

解 説

環境水の地球化学的研究における
水素同位体の役割

水 谷 義 彦

富山大学理学部
〒930 富山市五福3190

The Role of Hydrogen Isotopes in Environmental
Geochemistry of Natural Waters

Yoshihiko MIZUTANI

Department of Earth Sciences,
Faculty of Science, Toyama University,
Gofuku 3190, Toyama 930, Japan
(Received December 25, 1989)

Abstract

Isotope techniques have found increasingly wide scope of application to the environmental geochemistry of natural waters since 1960. The stable isotope ratio of hydrogen(D/H) varies in natural waters, as does that of oxygen($^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$), due to isotopic separation during evaporation and condensation processes in the hydrologic cycle. The concentration of radioactive hydrogen isotope(tritium) in natural waters increased sharply following the atmospheric testing of nuclear bombs during the 1950s and 1960s. Thermonuclear tritium remaining in natural waters is an good indicator of the presence or absence of recent recharge and water age(residence time). Since deuterium, tritium and oxygen-18 are constituents of water molecules(HDO, HTO and H_2^{18}O) they serve as unique tracers in environmental geochemistry of natural waters.

This paper presents measurement scales and units, techniques, behavior of isotopes within the hydrologic cycle and the application of isotope techniques to the environment in Japan.

1. はじめに

水素およびその他の軽元素(炭素, 窒素, 酸素, 硫黄など)の同位体が河川水や地下水などの各種環境水の研究に利用され始めたのは1960年代のことである。それは主に国際原子力機関(IAEA)を中心に推進され, 1970年には同位体水文学(Isotope Hydrology)という新しい学問分野を生み出した。そして, その一連の研究成果は国際原子力機関から刊行されている¹⁻⁵⁾。軽元素の同位体を利用した研究手法は, 最近, 水環境を始め各種の地球環境を理解する上で重要な役割を果たしており, 環境同位体地球化学(Environmental Isotope Geochemistry)と呼ばれる新しい学問分野を形成している。

Table 1に環境水の水素同位体存在度および水素同位体と組合わせて議論に用いられる酸素同位体の存在度を示す。H, D, ¹⁶O,

¹⁷O, ¹⁸Oは安定同位体であり, Tは半減期12.3年でβ崩壊して³Heに変わる放射性同位体である。これらの同位体を組合せて作られる水の同位体種は18種類あるが, 主なものはH₂¹⁶O(99.7%), HD¹⁶O(0.032%)およびH₂¹⁸O(0.20%)である。また, 存在度は極めて低いが放射能を持つトリチウム水(HTO)の存在は重要である。これらの水の同位体種は化学的には水そのものであって, 溶存化学成分のように, 周囲の物質との化学反応などによって水と異なる挙動をとることはない。この点に, 水のD, Tおよび¹⁸O含量を指標として環境水の起源や経歴の研究を行う手法の利点がある。ここでは, 水素および酸素同位体を利用した環境水の同位体地球化学的研究の概要を紹介する。

Table 1. Hydrogen and oxygen isotopes.
Isotope Abundance(%)

Isotope	Abundance(%)	
Hydrogen	¹ H (H)	99.984
	² H (D)	0.015
	³ H (T)	~10 ⁻¹⁵
Oxygen	¹⁶ O	99.76
	¹⁷ O	0.037
	¹⁸ O	0.20

2. 同位体比の測定

2-1-1. D/Hおよび¹⁸O/¹⁶O比

水素の安定同位体存在度は, 通常, D/H比として質量分析計によって測定される。水試料を還元して調製した水素ガスを分析管の端にあるイオン源に導入し, 電子の流れに当ててイオン化する。生成したイオンは, 電極系にかけた高電圧で加速され, 分析管へ飛ばされる。分析管の途中には磁場があり, 飛んできたイオンは質量別に分けられ, それぞれ半径の異なる軌道を進む。質量別に分けられたイオンの流れは分析管の他の端で別々に捕えられ, その電流強度比からD/H比が得られる。そこで, 試料ガスと標準ガスを交互に流して電流強度比の違いを測定し, 試料と標準物質のD/H比の差を高い精度で測定する。このようにして得られた試料と標準物質とのD/H比の差を標準物質の同位体比に対する千分偏差値で示したのがδD値である:

$$\delta D = \frac{(D/H)_x - (D/H)_s}{(D/H)_s} \times 1000 \quad (1)$$

ここで、x および s は、それぞれ、試料および標準物質を表す。標準物質としては標準平均海水(SMOW)が用いられる。そして δ 値の単位として(‰, permil)が用いられる。同様に、酸素安定同位体比($^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$)の場合には $\delta^{18}\text{O}$ が得られる。その場合の標準物質も標準平均海水である。測定精度は δD について ± 1 ‰、 $\delta^{18}\text{O}$ については ± 0.1 ‰程度である。なお、地球上の物質については、 $\delta^{18}\text{O} = 2 \delta^{17}\text{O}$ の関係が成立しているため、 $\delta^{17}\text{O}$ ($^{17}\text{O}/^{16}\text{O}$)は測定されない。

2-1-2. D/H および $^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$ 比測定用試料の調製

試料水数mgを真空装置中で650°Cに熱した金属ウランによって水素ガスに還元する⁶⁾。得られた水素ガスの水素同位体比を質量分析計で測定する。金属ウランの代わりに金属亜鉛を用いることもできる⁷⁾。

水試料の $^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$ 比測定用試料は、通常、二酸化炭素平衡法で調製される⁸⁾。

2-2. T/H 比の測定と試料の調製

環境水のトリチウム濃度は極めて低濃度であるため、その精密測定は、通常、電解によりトリチウムを濃縮した後、低バックグランド液体シンチレーションカウンターによって行われる⁹⁾¹⁰⁾。測定値は $T/H = 1 \times 10^{-18}$ を1 TU(Tritium Unit)、または1 TR(Tritium Ratio)として示される。1 TUは3.2pCi HTO/ ℓ 、または0.118Bq HTO/ ℓ に等しい。なお、電解濃縮の際のトリチウム濃縮率の決定には種々の方法が用いられているが、濃縮前後の試料水のD濃度の変化から求める方法が最も優れている。以上の方法における測定精度は、通常、 ± 1 TU程度である。なお、電解濃縮を行わない場合の測定精度は $\pm 3 \sim 5$ TUである。

2-3. 環境試料の δD および $\delta^{18}\text{O}$ 値

Fig. 1 および 2 に各種環境物質の δD および $\delta^{18}\text{O}$ 値の範囲を示す。海水の値は、他の物質に比べて、極めて狭い範囲の δD および $\delta^{18}\text{O}$ 値を持っており、水の循環を検討する場合の出発点として好都合である。一方、海水以外の環境水の δD および $\delta^{18}\text{O}$ 値は、他の環境物質と比べて、より大きな変化範囲を持っている。

3. 環境水における同位体比の変化

3-1. δD および $\delta^{18}\text{O}$ 値

各種の環境水は、海洋を出発点とする水の循環における蒸発、凝縮、混合などの過程の

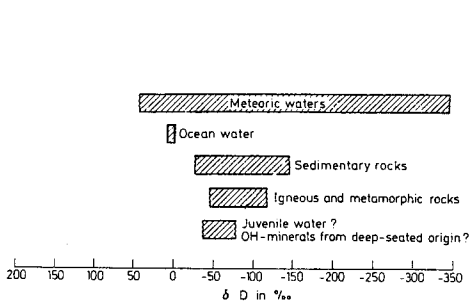


Fig. 1. δD values of some geochemically important materials¹¹⁾.

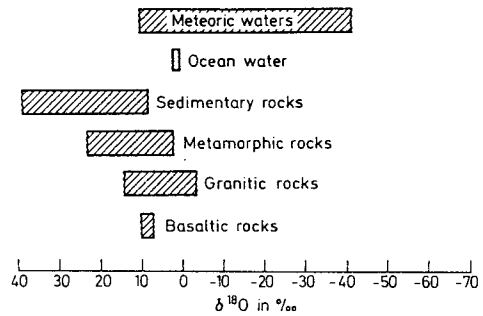


Fig. 2. $\delta^{18}O$ values of some geochemically important materials¹¹⁾.

産物である。それらの過程において、水の各種同位体種は質量の違いによって分別を受け、その結果、各種環境水の δ 値は変化する(同位体分別)：

- (a) 蒸発または凝縮に伴う気-液間の平衡分別、
- (b) 大気中における水蒸気の拡散に伴う動的分別、
- (c) δ 値の異なる水との混合。

(a)の場合、一定温度では、液相の水の同位体比(R_l)と水蒸気同位体比(R_v)の比は一定になる：

$$\alpha_e = \frac{R_l}{R_v} \quad (2)$$

α_e は平衡同位体分別係数で、通常、1に近い数値であるので、 δ 値の定義から次の近似が成り立つ：

$$1000 \ell n \alpha_e = \delta_l - \delta_v \quad (3)$$

液相の水と水蒸気との間の水素および酸素同位体平衡分別の温度依存性は次のように与えられている¹²⁾：

$$1000 \ell n \alpha_D = 24.844(10^6 T^{-3}) - 76.248(10^3 T^{-1}) + 52.612 \quad (4)$$

$$1000 \ell n \alpha_{18O} = 1.137(10^6 T^{-3}) - 0.4156(10^3 T^{-1}) - 2.0667 \quad (5)$$

(b)の場合、水の各種同位体種は、拡散速度の違いによって分別を受ける。その場合の分

別係数は次の式で示される。

$$\alpha_k = \frac{D}{D'} = \frac{R_o}{R_d} \quad (6)$$

ここで、Dは $H_2^{16}O$ の拡散係数、D'は $HD^{16}O$ または $H_2^{18}O$ の拡散係数。Rは同位体比で、oおよびdはそれぞれ拡散前および拡散後を表す。D/D'の値として、 $HD^{16}O$ については1.0251、 $H_2^{18}O$ には1.0285が与えられている¹³⁾。しかし、大気中の水蒸気の移動には、拡散以外の様々な要因が働いているため、実際には $(\alpha_k)^n$ が α_k の代わりに用いられる(ただし、 $0 < n < 1$)。

海洋から水蒸気が蒸発する過程における同位体の分別は、平衡分別ではないことが知られている。実際に観測されている海洋上の水蒸気の δ 値は平衡値よりも低い。それは、海面上に生じた薄い平衡蒸気層から水蒸気が上昇する時、拡散による動的分別が行われるため、

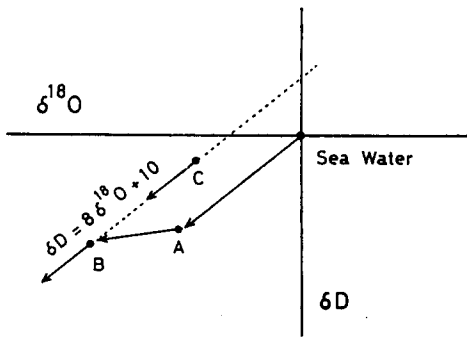


Fig. 3. Variations in isotopic composition of marine vapor. A=sublayer near the sea surface equilibrated with sea water, B=vapor derived from A through a region in which molecular diffusion plays a role, and C=precipitation condensed from B under equilibrium conditions. The Arrows from B and C show trends of variations in δD and $\delta^{18}O$ of the remaining vapor and precipitation, respectively, in a Rayleigh process.

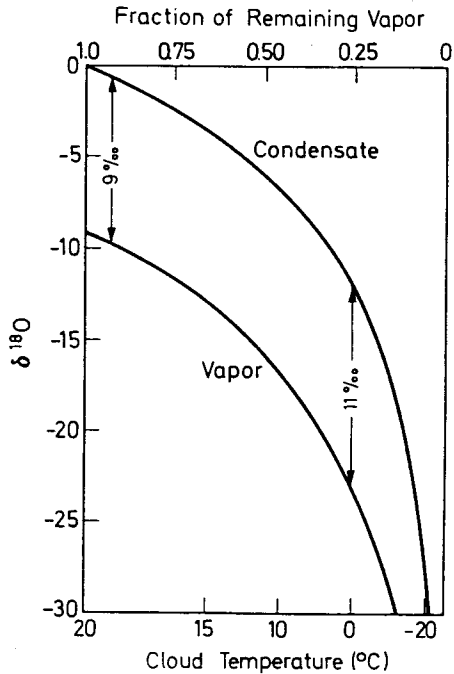


Fig. 4. $\delta^{18}O$ in a cloud vapor and condensate plotted as a function of the fraction of remaining vapor in the cloud for a Rayleigh process. The temperature of the cloud is shown on the lower axis. The increase in fraction with decreasing temperature is taken into account¹⁵⁾.

上空に達した水蒸気は次のような同位体分別を受けているからである (Fig. 3)¹⁴⁾ :

$$\alpha = \alpha_e \cdot (\alpha_k)^n \quad (7)$$

上空に達した水蒸気は、気団の移動中の気温の低下により次々に雨滴を生じ、雨を降らせる。この場合、落下する雨滴と残る水蒸気の間には同位体平衡が成り立っており、残る水蒸気同位体比は次のような Rayleigh 蒸留の式に従って変化する (Fig. 4) :

$$R/R_0 = f^{\alpha-1} \quad (8)$$

ここで R は残留水蒸気同位体比、R₀ は水蒸気最初の同位体比、f は残留水蒸気の割合、 α は同位体分別係数である。この様な同位体分別を伴う降水現象が地球上の各地で様々な規模で行われている。Craig は世界各地の降水や地表水について次のような直線関係を見つけ (Fig. 5)、これを天水線 (Meteoric Water Line) と名づけた¹⁶⁾ :

$$\delta D = 8 \delta^{18}O + 10 \quad (9)$$

この関係に従い、世界各地の降水や地表水の δ 値は低緯度から高緯度へ向かって低くなっ

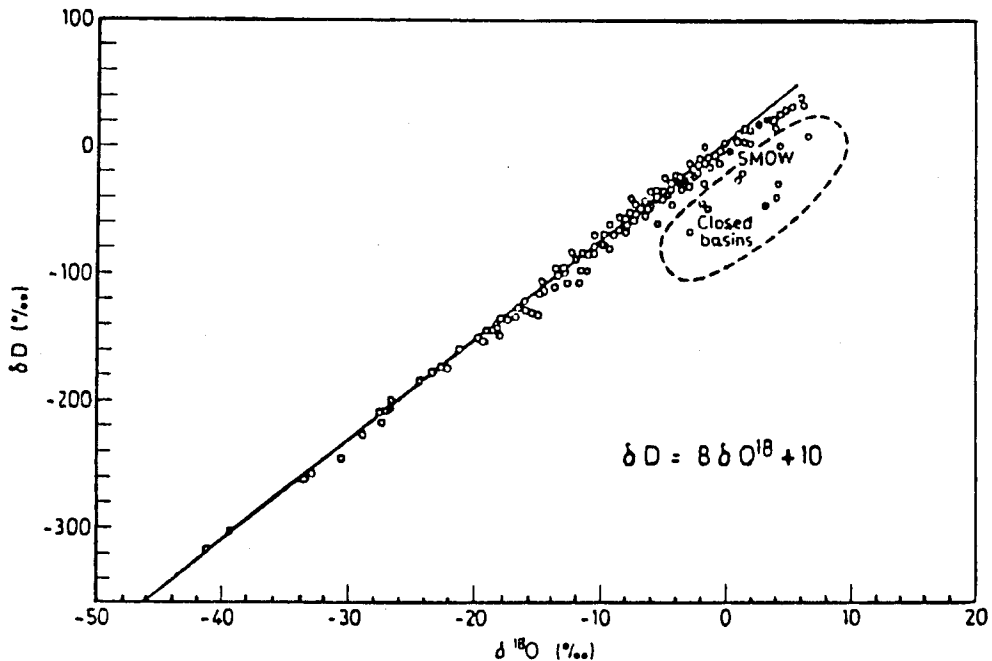


Fig. 5. Variations in δD and $\delta^{18}O$ values of meteoric waters¹⁶⁾.

ている(緯度効果)。このことは、低緯度で生じた水蒸気が地球規模での大気の流れに従い、雨を降らせながら高緯度に移動していることを示している。そして、沿岸地域の降水の δD および $\delta^{18}O$ 値の年加重平均値と年平均気温との間には次の関係が認められている¹⁵⁾：

$$\delta D = 5.6t - 100 \quad (10)$$

$$\delta^{18}O = 0.695t - 13.6 \quad (11)$$

ここで t は年平均気温(°C)を表す。

気団が雨を降らせながら山を越える場合にも Rayleigh 蒸留型の同位体分別が起こる。そのため、高地に降る雨は低地に降る雨よりも δ 値が低くなる(高度効果, Fig. 6)。同様に、気団が雨を降らせながら沿岸部から内陸部に向かう場合には、内陸部の降水ほど δ 値が低くなる(内陸効果)。また、 α 値の温度依存性により、ある地点の降水の δ 値は気温の季節変化に応じて変化する。そして、降水量が増加すると δ 値は低くなる(雨量効果)¹⁵⁾。このような各種の効果の重なりにより、ある地点の降水の δ 値は毎年ある一定の範囲内に保たれる。そして、その変化の範囲は、降水が地下に浸透する間に、お互いの混合により急速に狭められる。その結果、地下水は地域ごとにほぼ一定の δ 値を持つことになる。このことが地下水の由来の解明に利用されている。

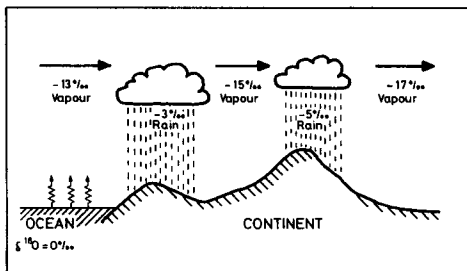


Fig. 6. Schematic fractionation in the atmospheric water cycle¹⁷⁾.

3-2. トリチウム濃度の変化

T は、H との質量数の違いが D の場合よりも大きいので、D よりも大きく同位体分別を受ける。しかし、環境水中の T の場合、放射壊変(半減期=12.3年)や水の混合などによる濃度変化の方が同位体分別による変化より大きいので、通常の議論では同位体分別は無視される。天然トリチウムは、大気上層で窒素原子核と宇宙線起源の中性子との衝突によって生成され、その大部分が HTO(水)として降水に含まれて地上に落下している。環境水中のトリチウム水(HTO)は、岩石中におけるトリチウムの生成を無視することができるため、すべて降水起源と考えてよい。降水中のトリチウムの天然レベルは中緯度地帯では約 10TU とされている。ところが、1952年から始められた大気圏内の熱核爆発実験により大量の人工トリチウムが大気中に放出され、降水のトリチウムレベルは、1963~64年のピーク時には1000TU 以上にも達した。その後、大気圏内の熱核爆発実験が中止されたため、それ以後、世界中で降水のトリチウムレベルは見掛けの半減期 5~6 年で急速に低下した¹⁻³⁾。日本でも同様の観測結果が得られており、特に1982年~89年については各地で詳細な観測

が行われた。それらの結果は阪上によって集録されている¹⁸⁾¹⁹⁾。1989年現在、日本各地の降水のトリチウム濃度は、本来のレベルである10TU程度にまで低下している²⁰⁾。

4. 環境水の地球化学的研究

環境安定同位体を利用した環境水の地球化学的研究は、これまでは主にヨーロッパおよびアメリカ大陸で行われており、水の起源、経歴、収支などの解明に大きな成果を挙げている²¹⁾²²⁾。ここでは、比較的最近の、国内における同様の研究について述べる。

4-1. Dおよび $\delta^{18}\text{O}$ の利用

4-1-1. 降水の研究

ある地方の降水の δD および $\delta^{18}\text{O}$ 値の特性を明らかにすることは、降水の源である大気水蒸気の起源および挙動などの気象学的に重要な問題を解明する手掛かりとなる。そして、その結果は、その地方の河川水・地下水の δD および $\delta^{18}\text{O}$ 値を理解するのに不可欠である。

降水の源である大気水蒸気の起源および挙動を明らかにするため、日本の各地で一ヶ月分づつの降水が集められ、 δD および $\delta^{18}\text{O}$ 値が測定されている^{23)~31)}。その結果、各地の降水の δD および $\delta^{18}\text{O}$ 値に大きな季節変化があること、しかも、天水線のd値($d = \delta\text{D} - 8\delta^{18}\text{O}$)が夏には10前後であるが、冬には、特に日本海側の各地で、30前後にもなることが明

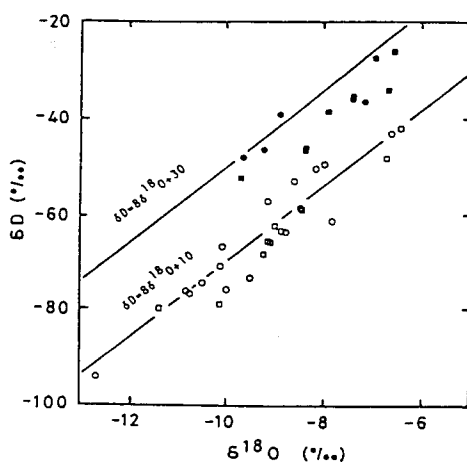


Fig. 7. Plot of δD versus $\delta^{18}\text{O}$ for precipitation samples collected monthly at Toyama and Wajima during May, 1981 to June, 1983. ○ and ●: Toyama, □ and ■: Wajima. Solid symbols represent winter precipitations²⁸⁾.

らかにされた(Fig. 7)。そして、そのような著しい季節変化は、夏に雨を降らせる太平洋気団と冬に日本海側の各地に大雪を降らせる大陸気団とでは、水蒸気が海面から供給される時の動的分別の大きさが異なるためであると説明された(Fig. 8)。しかし、その後、富山において一雨ごとの δD および $\delta^{18}\text{O}$ 値が詳細に検討され、それらの値には明確な季節変化はなく、d値にのみ大きな季節変化があることが明らかにされた(Fig. 9)²⁹⁾³²⁾。そして、秋から冬に見られるd値の増加は日本海の海水とその上にある大気との間の温度差に強く依存していることが明らかにされた(Fig. 10)²⁹⁾。海水と大気の温度差が大きくなる程、大気の相対湿度は低くなり、海面からの蒸発が盛んになる。そして、その結果、生成する水蒸気は大きな動的分別を受け、その

d 値は大きくなる³³⁾(Fig. 3 参照)。このことから、日本海側各地の大量の降雪の源は主に日本海から蒸発した水蒸気であると推論された²⁹⁾。

中部日本において一ヶ月分づつ集めた降水の δD および $\delta^{18}O$ 値の季節変化に雨量効果が認められている²⁶⁾。しかし、梅雨期の降水には雨量効果だけでは説明できない δ 値の低下も認められている³¹⁾。また、梅雨期の降水は雲頂の高さが高いほど δ 値が低くなることも観測されている³⁰⁾。中部日本の降水については高度効果として $-0.25 \sim -0.4\% \delta^{18}O/100$ m が観測されている²⁶⁾。

一連の降水についても δD および $\delta^{18}O$ 値の時間的変化が観測されており、その変化のパターンが前線型、対流型などの降水機構の違いによって変わることが指摘された³⁴⁾³⁵⁾。富山において、山雪型および里雪型の降雪(積雪量 $10 \sim 40$ cm)について、それぞれ、 $-0.03 \sim -0.06\% \delta^{18}O/km$ および $-0.11 \sim -0.12\% \delta^{18}O/km$ の内陸効果が認められた。日本海側の各地に降る大雪の降雪機構は一次元対流モデルと山岳上昇モデルで理論的に説明されている³⁸⁾。

4-1-2. 河川水・地下水の研究

降水の δD および $\delta^{18}O$ 値が大きな季節変化を示すのに対して、河川水の δD および $\delta^{18}O$ 値の季節変化はかなり小さく^{23)~26)39)~41)}、地下水についてはほとんど季節変化は認められない⁴¹⁾。地下水の場合は、降水が地下へ浸透する過程で混合が十分に行われ、その結果、降水の δD および $\delta^{18}O$ 値の年加重平均値に比較的近い値になる。しかし、地下水の δD および $\delta^{18}O$ 値が、その地域への降水の δ 値の年加重平均値と一致しない場合もある。その原

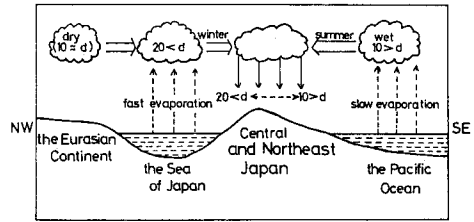


Fig. 8. Seasonal changes of air masses on Central and Northeast Japan²⁶⁾.

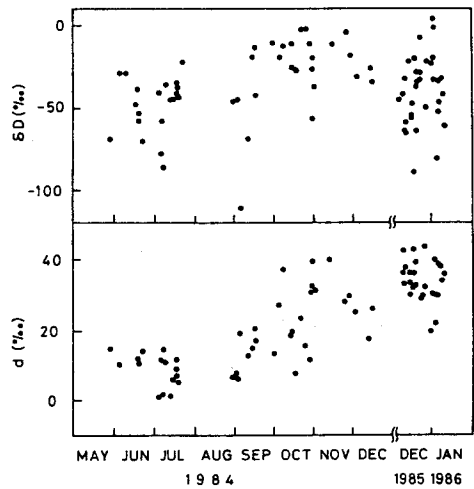


Fig. 9. δD and d-parameters of individual precipitation samples collected at Toyama²⁹⁾.

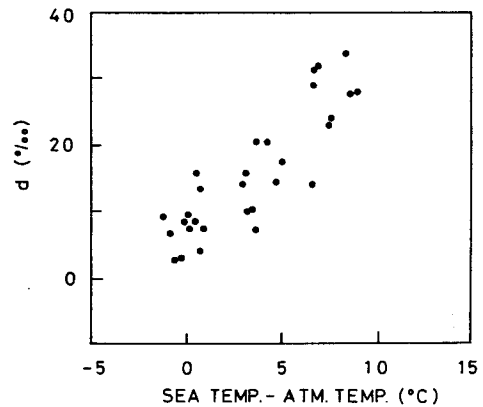


Fig. 10. Relationship between d-parameter and difference in temperature between sea water and air mass on it²⁹⁾.

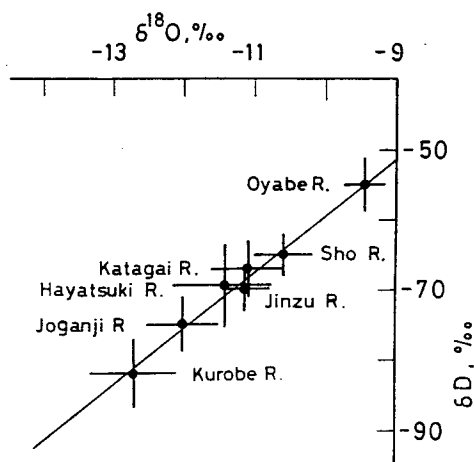


Fig. 11. Plot of δD versus $\delta^{18}\text{O}$ for water samples collected monthly from main rivers in Toyama Prefecture during April, 1980 to March, 1983³⁹⁾.

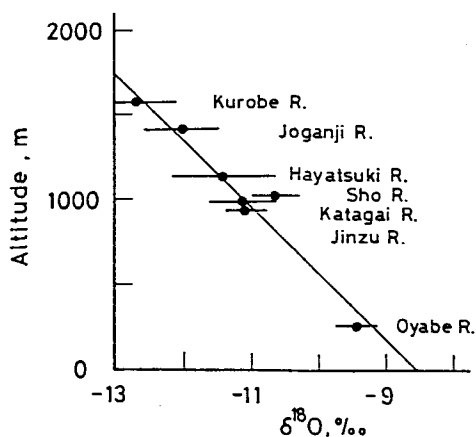


Fig. 12. Plot of $\delta^{18}\text{O}$ versus average altitude of catchment area for river water samples from Toyama³⁹⁾.

因として降水の δ 値の年加重平均値の年ごとの変化, 蒸発による同位体分別, 蒸発散による夏期の降水の寄与の減少, 地下水の移動が考えられている⁴⁰⁾⁴²⁾。

河川水は, 地下水の流出と地表からの流入水によってかん養されているが, 一般に, 大雨などにより一時的に流出が増加した時以外は, 後者の寄与は小さい。そのため河川水の δD および $\delta^{18}\text{O}$ 値は流域内の地下水の値, すなわち流域内への降水の値の年平均値に近い値となる。すなわち, 各河川は, それぞれ, ほぼ一定の δD および $\delta^{18}\text{O}$ 値を持ち, その値は高度効果に強く依存している (Fig. 11および12)³⁹⁾。このような河川水の性質を利用して, 砺波平野⁴¹⁾, 富山平野⁴²⁾, 濃尾平野⁴²⁾などで扇状地地下水の水系区分が行われ, それに基づいてかん養源や流動状況が検討された (Fig. 13)。富山平野の地下水については, 水系ごとに平野部への降水と河川からの浸透水のかん養源としての寄与率が見積られ, 降水の寄与が100~30%に及ぶことが明らかにされた⁴²⁾。積雪の多い地方の河川水や地下水の δ 値には, 春に雪解け水の影響が見られることがある⁴⁰⁾⁴¹⁾。砺波平野では, 五六豪雪の雪解け水の影響による庄川表流水の δD および $\delta^{18}\text{O}$ 値の低下を利用して, 庄川からの浸透水の高岡市南部への地下流動速度として10~13m/dayが測定された⁴¹⁾。また, 降水に伴う洪水などの流出現象の機構を解明するため, δD および $\delta^{18}\text{O}$ 値を用いて, 河川水を降水からの直接流出と地下水からの流出に成分分離する試みがなされ, その有用性が示されている^{44)~46)}。

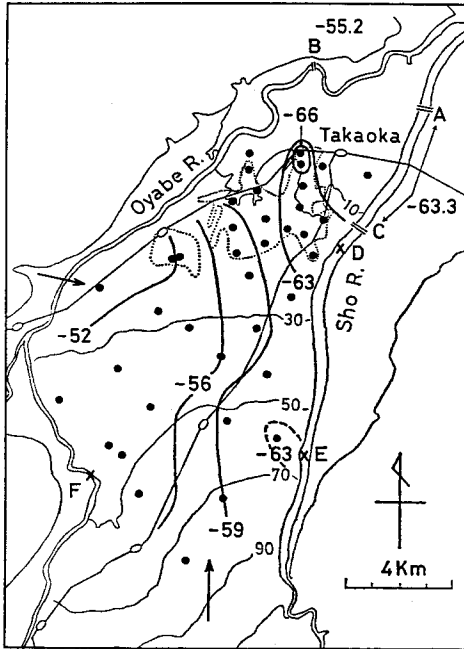


Fig. 13. Map showing δD of groundwaters in the Tonami plain, Toyama. ● :sampling point for groundwater, A, B and C :sampling point for river water, and D, E and F :main recharge point for aquifers in the plain⁴¹⁾.

4-2. トリチウムの利用

4-2-1. 降水の研究

1957年の大阪の降水についてトリチウム濃度が測定されて以来、日本の各地で降水のトリチウム濃度の変化が観測されている。降水のトリチウム濃度は1963年の最高値以後、経年的に減少を続けており、その見掛けの半減期は初期の1年から5~6年へと次第に変化してきた¹⁸⁾¹⁹⁾。そして最近では、核実験以前の天然レベル(10TU)にほぼ等しい値まで回復している (Fig. 14)⁴⁷⁾。降水のトリチウム濃度については、主に季節変化や緯度効果が観測されており、気団の動きなど気象学的な解析が行われた。季節変化については、最近まで、日本各地で春または初夏にやや高く(スプリングピーク)秋または冬に低い傾向が認められた。しかし、最近ではトリチウムレベルが低くなったため、明確な季節変化は認めにくくなっている²⁰⁾。一方、緯度効果は最近でも認められており、高緯度ほど降水のトリチウム濃度は高い²⁰⁾⁴⁸⁾。

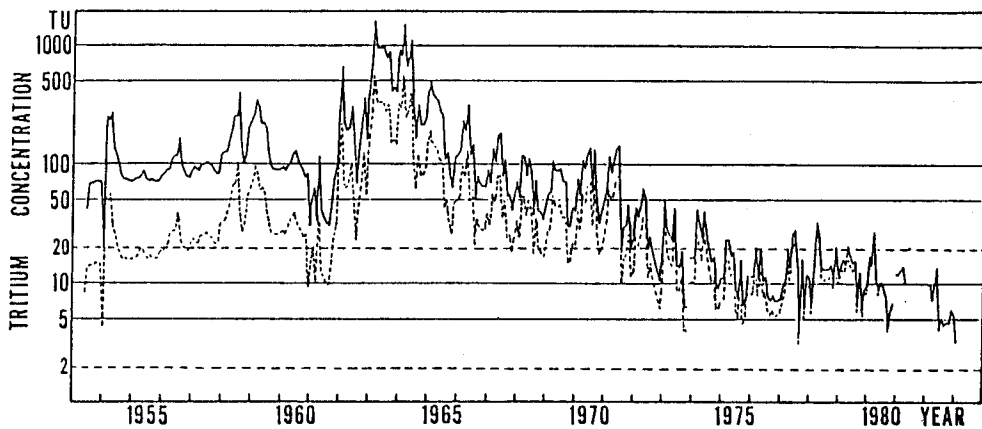


Fig. 14. Tritium contents of precipitations collected monthly at ToKyo and Tsukuba⁴⁷⁾. --- The broken line shows the correction for radioactive decay until April,1984.

4-2-2. 河川水・地下水の研究

トリチウム水(HTO)は、水の安定同位体種と同様に、河川水や地下水の起源および流動状況の研究において有力な指標となる。河川水のトリチウムレベルも、降水と同様に、核実験の影響により上昇した後、見掛けの半減期5～6年で減少を続けている。しかし、河川水のトリチウムレベルは同時期の降水に比べると明らかに高い^{19)~20)}。このことは、核実験の影響がより大きかった時期の降水に由来する古い地下水が、河川水に大きく寄与していることを示している。河川水を降水からの直接流出と地下水からの流出に成分分離する試みが、トリチウムを指標に用いて行われている⁴⁹⁾。

地下水については、各地でトリチウムの分布が調査された(Fig. 15)。そして、トリチウムを指標として、地下水の水系区分や流動状況(浸透量⁵²⁾⁵³⁾、流動速度⁵⁴⁾などの解析が行われた。同様に、地すべり地帯の地下水の動きが検討されている⁵⁵⁾。トリチウムは、その放射壊変を利用して数十年程度までの地下水の年齢(地下滞留時間)が測定できるはずである。しかし、核実験の影響を受けた比較的高いトリチウムレベルを持った地下水が存在するため、地下水の年齢の精密な決定は困難な状況にある。そこで、地下水の滞留時間の推定には、次のような方法が用いられている。(1)トリチウムが10TU以下の地下水は、1954年以前の降水に由来し、滞留時間は約35年以上である；(2)10TU以上のトリチウムが検出された地下水は、1952年以後の降水に由来する地下水の混合物であり、滞留時間は約35年以下である。そして(2)については、かん養源である降水または河川水のトリチウムレベルの経年変化と地下水の混合モデルを与えることにより、より正確な滞留時間が推定されている。地下水の混合モデルとしては、例えば、完全混合モデル、分散モデル、ピストン流モデルなどが提案されている⁵⁶⁾⁵⁷⁾。これらの方法により各地で地下水の滞留時間が推定されてい

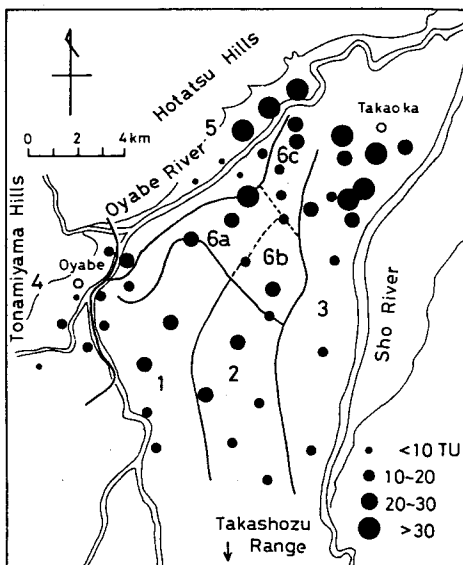


Fig. 15. Tritium contents of groundwaters from shallow aquifers of the Tonami plain, Toyama⁵⁰⁾⁵¹⁾.

1: water derived from the Oyabe river, 2: water derived from the Takashozu range, 3: water derived from the Sho river, 4: water derived from the Tonamiyama hills, 5: water derived from the Hotatsu hills, 6 a : mixture of waters from the Oyabe river (1) and Hotatsu hills (5), 6 b : mixture of waters from the Oyabe river (1) and Takashozu range (2), 6 c : mixture of waters from the Sho river (3) and Hotatsu hills (5) . The arrow shows the flow direction of groundwater.

る^{50,58)}。しかし、最近では T の放射壊変によって生じる超微量の ^3He を測定が測定できるようになったので、T- ^3He 法による地下水の年齢測定も検討されている。砺波平野では、T- ^3He 法により、トリチウム濃度が13~33TU である被圧地下水の地下滞留時間として0.6~20年が得られた⁵⁹⁾。それらの値はピストン流モデルに基づいてトリチウム濃度から推定された値⁵⁰⁾とほぼ一致していた。

5. おわりに

環境水の地球化学的研究には、水の D, T および ^{18}O だけではなく、溶存化学成分、生物、堆積物、岩石などの各種関連物質中の D, T, ^{18}O を始め ^{13}C , ^{14}C , ^{15}N および ^{34}S が広く利用されている。そして、研究対象の拡大に伴い、関連する他の分野との知識の交換または共同研究が必要となっている。取扱う問題が複雑化するにつれて、最近では、多種類の同位体を同時に用いてクロスチェックしながら研究を進める手法が広く取入れられている。そして、研究の範囲も極地や火山・地熱地帯のような、低温から高温に及ぶ多様な水環境にまで広げられており、それぞれの環境の研究において、環境同位体を利用する研究手法は大きな成果を挙げている⁶⁰⁾。

文 献

- 1) IAEA, "Environmental Isotope Data", 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, and 8 (1969, 1970, 1971, 1973, 1975, 1979, 1983, and 1986).
- 2) IAEA, "Tritium and other Environmental Isotopes in the Hydrologic Cycle" (1967).
- 3) IAEA, "Behaviour of Tritium in the Environment" (1979).
- 4) IAEA, "Isotope Hydrology", 1 and 2 (1978 and 1979).
- 5) IAEA, "Stable Isotope Hydrology; Deuterium and Oxygen-18 in the Water Cycle" (1981).
- 6) L. Bigeleisen, M. L. Perlman and H. C. Prosser, *Anal. Chem.*, **24**(1952)1356.
- 7) I. Friedman, *Geochim. Cosmochim. Acta.*, **4** (1953)89.
- 8) N. Yoshida and Y. Mizutani, *Anal. Chem.*, **58**(1986)1273.
- 9) 佐竹 洋, 亀谷寛人, 水谷義彦, 富山大学トリチウム科学センター研究報告, **2** (1982)
- 10) 佐竹 洋, 竹内誠治, 富山大学トリチウム科学センター研究報告, **7** (1987)73.
- 11) J. Hoefs, "Stable Isotope Geochemistry", 2nd ed., Springer, Berlin-Heidelberg-New York (1980)23.
- 12) M. Majzoub, *Jour. Chim. Phys.*, **68**(1971)1423.
- 13) L. Merlivat, *J. Chem. Phys.*, **69**(1978)2864.
- 14) H. Craig and L. J. Gordon, *Proceedings of the Conference on Stable Isotopes in*

- Oceanographic Studies and Paleotemperature, Spoleto (1965) 9.
- 15) W. Dansgaard, *Tellus*, **16**(1964)436.
 - 16) H. Craig, *Science* (1961)1702.
 - 17) U. Siegenthaler, "Lectures in Isotope Geology", Springer, Berlin-Heidelberg-New York(1979)264.
 - 18) 阪上正信,「環境トリチウムの測定とその動態に関する研究資料要覧,昭和58年度文部省科学研究費補助金成果報告書」(1984).
 - 19) 阪上正信,「環境トリチウムの測定とその動態に関する研究;わが国における最近の成果資料要覧,昭和60年度文部省科学研究費補助金成果報告書」(1986).
 - 20) 高島良正,「環境トリチウムの変動測定とその解析,昭和62年度文部省科学研究費補助金成果報告書」(1988).
 - 21) J. R. Gat, "Handbook of Environmental Isotope Geochemistry",. **1**, Elsevier, Amsterdam-Oxford-New York-Tokyo (1980)21.
 - 22) J. Ch. Fontes, "Handbook of Environmental Isotope Geochemistry",. **1** Elsevier, Amsterdam-Oxford-New York-Tokyo (1980)75.
 - 23) M. Kusakabe, H. Wada, S. Matsuo, and Y. Horibe, *J. Geophys. Res.*, **75**(1970)5941.
 - 24) 松葉谷治, 酒井 均, 日本地球化学会年会講演要旨集(1976)121.
 - 25) S. Matsuo, M. Kusakabe, M. Niwano, T. Hirano and Y. Oki, *Isotopes in lake studies*, IAEA, Vienna (1979)131.
 - 26) 早稲田周, 中井信之, *地球化学*, **17**(1983)83.
 - 27) 丹野忠弘, 小倉紀雄, 日本地球化学会年会講演要旨集(1983) 7.
 - 28) 佐竹 洋, 向井利明, 水谷義彦, 富山大学トリチウム科学センター研究報告, **3** (1984) 45.
 - 29) 佐竹 洋, *地球化学*, **20**(1986)90.
 - 30) 加藤俊典, 中井信之, 武田喬男, 日本地球化学会年会講演要旨集(1987)31.
 - 31) 三条和博, 嶋田 純, 日本地球化学会年会講演要旨集(1988)201.
 - 32) 佐竹 洋, 坂本典子, 日本地球化学会年会講演要旨集(1989)254.
 - 33) L. Merlivat and J. Jouzel, *J. Geophys. Res.*, **84**(1979)5029.
 - 34) Y. Miyake, O. Matsubaya and C. Nishihara, *Pap. Met. Geophys.*, **19**(1968)243.
 - 35) 佐竹 洋, 富山の雪の総合研究, 富山大学雪の総合研究会(1987)34.
 - 36) 水谷義彦, 日本地球化学会年会講演要旨集(1988)206.
 - 37) 水谷義彦, 富山の雪の総合研究, 富山大学雪の総合研究会(1987)23.
 - 38) 杉本敦子, 樋口敬二, 日本地球化学会年会講演要旨集(1986, 1988)193, 207.
 - 39) 水谷義彦, *ハイドロロジー*, **16**(1986)74.
 - 40) 松葉谷治, 越中 浩, 秋田大学鉱山学部資源地学研究施設報告, **52**(1987)15.

- 41) 水谷義彦, 小田松尚, 地球化学, 17(1983) 1.
- 42) 水谷義彦, 桜井和博, 京都大学防災研究所年報, 31, B-2 (1988) 317.
- 43) 中井信之, 地学雑誌, 95(1986) 15.
- 44) 松葉谷治, 吉田美那子, 日本地球化学会年会講演要旨集(1986) 198.
- 45) 松葉谷治, 宮本霧子, 日本地球化学会年会講演要旨集(1987) 32.
- 46) 斎藤隆志, 水谷義彦, 奥西一夫, 日本地球化学会年会講演要旨集(1989) 211.
- 47) 榎根 勇, 北原豪一, 近藤昭彦, 比較河川学の研究, 昭和60年度文部省科学研究費補助金成果報告書(1986) 82.
- 48) 角皆静男, 石田宗博, 倉田隆嘉, 日本地球化学会年会講演要旨集(1982) 148.
- 49) 田中 正, 間島政紀, 佐藤芳徳, 筑波の環境研究, 5 A (1980) 20.
- 50) 水谷義彦, 佐竹 洋, 高島秀樹, 地球化学, 21(1987) 49.
- 51) 加藤 総, 水谷義彦, 内田啓男, 飯田忠三, 地球化学, 18(1984) 29.
- 52) 田中邦也, 地球化学, 7/8(1973/74) 9.
- 53) 榎根 勇, 田中 正, 嶋田 純, 地理学評論, 52(1980) 225.
- 54) 茶谷邦男, 加賀美忠明, 浜村憲克, 愛知県衛生研究所報告, 26(1975) 9.
- 55) 佐藤 修, 菅原 修, 日本地球化学会年会講演要旨集(1986) 200.
- 56) A. Zuber, "Handbook of Environmental Isotope Geochemistry", 2, Elsevier, Amsterdam-Oxford-New York-Tokyo (1986) 1.
- 57) 北原豪一, 水温の研究, 26(1983) 25.
- 58) 北原豪一, 吉岡龍馬, 日本地下水学会誌, 26(1984) 131.
- 59) N. Takaoka and Y. Mizutani, Earth Planet. Sci. Lett., 85(1987) 74.
- 60) P. Fritz and J. Ch. Fontes, "Handbook of Environmental Isotope Geochemistry", 1 and 2, Elsevier, Amsterdam-Oxford-New York-Tokyo (1980, 1986).