

資 料

福島県南相馬市原町区および小高区の湧水と 自噴井の水質・同位体の特徴について

総合地球環境学研究所・福島大学客員教員
元南相馬市博物館学芸員
南相馬市博物館学芸員
福島大学共生システム理工学類

藪 崎 志 穂
稲 葉 修
仲 川 邦 広
黒 沢 高 秀

Characteristics of water quality and stable isotopes in spring water and artesian well
at Haramachi-ku and Odaka-ku in Minamisoma City, Fukushima Prefecture

YABUSAKI Shiho, INABA Osamu, NAKAGAWA Kunihiro, KUROSAWA Takahide

1. はじめに

2011年3月11日に発生した東北地方太平洋沖地震では、津波による地下水の塩水被害や、東京電力福島第一原子力発電所事故による放射性物質拡散に伴う土壌や地下水の汚染など、様々な問題が生じた。これらの問題の対策を考える際には、対象地域の広域地下水流動を把握することが非常に重要である。福島県北部沿岸域を対象とした地下水調査の先行研究として、1980年代に南相馬市原町区(旧原町市)を中心とした地域で地下水の多量揚水に起因する地盤沈下の発生に関連した調査・研究が行われているが¹⁾²⁾、調査事例は少なく、地下水流動や滞留時間など未だ不明な点が多い。そこで、福島県北部沿岸域の地下水や湧水等を対象として、それらの水質や涵養域、滞留時間について把握し、地下水流動の解明を目的として、2012年より沿岸域から涵養源と推定される阿武隈高地(阿武隈山地)を含む広域を対象として調査を行っている。本稿では、一連の調査の中から2016年12月に南相馬市原町区と小高区で実施した調査を対象として、現地調査の内容と

分析等により明らかになった水質の特徴について報告する。

2. 調査地の概要

2.1 南相馬市の気象

南相馬市の気象・気候の特徴を把握するために、気象庁の観測地点「原町」と「浪江」のデータ³⁾を利用し、検討をおこなった。なお、「原町」では降水量の観測のみ行われている。年降水量(1981年~2010年の平年値)は原町では1,331 mm、浪江では1,511 mmであり、原町のほうが200 mmほど少ない。両地点共に、年降水量の変動幅は1991年や2006年などの極端に多かった年を除くと概ね700~1,650 mmの範囲に収まっており、日本の年降水量の平均値(約1,700 mm)⁴⁾よりも少ないという特徴を有している。月降水量の平年値は、12月~2月で50 mm以下と相対的に少なく、7月~10月(浪江では6月~10月)で150 mm以上と相対的に多く、冬に少なく夏に多いという傾向が認められる。また、南相馬市では冬季の降雪は殆どなく、積雪が生じることは少ない。

「浪江」の年平均気温は12.3℃で、1月で最も低く（月平均気温2.1℃）、8月で最も高い値（月平均気温23.8℃）を示している。冬季の間も比較的暖かく、月平均気温は0℃以上である。2005年に発行された原町市史²⁾には南相馬市原町区（旧原町市）の気象観測結果が示されており、これによると、年平均気温は12.1℃、最寒月の1月で1.8℃、最暖月の8月で23.7℃で、浪江の気候条件とほぼ一致している。原町区の気温の年較差は21.9℃で、内陸部の福島市の年較差（24.2℃）や会津若松市の年較差（25.7℃）と比べると原町区の年較差は比較的小さく、穏やかな気候を形成していると言える²⁾。

2.2 南相馬市の地形、地質

南相馬市を含む福島県の北部沿岸域では、新生代の堆積岩が広く分布しており、段丘と平地が入り組んだ地形を呈している。地質は、平野部では新第三紀層が基盤となっており、平野内では基盤岩は丘陵地として散在している。新第三紀層の上には第四紀層が堆積し、その厚さは約20 mである。第四紀層は西側の阿武隈高地から流れる河川によって運搬・堆積した扇状地性の砂礫の上位に相当し、海岸に近い地域ではシルト質層や粘土層が分布している。河川沿いの沖積地では泥炭層が分布する地域もあり、こうした地域は地盤沈下が生じやすくなっている。沿岸域周辺の帯水層は、第四紀層の砂礫層（浅層地下水）や新第三紀層（深層地下水）に認められる。また、沿岸より約10 kmの位置に双葉断層（双葉破

碎帯）が北北西－南南東方向に走っており、相馬古生層や花崗岩類の分布域と、相馬中生層（相馬中村層群）や第三系の主分布域とを分けている²⁾。断層の西側には比高約300 m、南北の長さ約100 kmに及ぶ阿武隈高地が広がっている。これらの地域には中・古生代の基盤岩類である花崗岩類や変成岩類が広く堆積しており、沿岸域に存在する深層地下水の涵養域である可能性が想定される。

2.3 調査地点の概要

現地調査は2016年12月29日、30日の2日間にかけて、福島県相馬市および南相馬市を対象として実施した。本稿では、全ての調査地点のうち、南相馬市原町区と小高区で実施した調査結果について報告する。調査地点のNo.、所在地、標高、種別についてTable 1に、地点の位置図をFig. 1にそれぞれ示した。調査地点の種別として、湧水（Sp）は4地点（KR-98, 99, 100, 101）、自噴井（Aw）は4地点（KR-102, 103, 104, 108）である。調査地点のうち、KR-98とKR-108は沿岸から比較的近い低地部に位置しており、2011年3月11日に発生した津波による浸水被害を受けた場所である。また、KR-104とKR-108の位置する小高区の平野部は、東北地方太平洋沖地震の際の東京電力福島第一原子力発電所事故により2012年4月まで警戒区域として人の立ち入りが原則禁止されていた。その後、一時帰宅や営農が再開できるようになったものの2016年7月まで避難指示解除準備区域として宿泊や夜間の立ち入り

Table 1 Information of sampling site and values of water temperature, EC, pH and ORP.

No	address (in Minamisoma city)	altitude m	sampling date	type	water temperature ℃	EC mS/m	pH	ORP mV
KR-98	南相馬市原町区萱浜 Kaibama, Haramachi-ku	10	2016/12/29	Sp	14.9	30.60	6.79	246.0
KR-99	南相馬市原町区錦町 Nishikicho, Haramachi-ku	32	2016/12/29	Sp	16.8	17.33	7.23	172.1
KR-100	南相馬市原町区錦町 Nishikicho, Haramachi-ku	16	2016/12/29	Sp	16.0	19.10	6.98	250.0
KR-101	南相馬市原町区上町 Kamimachi, Haramachi-ku	43	2016/12/29	Sp	12.6	14.64	7.05	244.0
KR-102	南相馬市原町区中太田 Nakaota, Haramachi-ku	29	2016/12/29	Aw	14.3	11.31	7.06	-24.6
KR-103	南相馬市原町区中太田 Nakaota, Haramachi-ku	25	2016/12/29	Aw	14.1	10.78	6.86	-24.6
KR-104	南相馬市小高区東町 Higashimachi, Odaka-ku	11	2016/12/29	Aw	15.2	15.28	7.60	-91.1
KR-108	南相馬市小高区岡田 Okada, Odaka-ku	5	2016/12/30	Aw	17.4	19.40	8.23	139.7

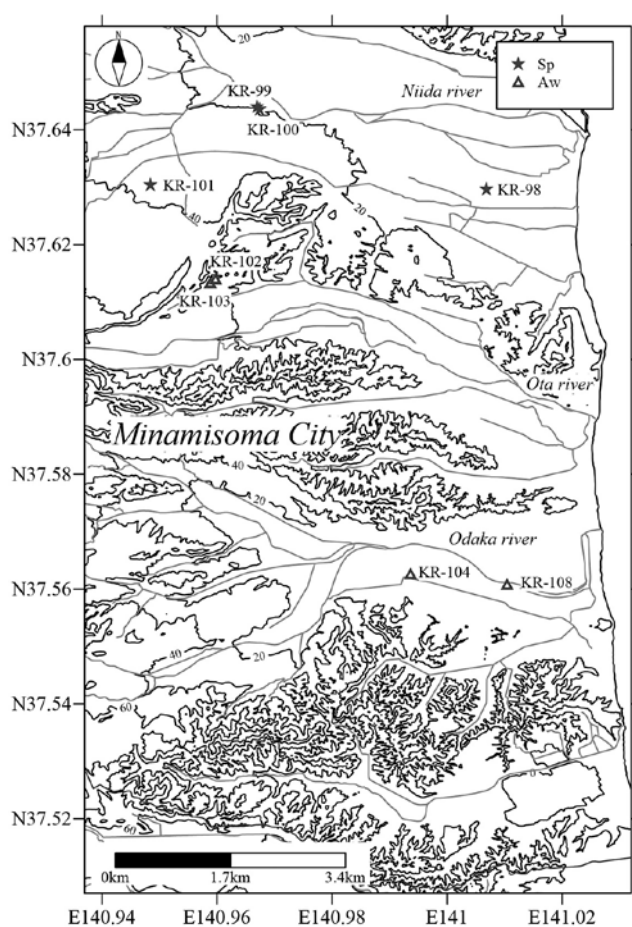


Fig.1 Location of sampling sites.

などが制限されていた。調査を行った2016年12月は、避難指示解除準備区域が解除されて約5ヶ月後であった。各地点の状況について、以下に記す。

KR-98は原町区萱浜にある湧水で、前述したように津波による浸水被害を受けた場所である (Photo 1)。津波前に周辺には住宅地や畑が広がっていた



Photo 1 Spring water at KR-98.

が、調査時点ではまだ空き地が広がり、600 mほど離れた海岸部では道路のかさ上げや海岸防災林の土盛りなどの復旧事業が行われていた。地面下から水が湧出しており、湧出量は季節によって変化する。震災以前には周辺住民の水場として利用されていたという。この地点では水質の変化を把握するために2012年12月から定期的に調査を行っており、2018年6月時点で10回の調査を実施している。2012年12月時点では海水の浸水の影響(海水そのものではなく、土壌に吸着した塩分溶出の影響と考えられる)が残り、湧水のECは高く、水質組成はNa-Cl型を示していたが、年月が経つにつれ徐々にECは低下し、水質組成にもやや変化が生じている⁵⁾。KR-99は原町区の市街地の中にある湧水で、斜面下の祠の下から水が湧き出し、水路を通じて池へと流れ込んでいる (Photo 2)。この地点も複数回調査を行っており、湧出量は冬季に若干減少する傾向が認められるが、四季を通じて枯れることはない。KR-100はKR-99の近くに位置する民家敷地内にある湧水で、地面近くから水が湧き出して池に流れ込んでいる。湧出量は直接測定することができないが、かなりの量であることを所有者のかたから伺った。地形などから判断すると、KR-99とKR-100は同じ帯水層の水(水脈)であると考えられる。KR-101は原町区の市街地にほど近い湧水で、湧出地点の周辺はスギ植林地となっている (Photo 3)。湧出量はあまり多くないが、スギ植林の林床地表面にしみ出すように水が湧き出し、水流となって流れ、下流にヌマゼリ、イヌセンブリなどの絶滅危惧植物が生育する湿地が広がっている。KR-102は原町区中太田の民家敷地内にある自噴井で、二段の水船となっている (Photo 4)。



Photo 2 Spring water at KR-99.



Photo 3 Spring water at KR-101.



Photo 5 Artesian well at KR-108.



Photo 4 Artesian well at KR-102.

調査時の湧出量は300 mL/secであった。住民のかたの話によると、かなり昔(100年程前?)に掘られた井戸で、井戸の深さは約70 m、現在も洗いや水田の水として利用しているという。湧出口や井戸周辺には、褐色の沈殿物が多く認められる。KR-103は原町区中太田の水田の一面にある自噴井であり、KR-102と同様に取水口周辺には褐色の沈殿が生じている。KR-104は小高区の市街地の民家の前にある自噴井で、調査時の湧出量は400 mL/secであった。現在は使われていないようだが、かつては生活用水として利用されていたと思われる。KR-108は小高区岡田の民家前にある自噴井で (Photo 5)、この地点も津波が浸水した場所に位置している。井戸は津波の際に破損したというが、その後住民のかたにより修復されたと伺った。調査時の湧出量は175 mL/secであった。

3. 現地調査の概要、分析項目

現地では、水温、EC (電気伝導率)、pH、ORP (酸化還元電位)、湧出量を計測した。水温はTFX 420 (ebro)、ECとpHはポータブルメーター D-74 (HORIBA)、ORPはパーソナルpH/ORPメータ PH72 (YOKOGAWA) を用いて計測した。分析用の試料採取はポリプロピレン製の容器を用い、一般溶存成分の分析用として100 mL、微量元素分析用として50 mL採取した。採水した水試料は、採水後速やかに0.22 μm のディスポーザブルシリンジフィルターでろ過を行った。また、微量元素分析用の試料(50 mL容器)には、重金属等の容器壁面への吸着や懸濁物の発生防止のため、濃硝酸を約1%濃度となるように添加した。採取した各試料はろ過後、5℃の冷蔵室で保管した。

分析に関しては、無機溶存成分はイオンクロマトグラフ (ICS-3000, Dionex) を用いた。HCO₃⁻はpH4.8アルカリ度滴定法により定量し、Siはモリブデン黄法による前処理を行った後、分光光度計で測定した。微量元素(51元素)については、ICP-MS法(7500cx, Agilent)を用いて測定を行った。ICP-MS法では、ほとんどの元素の検出下限値がpptからppqオーダーである。酸素と水素の安定同位体比は、CRDS法(L2130-i, Picarro)により分析を実施した。また、一部地点では年代測定用として、³H、CFCs・SF₆用の試料の採取も行った。なお、年代分析の結果については、別の機会に改めて報告する予定である。

4. 結 果

4.1 水温, EC, pH, ORPの測定結果

調査地点で測定した水温, EC, pH, ORPの値をTable 1に示した。

水温は12.6℃ (KR-101)～17.4℃ (KR-108)の範囲となっている。調査地周辺の年平均気温は2.1項で記したように12.1℃であるため²⁾, いずれの地点においても水温のほうが高い。一般的に地下水の水温は周辺の年平均気温に近い値を示すが, 本調査地点においては明らかに高い水温を示す地点もあることから, 地温の影響などを受けていると考えられる。最も低いKR-101は地表面近くで湧き出す湧水であり, 地温の影響をあまり受けず, 年平均気温に近い値を示していると予想される。KR-99とKR-100, KR-102とKR-103はそれぞれほぼ同様の水温であるため, 同じ帯水層の水である可能性が高い。水温が最も高いKR-108は地温の影響を受けている可能性が高く, 比較的深い井戸(自噴井)であると考えられる。

ECは10.78 mS/m (KR-103)～30.60 mS/m (KR-98)の範囲を示しており, 地域ごとに類似した値を示す傾向が認められる。最も高いKR-98は津波が浸水した地点の湧水であるが, 海水のEC(約4,500 mS/m)に対して非常に低いことから, 海水の影響が直接及んでいる訳ではなく, 津波浸水時に周辺土壌に吸着した海水の成分(塩類)が降水発生時に湧水に溶出することにより, 湧水のECが高くなっていると考えられる。KR-102とKR-103のECは相対的に低く, 両地点の値は近似している。KR-99, KR-100, KR-108は比較的高い値となっており, ある程度の滞留時間をもつ水であると考えられる。

pHは6.79 (KR-98)～8.23 (KR-108)の範囲であるが, 多くの地点は7前後の値を示している。KR-104とKR-108ではそれぞれ7.60, 8.23と相対的に高い値(塩基性)を示しており, 滞留時間の長い深部の地下水であることが示唆される。以上のように, 水温, EC, pHの特徴から, 「KR-99・KR-100」, 「KR-102・KR-103」, 「KR-104・KR-108」の3グループに区分することができた。

ORPは-91.1 mV (KR-104)～250.0 mV (KR-100)と範囲が広がっているが, 負の値を示す地点と, 正の値を示す地点の2グループに分けることができる。前者はKR-102, KR-103, KR-104であり, 嫌気的条件下の地下水であることが伺える。これら3地点は湧出口に褐色の沈殿(水酸化鉄(Fe(OH)₃)と思われる)が付着している。これは還元状態に置かれていた水が揚水され空気に触れることにより地下水中の2価の鉄イオン(Fe²⁺)が酸化され, 水酸化第二鉄(Fe(OH)₃)が析出したと考えられる。KR-108も139.7 mVとやや低い値を示しており, やや嫌気的条件下にあると予想される。その他の地点は250 mV前後の値を示しており, いずれも好気的条件下の水(湧水)である。このように水温, EC, pH, ORPの特徴から, 自噴井4地点は相対的に滞留時間が長い深層の地下水であり, 対して湧水4地点は比較的滞留時間の短い浅層の水であることが示された。

4.2 無機溶存成分の特徴

採取した水試料について, ICおよび滴定等により求められた陽イオン, 陰イオン, およびSiO₂の数値データをTable 2に示した。また, これらのデータを利用して作成した水質組成図をFig. 2に示した。

Table 2 Concentration of inorganic ions in groundwater and spring water.

No	F ⁻ mg/L	Cl ⁻ mg/L	NO ₂ ⁻ mg/L	Br ⁻ mg/L	SO ₄ ²⁻ mg/L	NO ₃ ⁻ mg/L	PO ₄ ³⁻ mg/L	HCO ₃ ⁻ mg/L	Li ⁺ mg/L	Na ⁺ mg/L	NH ₄ ⁺ mg/L	K ⁺ mg/L	Mg ²⁺ mg/L	Ca ²⁺ mg/L	SiO ₂ mg/L
KR-98	0.02	32.98	0.03	0.14	56.46	26.57	0.39	16.17	0.00	33.86	0.07	2.86	6.52	13.68	18.64
KR-99	0.04	9.92	0.00	0.05	23.00	21.87	0.00	31.42	0.00	9.89	0.00	1.80	3.15	18.85	16.44
KR-100	0.03	10.58	0.00	0.05	27.24	22.38	0.00	36.30	0.00	10.38	0.00	2.02	3.55	21.27	14.93
KR-101	0.02	7.12	0.01	0.06	20.81	23.43	0.00	18.61	0.00	7.98	0.05	2.49	3.62	12.59	15.31
KR-102	0.13	4.60	0.00	0.03	17.55	0.00	0.00	31.12	0.01	8.31	0.17	1.51	2.89	7.80	80.33
KR-103	0.12	5.94	0.00	0.03	16.62	0.00	0.00	27.15	0.01	8.05	0.16	2.03	2.78	6.57	82.28
KR-104	0.11	6.20	0.00	0.02	10.94	0.00	0.00	67.11	0.01	10.50	0.17	1.10	4.89	13.51	72.36
KR-108	0.09	6.68	0.00	0.02	14.31	0.00	0.16	91.52	0.00	12.07	0.12	0.54	6.99	20.66	58.99

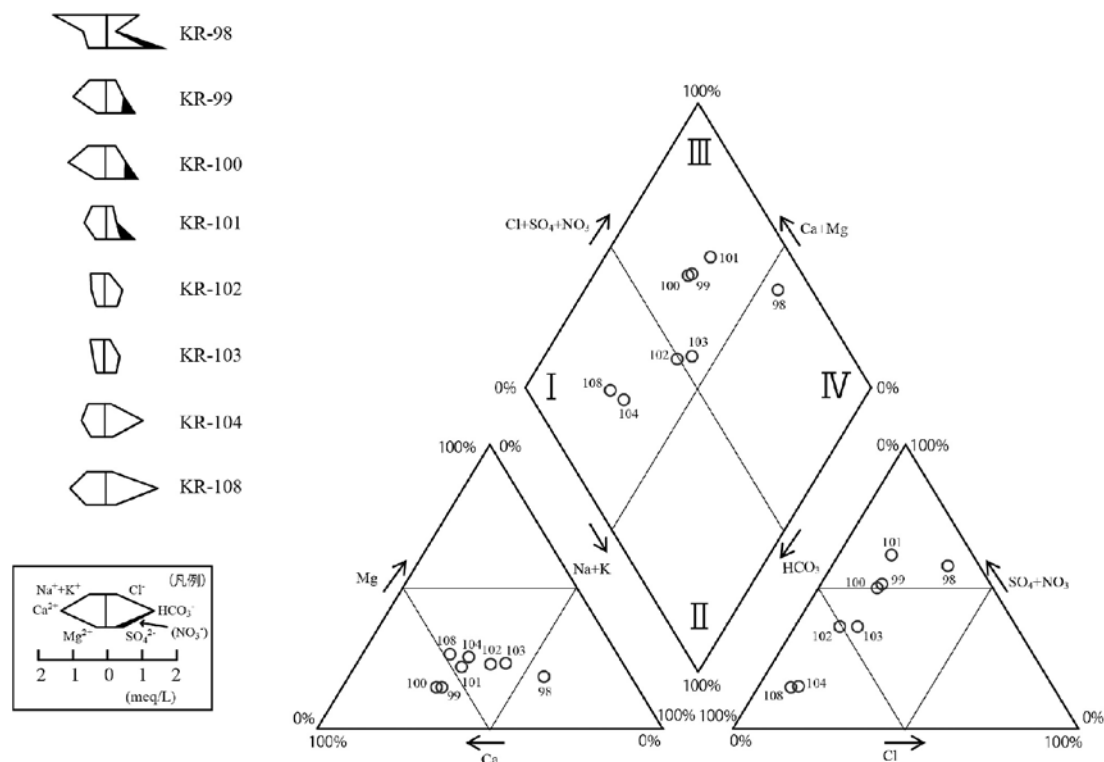


Fig.2 Water quality of groundwater and spring water.
(left side, Stiff diagram; right side, Trilinear diagram)

まず数値データ (Table 2) をみると、 F^- 、 NO_2^- 、 Br^- 、 PO_4^{3-} 、 Li^+ 、 NH_4^+ はいずれの地点も濃度が低く、その他の成分は地点により濃度が異なっている。特徴的なのは NO_3^- であり、湧水 (KR-98~KR-101) では20 mg/L以上の比較的高い値を示しているが、自噴井 (KR-102~KR-108) ではほぼ含まれていない。3.1項でも述べたように、湧水は比較的浅い部分 (地上面近く) に存在する水であると予想されることから、土地利用の影響などを受けやすく、 NO_3^- が高くなると想定される。一方、自噴井は深層の地下水であるため地表面の影響は受けにくく、人為起源の NO_3^- は殆ど溶存しないため、こうした違いが生じていると考えられる。これらの特徴は、ECやORP等の結果から得られた推定と矛盾がない。 SiO_2 濃度にも同様の特徴が表れており、湧水4地点の濃度は14~18 mg/Lであるのに対し、自噴井4地点では58~82 mg/Lと相対的に濃度が高く、湧水と自噴井の違いが明瞭である。一般的にSiは岩石の化学的風化作用により供給されるため⁶⁾、同じ地質条件である場合には地層中により長く滞在している水ほど濃度が高くなる傾向が認められる。従って、 SiO_2 濃度が低い湧水は滞留時間が短く、濃度が高い

自噴井は滞留時間が長いということになり、他の項目から得られた推定を支持している。

次に水質組成図のStiff diagram (Fig. 2の左側の図) であるが、これは主要溶存8成分のミリ当量を六角形の図として示したもので、中央の線を0として左右各点までの距離が長いと濃度が高くなる、即ち形が大きいと濃度が高いことになる。また六角形の形が似ている地点では同様の水質組成を示すことも把握できる。本調査地点の結果をみると、幾つかのグループに分けることができる。KR-99とKR-100はCa- HCO_3 型、KR-102とKR-103はNa- HCO_3 型で、それぞれほぼ同一の水質組成の特徴を有し、同じ帯水層の水である可能性が高い。また、KR-104とKR-108は濃度が若干異なるものの、水質組成としてはCa- HCO_3 型でほぼ同様であり、こちらも同じ帯水層の水である可能性が高い。その他の地点について、KR-98はNa-(Cl+ SO_4)型で、津波の浸水の影響 (土壤に吸着した塩分の影響) が及んでいることが明瞭である。KR-101の水質組成は、元はCa- HCO_3 型であったと思われるが、硝化細菌による硝化の際に炭酸が消費されて、 HCO_3^- 濃度が低くなったと予想される。

Table 3 Result of Pearson's correlation analysis by using the concentration of inorganic ions.

	F ⁻	Cl ⁻	NO ₂ ⁻	Br ⁻	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	PO ₄ ³⁻	HCO ₃ ⁻	Li ⁺	Na ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Mg ²⁺	Ca ²⁺	SiO ₂	
F ⁻	1															
Cl ⁻	-0.5872	1														
NO ₂ ⁻	-0.5208	0.9577	1													
Br ⁻	-0.7154	0.9666	0.9537	1												
SO ₄ ²⁻	-0.6455	0.9728	0.9298	0.9813	1											
NO ₃ ⁻	-0.9666	0.6147	0.5462	0.7588	0.7079	1										
PO ₄ ³⁻	-0.3623	0.8894	0.8934	0.8016	0.8136	0.3139	1									
HCO ₃ ⁻	0.4127	-0.3901	-0.4345	-0.5490	-0.5408	-0.6053	-0.0466	1								
Li ⁺	0.8765	-0.4596	-0.3788	-0.5728	-0.5588	-0.8314	-0.3559	0.3219	1							
Na ⁺	-0.4441	0.9747	0.9549	0.9036	0.9120	0.4471	0.9542	-0.2296	-0.3301	1						
NH ₄ ⁺	0.8955	-0.3489	-0.1957	-0.4664	-0.4497	-0.8889	-0.0940	0.3416	0.8863	-0.1755	1					
K ⁺	-0.6279	0.6185	0.6548	0.7605	0.7298	0.7567	0.2968	-0.9243	-0.4800	0.4665	-0.4511	1				
Mg ²⁺	-0.1858	0.5134	0.5175	0.3839	0.3598	0.0084	0.7888	0.5325	-0.1695	0.6505	0.0522	-0.2364	1			
Ca ²⁺	-0.5363	0.1175	-0.0747	0.0896	0.0925	0.3915	0.1309	0.4447	-0.5754	0.0836	-0.6782	-0.2649	0.4166	1		
SiO ₂	0.9856	-0.5036	-0.4138	-0.6398	-0.5818	-0.9658	-0.2600	0.4007	0.8852	-0.3485	0.9483	-0.5738	-0.0976	-0.5936	1	

Trilinear diagram (Fig. 2 の右側の図) は、複数地点の水質の区分をする際に便利な図で、大まかな水質のグループ分けと水質の特徴を把握することができる。各区分の名称として、I は「アルカリ土類炭酸塩型」で比較的滞留時間が短い流動性の水に多く見られる特徴を有し、II は「アルカリ炭酸塩型」で比較的滞留時間の長い水の特徴を有し、III は「アルカリ土類非炭酸塩型」で温泉や化石水などの特徴を有し、IV は「アルカリ非炭酸塩型」で海水などが相当する。Trilinear diagram のプロットでは、Stiff diagram で区分したグループ (KR99 と KR-100, KR-102 と KR-103, KR-104 と KR-108) と同様の特徴が認められ、上述の推定を示唆する結果となっている。

各地点の溶存成分の相互関係を把握するため、陽イオン、陰イオンおよび SiO₂ を含む 15 成分の濃度を用いて相関分析を行い、結果を Table 3 に示した。相関係数が 0.8 以上あるいは -0.8 以下を示す項目には色付けをした。顕著な特徴としては、Na⁺ は Cl⁻ や SO₄²⁻ などと強い正の相関を持ち、SiO₂ は NO₃⁻ と強い負の相関が認められる。前者では NaCl や Na₂SO₄ などの塩が影響していると考えられる。また後者では、SiO₂ は地質 (岩石) 由来の成分であるため、一般的には地中に滞留する時間が長い深層地下水などで濃度が高くなるが、NO₃⁻ は農業活動や家庭排水などの人為的な影響により地下水などに付加される場合が多いため、比較的浅い地下水で濃度が高くなる傾向が認められる。よって、深層地下

Table 4 Stable isotopes of oxygen and hydrogen in groundwater and spring water.

No	δ ¹⁸ O ‰	δD ‰	d-excess ‰
KR-98	-6.99	-45.07	10.82
KR-99	-7.03	-45.71	10.51
KR-100	-7.07	-45.72	10.82
KR-101	-7.17	-46.87	10.50
KR-102	-8.07	-52.16	12.39
KR-103	-8.02	-51.83	12.30
KR-104	-7.89	-50.75	12.35
KR-108	-8.42	-54.35	12.99

水 (自噴井) では SiO₂ 濃度は高くなる一方で NO₃⁻ 濃度は低くなる場合が多くなり、相関分析はこうした状況を反映していると考えられる。

4.3 安定同位体比の特徴

各地点の酸素安定同位体比 (δ¹⁸O) と水素安定同位体比 (δD) を Table 4 に、酸素安定同位体比と水質組成図を併せて示した平面分布図を Fig. 3 にそれぞれ示した。δ¹⁸O は -8.42‰ (KR-108) ~ -6.99‰ (KR-98), δD は -54.35‰ (KR-108) ~ -45.07‰ (KR-98) の範囲にある。δ¹⁸O・δD 共に、KR-98 から KR-101 までの湧水では相対的に同位体比は高く、KR-102 から KR-108 までの自噴井では相対的に低い値を示している。湧水や地下水の源である降水の酸素・水素安定同位体比には標高と負の相

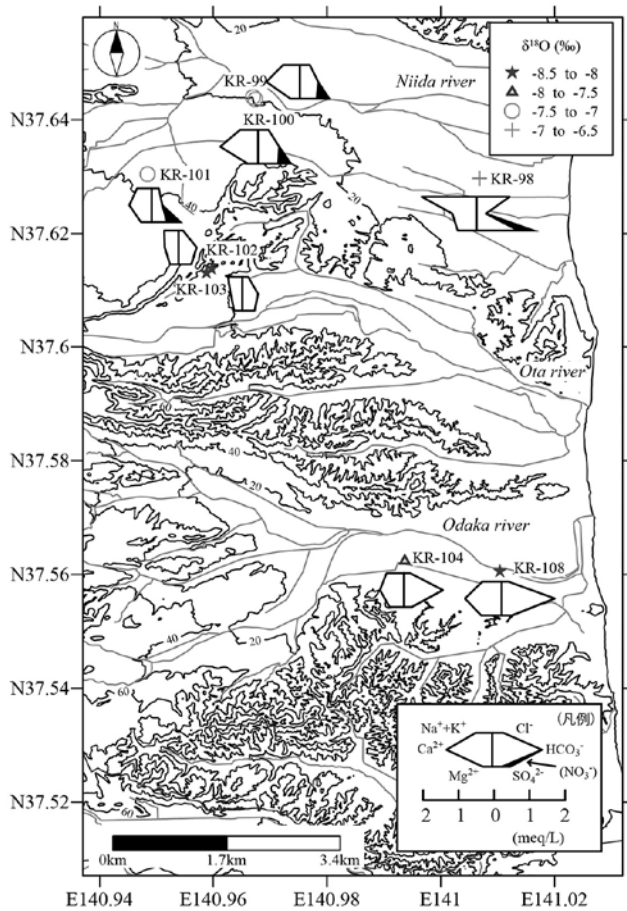


Fig.3 Distribution map of $\delta^{18}\text{O}$ and water quality in groundwater and spring water.

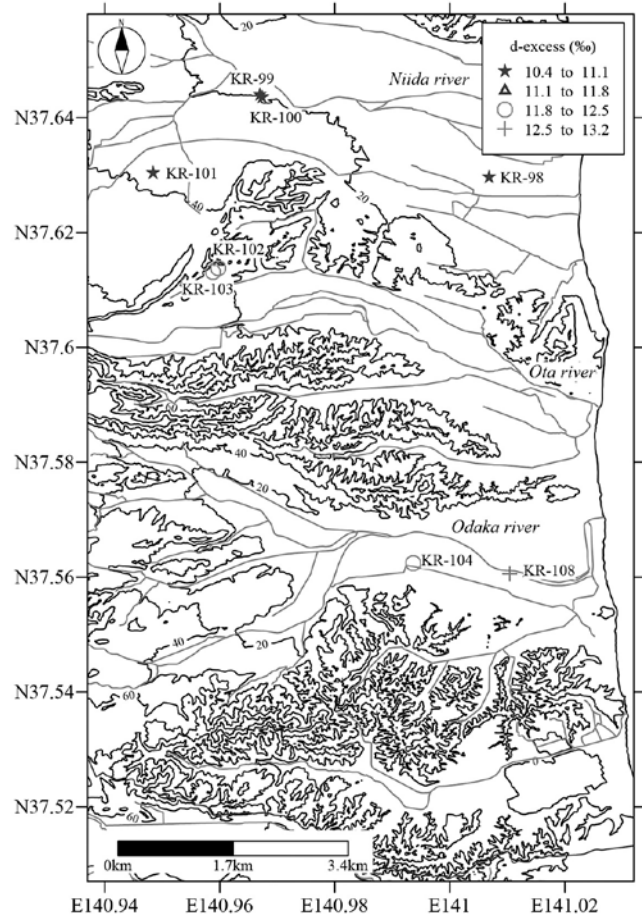


Fig.4 Distribution map of d-excess values in groundwater and spring water.

関（高度効果）があることが認められており⁷⁾、本調査地点では湧水よりも低い同位体比を示す自噴井（地下水）のほうが相対的に高い場所で涵養された水であると考えられる。また、湧水4地点の $\delta^{18}\text{O}$ と δD は概ね一定しているため、これらの涵養標高は比較的標高の低い台地部の近接した場所であることが予想される。一方、自噴井の $\delta^{18}\text{O}$ と δD は地点間でやや差異があり、特にKR-108の同位体比は低いことから、調査地点の中では最も涵養標高が高い（阿武隈高地の周辺）と考えられる。

$\delta^{18}\text{O}$ とStiff diagramの分布図（Fig. 3）より、Na-(Cl+SO₄)型の水質組成を示すKR-98（湧水）の $\delta^{18}\text{O}$ は相対的に高いため、涵養標高は低く、地下の浅い部分を通る水であることが予想される。また、NO₃⁻濃度も高い。この地点では、水質は地質や津波の影響、土地利用などの人為的な影響、同位体比は涵養域の影響を受けて形成されていることになる。KR-99、KR-100、KR-101の湧水では $\delta^{18}\text{O}$

値が $-7.2\text{‰} \sim -7.0\text{‰}$ のほぼ一定した値を示し、水質組成もほぼ同様で、NO₃⁻濃度が高いという特徴を有することから、涵養標高は比較的low、水質は土地利用などの人為的な影響を受けて形成されることが予想される。KR-102、KR-103、KR-104、KR-108では $\delta^{18}\text{O}$ は $-8.4\text{‰} \sim -7.9\text{‰}$ と近似しており、涵養域は比較的標高の高い場所であると予想される。しかしながら、KR-104とKR-108の水質組成はKR-102とKR-103の水質組成とは異なり、また位置もそれぞれ離れていることから、両者は異なる水系である可能性が高く、水質は地質や滞留時間の影響を受けて形成されていると考えられる。

各地点の湧水、自噴井のd-excess値（= $\delta\text{D} - 8 \times \delta^{18}\text{O}$ ）をTable 4に、その平面分布図をFig. 4に示した。地下水や湧水の源である降水のd-excess値は、降水をもたらす水蒸気が形成される際の湿度等の条件によって異なることが報告されており、太平洋側の湿潤な環境下で形成された水蒸気

のd-excess値は相対的に低くなり、日本海側の乾燥した条件下で形成された水蒸気のd-excess値は相対的に高くなる⁸⁾⁹⁾。従って、地下水や湧水のd-excess値も日本海側に近くなるほど相対的に高い値を示し、太平洋側に向かうにつれて徐々に低くなる漸次的な変化が認められる¹⁰⁾。本調査では調査範囲がそれほど広くなく、地点も限られていることが影響してか、上記に示したような経度方向のd-excess値の変化は認められない。一方で、降水のd-excess値は標高と正の相関を持つことが著者のこれまでの観測結果から示されており¹¹⁾、より標高の高い場所で涵養された水のd-excess値は相対的に高い値を示すことが予想される。Fig. 4では、KR-99～KR-101の湧水はd-excess値が相対的に低く、KR-102～108の自噴井はd-excess値が相対的に高くなっていることから、自噴井は比較的標高の高い場所で涵養されたであろうことが導かれる。この推論についても、同位体比や水質を用いた涵養標高に関する推定と矛盾がない。

このように、湧水や地下水の水温やEC、溶存成分の結果から帯水層や滞留時間の違いについて予測でき、酸素や水素の安定同位体比の結果から涵養域について推定できる。こうした複数の結果を併せて検討することで、地下水等の詳細な水質特性や起源などを把握することが可能となる。なお、安定同位体やd-excess値により推定した涵養標高の違いについては、³HやCFCs等による滞留時間の推定結果を用いて検討することにより、より明瞭に示すことができるかと期待される。こちらについては今後、考察を進める予定である。

4.4 微量元素の特徴

ICP-MSで測定した微量元素の濃度をTable 5に示した。なお、ICP-MSでは51元素の測定を行っているが、このうちNa, K, Ca, Mg, SiについてはICの結果および吸光光度計により測定しているため、これら5元素を除いた46元素について示した。また、表でN.D.と示した項目は“not detected (未

Table 5 Concentration of trace element in groundwater and spring water.

No	7 Li μg/L	11 B μg/L	27 Al μg/L	31 P μg/L	45 Sc μg/L	47 Ti μg/L	51 V μg/L	52 Cr μg/L	55 Mn μg/L	56 Fe μg/L	59 Co μg/L	60 Ni μg/L	63 Cu μg/L	66 Zn μg/L	71 Ga μg/L	72 Ge μg/L
KR-98	0.368	14.927	8.464	N.D.	0.072	1.086	0.203	0.089	1.334	9.127	0.028	0.070	0.317	2.661	0.002	0.005
KR-99	0.190	23.782	1.560	N.D.	0.094	0.859	0.435	0.868	0.205	1.165	0.034	0.060	0.173	0.922	0.003	0.010
KR-100	0.098	25.815	1.441	N.D.	0.087	0.749	0.437	0.404	0.106	0.666	0.044	0.087	0.790	2.535	0.004	0.011
KR-101	0.313	14.688	122.593	N.D.	0.065	3.274	0.314	0.113	3.349	49.767	0.053	0.054	0.338	1.180	0.021	0.006
KR-102	11.514	7.905	1.573	301.597	0.325	4.778	0.038	0.063	189.126	3491.505	N.D.	0.073	0.152	1.397	0.002	0.056
KR-103	10.301	24.955	N.D.	139.892	0.295	4.300	0.025	0.025	158.705	1057.492	N.D.	N.D.	0.070	0.310	0.002	0.043
KR-104	15.369	10.864	1.188	147.490	0.256	3.503	0.013	N.D.	446.015	2719.097	N.D.	0.023	0.138	0.607	0.002	0.117
KR-108	4.134	15.214	2.665	72.219	0.186	2.735	0.013	N.D.	16.938	14.292	N.D.	0.018	0.082	0.596	0.014	0.106

No	75 As μg/L	78 Se μg/L	85 Rb μg/L	88 Sr μg/L	89 Y μg/L	90 Zr μg/L	95 Mo μg/L	107 Ag μg/L	111 Cd μg/L	118 Sn μg/L	121 Sb μg/L	133 Cs μg/L	137 Ba μg/L	139 La μg/L	140 Ce μg/L
KR-98	0.051	0.163	1.453	128.659	0.466	N.D.	0.019	0.006	0.044	0.001	0.007	0.009	39.492	0.382	N.D.
KR-99	0.062	0.282	1.635	98.993	0.356	N.D.	0.623	0.003	0.016	0.005	0.021	0.014	7.773	0.391	N.D.
KR-100	0.064	0.225	2.529	106.994	0.179	N.D.	0.425	N.D.	0.016	0.007	0.029	0.019	10.324	0.152	N.D.
KR-101	0.047	0.087	1.255	134.380	0.438	0.010	0.098	N.D.	0.035	0.002	0.005	0.024	11.170	0.478	0.121
KR-102	0.714	0.015	1.224	37.521	0.163	0.002	1.600	N.D.	0.001	0.010	0.002	0.007	3.157	0.075	0.176
KR-103	0.469	0.015	1.369	33.906	0.053	0.009	1.676	N.D.	0.002	0.020	0.043	0.010	3.082	0.025	0.044
KR-104	0.011	N.D.	1.125	55.925	N.D.	N.D.	0.547	N.D.	N.D.	0.005	0.001	0.006	1.410	0.002	N.D.
KR-108	0.006	N.D.	0.831	59.847	N.D.	N.D.	0.475	N.D.	N.D.	0.002	0.001	0.005	1.498	0.003	N.D.

No	141 Pr μg/L	146 Nd μg/L	147 Sm μg/L	153 Eu μg/L	157 Gd μg/L	159 Tb μg/L	163 Dy μg/L	165 Ho μg/L	166 Er μg/L	169 Tm μg/L	172 Yb μg/L	175 Lu μg/L	182 W μg/L	208 Pb μg/L	238 U μg/L
KR-98	0.048	0.180	0.030	0.014	0.046	0.007	0.040	0.009	0.030	0.004	0.033	0.006	N.D.	0.052	0.001
KR-99	0.046	0.166	0.027	0.006	0.035	0.005	0.034	0.010	0.043	0.008	0.076	0.016	N.D.	0.102	0.003
KR-100	0.016	0.059	0.009	0.003	0.013	0.002	0.017	0.006	0.030	0.007	0.066	0.015	N.D.	0.123	0.003
KR-101	0.058	0.199	0.037	0.009	0.043	0.007	0.043	0.011	0.037	0.006	0.059	0.012	N.D.	0.190	0.008
KR-102	0.023	0.099	0.028	0.006	0.034	0.006	0.033	0.007	0.021	0.003	0.018	0.003	N.D.	0.022	0.041
KR-103	0.007	0.032	0.008	0.002	0.013	0.002	0.012	0.003	0.008	0.001	0.006	0.001	N.D.	0.062	0.013
KR-104	0.001	0.003	N.D.	N.D.	0.002	N.D.	N.D.	N.D.	0.001	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	0.017	N.D.
KR-108	0.001	0.004	N.D.	N.D.	0.002	N.D.	0.001	N.D.	N.D.	N.D.	0.001	N.D.	N.D.	0.017	0.001

N.D. : Not Detected

検出)”を意味してる。

殆どの元素は濃度が $0.1 \mu\text{g/L}$ 以下であるが、比較的多く含まれている元素は、Li, B, Al, P, Ti, Mn, Fe, Zn, Sr, Baである。なお、ここで示しているSr（ストロンチウム）は水に溶存している元素（質量数88のSr安定同位体）の濃度であり、放射性Srとは異なるものである。これらの元素のうち、Al, P, Mn, Fe, Srは $100 \mu\text{g/L}$ 以上含まれる地点が存在し、特にFeについては最大で約 $3,500 \mu\text{g/L}$ (3.5 mg/L)と高濃度の地点も認められる。

いくつかの元素では湧水（KR-98～KR-101）と自噴井（KR-102～KR-108）で値が異なるものがある。Li, P, Mn, Feは自噴井のほうが高濃度を示し、SrとBaは湧水のほうが相対的に高い値となっている。MnやFeは主に地質（岩石）から供給され、嫌気的な条件下にある深層の地下水ではMnやFeは帯水層中に溶出し、高濃度で溶存する場合がある。こうした地下水が揚水され、大気に触れて酸化されると、MnやFeは不溶性の酸化物に変化し、褐色の沈殿などを生じさせることになる。特に、MnやFe濃度の高いKR-102, KR-103, KR-104では自噴井の出水口に多量の褐色の沈殿が生じており、水中に溶存していたMn, Feが酸化物となって沈殿していることが明らかである。また、MnとFeの相関図を作成したところ（Fig. 5 a）、正の相関が認められ、両元素の挙動が一致しやすいことが示された。これまでに実施した調査の結果から、南相馬市や相

馬市の地下水（自噴井を含む）や湧水では、本稿で示した地点以外にも高濃度のFeやMnを含む地点が複数存在することが確認されており¹²⁾、これら元素を多量に含む帯水層が広い範囲で分布していることが示唆される。また、FeとAsの挙動にも関連があることが指摘されており¹³⁾、本研究地の湧水、自噴井についてFeとAsの相関図を作成したところ（Fig. 5 b）、一部外れている地点はあるが概ね正の相関が認められ、Feが高濃度の地点ではAs濃度も相対的に高くなることが示された。なお、本稿で示した地点に関しては、As濃度はいずれも水道水質基準 ($10 \mu\text{g/L}$) 以下であり、この点において何ら問題ないことを付け加えておく。

Pについては、湧水では全て未検出であるのに対し、自噴井では $72\sim 301 \mu\text{g/L}$ と高濃度である。Pの起源として、生活排水や工場排水、農業活動等が挙げられるが、こうした事例は比較的浅い地下水や湧水、湖沼水や河川水等で生じており、深度の深い地下水（自噴井）の高濃度Pの要因としては考えにくい。他の起源として、地質や土壌からの供給が挙げられる。地質（岩石）の違いにより地下水中のP濃度が異なることが既存研究において指摘されており¹⁴⁾、本地域の自噴井でもこうした地質の影響を受けてP濃度が高くなっていると考えられる。

Srについても主に地質（岩石）から供給されるため、地質の違いによって地下水、湧水のSr濃度も変化する。本研究地域では湧水のほうがSr濃度

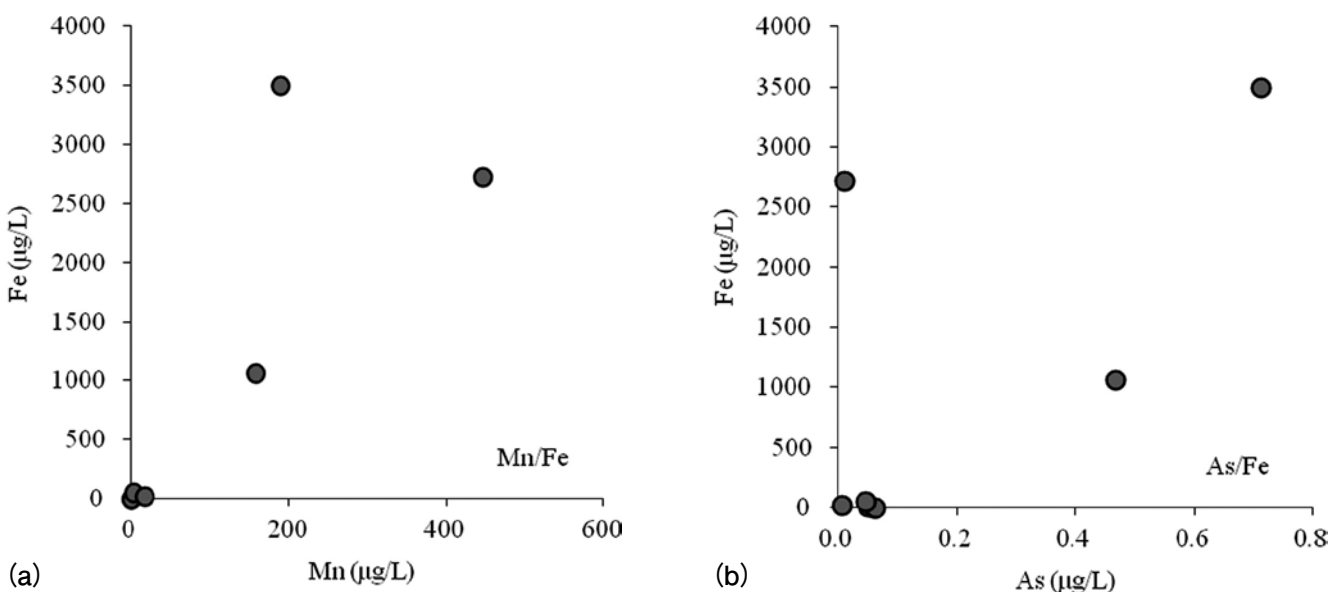


Fig.5 Relation between (a) Mn and Fe, (b) As and Fe.

は高くなっており、これは湧水が位置する台地部に分布する堆積岩類や段丘堆積物の影響を反映していると予想される。

以上のように、今回の調査地点においては、場所の違いではなく、湧水と自噴井の種別の違い、即ち帯水層の違いにより、溶存する微量元素濃度の特徴が異なることが明らかとなった。今後、沿岸域の復興に伴い、生活用水や農業用水として地下水利用の増加が予想される。地下水涵養量以上の過剰な揚水を行えば、地下水の水位低下や地盤沈下の問題が生じる危険性がある。また、FeやMnが高濃度含まれる場合には、井戸のポンプが故障しやすくなったり、井戸そのものが目詰まりして使えなくなったりする場合があります。水質に対する注意も必要とされる。持続可能な地下水利用のためにも、広域を対象とした地下水や湧水等の水質データの蓄積や継続的な観測、地下水流動の把握の重要性が一層増していると言えよう。

5. まとめ、今後の課題

2016年12月に実施した南相馬市原町区と小高区の湧水および自噴井の調査、採水試料の分析結果から、以下の事柄について明らかとなった。

1. 現地で計測した水温、EC、pHの特徴から、「KR-99・KR-100」、「KR-102・KR-103」、「KR-104・KR-108」の3グループに区分することができた。また、ORPが負の値を示すKR-102、KR-103、KR-104およびKR-108（負の値ではないが相対的に低い）は嫌気的な条件下にある地下水、KR-98、KR-99、KR-100、KR-101は好気的な条件下にある湧水であることが明らかとなった。これらの結果から、湧水4地点は比較的滞留時間の短い浅層の水、自噴井4地点は相対的に滞留時間が長い深層の地下水であることが示された。
2. 無機溶存成分の結果を利用して水質組成図を作成したところ、KR-98は $\text{Na}^-(\text{Cl}+\text{SO}_4)$ 型で、津波の浸水の影響（土壤に吸着した塩分の影響）が及んでいることが明瞭である。KR-99とKR-100は Ca-HCO_3 型、KR-102とKR-103は Na-HCO_3 型で、それぞれほぼ同一の水質組成の特徴を有し、同じ帯水層の水である可能性が高いと考えられる。KR-101は、元はKR-99やKR-100と同様に Ca-HCO_3 型の水質組成であったと思われるが、硝化細菌による硝化の際に炭酸が消費されて、 HCO_3^- 濃度が低くな

り、現在のような水質組成になったと予想される。KR-104とKR-108は Ca-HCO_3 型で、濃度は若干異なるものの、水質組成としてはほぼ同様であり、こちらも同じ帯水層の水である可能性が高い。

3. SiO_2 濃度は、湧水4地点では14~18 mg/L、自噴井4地点では58~82 mg/Lで、湧水と自噴井の違いが明瞭である。一般的に SiO_2 は岩石から供給されるため、同じ地質条件である場合には地層中により長く滞在している水ほど濃度が高くなる傾向が認められることから、 SiO_2 濃度が低い湧水は滞留時間が短く、 SiO_2 濃度が高い自噴井は滞留時間が長い水であると考えられる。
 4. $\delta^{18}\text{O}$ と δD は、KR-98からKR-101までの湧水では相対的に同位体比は高く、KR-102からKR-108までの自噴井では相対的に低い同位体比を示している。同位体の高度効果の特徴から、湧水よりも自噴井（地下水）のほうが相対的に標高が高い場所で涵養された水であると予想される。
 5. ICP-MSによる微量元素濃度の結果より、Al、P、Mn、Fe、Srでは100 $\mu\text{g/L}$ 以上含まれる地点が存在し、特にFeについては最大で約3,500 $\mu\text{g/L}$ (3.5 mg/L)と高濃度の地点が認められた。また、いくつかの元素では湧水と自噴井で値が異なるものがあり、Li、P、Mn、Feは自噴井のほうが高濃度を示し、SrとBaは湧水のほうが相対的に高い濃度となっている。特に、MnやFe濃度の高いKR-102、KR-103、KR-104では自噴井の出水口に多量の褐色の沈殿が生じており、嫌気的な条件下で水中に溶存していたMn、Feが、水が揚水されて大気に触れることで酸化物となって沈殿していることが明らかとなった。Pについては、全ての湧水で未検出であるのに対し、自噴井では72~301 $\mu\text{g/L}$ と高濃度である。これら自噴井のPの起源は、地質や土壤からの供給であると予想される。また、FeやMnが高濃度含まれる場合には、井戸のポンプが故障しやすくなったり、井戸そのものが目詰まりして使えなくなったりする場合があります。地下水利用の際には微量元素の特徴についても把握することが重要である。
- 今後も沿岸域の調査を実施して各種データを蓄積し、地下水流動の解明に努める予定である。また、本稿で報告した湧水や地下水のデータが、他の調査・研究等において少しでもお役にたてれば幸いである。

謝 辞

本調査を実施するにあたり、井戸の所有者の皆さま

には快くご協力いただきました。改めて深く御礼申し上げます。また、本研究の一部は、平成26～27年度科学研究費補助金（若手（B））、課題番号：26870070、代表者：藪崎志穂）、平成28～30年度科学研究費補助金（基盤（C））、課題番号：16K01212、代表者：藪崎志穂）、平成29年度総合地球環境学研究所所長裁量経費の補助を受けて実施しております。

参考文献

- 1) 中馬教允・長江亮二 (1991)：福島県原町市の地盤沈下対策の効果と今後の地盤環境保全上の課題。行政社会論集, 3(2), 57-67.
- 2) 原町市教育委員会文化財課市史編纂室 編 (2005)：「原町市史 第8巻 特別編 I 自然」。原町市, 887p.
- 3) 気象庁HP (2018)：各種データ・資料。URL：<http://www.jma.go.jp/jma/menu/menureport.html> (2018年7月1日閲覧)
- 4) 国土交通省HP (2018)：水管理・国土保全（水資源）。URL：http://www.mlit.go.jp/mizukokudo/mizsei/mizukokudo_mizsei_tk2_000012.html (2018年7月1日閲覧)
- 5) 藪崎志穂 (2018)：津波被害を受けた湧水の時間経過に伴う水質変化——南相馬市沿岸部に位置する湧水の観測例——。日本水文科学会誌, (2018年4月19日採択済み)
- 6) 鹿園直建 (2002)：化学的風化作用の河川水水質、特に溶存シリカ濃度に与える影響。地学雑誌, 111, 55-65.
- 7) Clark, I. and Fritz, P. (1997)：Environmental isotopes in hydrogeology. Lewis Publishers, 328p.
- 8) 早稲田周・中井信之 (1983)：中部日本・東北日本における天然水の同位体組成。地球化学, 17, 83-91.
- 9) 田上雅浩・一柳錦平 (2016)：日本における降水のd-excessと水蒸気の起源。日本水文科学会誌, 46(2), 101-115.
- 10) 藪崎志穂 (2011)：地下水の水質と安定同位体の特徴およびその活用法。高村弘毅編「地下水と水循環の科学」。古今書院, 41-68.
- 11) 藪崎志穂・河野 忠 (2012)：京都盆地で採取した標高別降水の安定同位体比特性。地球環境研究, 14, 23-30.
- 12) 藪崎志穂 (2016)：福島県北部沿岸域の地下水の水質・同位体比を用いた地下水流動に関する考察——結果と今後の課題——。水文・水資源学会 2016年度研究発表会要旨集, 186-187.
- 13) 中島 進・森井ふじ (1982)：琵琶湖湖底堆積物中のマンガン、鉄、ヒ素の蓄積機構。農学研究, 89, 189-201.
- 14) 小林 浩・輿水達司 (1999)：富士山麓及び甲府盆地周辺に位置する地下水及び湧水中のリン起源。地下水学会誌, 41(3), 177-191.

〔原稿受付（2018年7月17日）、査読なし〕