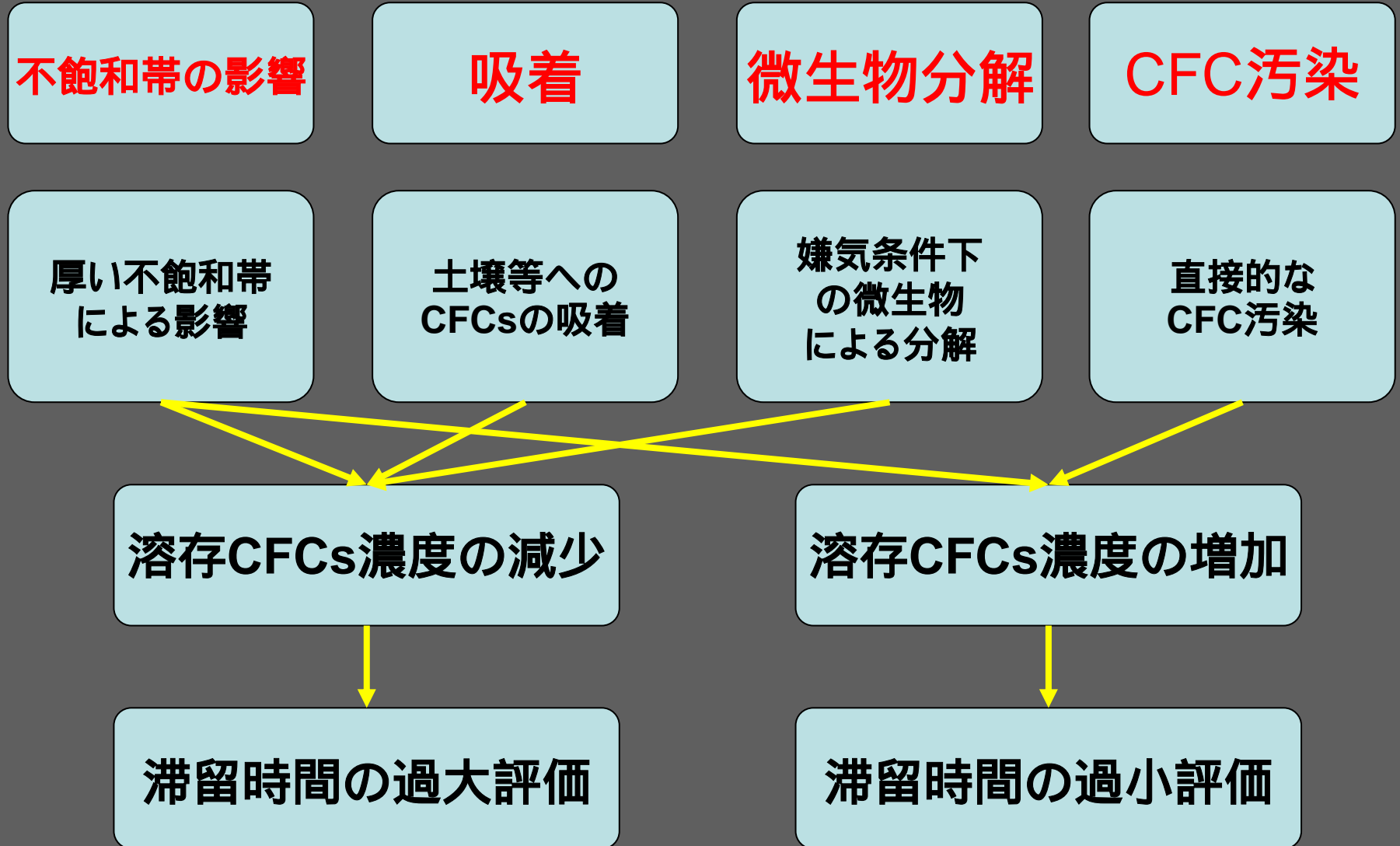
CFCs濃度の変動要因

(Plummer and Busenberg, 2000)



CFCs濃度の変動要因

(Plummer and Busenberg, 2000)



既存のCFCsを用いた研究例

- 地下水について、米国地質研究所(USGS)等で、CFCsによる地下水の滞留時間推定の事例があり、成果をあげている(e.g. Busenberg and Plummer, 1992)
- 海洋では、国内でもCFCsをトレーサーとして用いた研究が行われている(例えば 渡辺ほか, 1993)

しかし従来、国内の地下水の滞留時間推定にCFCsを適用した研究例はなく、地下水のCFCs濃度の実測データもない

CFCsを用いた地下水の滞留時間推定について

- 現在まで適用例がない国内の地下水を対象に、CFCsを用いた滞留時間推定を行うための分析方法を確立する
- 実際にフィールドにおいてCFCsを用いた方法を適用し、有効性を検討する

分析システムの確立

- 地下水中に含まれるCFCs濃度を測定するため、(株)地球科学研究所と共同で分析システムを確立した(浅井ほか, 2006)
- 装置に使用する部品類は、CFCsの汚染がないと報告されている材質(ステンレス, ガラス, ナイロン等)を用い、事前にアセトン, イソプロピルアルコールで洗浄を行っている

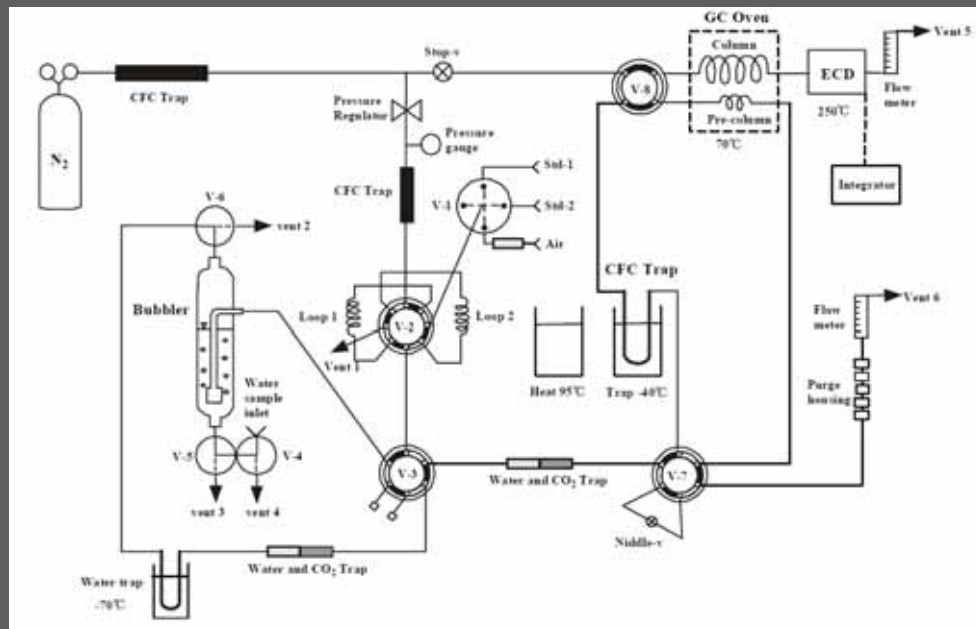


図. 分析ラインの構造(浅井ほか, 2006)



図. 分析ラインの概観

分析のフロー

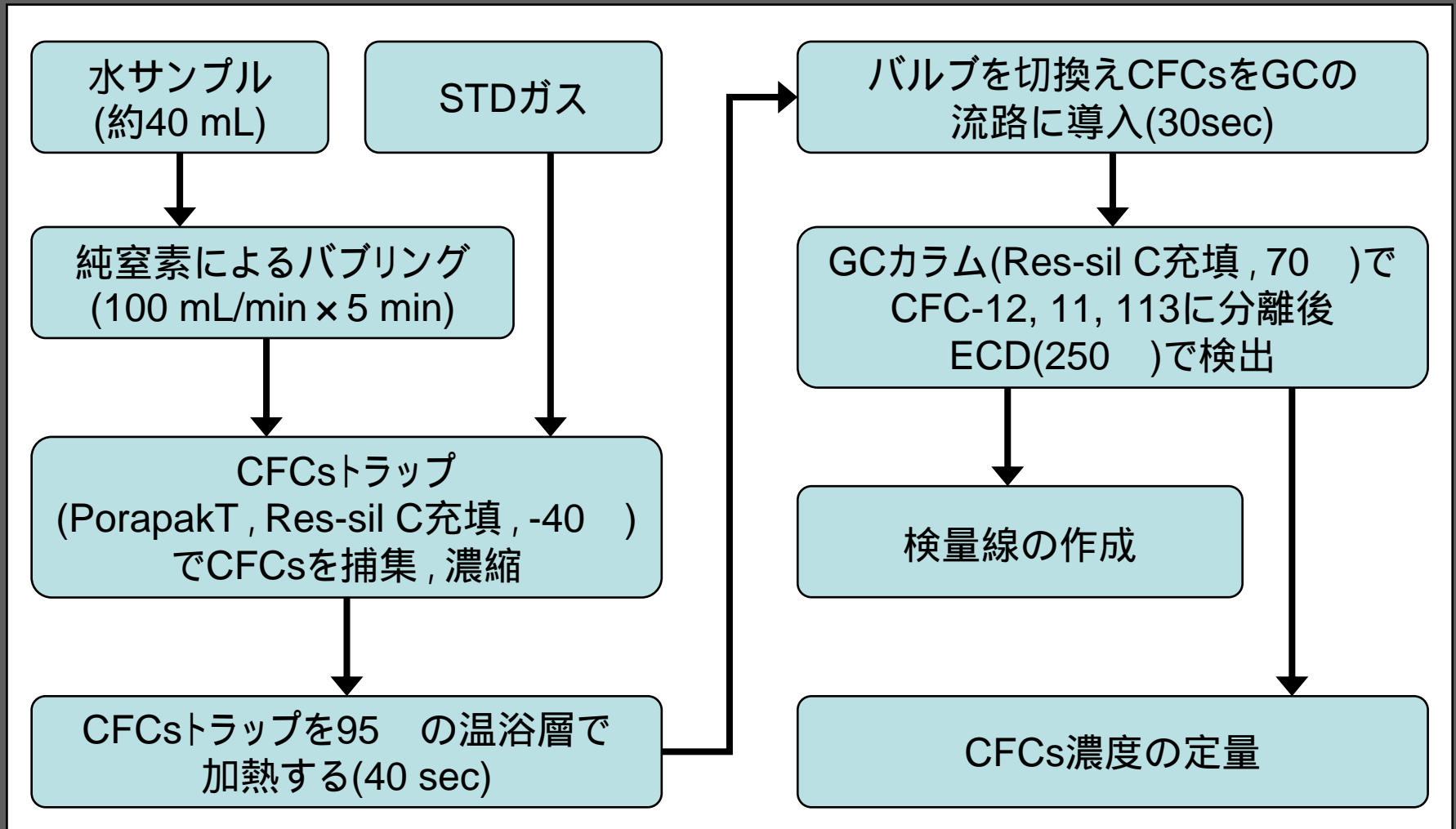


図 分析フロー

サンプリング方法

- 大気中からのCFCs汚染を避けることが最も重要
- ナイロンチューブを通して地下水をガラス瓶に導入し、オーバーフローさせて瓶中の地下水を十分に置換し、水中で密栓する
- 地下水の導入には、水頭差により直接導入、チューブポンプ(送液ポンプ)、ベネットポンプを用いる。

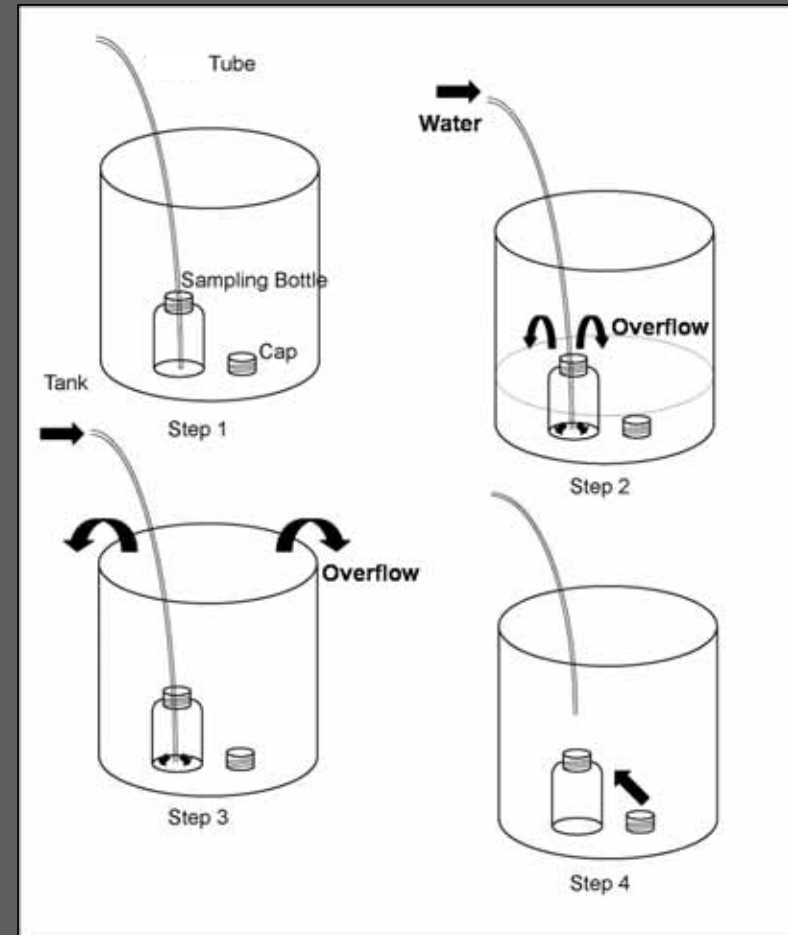


図. サンプリング方法

CFCsによる滞留時間推定方法

溶解平衡の式を用いて、涵養時の大気濃度を推定する

ヘンリー則

$$C_i = K_H p_i \quad (1) \quad p_i = x_i (P - p_{H_2O}) \quad (2)$$

$$\ln K_H = a_1 + a_2 \left(\frac{100}{T} \right) + a_3 \ln \left(\frac{T}{100} \right) + S \left[b_1 + b_2 \left(\frac{T}{100} \right) + b_3 \left(\frac{T}{100} \right)^2 \right] \quad (3)$$

C_i : 水中のCFC濃度 K_H : ヘンリー則定数 P_i : ガス分圧
 P : 大気圧 T : 絶対温度 S : 塩分濃度
 a_n, b_n : Warner and Weiss (1985), Bu and Warner (1995)
から得られる定数

- 大気圧は推定される涵養高度により補正された大気圧
- 絶対温度は涵養時の気温

CFCsによる滞留時間推定方法

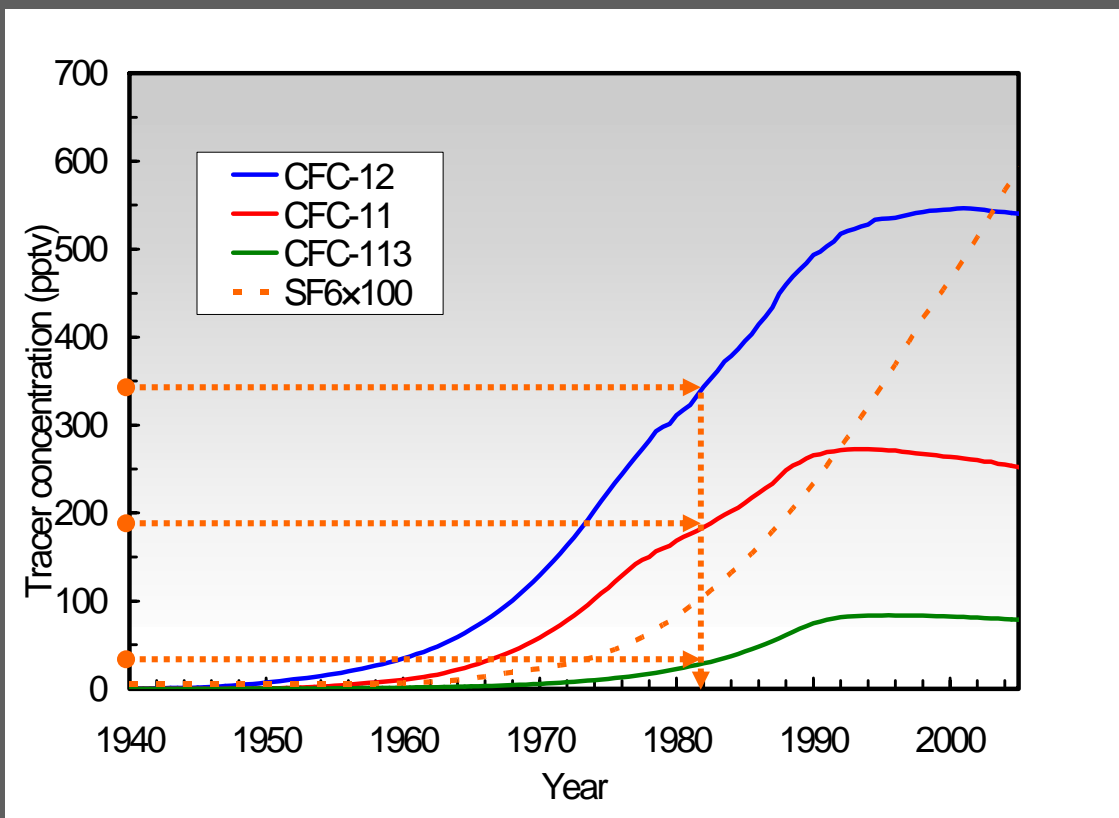


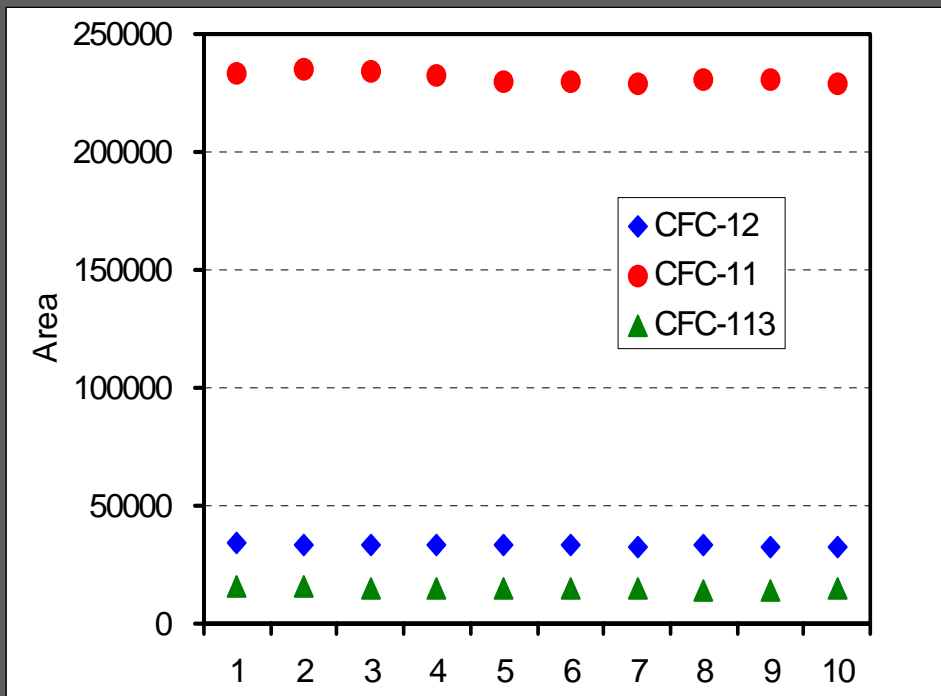
図. ピストン流モデルを用いた年代推定の例 (USGS, HP公開データに加筆)

- 得られた大気中濃度の推定値を, 大気中のCFCs濃度推移と比較
- 大気のインプット値は北半球の値を用いる
- 涵養温度は水温で代表させることが多いが, N₂/Ar法等で推定することが可能
- 涵養標高は同位体等から推定可能

分析システムの精度

- 10回のSTDガスの連続測定で精度を評価
- 滞留時間推定に十分な精度である

表.連続測定の結果とその誤差



No.	Area		
	CFC-12	CFC-11	CFC-113
1	34051	233016	15704
2	33670	234891	15573
3	33488	233927	15313
4	33191	232830	14751
5	32902	229921	14741
6	32936	230098	14743
7	32579	228642	14754
8	32959	230603	14425
9	32718	230704	14347
10	32539	228565	14528
平均	33103	231320	14888
標準偏差	448	1996	430
誤差(%)	1.35	0.86	2.89

図. 連続測定の結果

キャリブレーション

- 検量線は、 $\pm 0.01\%$ の精度を有する質量精密天秤を用いて、重量充填法で充填された2種類の濃度の標準ガスを用いて、10点の異なる濃度の点で作成
- 3次曲線で近似することによって検量線を作成
- 決定係数(R^2)は0.995以上

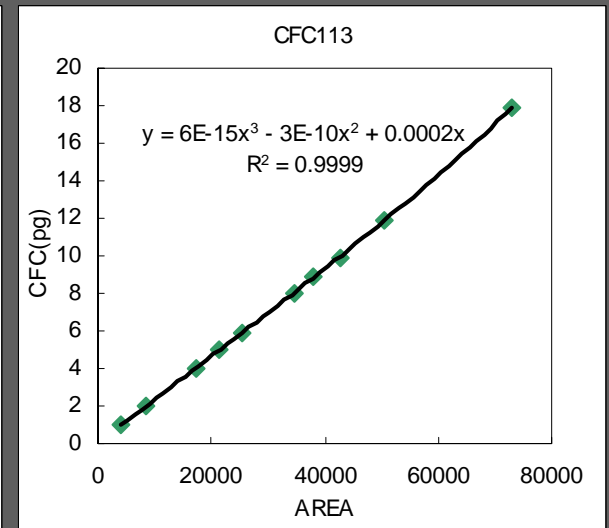
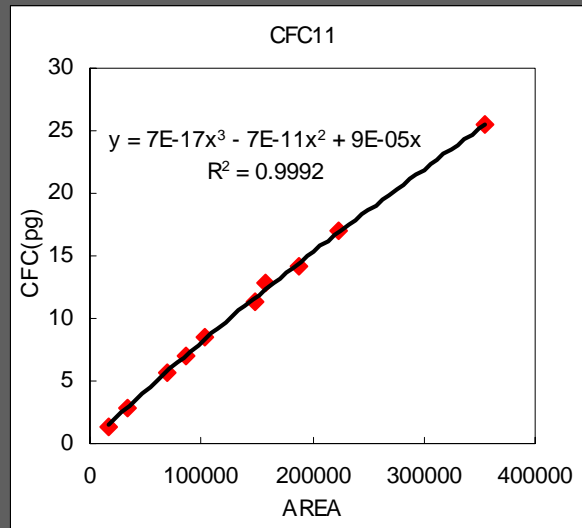
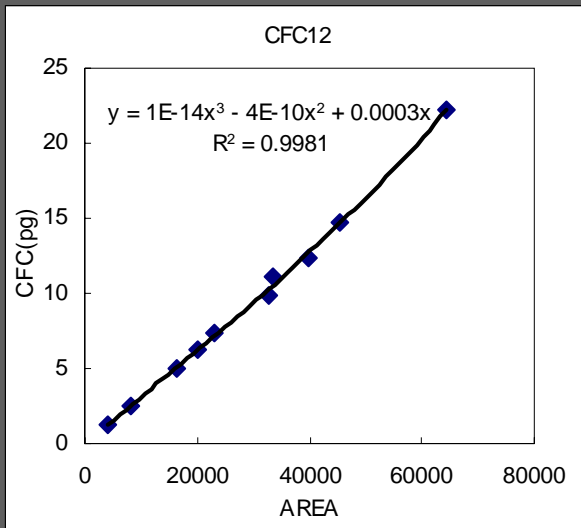


図. 作成した検量線(26 ,999.5hpaで補正)