

トレーサビリティー基盤情報としての環境水の多元素同位体比マップ：東北日本の例 Geochemical and isotopic map of stream water as a basis of environmental traceability an example of northeastern Japan

中野 孝教^{1*}; 申 基澈¹; 陀安 一郎¹; 由水 千景¹; 奥田 昇¹; 加藤 義和²; 神松 幸弘²; 栗田 豊³;
天野 洋典³; 富樫 博幸³; 石山 大三⁴
NAKANO, Takanori^{1*}; SHIN, Kichioel¹; TAYASU, Ichiro¹; YOSHIMIZU, Chikage¹; OKUDA, Noboru¹;
KATO, Yoshikazu²; KOHMATSU, Yukihiko²; KURITA, Yutaka³; AMANO, Yosuke³; TOGASHI, Hiroyuki³;
ISHIYAMA, Daizo⁴

¹ 総合地球環境学研究所, ² 京都大学生態学研究センター, ³ 東北区水産研究所, ⁴ 秋田大学国際資源学部
¹Research Institute for Humanity and Nature, ²Ecological Research Center, Kyoto University, ³Tohoku National Fisheries Research Institute, ⁴Faculty of International Resource Sciences, Akita University

複雑化する地球環境変化に対応するには、予防原則に立ち、環境に存在する様々な物質について、その発生源にまでさかのぼって追跡可能なトレーサビリティー手法の確立とその社会実装が不可欠である。地球上の物質は92種類の元素で構成されるが、そのうち半数程度の元素に安定同位体が存在する。元素の安定同位体比は、元素組成以上に物質の発生源に関するトレーサビリティー情報となりうることから、総合地球環境学研究所（地球研）では、各種元素分析装置や安定同位体比分析装置を整備すると共に、大学共同利用機関法人として、その広範な利活用を図るために、同位体環境学共同研究事業を公募し実施している。

この事業の一つとして、環境水の元素組成や安定同位体比の分布を明らかにする水質マップ研究を実施している。これは、動植物や農水産物に含まれる諸元素が、基本的に地表水や地下水、土壌水などの環境水に由来すること、またそれらの組成が、時間的変化に比べて地理的変化の方がはるかに大きいことに基づいている。地域レベルで得られた環境水マップに関するデータを集積し、日本、アジア、さらに世界へと展開できれば、水物質循環、生物多様性、気候変動などの地球環境研究だけでなく、農水産物や食品なども含めたトレーサビリティー研究の基盤情報となる。

本研究では、東北地方の約1000地点で採取した環境水について、主要元素と微量元素の濃度および水素・酸素・ストロンチウムの同位体比を測定し、地質図や河川堆積物の地球化学マップ（産業技術総合研究所）と比較検討した。平野部の河川の硝酸イオン濃度の多くは 3mgL^{-1} 以下であったが、山地域（ $<1\text{mgL}^{-1}$ ）に比べて有意に高く人為由来の窒素の寄与が認められる。

塩素イオンや硫酸イオンも熱水地域で高いが、それを除くと秋田・宮城両県の平野域で高く、人為由来の塩素や硫黄の寄与が認められる。水の水素と酸素の安定同位体比は、緯度効果や高度効果が認められる。重水素過剰値は日本海側で特徴的に高く、とくに山地域で高いことは、降雪の寄与が強いことを示している。

河川水のストロンチウムの安定同位体比（ $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ）は、火山岩や花崗岩の分布域（0.704~0.706）に比べてグリーンタフ地域（0.706~0.707）で高い。堆積岩類も南部北上帯（0.7065~0.708）に比べて北部北上帯（0.709~0.712）は高く、基盤地質の違いを反映している。しかし、火成岩地域の河川水の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ は岩石に比べて高いのに対して、堆積岩地域の河川水は低く、降水の寄与あるいは構成鉱物の選択的風化を示唆している。

地球化学的挙動が似ているSrとCaは、河川水も河川堆積物も互いに似た濃度分布を示すが、両者の分布パターンは一致しない。風化しにくいカリウム系元素のK、Rb、Csなどのアルカリ元素も互いに似た分布パターンを示すが、河川水の分布パターンは河川堆積物のそれと異なる。他の主要陽イオンについても同様な分布の不一致が見られることは、岩石風化過程での元素分別が大きいことを示している。いっぽう、河川水のSr/Caは花崗岩や火山岩地域で高く、地質との対応が認められる。この原因としては、風化する鉱物のSr/Caを反映している可能性がある。

レアアース元素も北部北上地域の河川水で低いが、同地域の河川堆積物は高い。河川堆積物の重金属元素は鉱山地域で高いことが知られているが、熱水および鉱山地域を除くと、河川水との間で顕著な正の相関は見られない。これら元素は堆積物への吸着性が強いことが知られているが、河川堆積物の飽和吸着量が一定の場合、溶存元素濃度が高くなるほど、吸着量は低下する。河川堆積物への吸着・脱着反応は、河川水の水質に大きな影響を与えていると考えられる。

キーワード: 地球化学マップ, 同位体マップ, 河川水, トレーサビリティー, 東北日本
Keywords: geochemical map, isotopic map, stream water, traceability, northeastern Japan

エアロゾル粒子のHCl可溶Pbと残渣Sr-Ndの同位体比から推定される大気中鉛の起源

Sources of atmospheric lead inferred from isotope ratios of HCl-soluble Pb and the residual Sr-Nd of aerosol particles

齋藤 有^{1*}; 梅澤 有²; 河本 和明²; 谷水 雅治³; 石川 剛志³

SAITOH, Yu^{1*}; UMEZAWA, Yu²; KAWAMOTO, Kazuaki²; TANIMIZU, Masaharu³; ISHIKAWA, Tsuyoshi³

¹ 高知大学海洋コア総合研究センター, ² 長崎大学, ³ 海洋研究開発機構高知コア研究所

¹Center for Advanced Marine Core Research, Kochi University, ²Nagasaki University, ³Kochi Institute for Core Sample Research, JAMSTEC

Lead is one of the major pollutants of atmospheric environment. Around the East Asia, China is known as the major emission source of atmospheric lead. It is obvious that the influence reaches Japan across the sea. However, it is not clear which part of China is the major pollutant source of Japanese air and if there is seasonal change of sources. In order to reveal these, we conducted Pb isotope analysis of HCl-soluble component of aerosol particles sampled with high temporal resolution from August 2011 to August 2012 at the Omura City, north Kyushu. In association with Sr-Nd isotope ratios of HCl-insoluble component and air-mass back trajectory analysis, the four regions, the north, inland, south China, and Korea, were recognized as the discrete sources of atmospheric lead. Among the four areas, the north China is important in amount of lead. Atmospheric lead in the Omura City is mainly derived from the north and inland China during fall and winter. On the other hand, it is transported from Korea during a few days in fall, and from the south China during a few days in summer.

キーワード: エアロゾル, 大気鉛, 越境汚染

Keywords: Aerosol, Atmospheric lead, cross-border pollution

マルチ・トレーサーによる地下水―地表水循環系の推定 ―福井県大野盆地の事例― Multi-tracers approaching to groundwater and surface water interaction in Ono basin surrounded by steep mountains, Japan

池田 浩一^{1*}; 辻村 真貴²; 中野 孝教³; 帰山 寿章⁴

IKEDA, Koichi^{1*}; TSUJIMURA, Maki²; NAKANO, Takanori³; KAERIYAMA, Toshiaki⁴

¹ 筑波大学大学院 生命環境科学研究科, ² 筑波大学 生命環境系, ³ 総合地球環境学研究所 研究高度化支援センター, ⁴ 大野市役所 産経建設部

¹Graduate School of Life and Environmental Sciences, University of Tsukuba, Ibaraki, Japan, ²Faculty of Life and Environmental Sciences, University of Tsukuba, Ibaraki, Japan, ³Center for Research Promotion, Research Institute for Humanity and Nature, Kyoto, Japan, ⁴Industrial Economics and Construction Department, Ono city office, Fukui, Japan

山地源流域と下流に位置する沖積平野は、地下水流動系の観点からそれぞれ水の涵養域、流出域として重要である。特に、地下水と地表水の交流関係は、山地から沖積平野に至る地下水流動系を理解するための最も重要なプロセスの一つである。

流域面積が 948 平方キロメートル、標高が 250 メートルから 2060 メートルを示す急峻な山地に囲まれた流域を対象に水文調査を行い、盆地内の地下水を対象に 258 地点、流下する 4 河川沿いに 112 地点の地表水を対象に採水を行った。また、すべての水試料に対して酸素安定同位体比 ($\delta^{18}\text{O}$) と水素安定同位体比 (δD) およびストロンチウム同位体組成 ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$) を測定した。

酸素安定同位体比 ($\delta^{18}\text{O}$) と水素安定同位体比 (δD) は支川小流域毎に異なる値を示し、4 流域の平均涵養標高の違いによる影響について示している。また、ストロンチウム同位体組成 ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$) も同様に支川小流域毎に異なる値を示し、4 流域の地質の占める割合の違いによる影響を示している。

流域内を流動する地下水の酸素安定同位体比 ($\delta^{18}\text{O}$)、水素安定同位体比 (δD) およびストロンチウム同位体組成 ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$) は、近隣を流下する河川水に近い値を示しており、該当地域における浅層地下水は河川水からの涵養が支配的であることを示唆している。また、流量観測により示された河川流量の減少傾向の結果は、トレーサーにより示唆された地下水と地表水の交流関係について支持する結果である。

キーワード: 地下水流動系, 地下水―河川水循環系, 水素・酸素安定同位体比, ストロンチウム同位体組成, マルチ・トレーサー手法

Keywords: Groundwater flow system, Circulatory system of groundwater and surface water, Hydrogen and oxygen isotope ratio, Sr isotopic composition, Multi tracers approach

スギの植林が環境中の金属元素動態を変える Plantation of *Cryptomeria japonica* might alter dynamics of metal element

太田 民久^{1*}; 申 基澈¹; 日浦 勉²
OHTA, Tamihisa^{1*}; SHIN, Ki-cheol¹; HIURA, Tsutomu²

¹ 総合地球環境学研究所, ² 北海道大学 苫小牧研究林

¹Research Institute for Humanity and Nature, ²Tomakomai Research Station, Hokkaido University

In this study, we found dynamics of many metallic elements in catchment areas may be altered by plantation of *Cryptomeria japonica*.

Organisms can alter nutrient dynamics in ecosystems via physiological results such as respiration, decomposition and excretory processes. Many studies have established importance of the alteration of nutrient dynamics by organisms in ecosystems. Especially, dynamics of carbon, nitrogen and phosphorus can be altered by physiological responses of organisms. However, there are few studies that focused on effects of organisms on dynamics of metallic elements in ecosystems.

Our previous studies showed that the vegetation in catchment area might alter calcium concentration in the soils and water of streams, and affect the community structure of invertebrates in soils and streams. In these studies, we observed that concentration of exchangeable calcium in the Japanese cedar (*C. japonica*) plantations is about three times higher than in the evergreen broad-leaved forests. This might indicate *C. japonica* has characteristics that alter dynamics of metallic elements in soil. We focused on organic acids extracted from roots of tree because some studies showed root exudation of organic acids could elute materials in soil particles and base-rocks.

We conducted field survey and a pot experiment in Wayakama Experimental Forest of Hokkaido University. And we determined the reason why the elevation of calcium concentration in plantation of *C. japonica* occurs. In consequences, our results showed plantation of *C. japonica* might increase exchangeable metallic ion in soils through increased supply of organic acids to soil systems. And the some eluted metallic ions might be supplied to streams.

キーワード: 河川, 土壌, 金属イオン, スギの植林, 有機酸

Keywords: stream, soil, metallic ion, plantation of *Cryptomeria japonica*, organic acids

ストロンチウム同位体比によるワサビ産地判別の有用性 Usefulness of strontium isotope composition for determining the geographical origin of Japanese horseradish

神谷 貴文^{1*}; 中村 佐知子¹; 伊藤 彰¹; 大山 康一¹; 西島 卓也²; SHIN Kicheol³
KAMITANI, Takafumi^{1*}; NAKAMURA, Sachiko¹; ITO, Akira¹; OHYAMA, Koichi¹; NISHIJIMA, Takuya²;
SHIN, Kicheol³

¹ 静岡県環境衛生科学研究所, ² 静岡県農林技術研究所, ³ 総合地球環境学研究所

¹Shizuoka Institute of Environment and Hygiene, ²Shizuoka Prefectural Research Institute of Agriculture and Forestry, ³Research Institute for Humanity and Nature

静岡県の地質は東部の新しい火山岩から西部の古い堆積岩や変成岩まで多岐にわたっており、大気降水物や人為的な影響が少ない河川最上流部の湧水の水質は、各地の地質を反映した元素・同位体組成になると考えられる。このような湧水地で栽培されるワサビを対象として、産地判別におけるストロンチウム同位体比 ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$) の有用性を評価した。21地点においてワサビ 59 サンプルおよびその生育地である湧水 58 サンプルを採取し、微量元素・ $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を測定した。その結果、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ は地質の特徴によって異なる値となり、同地点のワサビと湧水の値がほぼ一致することを確認した。バナジウムなどの微量元素と $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の値を組み合わせることで比較することにより、地質の異なるワサビ産地を特定できることが明らかになった。

キーワード: 地理的起源, ワサビ, ストロンチウム同位体比, 微量元素, 静岡県

Keywords: geographical origin, Japanese horseradish (*Wasabia japonica*), strontium isotopic composition, trace element, Shizuoka prefecture

鉛安定同位体比分析による近世以前の日本の金属製錬技術解明の可能性 A possibility of the elucidation of smelting process in pre-modern Japan by stable lead isotope ratio analysis

中西 哲也^{1*}; 申 基澈²; 井澤 英二³
NAKANISHI, Tetsuya^{1*}; SHIN, Ki-cheol²; IZAWA, Eiji³

¹九州大学総合研究博物館, ²総合地球環境学研究所, ³九州大学

¹The Kyushu University Museum, ²The Research Institute for Humanity and Nature, ³Kyushu University

日本における非鉄金属の生産は 674 年の対馬における銀の生産が始まりと言われている。以来、日本では国内各地で鉱山開発が積極的に行われてきた。また、新しい製錬技術の導入により金属生産量が増加し、金・銀・銅の輸出は近代日本における資本の蓄積に繋がってきた。

鉛は近世以前の金属製錬には不可欠な金属であり、16 世紀の石見銀山では、銀鉱石に鉛を加えて製錬を行う事で、銀を効率よく生産した。また銅の精錬で用いられた南蛮吹では、銅に鉛を加える事で、金銀等の不純物の分離を行ってきた。

本研究では、石見銀山における銀製錬に用いられた鉛の産地を同定する目的で、西日本の鉱山（石見銀山、磯竹鉛山、久喜鉛山、長登銅山、多田銀銅山、小泉鉛山、佐野鉛山）の鉱石および製錬滓（スラグ）試料 47 点について、総合地球環境学研究所に設置されている二重収束型 MC-ICP-MS(NEPTUNE PLUS) を用いて、鉛安定同位体比の分析を行った。

分析試料の作成は以下の手順に従った。粉末試料約 0.1g をフッ酸、過塩素酸、硝酸を用いて酸分解後、蒸発乾固し 3.5N HNO₃ で溶解。Pb 濃度約 1000ng/ml に調製した溶液試料 0.3ml を用い、2 ml テフロンカラムにて Spec resin (Sr) および MGI gel (Pb) を用いて Pb を分離。6N HCl(3ml) にて回収し、7ml テフロン容器にて 95 °C で蒸発乾固。さらに 3 % HNO₃(4ml) を加えて溶解。この内 1.5ml を測定用の 2ml 容器に移し、Tl 標準液 (920ng/ml) 0.13ml を添加し、分析試料とした。

分析時は鉛同位体比標準試料として NBS SRM981 を用いて分析値を補正した。分析の際の標準誤差 (2σ) は、NBS SRM981 の繰り返し測定により、²⁰⁶Pb/²⁰⁴Pb(± 0.002)、²⁰⁷Pb/²⁰⁴Pb(± 0.002)、²⁰⁸Pb/²⁰⁴Pb(± 0.005) であった。

得られた分析値は、各鉱山毎にまとまった分布を示し、特に山陰帯の花崗岩分布域の石見銀山、磯竹鉛山と山陽帯のその他の鉱山では、明瞭に分布が分かれた。石見銀山のスラグの鉛同位体比は、石見銀山の鉱石と近隣の磯竹鉛山の鉱石の値との中間に分布し、製錬の際に磯竹の鉛が使われていた事を裏付けるデータを得た。一方、当初石見銀山の銀製錬に用いた鉛の産地として想定していた久喜鉛山の鉛同位体比の値は、今回分析した石見銀山のスラグ試料の値とは大きく離れ、久喜鉛山の鉛の使用を確認するには至らなかった。最後に、今回の分析の結果では、非常に精度の良い鉛同位体比得られており、今後分析数を増やす事により、スラグ試料毎に原料鉱石や添加した鉛の産地を推定できる可能性が示唆される。

キーワード: 鉛安定同位体, 近世日本, 製錬技術

Keywords: stable lead isotope ratio, pre-modern Japan, smelting process

ICP 質量分析法を用いた安定同位体地球化学の現状と将来 Recent progresses in the ICP-mass spectrometry as rapid, accurate and flexible analytical tool for isotopes geosciences

平田 岳史^{1*}; 山方 優子¹; 田中 佑樹¹; 坂田 周平¹; 服部 健太郎¹; 宗林 由樹¹
HIRATA, Takafumi^{1*}; YAMAGATA, Yuko¹; TANAKA, Yu-ki¹; SAKATA, Shuhei¹; HATTORI, Kentaro¹; SOHRIN, Yoshiki¹

¹ 国立大学法人京都大学

¹ Kyoto University

Rapid and unremitting developments in inorganic mass spectrometry, including a multiple collector-ICP-mass spectrometry (MC-ICPMS), have revolutionized the precision of the isotopic ratio measurements, and the applications of the inorganic mass spectrometry in geochemistry, metrology and biochemistry were beginning to appear over the horizon. Analytical community is actively solving problems, such as spectral interference, mass discrimination drift, high-yield chemical separation and purification processes, or reduction of the contamination of analytes. The variations in isotopic ratios of the heavy elements can provide new insights into past and present geochemical and biochemical processes.

Stable isotope tracers are now increasingly being used in studies of elemental metabolism, bioavailability or toxicity of nutrients, as well as evaluating the elemental turnover time. Besides an absence of harmful radiation, this approach has the further advantage of enabling multi-element studies, in which different isotopes can be added to the same meal. The metabolism of higher organisms can be transcribed as stable supply of the most essential elements through transfer, absorption, and storing processes, which form the basis of homeostasis function. Because of the homeostasis control, fluctuations or changes in the concentration of the essential nutrients would be highly restricted to maintain the biochemical functions. This suggests that the impairments in the metabolism or nutritional status of both the essential and toxic metal elements could not be evaluated only by the concentration of the elements in fluids. Variations in the isotopic composition of the elements induced through dietary or metabolism processes have potential to become novel biochemical markers for assessing impairments in metal metabolism or nutritional status of the elements.

Iron is one of the most important inorganic nutrients for all terrestrial plants and animals, and the natural variations in isotope ratio of Fe have been used to trace the food chain. For land organisms, it is widely recognized that the Fe isotope ratios ($^{56}\text{Fe}/^{54}\text{Fe}$ and $^{57}\text{Fe}/^{54}\text{Fe}$) changes by 0.1% with increase the trophic level (Walczyk and Blankenburg, 2002, 2005). In contrast, the Fe isotope data for marine organism of lower trophic levels (plankton, shrimp and tuna) did not vary significantly from the Fe isotope ratio for the seawater. The small variations in the Fe isotope ratios for marine organisms could be explained either by higher intake efficiency of Fe from the dietary foods, or by the smaller isotope fractionation due to intake of hemo-Fe (Fe(II)). However, it should be noted that the reported Fe isotope ratios for marine organisms were very limited, and therefore, possible link between the $^{56}\text{Fe}/^{54}\text{Fe}$ and $^{57}\text{Fe}/^{54}\text{Fe}$ ratios and the trophic level was not clearly demonstrated. To investigate this, we have measured the $^{56}\text{Fe}/^{54}\text{Fe}$ and $^{57}\text{Fe}/^{54}\text{Fe}$ for series of marine creatures of various trophic levels using multiple collector-ICP-mass spectrometer (MC-ICPMS). The measured $^{56}\text{Fe}/^{54}\text{Fe}$ isotopes for marine organisms of higher trophic levels became significantly lower than those for lower trophic levels animals. Several important features of the Fe isotopes for marine creatures could be derived from the present results. The obvious changes in the Fe isotope ratios could be due to different Fe biocycling for higher trophic level animals. Another important feature obtained from the Fe isotopes was that the definition of the trophic level, based on the $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ and $^{15}\text{N}/^{14}\text{N}$ isotope, would not reflect the food chain for inorganic nutrients including Fe. The details of the mechanism in the variation of the $^{56}\text{Fe}/^{54}\text{Fe}$ ratios for both the marine and land organisms will be discussed in this presentation.

Keywords: stable isotope, isotope signature, MC-ICP mass spectrometry, Fe biocycle, trophic level

沿岸生態系研究手法としての多元素同位体の利用 Use of multiple isotope tracers to study coastal ecosystem

陀安 一郎^{1*}; 中野 孝教¹; 栗田 豊²

TAYASU, Ichiro^{1*}; NAKANO, Takanori¹; KURITA, Yutaka²

¹ 総合地球環境学研究所, ² 水産総合研究センター 東北区水産研究所

¹Research Institute for Humanity and Nature, ²Tohoku National Fisheries Research Institute

環境トレーサビリティ手法は物質循環過程に立脚するため、環境科学にかかわるさまざまな事象の研究において利用することができる。特に、人為影響下における環境変化が生態系に及ぼす影響を評価する上では、幅広い応用範囲が想定されるが、体系的な利用にはまだ至っていない。本研究においては、陸域由来元素の安定同位体比と沿岸域で循環する元素の安定同位体比を利用し、海洋沿岸域生態系の研究に環境トレーサビリティ手法がどのように利用可能かという観点について検討する。

生物を構成する元素は環境から取り込まれる。生態学的側面から見れば、環境中の物質の元素組成およびその同位体組成からなる環境情報を生物体に取り込むと考えることができる。一方、環境科学的側面から見れば、生物体を構成する元素組成およびその同位体組成は、生息している環境を表す指標とも解釈できる。生物体への元素の取り込まれ方については、貝殻や耳石のように代謝せず履歴を記録する部位と、臓器や筋肉のように絶えず代謝を行い入れ替わっていく部位がある。取り込まれる過程を考えると、環境水と平衡状態となって取り込まれる元素と、食物から取り込まれる元素がある。これらの元素の動態を考慮すると、生物体の元素組成およびその同位体組成は多くの情報を含んでいると考えられる。

本発表においては、JST-CREST 研究領域「海洋生物多様性および生態系の保全・再生に資する基盤技術の創出」において行っている「沿岸生態系の多様性機能評価のための多元素同位体トレーサー技術の開発」の研究例を示し、多元素安定同位体比を用いた環境トレーサビリティ研究の可能性について議論する。

キーワード: 安定同位体, トレーサビリティ, 沿岸生態系

Keywords: Stable isotope, Traceability, Coastal ecosystem

仙台湾における底生魚類の栄養段階—アミノ酸窒素安定同位体比による推定— Stable nitrogen isotope ratios of amino acids reveal the differences in trophic position of benthic fishes in Sendai Bay

加藤 義和^{1*}; 由水 千景¹; 神松 幸弘²; 富樫 博幸³; 天野 洋典³; 栗田 豊³; 陀安 一郎¹

KATO, Yoshikazu^{1*}; YOSHIMIZU, Chikage¹; KOHMATSU, Yukihiko²; TOGASHI, Hiroyuki³; AMANO, Yosuke³; KURITA, Yutaka³; TAYASU, Ichiro¹

¹ 総合地球環境学研究所, ² 京大・生態研, ³ 東北水研

¹RIHN, ²CER, Kyoto Univ., ³FRA

沿岸域は、漁業資源をはじめとするさまざまな生態系サービスを人類にもたらす一方、乱獲や汚染、開発といった人間活動の影響を受けやすい生態系の一つである。適切な保全管理策を策定する上では、食物網構造およびその動態の正確な把握が不可欠である。しかし、沿岸域に生息する魚類には、生活史に応じて生息場所を大きく変える魚種や広域を回遊する魚種などが含まれているため、それらの時空間スケールを考慮することが、食物網の動態を明らかにするためには重要な課題となる。

食物網研究においては、安定同位体比を用いた栄養段階の推定、特に、バルク（生物体全体）の炭素および窒素安定同位体比（ $\delta^{13}\text{C}_{bulk}$ および $\delta^{15}\text{N}_{bulk}$ ）による推定手法が広く用いられ、食物網構造の解明に大きく貢献してきた。また、漁業資源管理といった応用面においても、安定同位体比を用いて推定された栄養段階は、漁獲資源の指標として重要視されている。

近年の分析技術の発達に伴い、生物組織に含まれる個々のアミノ酸の窒素安定同位体比（ $\delta^{15}\text{N}_{AA}$ ）が栄養段階の推定手法として活用できることが明らかになってきた。生体に含まれるアミノ酸の代謝過程において、代謝の主反応にアミノ基が関わらないアミノ酸（例：フェニルアラニン）では、代謝されるアミノ酸と体組織になるアミノ酸の間で同位体分別が起こらないため、食物連鎖に伴って代謝されても $\delta^{15}\text{N}$ がほとんど変化しない。そのため、このようなアミノ酸では、高次捕食者であっても、一次生産者が持っていた $\delta^{15}\text{N}$ とほとんど変わらない値を示す。一方、代謝の主反応がアミノ基の脱離反応であるアミノ酸（例：グルタミン酸）では、被食-捕食の関係において同位体分別が起こるため、食物連鎖に伴って $\delta^{15}\text{N}$ が 3~8% 上昇する。この推定手法では、動物のグルタミン酸とフェニルアラニンの窒素同位体比の差を計算することによって、一次生産者の値が不明であっても絶対的な栄養段階を以下の式を用いて示すことができる。

$$TL = (\delta^{15}\text{N}_{Glu} - \delta^{15}\text{N}_{Phe} + \beta) / 7.6 + 1$$

ここで、TL は栄養段階、 $\delta^{15}\text{N}_{Glu} \cdot \delta^{15}\text{N}_{Phe}$ はそれぞれグルタミン酸・フェニルアラニンの窒素安定同位体比を表す。 β は一次生産者のグルタミン酸・フェニルアラニン同位体比の差を表し、水域生産者では-3.4‰、陸上 C3 植物では+8.4‰を用いることで、高い精度で栄養段階が推定できるとされている。

本研究では、仙台湾に生息するヒラメおよびイシガレイについて、 $\delta^{15}\text{N}_{AA}$ に基づく栄養段階推定を行った。これらの魚種は、孵化・着底後、水深の浅い沿岸域（浅場）で稚魚期から幼魚期を過ごし、成長に伴って水深の深い沖合へと移動する。しかし、浅場においても大型の成魚が採集されることがある。魚の成長に伴う栄養段階の変化、および環境条件の異なる地点間で見られたパターンの違いを明らかにするために、2012年から2014年にかけて、湾内の多地点において季節ごとに採集を行った。採集した魚の筋組織から、Nピバロイル/イソプロピル誘導体化法によってアミノ酸を抽出した後、ガスクロマトグラフ/燃焼/同位体比質量分析計を用いて各アミノ酸の窒素安定同位体比を測定し、栄養段階を推定した。

解析の結果、稚魚から成魚にかけて、栄養段階が上昇する過程が明らかになった。また、同等の大型個体であっても、浅場と沖合で採集された個体では栄養段階が異なっていた。このことから、大型個体の中にも長期にわたり浅場に留まっている個体がいる可能性が示唆された。水深の深い沖合でも、地点間や季節間で栄養段階の差が見られ、餌生物が変化することが示唆された。さらに、こうした栄養段階の差を用いることにより、アミノ酸同位体情報を用いた個体の移動追跡の可能性についても検討を行った。

キーワード: 沿岸生態系, 食物網, 漁業資源, 移動追跡

Keywords: coastal ecosystem, food web, fishery resources, migration tracing

安定同位体比を用いた食性解析における mixing problem の影響とその解消方法について The effects and solution of "mixing problem" in the dietary analysis using stable isotopes

松林 順^{1*}; 陀安 一郎²
MATSUBAYASHI, Jun^{1*}; TAYASU, Ichiro²

¹ 京都大学生態学研究センター, ² 総合地球環境学研究所

¹Center for Ecological Research, Kyoto University, ²Research Institute for Humanity and Nature

動物の組織を構成する安定同位体の存在比は、その生物が利用した食物源の安定同位体比で決まる。従って、動物の組織とその餌資源の安定同位体比を測定することで、対象動物の食性推定を行うことができる。安定同位体を用いた食性分析研究は、個体ごとに長期間の食性を推定できる点や、過去の試料などにも応用可能であることから、人類学、生態学、考古学など様々な分野で有用なツールとして使用されている。そして、現在最も広く利用されているのが炭素 ($\delta^{13}\text{C}$) と窒素 ($\delta^{15}\text{N}$) の安定同位体比を用いた食性分析手法である。 $\delta^{13}\text{C}$ 値は C_3 植物と C_4 植物で顕著に異なる値を示すことから、それぞれの植物が基盤となる生態系への寄与率を調べることができる。また、 $\delta^{15}\text{N}$ 値は生物の栄養段階に従って値が上昇することから、対象動物がどの栄養段階の食物源により依存したかを推定することが可能である。さらに、近年では食物資源と対象動物の同位体比値から各食物資源の寄与率を推定する、混合モデルによる解析を行う研究も見られるようになった。

しかしながら、安定同位体分析による結果の解釈を行う上では、いくつかの留意点が存在する。そして、食物資源と組織の同位体比の分布によって生じる mixing problem もその一つである。これは、多くの食物資源 (e.g. 4種類以上) を利用する動物の食性解析でしばしば生じる問題であり、動物の同位体比値を説明し得る各食物の寄与率が大きな幅を持つ場合に、混合モデルなどの推定結果にバイアスが生じる現象を意味する。このような分布が見られる場合には、混合モデルの使用の有無に関わらず同位体分析の結果の解釈が困難となるが、現在でもこの問題は十分に認識されていない。

本研究では、北海道のヒグマ (*Ursus arctos*) を例として mixing problem の実例とその解消方法を、実際のデータを用いて示すことを目的とする。雑食動物であるヒグマは、 C_3 植物や陸上動物、サケ、農作物 (C_4 植物を含む) など様々な食物資源を利用する。そして、 C_3 植物と陸上動物及びサケの炭素・窒素同位体比値は、二次元プロット上でほぼ一直線上に分布し、ヒグマの同位体比値はその中間付近に分布する。このような状況では、中間付近の食物の利用割合が高いと考えられがちだが、実際には両端の食物のみの混合でもヒグマの同位体比値を説明することができる。この状況を解消するためには、一直線上に位置する食物のいずれかを明確に分離できる同位体元素を追加する必要がある。本研究では、海由来の資源と陸域の資源を明確に分離できるイオウの安定同位体を追加することで、北海道のヒグマにおける mixing problem の解消を試みた。

北海道の北東端に位置する知床半島のヒグマ 190 個体の骨コラーゲンとその食物資源 (C_3 草本類、 C_3 果実類、コーン、陸上動物類、サケ) のサンプリングを行い、炭素・窒素・イオウ安定同位体比値を測定した。続いて、炭素・窒素のみの場合 (2種) と炭素・窒素・イオウを用いた場合 (3種) で、混合モデル (SIAR) を用いて個体ごとに各食物の利用割合を推定した。そして、推定された事後分布の中央値と 95% 信頼区間の範囲を、2種の同位体を用いた場合と 3種の場合とで比較した。

食物資源の炭素・窒素同位体比値は、 C_3 草本類、 C_3 果実類、陸上動物類、サケがほぼ一直線上に分布しており、陸上動物類が直線の中間に位置していた。ヒグマの値は、多くがこの4種の食物が形成する直線状に分布していた。2種安定同位体で推定した各食物資源 (C_3 草本類、 C_3 果実類、コーン、陸上動物類、サケ) の寄与率の平均値は、それぞれ 33.2%, 28.1%, 8.4%, 19.0%, 6.4% であり、3種の場合はそれぞれ 36.5%, 28.3%, 6.8%, 11.4%, 10.5% となった。2種と3種の場合での推定値の差は、陸上動物類で 12.0% と最も大きく、次いで C_3 草本類 (5.3%)、サケ (5.1%) であった。3種の場合に比べて2種の場合では陸上動物の寄与率が過大評価 (最大 53.3%) され、サケ及び C_3 草本類の寄与率が過小評価される傾向にあった。

本研究では、mixing problem によって食性推定の結果にバイアスが生じることを実際のデータを用いて示すことに成功した。仮設の通り、食物が形成する直線の真ん中に位置する陸上動物類の寄与率が過大評価され、両端の資源 (C_3 草本類とサケ) の寄与率が過小評価されていた。これらの結果から、mixing problem が想定される状況では同位体データを正確に解釈することが困難であることが示唆された。従って、このような場合には新たな同位体元素の追加や生じるバイアスに関する議論を行うことが重要だと考えられる。

キーワード: 安定同位体, 炭素, 窒素, イオウ, 混合モデル, ヒグマ

Keywords: stable isotope, carbon, nitrogen, sulfur, mixing model, brown bear

極微量長半減期同位体を用いた海洋生態系・物質動態解明 Marine ecological study using long-lived radionuclides

横山 祐典^{1*}; 宮入 陽介¹; 大河内 直彦²; 小川 奈々子²; 松崎 浩之³; 楠野 葉瑠香³; 永田 俊¹
YOKOYAMA, Yusuke^{1*}; MIYAIRI, Yosuke¹; OHKOUCHI, Naohiko²; OGAWA, Nanako²; MATSUZAKI, Hiroyuki³; KUSUNO, Haruka³; NAGATA, Toshi¹

¹ 東京大学 大気海洋研究所, ² 海洋研究開発機構 生物地球化学研究分野, ³ 東京大学 総合研究博物館
¹ Atmosphere and Ocean Research Institute, University of Tokyo, ² Department of Biogeosciences, Japan Agency for Marine-Earth Sciences, ³ University Museum, University of Tokyo

海洋生態系および物質循環についての知見の深化は、環境および生態系保全などと密接に関連した重要な課題である。近年の計測機器の小型化などにより、ロガーを用いた魚類や海洋ほ乳類の移動に関する情報が蓄積され、生物の行動様式などについての理解が進んできた。しかしこの方法では、ロガーの装着には適していない小型の生物やロガーを装着する前の情報の抽出ができないなどの問題点があった。そこで我々は天然に存在する放射性同位体の分布の不均一性を用いて、近年開発されつつある微量の質量分析技術を用いて、海洋生態系の解明を進めてきている。

本講演では特に、2013年に東京大学大気海洋研究所の高解像度センターに導入された、シングルステージ加速器質量分析装置を用いた放射性炭素の分析結果などを中心にこれまで明らかになりつつある知見などを紹介する。

キーワード: 同位体, 放射性炭素, 加速器, 生態学

Keywords: isotope, radionuclides, accelerator mass spectrometry, ecology



東大柏キャンパスに新設の加速器実験棟(左)とシングルステージ加速器質量分析装置の検出器部分(右)