

## 多元素同位体を利用した地球環境学研究の展開

## Research strategy of multi-isotope studies on environmental research

\*陀安 一郎<sup>1</sup>、SHIN Ki-Cheol<sup>1</sup>、中野 孝教<sup>1</sup>

\*Ichiro Tayasu<sup>1</sup>, Ki-Cheol Shin<sup>1</sup>, Takanori Nakano<sup>1</sup>

## 1.総合地球環境学研究所

## 1. Research Institute for Humanity and Nature

環境トレーサビリティ手法は物質循環過程に基づいているため、環境科学にかかわるさまざまな事象の研究に利用することができると考えられる。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、幅広い応用範囲が考えられる。その中でも陸域生態系においては、地圏の持つ元素組成と同位体組成に関する異質性が、水循環過程、物質循環過程や生物の移動過程を通してトレースすることができ、生態系における環境トレーサビリティ手法として活用することができる。

総合地球環境学研究所（地球研）においては、同位体環境学共同研究事業を核として全国の研究者と共同研究を行っている。環境トレーサビリティに着目した多元素分析および多元素同位体分析を行うことで、各地域の特性が明らかになり、それを基にした地球環境学の研究を進めることができると考えられる。そのためには、観測手法のマニュアル化や、分析手法の標準化のみならず、クレジットを明らかにした上での得られたデータの共有化など、いろいろな課題に取り組む必要がある。

さらに、地球環境問題の複雑化から、環境研究においては現場の住民や行政機関、または学校教育と連携した取り組みが必要であるという考え方が生まれてきている。本発表においては、環境トレーサビリティの考え方をもとに、同位体手法をもとにした大学間連携の研究のあり方と、その中で地球研の果たす役割について検討したい。

キーワード：安定同位体、環境トレーサビリティ、集水域

Keywords: Stable isotopes, Environmental traceability, Watershed

## 大気エアロゾルのSr-Pb同位体比の季節変化に基づく大気汚染物質の起源推定

## Estimation of air pollutant sources from the seasonal variation of Sr and Pb isotope ratios of aerosols

\*加藤 祥生<sup>1</sup>、松木 篤<sup>2</sup>、SHIN Ki-Cheol<sup>3</sup>、中野 孝教<sup>3</sup>

\*Shota Kato<sup>1</sup>, Atsushi Matsuki<sup>2</sup>, Ki-Cheol Shin<sup>3</sup>, Takanori Nakano<sup>3</sup>

1.金沢大学大学院自然科学研究科、2.金沢大学環日本海域環境研究センター、3.総合地球環境学研究所

1.Graduate School of Natural Science & Technology, Kanazawa University, 2.Institute of Nature and Environmental Technology, Kanazawa University, 3.Research Institute for Humanity and Nature

【はじめに】日本はアジア大陸の風下に位置し、大陸からの越境大気汚染への懸念が高まっているが、その実態は依然として未解明である。近年の我々の観測や先行研究 (Kaneyasu et al., 2011; Takami et al., 2013) により、太平洋高気圧の影響等により大陸からの影響が相対的に弱まると考えられる夏季においても、汚染物質が長距離輸送される事例が報告されている。したがって、大陸からの越境大気汚染の影響が大きいとされる春季や冬季だけでなく、その他の季節における大気質の変化にも注目する必要がある。しかし、日本国内においても大気エアロゾルの排出源は多種多様 (e.g. ゴミ焼却、火山噴火) であり、アジア大陸と日本国内を起源とする大気汚染物質の識別は難しい。そこで本研究では、大気エアロゾル中のSr-Pb同位体比測定を行うことにより、石川県能登半島に飛来する大気エアロゾルの季節的特徴とその起源の解明を試みた。

【試料・測定方法】大気エアロゾル試料は、能登半島先端に位置する石川県珠洲市の金沢大学大気観測スーパーサイト (通称: NOTOGRO) で採取した。試料採取には、流量を700 L/minに設定したハイボリュームエアサンプラー (AH-600F, SHIBATA) を使用し、石英フィルター (12.6x16.6 cm) 上に採取した。採取期間はそれぞれ一週間とし、インパクターにより、大気エアロゾルの粒径が2.5 μmよりも大きくなるように分級して採取した。採取試料は、5%酢酸溶液を用いて溶解させた弱酸可溶性物質 (水や弱酸に溶解する海塩や石膏、方解石、気相反応による粒子表面の吸着体) と、その残渣をHNO<sub>3</sub>-HF-HClにより溶解させた難溶性物質 (石英や粘土鉱物、長石などのケイ酸塩鉱物) に分け、それぞれについてSr-Pb同位体比測定を行った。

【結果と考察】酢酸可溶性物質は低い<sup>87</sup>Sr/<sup>86</sup>Srを示した。NOTOGROは周囲が海で囲まれているため、弱酸可溶性物質は海塩粒子 (<sup>87</sup>Sr/<sup>86</sup>Sr = 0.70918) の影響を大きく受けていると考えられる。一方で、難溶性物質は高<sup>87</sup>Sr/<sup>86</sup>Srを示し、2014年7月中旬の試料は特に高い<sup>87</sup>Sr/<sup>86</sup>Srを示した。これは大陸由来の土壌粒子による影響と考えられる。弱酸可溶性物質のうち、2015年春季の試料の多くは中国由来の大気エアロゾルと良く似たPb同位体比を示した。また、V/Mn比をそれぞれの試料について求めた。V/Mn比は低い値ほど石炭燃焼を、高い値ほど石油燃焼の指標となる。中国Pb同位体比と近似している試料ほど、石炭燃焼由来の低いV/Mn比を示した。これらの結果から、能登半島では2015年春季に中国からの石炭燃焼由来のPbの影響を受けていたと考えられる。

キーワード: エアロゾル、Sr-Pb同位体、越境汚染

Keywords: aerosol, Sr-Pb isotopes, transboundary air pollution

大気降下物の起源および蓄積量をコケのストロンチウムおよび鉛同位体比から推定する試み  
An attempt to estimate the source and accumulation of atmospheric deposition Sr and Pb  
isotope ratios in the bryophyte

\*太田 民久<sup>1</sup>、大石 善隆<sup>2</sup>

\*Tamihisa Ohta<sup>1</sup>, Yoshitaka Oishi<sup>2</sup>

1.総合地球環境学研究所、2.北海道大学

1.Research Institute for Humanity and Nature, 2.Hokkaido University

Recently, excessive input of heavy metals and other pollutions into the surface of environment have been developed through consumption of fossil fuels and yellow sand. Although there are many monitoring sites for atmospheric deposition in Japan, the studies that estimated the amounts of fall in forest ecosystem are very few due to difficulty of installation of sampler. In this study, we focused on relationship between atmospheric deposition and bryophyte. Since some kind of bryophyte obtains almost their nutrients from atmospheric deposition, and metallic elements are penetrated into their tissue. Therefore, we considered isotope ratios and heavy metal concentration of bryophyte tissue might provide a useful index of source and accumulation of atmospheric deposition. We collected bryophyte, soil and leaf in many part of Akita, Nagano Miyazaki prefecture, and analyzed heavy metal concentration and isotope ratios (Sr and Pb). Sr and Pb isotope ratios of the some bryophyte samples differed to the soil and leaf sample. This means bryophyte contain metals supplied from atmospheric deposition. In the future, we plant to analyze bryophyte collected another sites such as the Sea of Japan side. And because the uptake rates of heavy metal vary among bryophyte species, we have to select indicator species for estimate of atmospheric deposition.

キーワード : Bryophyte、heavy metal、lead isotope ratio

Keywords: Fossil fuel, strontium isotope ratio , atmospheric deposition

## 中部日本の森林集水域における河川化学性と大気由来の硫黄の動態

Stream water chemistry and dynamics of sulfur derived from atmospheric deposition in a forested catchment in central Japan

\*佐瀬 裕之<sup>1</sup>、高橋 正通<sup>2</sup>、松田 和秀<sup>3</sup>、佐藤 啓市<sup>1</sup>、谷川 東子<sup>2</sup>、山下 尚之<sup>1</sup>、大泉 毅<sup>1</sup>、石田 卓也<sup>4</sup>、上迫 正人<sup>1</sup>、小林 亮<sup>1</sup>、内山 重輝<sup>1</sup>、齋藤 辰善<sup>1</sup>、諸橋 将雪<sup>1</sup>、福原 晴夫<sup>5</sup>、金子 真司<sup>2</sup>、井上 隆信<sup>6</sup>、山田 俊郎<sup>7</sup>、竹中 千里<sup>4</sup>、陀安 一郎<sup>8</sup>、中野 孝教<sup>8</sup>、袴田 共之<sup>9</sup>、太田 誠一<sup>10</sup>

\*Hiroyuki Sase<sup>1</sup>, Masamichi Takahashi<sup>2</sup>, Kazuhide Matsuda<sup>3</sup>, Keiichi Sato<sup>1</sup>, Toko Tanikawa<sup>2</sup>, Naoyuki Yamashita<sup>1</sup>, Tsuyoshi Ohizumi<sup>1</sup>, Takuya Ishida<sup>4</sup>, Masato Kamisako<sup>1</sup>, Ryo Kobayashi<sup>1</sup>, Shigeki Uchiyama<sup>1</sup>, Tatsuyoshi Saito<sup>1</sup>, Masayuki Morohashi<sup>1</sup>, Haruo Fukuhara<sup>5</sup>, Shinji Kaneko<sup>2</sup>, Takanobu Inoue<sup>6</sup>, Toshiro Yamada<sup>7</sup>, Chisato Takenaka<sup>4</sup>, Ichiro Tayasu<sup>8</sup>, Takanori Nakano<sup>8</sup>, Tomoyuki Hakamata<sup>9</sup>, Seiichi Ohta<sup>10</sup>

1.アジア大気汚染研究センター、2.森林総合研究所、3.東京農工大学、4.名古屋大学、5.新潟大学、6.豊橋技術科学大学、7.岐阜大学、8.総合地球環境学研究所、9.浜松ホトニクス、10.京都大学

1.Asia Center for Air Pollution Research, 2.Forestry and Forest Product Research Institute, 3.Tokyo University of Agriculture and Technology, 4.Nagoya University, 5.Niigata University, 6.Toyohashi University of Technology, 7.Gifu University, 8.Research Institute for Humanity and Nature, 9.Hamamatsu Photonics, 10.Kyoto University

## [緒言]

岐阜県山県市に位置する伊自良湖集水域は、中京工業地帯からの大気汚染物質の移流の影響を強く受け、硫黄や窒素の大気沈着量が多い。環境省による長期モニタリングが行われてきた本集水域では、1990年代半ばに生態系の酸性化及び窒素飽和が進んだと報告されている (Yamada et al. 2007; Nakahara et al. 2010) が、近年は回復傾向も見られている。

## [方法]

本報告の解析では、環境省越境大気汚染・酸性雨長期モニタリング計画に基づく、1988年からの河川化学性の長期データ、2000年からの湿性沈着（降水）の化学性データ、2007年からの物質流入・流出収支データ、及び2014年から重点的に実施されている降水・土壌溶液・河川水の硫黄及びストロンチウム同位体測定データを用いた。さらに、関連研究による伊自良湖畔を含む中京地域におけるスギ年輪中の硫黄同位体データを加え、長期トレンド及び大気由来の物質動態の解析を行った。

## [結果及び考察]

当該集水域では、1990年代半ばから河川や土壌の酸性化や河川水中のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度の著しい上昇が見られたが、2005年以降は河川水中のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度は低下しており、pHも7付近まで回復している。SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度は、酸性化やNO<sub>3</sub><sup>-</sup>の河川への流出が観測された時期の1994年に210 μmol<sub>c</sub> L<sup>-1</sup>の最高値に達し、その後は2013年には127 μmol<sub>c</sub> L<sup>-1</sup>まで低下した。1990年代に見られた河川の酸性化には、我が国最大レベルとも言われる硫黄や窒素の大気からの流入に加え、1993年の冷夏、及び1994年の干ばつと続いた気象イベントによる森林生態系における物質循環の攪乱がきっかけとなった可能性が示唆されている (Nakahara et al. 2010)。また、近年の酸性化からの回復には、大気からの流入の大部分を占める湿性沈着量の低下傾向が寄与していると考えられた。

本地域の硫黄の流入・流出収支には特徴的な傾向があり、2007年から2012年までの5年間における湿性及び乾性沈着による大気からの平均SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>流入量は0.9 ± 0.1 kmol<sub>c</sub> ha<sup>-1</sup> year<sup>-1</sup>であったが、河川からのSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>流出量は2.3 ± 0.5 kmol<sub>c</sub> ha<sup>-1</sup> year<sup>-1</sup>であった。山岳地域における大気汚染物質濃度やその沈着速度の過小評価の可能性や水収支の不確実性等を考慮したとしても、河川からのSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>流出量は流入量を大きく超過していた。降水や表層の土壌溶液中のSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の硫黄同位体比 (δ<sup>34</sup>S) はそれぞれ4.6%と3.8%であったが、河川水中のそれは-13%と著しく低い値を示した。岐阜県内では著しく低いδ<sup>34</sup>S値 (-14%から-8%) を示す地質が分布することが報告されていることから、河川からのSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>流出には地質由来の硫黄が寄与している可能性が示唆された。一方で、大気由来の硫黄は土壌の比較的表層に蓄積・分布していると考えられた。上述した高いSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度が観測された1990年代半ばには河川中の溶存有機態炭素も高濃度であったことから、土壌表層に蓄積された有機態硫黄の流出の寄与も考えられた。三重県、愛知県及び本地域から得られたスギの年輪解析では、1960/1970年代の中京工業地帯由来

の硫黄沈着の痕跡と考えられる比較的低い $\delta^{34}\text{S}$ 値 (-7%から+1%) も確認された。本集水域では大気由来の硫黄は主に土壌・植物系で循環・蓄積している一方で、河川に流出する硫黄は地質の影響を大きく受けていることが示唆された。

[謝辞]

本報告は環境省越境大気汚染・酸性雨長期モニタリングデータを基に関連研究の成果を加え解析を行った。また、ストロンチウム同位体測定は、総合地球環境学研究所の同位体環境学共同研究事業により実施した。関係機関の方々に謝意を表します。

[文献]

Nakahara et al. 2010. Soil and stream water acidification in a forested catchment in central Japan. *Biogeochemistry* 97: 141-158.

Yamada et al. 2007. Long-term Trends in Surface Water Quality of Five Lakes in Japan, *Water, Air, and Soil Pollution: Focus* 7: 259-266.

キーワード：酸性化、窒素飽和、硫黄、同位体

Keywords: acidification, nitrogen saturation, sulfur, isotope

## マルチトレーサを用いた扇状地地下水の流動と形成機構に関する研究

## Application of Multiple-indicator to groundwater flow and chemistry study in the alluvial fan

\*吉岡 有美<sup>1</sup>、中村 公人<sup>2</sup>、中野 孝教<sup>3</sup>、堀野 治彦<sup>4</sup>、申 基澈<sup>3</sup>\*Yumi Yoshioka<sup>1</sup>, Kimihito Nakamura<sup>2</sup>, Nakano Takanori<sup>3</sup>, Haruhiko Horino<sup>4</sup>, Ki-Cheol Shin<sup>3</sup>

1.鳥取大学、2.京都大学、3.総合地球環境学研究所、4.大阪府立大学

1.Tottori University, 2.Kyoto University, 3.Research Institute for Humanity and Nature, 4.Osaka Prefecture University

石川県手取川扇状地（140km<sup>2</sup>）には豊富な地下水が存在し、主に工業・水道用水として盛んに利用されている。この地下水資源の持続的な利用・保全を考える上では、地域固有の地下水涵養や地下水流動系を把握することが必要となる。とくに、本対象地においては、扇状地河川と周辺の浅層地下水との水交換現象（伏没・還元現象）や扇状地の50%以上を占める水田からの浸透水の影響について注目しなければならない。本研究では、地下水と地表水（河川水と田面水）についてマルチトレーサの分布特性から、浅層地下水の流動譲許や水質形成メカニズムを解明することを目的とした。水質分析の結果と別途行った地下水位一斉観測、手取川流量観測、3次元定常地下水流動解析の水文観測結果との整合性を検証した。

扇状地内の地下水63地点、湧水2地点、扇状地南部の手取川、扇状地北部の犀川の河川水13地点、田面水5地点の計83地点の水試料を2011年6月の灌漑期間中に得た。分析項目は、酸素・水素安定同位体比（ $\delta^{18}\text{O}$ 、 $\delta^2\text{H}$ ）、ストロンチウム同位体比（ $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ）、溶存イオン、微量元素である。

浅層地下水の $\delta^{18}\text{O}$ 及び $\delta^2\text{H}$ は、手取川に近い領域で低く、手取川から遠い領域では高くなる分布特性を示し、手取川から安定同位体比の低い水への浸透が生じていると考えられる。その一方で $\delta^{18}\text{O}$ 、 $\delta^2\text{H}$ からは、蒸発の影響を強く受けた田面水による地下水涵養がほとんど生じていないことが確認された。浅層地下水の $\text{Mg}^{2+}$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Sr}^{2+}$ 、 $\text{HCO}_3^-$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$ についても、河川水の希釈効果を受ける手取川付近と水田面積率が低い犀川付近で濃度が低く、扇状地中央部で値が高くなる分布傾向がみられた。

浅層地下水の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ は、手取川に近い領域では扇状地性の堆積物の影響を受けて高い値を示す一方で、犀川付近では低い値であった。手取川の河川水は上流域の地質の影響を受けて高い値を示した。全ての同位体比の分布傾向から、手取川からの浸透水の影響は扇状地右岸域の中央までの範囲に及ぶことがわかった。 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ は、 $\text{Mg}^{2+}$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Sr}^{2+}$ 濃度との間でそれぞれ正の相関関係を示した。地表面から浸透する過程で土壌からの溶出の影響を受けた降水や田面水が、手取川から涵養された河川水と混合することによって地下水水質が形成されていると推察された。

今回の水質観測結果は、地下水位一斉観測から得られた地下水位コンターの特徴、手取川流量観測から推定された伏没・還元区間、灌漑期定常状態の3次元地下水流動解析から推定された地下水流動の結果と整合性を示した。

キーワード：Sr同位体比、水田、伏没・還元現象

Keywords: Strontium isotope, Paddy field, Groundwater-river interaction

福島県および新潟県の地下水・湧水の酸素・水素安定同位体比とd-excess値の分布特性  
Characteristics of the distribution of  $\delta^{18}\text{O}$ ,  $\delta\text{D}$  and d-excess values in groundwater and spring water at Fukushima and Niigata prefecture

\*藪崎 志穂<sup>1</sup>

\*Shiho Yabusaki<sup>1</sup>

1.福島大学 共生システム理工学類

1.Faculty of Symbiotic Systems Science, Fukushima University

地下水や湧水の酸素・水素安定同位体比は、涵養域の標高や気温、内陸からの距離等の条件によってそれぞれの地域固有の値を示している。従って、これらの同位体比の分布を示すことにより、地下水等の涵養域を推定することが可能となると考えられる。これまでの研究で、日本全国の地表水の酸素や水素の安定同位体比分布が示されているが、地点数には限りがあり、涵養域の把握等について考える際には必ずしも十分とは言えない状況である。そこで、本研究では、東北地方南部を中心に、特に福島県、新潟県を対象にして調査を行い、できるだけ詳細な同位体分布特性を把握することを目的とした。なお、福島県と新潟県を対象とすることで、同位体比およびd-excess値について太平洋～日本海にかけての東西断面の変化を詳細に把握することが可能である。また、本研究では各地域の平均的な同位体比を求めるために、調査を行った地点から同位体比が年間を通じてほぼ一定していると思われる地下水および湧水の値を選択して利用した。

酸素・水素安定同位体比分布をみると、太平洋および日本海の沿岸域では同位体比は相対的に高く、内陸部にゆくに従い同位体比は低くなる傾向が認められ、内陸効果の存在が確認された。また、標高の高い地点（阿武隈山地や奥羽山脈、越後山脈などの山地部）で同位体比は相対的に低く、高度効果および温度効果の影響も表れている。特に、福島県と群馬県の県境付近（燧ヶ岳周辺）や、長野県と新潟県の県境付近（妙高山周辺）では低い同位体比を示しており、地形的な要因と気象学的影响（降雪の影響など）が関与して同位体比が形成されていると考えられる。

d-excess値の分布をみると、福島県の太平洋側で相対的に低く、内陸部（西側）にゆくに従い値は上昇し、新潟県の日本海沿岸地域で最も高い値を示している。これは、従来指摘されているように、地下水や湧水の源である水蒸気の起源（太平洋側か、日本海側か）が異なることに起因すると考えられる。詳細にみると、奥羽山脈を境にd-excess値は変化する傾向が認められるが、阿武隈山地ではこうした特徴は顕著にあらわれていない。この結果より、標高の高い奥羽山脈によって水蒸気の起源が異なり、山脈の東側では太平洋側の気団が卓越し、西側では日本海側の気団が卓越していることが想定される。一方、標高が比較的低い阿武隈山地では水蒸気は遮られることなく通過しているため、d-excess値には大きな変化が認められないと考えられる。

このように、詳細な調査を行うことにより、山地の影響や卓越する気団の範囲など、より明確に把握することが可能となった。今後は長野県および関東地方の調査結果を反映させて、広域の同位体分布特性について把握し、結果について更に検討を進める予定である。

キーワード：福島県、新潟県、地下水、湧水、安定同位体、d-excess

Keywords: Fukushima, Niigata, groundwater, spring water, stable isotope, d-excess

## 日本の森林土壌における窒素安定同位体比の変動様式について

Natural abundance of  $^{15}\text{N}$  in Japanese forest soils

\*木庭 啓介<sup>1</sup>、平塚 敏<sup>2</sup>、浦川 梨恵子<sup>3</sup>、仁科 一哉<sup>6</sup>、磯部 一夫<sup>7</sup>、柴田 英昭<sup>4</sup>、大手 信人<sup>5</sup>

\*Keisuke Koba<sup>1</sup>, Bin Hiratsuka<sup>2</sup>, Rieko Urakawa<sup>3</sup>, Kazuya Nishina<sup>6</sup>, Kazuo Isobe<sup>7</sup>, Hideaki Shibata<sup>4</sup>, Nobuhito Ohte<sup>5</sup>

1.京都大学生態学研究センター、2.東京農工大学農学部、3.アジア大気汚染研究センター、4.北海道大学北方生物圏フィールド科学センター、5.京都大学大学院情報学研究科、6.国立環境研究所、7.東京大学大学院農学生命科学研究科

1.Center for Ecological Research, Kyoto University, 2.Faculty of Agriculture, Tokyo University of Agriculture and Technology, 3.Asia Center for Air Pollution Research, 4.Field Science Center for Northern Biosphere, Hokkaido University, 5.Graduate School of Informatics, Kyoto University, 6.National Institute for Environmental Studies, 7.Graduate School of Agricultural and Life Sciences, The University of Tokyo

Natural abundance of  $^{15}\text{N}$  of bulk soil N has been investigated in many studies with emphasis on soil N decomposition, N loss, and chronosequence of N dynamics in forests.  $\delta^{15}\text{N}$  of bulk soil N generally increases with soil depths, which is considered as a consequence of the loss of  $^{15}\text{N}$ -depleted N via leaching and gaseous loss both coupled with N mineralization and nitrification as well as the incorporation of  $^{15}\text{N}$ -enriched N into bulk soil N via microbial biomass. However, the details on how  $^{15}\text{N}$  of bulk soil N can be discriminated during these processes are not clear.

We analyzed the  $\delta^{15}\text{N}$  of bulk soil N collected in the GRENE (Green Network of Excellence) environmental information project and the ReSIN (Regional and comparative Soil Incubation study on Nitrogen dynamics in forest ecosystems) project (Urakawa et al. 2014, 2016). Mineral forest soils were collected in each watershed from five soil profiles with different soil depths down to 40 or 50cm depth. We used a modified EA-IRMS in TUAT with higher sensitivity to measure the  $\delta^{15}\text{N}$  of bulk soil N with low N concentrations. We analyzed the soil samples (488 samples from 32 watersheds) with higher N concentration than ca. 0.1% (with less than 8mg sample weight to run) to reduce the risk of incomplete combustion.

$\delta^{15}\text{N}$  of bulk soil N ranged from -3.2 to +10.2 permil with N concentrations ranging from 0.1 to 1.3%. Isotopic fractionation factors for bulk soil N, estimated from the relationship between N concentrations and  $\delta^{15}\text{N}$  values, ranged from 0.6 to 7.2 permil. The differences in mycorrhizal association of plants would influence the isotopic fractionation factor (Hobbie and Ouimette 2009), although we found no significant relationships between mycorrhizal associations (ECM, AM) and the isotopic fractionation factors. Climate factors such as MAT and MAP suggested as the factors affecting  $\delta^{15}\text{N}$  of bulk soil N (Amundson et al. 2003) were not significantly correlated with  $\delta^{15}\text{N}$  of bulk soil N. In the presentation we will discuss the possible factors influencing  $\delta^{15}\text{N}$  of bulk soil N and isotopic fractionation factors in the forest watersheds.

キーワード：安定同位体、森林土壌、窒素循環

Keywords: Stable isotopes, Forest soils, Nitrogen dynamics



## 酸素同位体異常を用いた森林生態系における大気沈着由来硝酸イオンの解析

## Tracing Atmospherically Deposited Nitrate in Forest Ecosystem Using Triple Nitrate Isotopes

\*角 和暁<sup>1</sup>、勝山 正則<sup>1</sup>、矢野 翠<sup>2</sup>、木庭 啓介<sup>2</sup>\*Kazuaki Sumi<sup>1</sup>, Masanori Katsuyama<sup>1</sup>, Midori Yano<sup>2</sup>, Keisuke Koba<sup>2</sup>

1.京都大学大学院農学研究科、2.京大大学生態学研究センター

1.Kyoto University, Graduate School of Agriculture, 2.Kyoto University, Center for Ecological Research

Nitrogen saturation is one of the forest environmental issues as a result of increasing anthropogenic emission of reactive nitrogen. Forest which reached nitrogen saturation exports residual nitrogen as dissolved inorganic nitrogen (mainly nitrate:  $\text{NO}_3^-$ ) and the amount of  $\text{NO}_3^-$  leaching is one of the signal of nitrogen saturation. However, the mechanism of nitrate export from forest ecosystem is not well understood because of complexity of forest internal nitrogen cycle. In fact,  $\text{NO}_3^-$  has two sources, atmospherically deposited nitrate ( $\text{NO}_3^-_{\text{atm}}$ ) and microbial nitrate ( $\text{NO}_3^-_{\text{microb}}$ ) in forest ecosystem. These two sources could not be separated so far, but triple nitrate isotope analysis techniques enabled distinguishing  $\text{NO}_3^-_{\text{atm}}$  from  $\text{NO}_3^-_{\text{microb}}$ , and revealed that the fraction of  $\text{NO}_3^-_{\text{atm}}$  ( $f_{\text{atm}}$ ) in stream water is about 10% worldwide. To clarify the mechanism of export of atmospherically deposited nitrate ( $\text{NO}_3^-_{\text{atm}}$ ) to stream from forest catchment, we explored which factors of forest ecosystem influence  $f_{\text{atm}}$  in stream water.

We measured  $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ ,  $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ ,  $\Delta^{17}\text{O}-\text{NO}_3^-$ , and  $\text{NO}_3^-$  concentration along with forest hydrological pathways, through fall, soil water, ground water and stream water at Kiryu Experimental Watersheds (KEW) in central Japan.

We calculated the value of  $f_{\text{atm}}$  of four stream water, and mean value was about 10% except for one of the stream water which flows steep slope catchment. These results are consistent with the reports for stream. In soil, the concentration of  $\text{NO}_3^-$  and the values of  $f_{\text{atm}}$  were decreased along with the soil depth suggesting that  $\text{NO}_3^-_{\text{atm}}$  was consumed immediately at surface soil. In contrast, the values of  $f_{\text{atm}}$  were not fluctuated in ground water which suggests that the value of  $f_{\text{atm}}$  in stream water is almost determined at soil.

キーワード：森林生態系、硝酸イオン安定同位体、酸素同位体異常

Keywords: forest ecosystem, nitrate isotopes, oxygen isotope anomaly

## 熱帯泥炭湿地の急速な環境変化が地下水中の溶存態有機炭素動態に及ぼす影響

## Effects of rapid environmental changes on groundwater dissolved organic carbon dynamics in Tropical peat swamp

\*伊藤 雅之<sup>1</sup>、西村 裕志<sup>1</sup>、平野 高司<sup>2</sup>、Gunawan Haris<sup>3</sup>、Kitso Kusin<sup>4</sup>、甲山 治<sup>1</sup>、田中 洋太郎<sup>1</sup>、勝山 正則<sup>1</sup>  
\*Masayuki Itoh<sup>1</sup>, Hiroshi Nishimura<sup>1</sup>, Takashi Hirano<sup>2</sup>, Gunawan Haris<sup>3</sup>, Kitso Kusin<sup>4</sup>, Osamu Kozan<sup>1</sup>,  
Yotaro Tanaka<sup>1</sup>, Masanori Katsuyama<sup>1</sup>

1.京都大学、2.北海道大学、3.リアウ大学、4.パランカラヤ大学

1.Kyoto University, 2.Hokkaido University, 3.Riau University, 4.Palangkaraya University

東南アジアの熱帯泥炭湿地は24万平方キロメートルに及び、地下部に膨大な量の炭素が蓄積されている。特に近年の人為活動の増大による環境変化が、大量の二酸化炭素放出につながっている。

本研究は伐採・火災・排水・植林地化等の人為活動による泥炭湿地の攪乱が、物質循環に及ぼす影響について調査した。特に河川や排水路を通じて流出する溶存態有機炭素(Dissolved Organic Carbon; DOC)の量的質的な変化に着目し、天然泥炭湿地林や、伐採後の二次林、排水・火災を経た荒廃地(写真はもともと全て森林であったところ)などについて調査した。

観測は、インドネシア・スマトラ島東部のリアウ州、及び、カリマンタン島・中カリマンタン州において行った。

地下水中のDOC濃度は、天然林や二次林の方が、火災を数度経験した地点より高かったが、火災直後の泥炭地下水では、濃度が急激に高くなった。また、地下水位は雨期に上昇し、乾期に低下したが、地下水中のDOC濃度は雨期に低く、乾期に高かった。このことから泥炭地下水のDOC濃度の季節変化は雨水による希釈で説明ができるが、突発的な泥炭火災の際に、大量の炭素がDOCとして地下水に供給されることを示唆した。3次元蛍光解析や2次元NMR解析を用いた、DOCの質の変化についても発表する。

キーワード：熱帯泥炭湿地、東南アジア、土地利用変化

Keywords: Tropical peat swamp, Southeast Asia, Land use change



## 菌類による放射性セシウムの吸収 -安定同位体による土壤中菌糸の分布推定-

Absorption of radiocesium by fungi -estimation of soil hyphal distribution using stable isotopes-

\*林 拓也<sup>1</sup>、岡田 直紀<sup>1</sup>

\*Takuya Hayashi<sup>1</sup>, Naoki Okada<sup>1</sup>

## 1. 京都大学地球環境学堂

1. Kyoto University Graduate School of Global Environmental Studies

Many studies after the Chernobyl nuclear accident in 1986 have reported that fungal fruit bodies accumulated higher  $^{137}\text{Cs}$  concentration than other organic materials in forest ecosystem. Some of the studies pointed out soil hyphal distribution as one of the main factors determining  $^{137}\text{Cs}$  concentration in fungi, but the viewpoint has not yet been examined well. We therefore have attempted multi stable isotopes ( $^{13}\text{C}$ ,  $^{15}\text{N}$  and  $^{34}\text{S}$ ) to examine the relationship between hyphal vertical distribution and  $^{137}\text{Cs}$  concentration in fruit bodies.

Study site was a broad-leaved forest dominated by konara oak, mixed with fir, located at 20 km southwest from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant, in Kawauchi Village, Fukushima Prefecture. Fruit bodies and soil core samples (down to 30 cm below the soil surface) were collected. After oven-dried, the fruit bodies were ground into powder, and isotope ratio ( $\delta^{13}\text{C}$ ,  $\delta^{15}\text{N}$  and  $\delta^{34}\text{S}$ ) and  $^{137}\text{Cs}$  concentrations of samples were measured. Each soil core was separated into 2-cm long, sieved after air-dried, and isotope ratio and  $^{137}\text{Cs}$  concentrations were measured. For  $^{34}\text{S}$  measurement, sulfur was extracted from samples with Parr bomb and collected as precipitation of  $\text{BaSO}_4$ . Litter and humus layers were also collected, treated and analyzed as other samples.

$^{137}\text{Cs}$  concentration in saprophytic fungi was lower than that of ectomycorrhizal (ECM) fungi in average, but there was wide variation among genera and within genus in ECM fungi. Saprophytic fungi did not accumulate so much  $^{137}\text{Cs}$  despite the high  $^{137}\text{Cs}$  concentration in litter and humus layers. The vertical profiles of  $\delta^{13}\text{C}$ ,  $\delta^{15}\text{N}$  and  $\delta^{34}\text{S}$  had a common trend;  $\delta$  values decreased with the depth. Saprophytic fungi showed most negative delta values for N and S isotopes, but most positive for C isotopes in the fungus groups. Genus-specific  $\delta$  values were observed for N and S isotopes, which variation was comparable to those observed for soil vertical profiles (figure).

Results of isotopes analysis suggested hyphal distributions of saprophytic and ECM fungi were completely different and that there was considerable difference in ECM fungi. Saprophytic fungi had  $\delta^{13}\text{C}$  and  $\delta^{15}\text{N}$  values close to those in organic layers after being adjusted based on the suggestions from previous studies about isotope fractionation.  $\delta^{34}\text{S}$  values in saprophytic fungi also were close to those in organic layers. The results of 3 isotopes indicated the hyphae of saprophytic fungi were restricted almost to soil organic layers. On the contrary, hyphal distribution of ECM had wide variations in mineral soil as indicated by genus-specific variations of  $\delta^{15}\text{N}$  and  $\delta^{34}\text{S}$ .

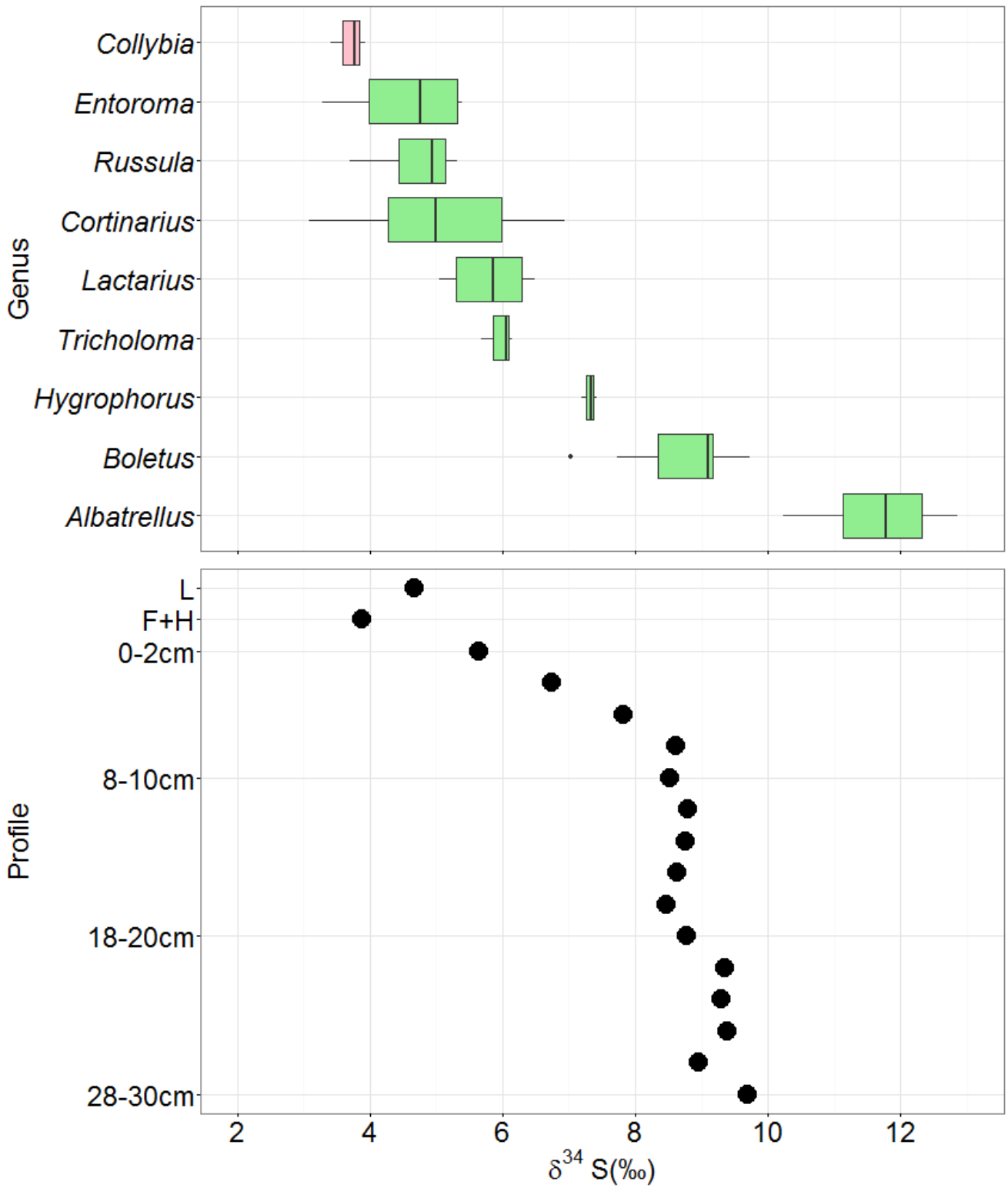
We did not observe significant relationships between hyphal distribution and  $^{137}\text{Cs}$  concentration in fruit bodies. Saprophytic fungi showed lower  $^{137}\text{Cs}$  concentration than ectomycorrhizal fungi regardless of shallow distribution of hyphae; and some genera of ECM fungi had similar values though they had different stable isotope ratios. These data are not consistent with the view that emphasized the relationship between hyphal distribution and  $^{137}\text{Cs}$  concentration in fruit bodies. The view of soil-depth dependent  $^{137}\text{Cs}$  accumulation by fungi needs to be re-examined.

Sulfur isotope seemed to be useful for estimating hyphal vertical distributions. Since the vertical profile of  $\delta^{34}\text{S}$  was similar to those of  $\delta^{13}\text{C}$  and  $\delta^{15}\text{N}$ , multi isotope approach will provide an effective tool for investigating biological processes in soil ecosystems. For further application to fungi study, isotope fractionation of sulfur and  $\delta^{34}\text{S}$  of available sulfur by fungi has to be

studied.

キーワード：放射性セシウム、菌糸、安定同位体

Keywords: radioicesium, hyphae, stable isotope



$\delta^{34}\text{S}$  in fruit bodies and soil profile

## 炭素・窒素安定同位体分析に基づく縄文時代におけるイヌの食性復元

## Reconstruction of dog diet in Jomon period using carbon and nitrogen isotope analysis

\*覚張 隆史<sup>1</sup>、米田 穰<sup>2</sup>

\*Takashi Gakuhari<sup>1</sup>, Minoru Yoneda<sup>2</sup>

1.金沢大学、2.東京大学

1.Kanazawa University, 2.The University of Tokyo

Dog is the earliest domesticated animal among other livestock. Dog's role as companion animal and support for hunting is different from those of other livestock (e.g. goat, sheep, cattle and horse) which are mainly exploited for foods or labor as food. Because dog diet is similar to human diet in traditional subsistence, reconstructing dog diet is important to evaluate ancient human subsistence over time and space. A number of previous study show that isotope signature (carbon and nitrogen) obtained from ancient dog remains resemble to contemporary human remains.

Recently, a number of dog remain, especially for Jomon period, was excavated and identified in Japanese archipelago. However, the study of evaluating the isotope signature of Jomon dog is very little. Gakuhari et al. (2015) demonstrated the date of two buried dogs in Jomon period using directly radiocarbon dating of dog bones, so that two buried dog were dated to ca. 7300 calBP. In addition, the carbon and nitrogen isotope analysis of bone collagen indicated that the dietary characteristic of two buried dogs is similar to those of human remains from same site.

Here, we report new data of radiocarbon dating and stable isotope analysis from other dog bones in Kamikuroiwa rockshelter site and Higashimyo shellmound. We discuss the dietary characteristic of Jomon dog in Western Japan.

As results, other dogs in Kamikuroiwa rockshelter and 11 dogs in Higashimyo shellmound showed very close ages to two buried dogs in Kamikuroiwa rockshelter, and assigned to the last Initial Jomon and the initial Early Jomon period. Although these results were not consisted with the previous archaeological interpretation, they are important because these dogs were one of the oldest evidence of certain *Canis* domestication in East Asia. In addition, based on carbon and nitrogen isotope analysis, we found that Kamikuroiwa and Higashimyo dogs could be discriminated to three populations with different isotopic patterns. This new finding is important to reconstruct ancient feeding culture of dog and human subsistence for Jomon period.

キーワード : Isotope、carbon

Keywords: Jomon dog, nitrogen

## 富山湾の表層から深層までの食物網解析～炭素・窒素安定同位体比からのアプローチ

Food web analysis using stable carbon and nitrogen isotopic ratios: from the shallow to deep water in Toyama Bay

\*大塚 朋貴<sup>1</sup>、張 勁<sup>1</sup>、稲村 修<sup>2</sup>

\*Tomoki Otsuka<sup>1</sup>, JING ZHANG<sup>1</sup>, Inamura Osamu<sup>2</sup>

1.富山大学、2.魚津水族博物館

1.University of Toyama, 2.Uozu Aquarium

気候変動等に伴う環境変化が海洋食物網に与える影響を明らかにするためには、食物網の現状把握が必要である。本研究では、水深約200mを境に異なる水塊構造をもつ富山湾における食物網の現状把握を目的とした。富山湾では、200m以浅の表層と200m以深の深層に生息する魚類・動物プランクトンの生物試料と、沈降粒子・海底堆積物・POM（懸濁態有機物）を採取した。また、日本海中央部の大和海盆で動物プランクトンとPOMを採取し、炭素・窒素安定同位体比解析を行った結果、以下の知見が得られた。

- 1、富山湾の水生生物は、表層・深層とも表層0m付近のPOMを起点とする食物連鎖上に位置し、海面付近で生産された植物プランクトンが基礎生産者であると考えられた。
- 2、 $\delta^{13}\text{C}$ に着目すると、富山湾の動物プランクトンは大和海盆に比べ高い値を示し、クロロフィル濃度も富山湾は大和海盆に比べて高かった。これは、基礎生産者である植物プランクトンの増殖速度が富山湾の方が速いためと推測された。
- 3、 $\delta^{15}\text{N}$ に着目すると、深層魚は表層魚に比べ高い値を示した。また、深層では腐肉食者や表層に比べ高い $\delta^{15}\text{N}$ 値をもつ動物プランクトンがみられ、これらが深層の栄養段階を高めていると推測された。さらに、富山湾と大和海盆のPOMの $\delta^{15}\text{N}$ 値は平均で約3.3%と低く、基礎生産者の $\delta^{15}\text{N}$ 値が低い可能性が示唆された。

キーワード：安定同位体、炭素・窒素、食物網

Keywords: Stable isotope, carbon and nitrogen, Food web

## 福井県大野盆地の地下水の地球化学的水脈診断

## Geochemical diagnosis of groundwater flow system in the Ohno basin, Fukui prefecture

\*中野 孝教<sup>1</sup>、申 基澈<sup>1</sup>、大田 民久<sup>1</sup>、草野 由貴子<sup>1</sup>、陀安 一郎<sup>1</sup>、山田 佳裕<sup>2</sup>、横尾 頼子<sup>3</sup>、辻村 真貴<sup>4</sup>、池田 浩一<sup>4</sup>、帰山 寿章<sup>5</sup>、山田 明弘<sup>5</sup>、下島 浩平 浩平<sup>5</sup>、小澤 弘幸<sup>5</sup>

\*Takanori Nakano<sup>1</sup>, Kicheol Shin<sup>1</sup>, Tamihisa Ohta<sup>1</sup>, Yukiko Kusano<sup>1</sup>, Ichiro Tayasu<sup>1</sup>, Yoshihiro Yamada<sup>2</sup>, Yoriko Yokoo<sup>3</sup>, Maki Tsujimura<sup>4</sup>, Koichi Ikeda<sup>4</sup>, Toshiaki Kaeriyama<sup>5</sup>, Akihiro Yamada<sup>5</sup>, Kouhei Shitajima<sup>5</sup>, Hiroyuki Ozawa<sup>5</sup>

1.大学共同利用機関法人 人間文化研究機構 総合地球環境学研究所、2.香川大学農学部、3.同志社大学理工学部、4.筑波大学生命環境系、5.大野市役所

1.Research Institute for Humanity and Nature, Inter-University Research Institute Corporation National Institutes for the Humanities, 2.Faculty of Agriculture, Kagawa University, 3.Faculty of Science and Engineering, Doshisha University, 4.Faculty of life and environmental Sciences, University of Tsukuba, 5.Municipal office of Ohno city

Shallow groundwater system is developed in the city area of the northwestern Ohno basin, Fukui prefecture. This groundwater, termed as city-GW, has been used for daily lives and industries, but the recharge area and flow system of city-GW remain unclear. For the sustainable use of city-GW, we determined multiple components for the surface water and well water collected by elementary pupils as environmental education.

The oxygen and hydrogen isotope ratios of the city-GW decrease from -8.1 ‰ and -48 ‰ to -9.1 ‰ and -57 ‰ toward the west. The city-GW is divided by an interval of 0.1 ‰ in the  $d^{18}O$  value and 0.8 ‰ in the  $d^2H$  value. As the groundwater level decreases from south to west, it is likely that each isotope envelope corresponds to the flow channel. This view is consistent with the spatial distribution of several dissolved ions such as  $Ca^{2+}$ ; the high concentration of  $Ca^{2+}$  corresponds to the groundwater with a uniform  $d^{18}O$ - $d^2H$  value (-8.9 - -8.8 ‰ and -51.2 - -51.2 ‰). It is likely that the city-GW is recharged mainly from the southern alluvial fan where agriculture is active. This is consistent with the high concentrations of As and Mo in southeastern city-GW, suggesting the contribution of fertilizer.

The western city-GW is enriched in  $NO_3^-$ , indicating the source of N to be human activities such as sewerage. Several components (K,  $SO_4$ ) in the western city-GW is further subdivided into the north and the south by Mt. Kameyama, which is composed of granite. This result suggests that the geochemical nature of aquifer sediments in the north are different from that in the south by this mountain. This view is compatible with the analysis for the fluctuation record of water level at 14 monitoring sites in the city-GW area. We consider that Mt. Kamayama plays a role as a barrier for the southerly flow of the city-GW. Thus, the water quality mapping is effective for elucidating the flow system of groundwater.

キーワード：地下水、大野盆地、水脈、安定同位体

Keywords: groundwater, Ohno basin, flow channel, stable isotope



## 森林土壌における火山灰からのCa供給～Sr同位体比を用いた寄与推定～

Influence of volcanic ash in soils on Ca cycling in forest ecosystems - Using Sr isotopes to determine the contribution of volcanic ash to Sr and Ca in stream waters and plants in a granite watershed -

\*越川 昌美<sup>1</sup>、渡邊 未来<sup>1</sup>、申 基澈<sup>2</sup>、中野 孝教<sup>2</sup>

\*Masami Koshikawa<sup>1</sup>, Mirai Watanabe<sup>1</sup>, Ki-Cheol Shin<sup>2</sup>, Takanori Nakano<sup>2</sup>

1.国立研究開発法人国立環境研究所、2.総合地球環境学研究所

1.National Institute for Environmental Studies, 2.Research Institute for Humanity and Nature

土壌中のCaは、イオン交換反応によって酸性物質を中和する作用を持つ。そのため、Ca供給能が高い土壌が分布する森林集水域では、生態系の酸性化に伴う渓流水のpH低下やアルミニウムの溶出が抑制される(Koshikawa et al., 2007)。また、Caは樹木など生物にとって必須元素であるため、土壌中Caは養分供給の観点からも重要である。例えば、Ca供給能の低い欧米の森林では、酸性降水物によってCaが土壌から過剰流出した結果、Ca欠乏による樹木の成長抑制と森林衰退が問題となった(Cronan and Grigal, 1995)。しかし日本の森林では、酸性降水物による森林全体の成長抑制は認められていない(環境省, 2014)。その理由の1つとして、早くから指摘されてきたことに、土壌に含まれる火山灰の高いCa供給能がある(林ら, 1995)。日本の森林土壌には、数千～数万年前の大規模な火山活動で降下した火山灰が広く混入している。火山灰は、粒度が細かく比表面積が大きいこと、基盤岩と比較して風化速度が速い(若松ら, 2006)。そのため土壌中の火山灰は、森林生態系のCa循環において、重要なCa供給源となっている可能性が高い。しかし、その根拠は定性的なものであり、渓流水や植物に含まれるCaに対する火山灰起源Caの寄与評価は、国内外を問わず報告されていない。その最大の原因は、火山灰起源Caの識別の難しさにある。森林集水域内に火山灰が存在しても、その分布は地形等の影響を受けて不均一であり、また、火山灰の元素組成は一般的な火成岩とほぼ同じである。その結果特に、火山灰起源Caと基盤岩起源Caを実測により分離することが困難であった。Bailey et al. (1996)は、北米の花崗岩集水域において、SrとCaの動態が類似している(降水・植物・土壌・渓流水のSr/Ca比がほぼ一定の状態を循環している)ことを示したうえで、植物や渓流水に含まれるCaの起源が、降水と花崗岩の2成分系である場合、Sr同位体比を用いることで起源別寄与率を算出できることを示した。演者らは、このSr同位体比を用いた方法を、茨城県筑波山の花崗岩集水域に適用し、火山灰・基盤岩・降水の3成分系において渓流水中Caの起源を解析することを試みた(Koshikawa et al., in press)。Sr同位体比分析は、総合地球環境学研究所に設置されている表面電離型質量分析装置(サーモフィッシュャーサイエンティフィック, TRITON)を用いて行った。降水と渓流水の濾液は0.2-0.5μg Srに相当する量を、植物と土壌の酸分解液は1-2μg Srに相当する量をテフロンビーカーで乾固した後、2Mの高純度塩酸0.5mlに溶解し、Na et al. (1995)のカチオン交換カラム法でSrを分離抽出した後、表面電離型質量分析装置に導入した。標準試料として用いたNBS987 (SrCO<sub>3</sub>)の分析値は、本研究の測定期間を通じて、<sup>87</sup>Sr/<sup>86</sup>Sr = 0.710246 ± 0.000018であった。測定で得られた値はNBS987を0.710250として規格化した。

対象とした集水域の上流、中流、下流において渓流水のSr同位体比を分析した結果を、SrおよびCaの供給源と考えられる降水・花崗岩・火山灰(約3万年前に赤城山の噴火に伴って筑波山地域に降下した火山灰)のSr同位体比と比較し、渓流水中Srの起源(Caの起源も同様と考えられる)を解析した。その結果、火山灰由来Srの寄与は上流地点で高く、流下に伴って低下した。植物中Srの起源も、上流域の緩斜面で火山灰由来Srの寄与が高い傾向を示した。上流地点では、集水域内の緩斜面の土壌がSrおよびCaの供給能が高い火山灰を多く含むため、渓流水中のSrおよびCaの濃度が高いと考えられた。

これまで、土壌中における火山灰の機能に関する研究は、有機物やイオウに対する吸着保持作用を調べたものに限られている(Imaya et al., 2010; Tanikawa et al., 2013)。これに対し本研究は、全く異なる視点からCa供給源として火山灰に着目している。本研究で試みたCa起源解析が広く実施されれば、「日本の多くの土壌が欧米の土壌よりも酸耐性が高いのは火山灰の効果である」という基礎的かつ未解明な問題を明らかにすることが出来る。したがって本研究の成果は、森林生態系におけるCa動態解明に貢献するだけでなく、越境大気汚染や窒素飽和など、森林生態系が抱える様々な問題の影響解明研究への貢献も期待できる。

キーワード：Ca供給源、Sr同位体、大気降水物、土壌、植物、渓流水

Keywords: Ca sources, Sr isotopes, Atmospheric precipitation, Soil, Plants, Stream water

Sr-Nd同位体分析による海洋のアルミノ珪酸塩砕屑粒子の起源解析：アムール川からオホーツク海・西部北太平洋亜寒帯域への陸源物質の流入

Provenance analysis of aluminosilicate detritus in marine environment by Sr-Nd isotopes: terrigenous input from the Amur River to the Sea of Okhotsk and the western subarctic Pacific

\*浅原 良浩<sup>1</sup>、安田 友紀<sup>1</sup>、市川 諒<sup>1</sup>、中塚 武<sup>2</sup>、南 秀樹<sup>3</sup>、長尾 誠也<sup>4</sup>、西岡 純<sup>5</sup>

\*Yoshihiro Asahara<sup>1</sup>, Tomoki Yasuda<sup>1</sup>, Ryo Ichikawa<sup>1</sup>, Takeshi Nakatsuka<sup>2</sup>, Hideki Minami<sup>3</sup>, Seiya Nagao<sup>4</sup>, Jun Nishioka<sup>5</sup>

1.名古屋大学 大学院環境学研究科、2.総合地球環境学研究所、3.東海大学 生物学部、4.金沢大学 環日本海域環境研究センター、5.北海道大学 低温科学研究所

1.Graduate School of Environmental Studies, Nagoya University, 2.Research Institute for Humanity and Nature, 3.School of Biological Sciences, Tokai University, 4.Institute of Nature and Environmental Technology, Kanazawa University, 5.Institute of Low Temperature Science, Hokkaido University

Provenance analysis of terrigenous material in marine sediment and suspended matter provides information about a paleo- and modern environment such as atmospheric and ocean circulations and climate change on continent. It also figures out a relationship between terrigenous input and biological productivity in ocean. Radiogenic isotopes such as strontium ( $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ) and neodymium ( $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$ ) in detrital (aluminosilicate) fraction of marine sediments and suspended particles are valuable indicators for identifying the geographical provenance of the terrigenous material (e.g. Dasch, 1969; Grousset et al., 1988; Asahara et al., 1999; Asahara et al., 2012). Because the isotope ratios in detritus, especially Nd isotope, are not significantly altered by the process of weathering, transportation and deposition.

Primary productivity is high in the Sea of Okhotsk (OS), most likely because of terrigenous input from the Amur River that includes dissolved matter and suspended matter. And the western subarctic Pacific (WSP) is one of High Nutrient Low Chlorophyll (HNLC) regions, and the most important source of iron in the WSP has been thought to be terrigenous matter from the Amur River together with the Asian dust (e.g. Nishioka et al., 2007). To reveal the transport and deposition processes of the fluvial materials in the OS, the Sr and Nd isotopes of the detritus in the surface sediments and suspended matter were investigated.

The regional variations of the isotopes indicate that the detritus has three main sources: Amur River detritus, with a high  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  ratio (0.711-0.715) and relatively low  $\epsilon_{\text{Nd}}$  value (-8 to -7); volcanic detritus derived from the Okhotsk-Chukotka volcanic belt to the north of the OS, with a low  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  ratio (0.703) and high  $\epsilon_{\text{Nd}}$  value (+7 to +8); and detritus from the sedimentary rocks north of Sakhalin Island, with a high  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  ratio (0.709-0.710) and low  $\epsilon_{\text{Nd}}$  value (-10 to -9). The results indicate that the Amur River detritus is dispersed across the northwestern continental shelf and further transported southward along the east coast of Sakhalin while flowing out of the shelf. The Amur River detritus flowing out of the shelf is mixed with the Okhotsk-Chukotoka volcanic material transported from the northern area of the OS by the Okhotsk Sea intermediate water (OSIW). The transport processes of the Amur River detritus in this area are supported by previous studies of turbidity that indicated that the dense shelf water (DSW) entrains resuspended sedimentary particles on the northwestern continental shelf and transports them to the OSIW. It is possible that the OSIW entrains the Amur River material, which then circulates in the OS and partly flows out to the WSP.

[Reference]

Yasuda, T., Asahara, Y., Ichikawa, R., Nakatsuka, T., Minami, H., Nagao, S. (2014) Distribution and transport processes of lithogenic material from the Amur River revealed by the Sr and Nd isotope ratios of sediments from the Sea of Okhotsk. *Progress in Oceanography* 126, 155-167.

キーワード：ストロンチウム同位体、ネオジウム同位体、海洋堆積物、オホーツク海、アムール川

Keywords: strontium isotope, neodymium isotope, marine sediment, the Sea of Okhotsk, Amur River

## 東北沿岸における貝類軟組織Sr-Nd同位体比の地域変化

Spatial variation of neodymium and strontium isotope ratios of shellfish soft bodies in the coastal sea of eastern Tohoku District

\*齋藤 有<sup>1</sup>、中野 孝教<sup>1</sup>、申 基澈<sup>1</sup>、山下 勝行<sup>2</sup>、天川 裕史<sup>4</sup>、由水 千景<sup>1</sup>、松林 順<sup>1</sup>、加藤 義和<sup>1</sup>、富樫 博幸<sup>3</sup>、天野 洋典<sup>3</sup>、栗田 豊<sup>3</sup>、奥田 昇<sup>1</sup>、陀安 一郎<sup>1</sup>

\*Saitoh Yu<sup>1</sup>, Takanori Nakano<sup>1</sup>, Ki-Cheol Shin<sup>1</sup>, Katsuyuki Yamashita<sup>2</sup>, Hiroshi Amakawa<sup>4</sup>, Chikage Yoshimizu<sup>1</sup>, Jun Matsubayashi<sup>1</sup>, Yoshikazu Kato<sup>1</sup>, Hiroyuki Togashi<sup>3</sup>, Yosuke Amano<sup>3</sup>, Yutaka Kurita<sup>3</sup>, Noboru Okuda<sup>1</sup>, Ichiro Tayasu<sup>1</sup>

1.大学共同利用機関法人人間文化研究機構総合地球環境学研究所、2.岡山大学大学院自然科学研究科、3.国立研究開発法人水産総合研究センター東北水産研究所、4.国立研究開発法人海洋研究開発機構

1.Research Institute for Humanity and Nature, 2.Graduate School of Natural Science and Technology, Okayama University, 3.Tohoku National Fisheries Research Institute, Fisheries Research Agency, 4.Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology

Sr isotope ratio ( $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ) has been used as a geographical index of water and vegetation and a tracer of animal migration in terrestrial ecosystem. However, it has little power in marine ecosystem because of extremely homogeneous  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  ratio in seawater. In contrast, the Nd isotope ratio ( $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$ ) has a potential to become effective tracer of marine organisms because the  $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$  ratio of seawater is known to show a variation in the area and depth in the ocean (Amakawa et al., 2004). Nonetheless, there is little report on the Nd isotope ratio for marine and even terrestrial organisms, largely due to the extremely low content of Nd in organisms, and the resultant poor awareness of the element in ecological fields.

In order to explore the potential of Nd isotope as a biogeographical tracer in marine ecosystem, we determined the isotope ratios of Nd and Sr in soft bodies of shellfishes, mainly oysters and mussels in the coastal sea of eastern Tohoku district. Our results show that the  $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$  ratio of the shellfish has a wide variation (0.5123-0.5128), whereas the  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  ratio lies in the narrow range (0.70912-0.70921), which is almost equivalent to the value of seawater. Although the shellfish has lower  $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$  ratio than the exchangeable fraction of river sediments in the watershed of the coast, both ratios show a strong positive relationship ( $r^2 = 0.75$ ). Further, the shellfishes have higher  $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$  ratios than seawater in the northern Pacific, and the exchangeable  $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$  ratio of river sediments has a weak negative relationship with the  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  ratio of the associated river water ( $r^2 = 0.37$ ). These results demonstrate that the shellfish contains Nd derived from the watershed rocks of the adjoining river and Nd from oceanic water. It is concluded that the Nd isotope ratio has promise as a geographical index of habitat and foraging site of marine organisms and an effective tracer of marine animal migration at least in coastal sea zones.

キーワード：生体のNd同位体比、貝軟組織、海洋生態系

Keywords: Nd isotope ratio of organisms, soft bodies of shellfish, marine ecosystem

メソポタミア粘土板の地球化学的研究と西アジアにおけるストロンチウム循環  
Geochemistry of Mesopotamian clay tablets and strontium cycle in West Asia

\*安間 了<sup>1</sup>、申 基澈<sup>2</sup>、中野 孝教<sup>2</sup>、横尾 頼子<sup>3</sup>、浅井 公輔<sup>3</sup>

\*Ryo Anma<sup>1</sup>, Ki-Cheol Shin<sup>2</sup>, Takanori Nakano<sup>2</sup>, Yoriko Yokoo<sup>3</sup>, Kosuke Asai<sup>3</sup>

1.筑波大学生命環境系、2.総合地球環境学研究所、3.同志社大学理工学部

1.Faculty of Life and Environmental Science, University of Tsukuba, 2.Research Institute for Humanity and Nature, 3.Doshisha University

In this study, we present bulk chemical compositions and Sr-Nd isotopic ratios of cuneiform clay tablets ubiquitously excavated from Mesopotamia aiming to pin the place of origin by comparing characteristic physical feature of tablet clay and sediments from Mesopotamia. The obtained data were further compared with the compositions of meteoric water and river water in West Asia to discuss circulation of strontium and other elements, that involves interaction between rock/sediments, water and atmosphere.

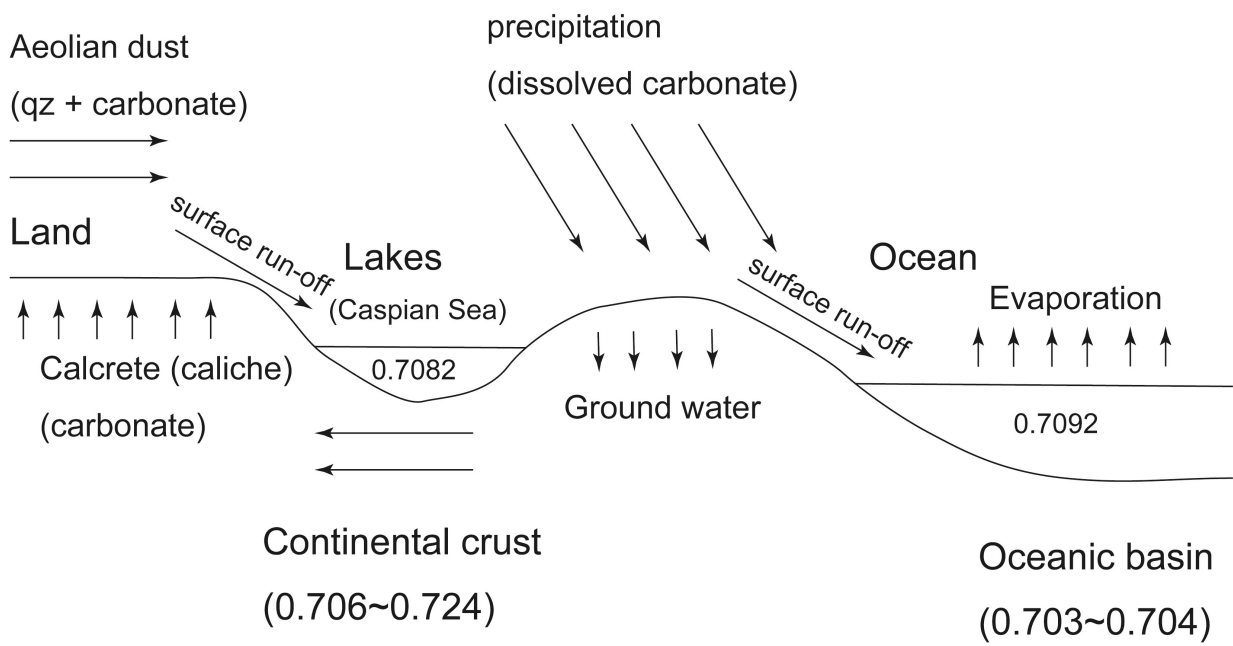
Bulk chemical analyses on tablet clay samples revealed that they contain ~1% Na<sub>2</sub>O, whereas CaO contents reached up to ~10%, implying that secondary Ca-carbonates were accumulated in pore spaces in original sediments during diagenesis or during preservation of the clay tablets. Ca-carbonate fills the pore-space under the optical microscope and was also detected by XRD analyses. The Ca-carbonate may have added artificially as a cementing material to achieve and maintain appropriate material properties for writing. TiO<sub>2</sub> (0.6%), Ni and Cr contents (> 100 ppm) are high as a felsic magmatic rock and imply some influence of mafic rocks, such as ophiolites. Samples from Nuzi (upstream of Tigris) has higher Ti/Fe ratio compared to Euphrates samples.

All the clay tablet samples show a weak Eu-anomaly and LREE enriched pattern, but they have different REE concentrations. Bulk Sr-Nd isotopic ratios were plot in a narrow range: 0.70835 to 0.70895 for <sup>87</sup>Sr /<sup>86</sup>Sr isotopic ratio, 0.51237 to 0.51243 for <sup>143</sup>Nd /<sup>144</sup>Nd. To evaluate the influence of Ca-carbonates in the tablet, we leached clay samples using acetic acid. Sr isotopic ratios of the leachate were approximately 0.7080 and plot in much narrower range. The obtained Sr isotopic ratio is similar to that of average Turkish meteoric water and Caspian Sea water (0.7082), but significantly lower than marine Sr isotopic ratios (0.7092). Iranian meteoric water has slightly higher value than Turkish meteoric water, but still lower than the marine Sr isotopic ratio. Sr isotopic ratio in the meteoric water is generally controlled by composition of aerosol (loess), especially soluble material such as carbonates. Our results indicate that Ca-carbonate cements (caliche or calcrete) formed at the surface condition have a great influence on the strontium circulation in the atmosphere of West Asia.

キーワード：メソポタミア、ストロンチウム循環、粘土板、膠着物、天水、堆積物

Keywords: Mesopotamia, Strontium cycle, clay tablet, cement, meteoric water, sediments

# Sr circulation



## 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(II)

Usefulness of strontium isotope composition for determining the geographical origin of Japanese horseradish (*Wasabia japonica*) (II)

\*神谷 貴文<sup>1</sup>、中村 佐知子<sup>1</sup>、伊藤 彰<sup>1</sup>、小郷 沙矢香<sup>1</sup>、西島 卓也<sup>2</sup>、申 基澈<sup>3</sup>、村中 康秀<sup>1</sup>

\*Takafumi Kamitani<sup>1</sup>, Sachiko Nakamura<sup>1</sup>, Akira Ito<sup>1</sup>, Sayaka Ogo<sup>1</sup>, Takuya Nishijima<sup>2</sup>, Ki-Cheol Shin<sup>3</sup>, Yasuhide Muranaka<sup>1</sup>

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

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

岩石や鉱物に含まれるストロンチウム (Sr) の安定同位体比 ( $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ) は、これまで主に地質学や岩石学の分野で活用されてきたが、植物は地域基盤である岩石・土壌・水の同位体組成を反映することから、農産物の産地トレーサビリティー指標としても用いられつつある。

ワサビ (*Wasabia japonica*)の栽培地は主に河川最上流部の湧水や渓流水であり、このような立地は、大気降水物や肥料などの人為的な影響が少なく、湧水は各地の地質を直接反映した同位体組成となると考えられる。そこで本研究では、Sr安定同位体比によるワサビの産地判別の可能性を評価することを目的とした。

日本の主要なワサビ産地である静岡県、岩手県、長野県、東京都、島根県から計34地点においてワサビ97サンプルおよびその栽培地である湧水・渓流水95サンプルを採取し、微量元素と $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 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。第四紀の新しい火山岩地域である静岡県の伊豆・富士山地域では $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ がほとんど0.7040以下と最も低い値となり、中生代の花崗岩や堆積岩が分布する長野県や東京都では0.7095以上で高い値となった。このように、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ によってワサビ生産地を判別できることが明らかになった。

キーワード：産地判別、ワサビ、微量元素、ストロンチウム同位体比、静岡県

Keywords: discrimination of the geographic origin, Japanese horseradish (*Wasabia japonica*), trace element, strontium isotopic ratio, Shizuoka Prefecture



## 高解像度水質マップによる岡山県一級水系の水質解析

Geochemical and isotopic analyses of river waters from the Okayama Prefecture, Japan.

\*山下 勝行<sup>1</sup>、亀井 隆博<sup>1</sup>、岸本 悠河<sup>2</sup>、大井 あや<sup>2</sup>、大西 彩月<sup>2</sup>、栗原 洋子<sup>2</sup>、千葉 仁<sup>1</sup>、中野 孝教<sup>3</sup>、SHIN Ki-Cheol<sup>3</sup>\*Katsuyuki Yamashita<sup>1</sup>, Takahiro Kamei<sup>1</sup>, Yuga Kishimoto<sup>2</sup>, Aya Ooi<sup>2</sup>, Ayaka Onishi<sup>2</sup>, Yoko Kurihara<sup>2</sup>, Hitoshi CHIBA<sup>1</sup>, Takanori Nakano<sup>3</sup>, Ki-Cheol Shin<sup>3</sup>

1.岡山大学大学院自然科学研究科、2.岡山大学理学部地球科学科、3.総合地球環境学研究所

1.Graduate School of Natural Science and Technology, Okayama University, 2.Faculty of Science, Okayama University, 3.Research Institute for Humanity and Nature

岡山県の一級水系（吉井川水系、旭川水系、高梁川水系）の流域面積は岡山県の面積の8割以上を占めており、その水は県内の農業や工業活動、あるいは水道水として広く利用されている。本研究グループは、岡山県の詳細な水質マップの作成を目的とした河川水の調査を2011年から継続して行っており、これまでに岡山県および、隣接した地域の381地点から計537の河川水試料を採取している。また、一部のポイントでは数ヶ月おきにサンプリングを行うことで水質の季節変動についても調査している。採取した試料はいずれも0.2のセルロースアセテート製フィルターでろ過した後に、主要溶存成分と微量元素組成、O-H同位体比の測定を行った。さらに、一部の試料についてはS-Srの同位体分析も進めている。

水素と酸素の安定同位体比は、顕著な地域変動を示す。特に、d値は県南から県北に向かって増加し、吉井川、旭川、高梁川の源流域である中国山地で20を超える高い値を示した。一方、同一地点におけるd値の季節変動幅は数%程度であり、地域的な変動に比べると小さいことが確認された。

主要溶存成分も同様に地域変動を示したが、そのパターンは元素によって異なる。例えば主要溶存成分の一つであるCaは、石灰岩が広く分布する地域で特に高いことから、CaCO<sub>3</sub>の分解が河川水の水質形成に影響を与えていることが示唆される。さらに、同じアルカリ土類金属であるSrの安定同位体比を見ると、旭川源流域の火山岩地域で最も低く、山陰帯花崗岩地域、山陽帯の花崗岩・流紋岩および石灰岩地域、さらに丹波帯の堆積岩地域の順で高くなっており、表層地質の変化に対応したパターンが確認された。このことは、CaCO<sub>3</sub>以外のCaやSrに富む鉱物の風化も河川水のCa, Sr濃度に影響を与えていることを示している。一方、主要陰イオンの一つであるSO<sub>4</sub>は各河川の源流・上流域で最も低く、津山盆地や久世盆地が広がる地域よりも下流域で高くなる傾向が見られた。S同位体比がSO<sub>4</sub>の増加とともに-0‰に収束する傾向を示すことから、生活排水による流入に加えて農業肥料等を起源とする、S同位体比が0‰付近の硫黄が河川に流入していることが考えられる。

REE, HFSE, アルカリ金属等の微量元素濃度の地域変動についてもいくつかのパターンに分類することができたが、これに関しては周辺地質の影響に加え、鉱山排水などの混入による局所的な変化も考えられる。

キーワード：岡山県、河川水、地球科学

Keywords: Okayama Prefecture, River Water, Geochemistry

## 兵庫県千種川の水質と安定同位体の特徴

## The geochemical and stable isotope characteristics of the Chikusa River in Hyogo Prefecture

\*大串 健一<sup>1</sup>、中野 孝教<sup>4</sup>、陀安 一郎<sup>4</sup>、横山 正<sup>2</sup>、太田 民久<sup>4</sup>、草野 由貴子<sup>4</sup>、三橋 弘宗<sup>3</sup>、伊藤 真之<sup>1</sup>、蛭名 邦禎<sup>1</sup>

\*Ken'ichi Ohkushi<sup>1</sup>, Takanori Nakano<sup>4</sup>, Ichiro Tayasu<sup>4</sup>, Tadashi Yokoyama<sup>2</sup>, Tamihisa Ohta<sup>4</sup>, Yukiko Kusano<sup>4</sup>, Hiromune Mitsuhashi<sup>3</sup>, Masayuki Itoh<sup>1</sup>, Kuniyoshi Ebina<sup>1</sup>

1.神戸大学大学院人間発達環境学研究科、2.兵庫県立西はりま特別支援学校、3.兵庫県立人と自然の博物館、4.総合地球環境学研究所

1.Kobe University, Graduate School of Human Development and Environment, 2.Hyogo Prefectural Nishi-Harima School for Students with Special Needs, 3.Museum of Nature and Human Activities, 4.Research Institute for Humanity and Nature

The simultaneous survey of water temperature in the Chikusa River was performed by Chikusa River Conservation Committee on August 9, 2015. The activity of the simultaneous survey has been putting it into effect by cooperation with a hundred of areal residents on Sunday of the beginning of August every year since 2002. In the survey, water samples were collected at 74 sites in total from Chikusa-cho Mimuro in the upstream and Amako seller to the Ako City coastal part in downstream. The cooperative geochemical study for the Chikusa River between the Chikusa River Conservation Committee and Research Institute for Humanity and Nature with Kobe University and Museum of Nature and Human Activities, Hyogo has started from the 2015's survey. In this study, we analyzed the water samples collected in 2015 by the Chikusa River Conservation Committee and areal residents in order to construct an environmental map for conservation in the Chikusa River area. The hydrogen and oxygen isotope composition and an ion chromatography analysis were performed about the water samples.

## 愛媛県西条市の地表水と地下水の連環診断に関する月別多項目水質分析

Monthly monitoring of multiple water-quality to diagnose the linkage between surface water and groundwater in the Saijo plain, Ehime prefecture

\*徳増 実<sup>2</sup>、中野 孝教<sup>1</sup>、申 基澈<sup>1</sup>、草野 由貴子<sup>1</sup>、大田 民久<sup>1</sup>、齋藤 有<sup>1</sup>、横尾 頼子<sup>4</sup>、山田 佳裕<sup>3</sup>

\*Minoru Tokumasu<sup>2</sup>, Takanori Nakano<sup>1</sup>, Ki-Cheol Shin<sup>1</sup>, Yukiko Kusano<sup>1</sup>, Tamihisa Ohta<sup>1</sup>, Saitoh Yu<sup>1</sup>, Yoriko Yokoo<sup>4</sup>, Yoshihiro Yamada<sup>3</sup>

1.大学共同利用機関法人 人間文化研究機構 総合地球環境学研究所、2.西条市役所、3.香川大学農学部、4.同志社大学理工学部

1.Research Institute for Humanity and Nature, Inter-University Research Institute Corporation National Institutes for the Humanities, 2.Municipal office of Saijo , 3.Faculty of Agriculture, Kagawa University, 4.Faculty of Sciences and Engineering, Doshisha University

Coastal plain of Saijo city in Ehime prefecture is divided into eastern Saijo plain and western Shuso plain, and is known to be rich in groundwater irrespective of low precipitation in the Setouchi district. This is ascribed to be the presence of Ishizuchi mountainous area in the back of the plain, where the amount of precipitation increases with elevation. For the sustainable use of the groundwater, we collected samples of groundwater and river water over the whole plain area in cooperation with residents of Saijo city. Spatial analysis for the concentrations of 54 elements and stable isotope ratios of H, O, S, and Sr of these water showed that (1) the groundwater is divided into several areas dependent on the watershed and flow areas, and (2) the unconfined groundwater in the eastern plain flows in shallow aquifer recharged from the head of alluvial fan of the Kamo river, whereas the artesian water, which is representative and good quality of Saijo citizens, flows in deeper aquifer recharged from more mountainous area. Based on this finding, we started to monitor water-quality monthly at two Kamo river sites (Funagata bridge and Isonohashi bridge), Ohmachi elementary school site for shallow groundwater, Uchinuki hiroba site for artesian groundwater, and Tokumasu house site for a mixture of both waters. Temporal analysis of water quality data obtained during 2007 to 2015 is summarized as follows:

(1) The concentrations of most elements (Sb, As, V, Rb, Si, Al, Ti) in river water become high in summer and low in winter or spring, whereas those in groundwater at the Ohmachi site are high in winter and low in spring or summer and those in groundwater at the Tokumasu site are high in autumn and low in winter or spring. From the temporal analysis of these water-quality data, we can estimate the flow rate of the shallow groundwater to be about 10 cm per day.

(2) This seasonal variation is not so distinct for most elements in the artesian water at the Uchinuki site; the concentrations of Cl, B, Na, Sb, and As increase, whereas those of Ca and Sr decrease monotonously with weak seasonal change. Other elements (Si, V, Mg, Ti, SO<sub>4</sub>) show more complex variation. This result indicates that the recharge area and flow rate of the artesian water differ significantly from that of shallow one, and other water source in addition to the Kamo river is involved.

It is concluded that the monthly monitoring of water quality is effective to evaluate the linkage of the surface water and groundwater system, but further continuous monitoring is required especially for elucidating the flow system of artesian water.

キーワード：地下水、地表水、モニタリング、流速、水質診断、涵養域

Keywords: groundwater, surface water, monitoring, flow rate, water quality diagnosis, recharging area



## 愛媛県西条市の降水の酸素・水素・ストロンチウム同位体比と微量元素濃度の時空間変動

Spatiotemporal variations in oxygen-hydrogen and strontium isotopic and trace elemental compositions of precipitation, Saijo, Ehime

\*横尾 頼子<sup>1</sup>、伊藤 周平<sup>2</sup>、申 申基澈<sup>3</sup>、加藤 祥生<sup>4</sup>、中野 孝教<sup>3</sup>、徳増 実<sup>5</sup>

\*Yoriko Yokoo<sup>1</sup>, Syuhei Ito<sup>2</sup>, Ki-Cheol Shin<sup>3</sup>, Shota Kato<sup>4</sup>, Takanori Nakano<sup>3</sup>, Minoru TOKUMASU<sup>5</sup>

1.同志社大学理工学部、2.同志社大学大学院理工学研究科、3.総合地球環境学研究所、4.金沢大学大学院自然科学研究科、5.西条市生活環境部

1.Faculty of Science and Engineering, Doshisha University, 2.Graduate School of Science and Engineering, Doshisha University, 3.Research Institute for Humanity and Nature, 4.Kanazawa University, 5.Saijo City

愛媛県西条市において、2007年から9年間、標高の異なる6地点で採取された1ヶ月ごとの降水の酸素・水素およびストロンチウムの安定同位体比と微量元素濃度を求め、その経年変化から降水となる水蒸気の形成過程や溶存成分の起源を明らかにした。酸素・水素同位体比 ( $\delta^{18}\text{O}$ ,  $\delta\text{D}$ ) は、水同位体比アナライザーを用いて測定し、それらからd値を求めた。Srの安定同位体比は二重収束型高分解能 ICPマルチコレクタ質量分析装置で、27の微量元素の濃度はICP質量分析計で測定した。

2007年から2015年までの9年間で、降水の $\delta^{18}\text{O}$ ,  $\delta\text{D}$ の経年変化を見ると、 $\delta^{18}\text{O}$ は年間で約10%、 $\delta\text{D}$ は年間で約100%の変動が見られた。d値は、夏季に値が低くなり、冬季に値が高くなる傾向が見られた。2009年から2012年まで、夏季の成就社(標高1280 m)のd値は他の地点と比べて3~10%高くなった。この理由として、低湿度、低降雨量下では動的蒸発の効果により降水の同位体組成が変化することや、落下中の雨が蒸発し高所で再凝結して雨となったことが考えられる。一方、2013年と2014年にd値が下がる理由は、豪雨イベントが増加し広範囲に同一の雨が降ったことや、夏季の季節風による気団の影響が考えられる。

市役所(標高20 m)の屋上で採取された降水で高い濃度を示したAs, Cu, Pb, Sb, Znは、工業地帯からの排出に由来する。Al, Mn, Fe, Rb, Sr, Mo, Cd, Cs, Baや市役所の降水で濃度が高い元素は、冬季の成就社と藤之石(標高700 m)においても濃度が高かった。この結果は、標高の高い地域の降水には、冬季の北西からの季節風によって運ばれる瀬戸内海沿岸での工業等人間活動や春先に飛来する黄砂に由来する元素が含まれていることを示している。成就社の降水のSr同位体比も春季に高く、Srの濃度と同位体比が高い黄砂の可溶性鉱物が溶解しているという考えを支持する。

キーワード：降水、酸素-水素同位体、Sr同位体、微量元素

Keywords: precipitation, oxygen-hydrogen isotope, Sr isotope, trace element

## 中国地方における降水の硫黄・水素・酸素・ストロンチウム同位体比の季節・経年変動

## Seasonal and Secular Change in Sulfur, Hydrogen, Oxygen and Strontium Isotopic Ratios of Precipitation Across Chugoku District.

毛 恵星<sup>1</sup>、塚田 快<sup>1</sup>、淀瀬 達也<sup>1</sup>、山下 勝行<sup>1</sup>、\*千葉 仁<sup>1</sup>Huixing Mao<sup>1</sup>, Kai Tsukada<sup>1</sup>, Tatsuya Yodose<sup>1</sup>, Katsuyuki Yamashita<sup>1</sup>, \*Hitoshi CHIBA<sup>1</sup>

1.岡山大学大学院自然科学研究科

1.Graduate School of Natural Science and Technology, Okayama University

鳥取県と岡山県を南北に縦断する計7地点において、試料採取を行っている。採取方法は、乾性沈着物（エアロゾルや黄砂）と湿性沈着物（雨や雪）をまとめて採取するバルク法である。本研究では採取した雨水サンプルの主成分化学組成と硫酸イオンの硫黄同位体比、さらに、水の水素・酸素同位体比、Sr同位体比を測定し、中国地方における降水とその溶存成分の起源と季節・経年変動について2011年～2015年の結果を考察した。

非海塩性硫酸の硫黄同位体比は、ほとんどの期間で日本海からの距離が大きくなるに従って減少している。また、非海塩性硫酸イオンの硫黄同位体比は夏期に低く、冬期に高い季節変化を示している。よって、日本海側の方が瀬戸内海側と比べて、大陸からの越境汚染の影響を受けていることがわかり、さらに冬期ほどその影響が大きいと考えられる。さらに、過去5年間の非海塩性硫酸の硫黄同位体比の最大値と最小値は、緩やかな増加傾向がある。このことが、大陸からの越境汚染の増加を意味するかどうか、今後の継続的な測定が必要である。

降水の水素・酸素同位体比から計算されたd値は、どの試料採取地点でも、夏期に低く冬期に高い季節変化を毎年明瞭に示している。さらに、夏期の日本海側のd値は瀬戸内海側のd値より低く、冬期は逆の傾向を示す。よって冬季には大陸側から、夏季には太平洋側からの気団が主に降水を生じさせていると推定できる。このことは、冬期の降水の高い非海塩性硫酸の高い硫黄同位体比で示される大陸からの越境汚染が大陸側から来る気団によってもたらされていることを支持する。

日本海に近い湯梨浜と三朝における非海塩性Sr同位体比は春期に高く (>0.7100)、夏期から秋期に低くなる (~0.7070) 季節変化を繰り返している。春期の高い同位体比は大陸からの黄砂の影響を反映している。これに対して、夏期から秋期は、周辺の岩石由来の低い同位体比を持つ物質の影響を受けていると考えられ、非海塩性硫酸の硫黄同位体比や降水のd値から示される大陸からの物質輸送が少ないことと整合的である。冬期は、大陸からの黄砂の輸送が少ないため春期と夏期から秋期の間値的な値を示していると考えられる。

キーワード：降水、中国地方、非海塩性硫酸、硫黄同位体比、水素・酸素同位体比、ストロンチウム同位体比  
Keywords: precipitation, Chugoku district, non-sea-salt sulfate, S isotope ratio, H and O isotope ratio, Sr isotope ratio

## 小豆島における河川水質の特徴 -河川物質マップの作成-

## Characteristics of River Water Quality in Shodo-shima Island -Drawing a material Map in Rivers -

\*山田 佳裕<sup>1</sup>\*Yoshihiro Yamada<sup>1</sup>

1.香川大学農学部

1.Faculty of Agriculture, Kagawa University

## [Introduction]

In Kagawa Prefecture, where water resources are low, the accumulation of organic matter in the rivers downstream has become a problem (Yamada et al. 2015). For the cause analysis of organic contaminant, it is necessary to clarify its origin and load process and is essential to make a material map as the database of substance concentration.

So far, we have reported a material map in rivers in Shikoku Island. This time, by drawing a material map of Kagawa Prefecture, including Shodo-shima Island, the relationship between the river water quality and the river's basin environment will be analyzed, especially regarding Shodo-shima Island.

## [Methods]

In 27 rivers and 125 points of the entire area of Shikoku Island (Kagawa Prefecture) and Shodo-shima Island, water sampling was performed in August 2011. The items analyzed were main dissolved ions, chlorophyll *a* (Chla + Pheo), particulate organic carbon (POC) and particulate organic nitrogen (PON), and dissolved silicate (D-Si).

## [Results and Discussion]

In Shikoku Island, POC was from 26 mg L<sup>-1</sup> to 3232 mg L<sup>-1</sup>. As POC and Chla have a correlation ( $r^2=0.54$ ,  $p < 0.001$ ), it can be said that the main components of POC in the rivers are algae.

Additionally, when multiple regression analysis was performed by setting the population density, domestic animal wastes, the density of reservoir and the amount of precipitation as explanatory variables, as the effects of the density of reservoir were shown to be especially significant (standard partial regression coefficient 3.54,  $p = 0.001$ ), it can be considered that the algae produced in the reservoirs are the origin of POC in the rivers.

In Shodo-shima Island, POC was from 90 mg L<sup>-1</sup> to 5277 mg L<sup>-1</sup>, which was higher compared to Shikoku Island, especially in the southern part. Furthermore, as POC and Chla have no correlation and C/N was as high as 14 on average, it can be said that higher forms of life contribute greatly to the organic matter within the rivers of the southern part of Shodo-shima Island. When comparing the ratio of forest in the basin of the river with C/N of the downstream end, both the ratio of forest and C/N ratio were high in most of the points in the southern part of Shodo-shima Island.

Accordingly, it seems that the ratio of forest has a great influence on the composition of POC. Additionally, examining the relationship between the quantity of river water and POC, POC became high at the points when the quantity of the river water was small.

The D-Si of Shodo-shima Island became higher compared to that of Shikoku Island (Shikoku Island average: 7.53mg L<sup>-1</sup>, Shodo-shima Island average: 13.6 mg L<sup>-1</sup>). In particular, it tended to be high at the points of granites, while it became low at the points where there is basalt in the upstream that contains Hyp-Aug-01 basalt containing a small amount of silicon. When comparing the D-Si of the source of the rivers in Shikoku Island and Shodo-shima Island, which include granite with the amount of precipitation of the basin, it was found that there was a negative correlation. It was found that, as Shodo-shima Island has a small amount of precipitation, D-Si become high.

Furthermore, by setting up the prediction formula for precipitation at the granite area points in Kagawa Prefecture, the D-Si of the other nature of the soil of Shodo-shima Island was corrected by the amount of precipitation. As a result, it was found that D-Si was higher at the points of andesite compared to the points of granite. It is considered that much silicate has been eluted because the geological age of andesite of Shodo-shima Island is new.

[Acknowledgments]

This study was supported in part by the River Fund from the Foundation of River and Watershed Environment Management, Japan.

キーワード：小豆島、河川、水質

Keywords: Shodo-shima Island, River, Water Quality



## 硫黄同位体比を用いた日本における人為起源硫酸イオン沈着量の時空間変動

Temporal and spatial variation of anthropogenic sulfur deposition in Japan by using sulfur isotopic ratio

\*猪股 弥生<sup>1</sup>、斎藤 辰善<sup>1</sup>、諸橋 将雪<sup>1</sup>、山下 尚之<sup>1,2</sup>、佐瀬 裕之<sup>1</sup>、大泉 毅<sup>1,3</sup>、高橋 克行<sup>4</sup>、兼保 直樹<sup>5</sup>、船木 大輔<sup>6</sup>、岩崎 綾<sup>7</sup>、中込 和徳<sup>8</sup>、城間 朝彰<sup>7</sup>、山口 高志<sup>9</sup>

\*Yayoi Inomata<sup>1</sup>, Tatsuyoshi Saito<sup>1</sup>, Yukimasa Morohashi<sup>1</sup>, Naoyuki Yamashita<sup>1,2</sup>, Hiroyuki Sase<sup>1</sup>, Tsuyoshi Ohizumi<sup>1,3</sup>, Katsuyuki Takahashi<sup>4</sup>, Naoki Kaneyasu<sup>5</sup>, Daisuke Funaki<sup>6</sup>, Aya Iwasaki<sup>7</sup>, Kazunori Nakagomi<sup>8</sup>, Tomoaki Shiroma<sup>7</sup>, Takashi Yamaguchi<sup>9</sup>

1.アジア大気汚染研究センター、2.森林総研、3.新潟県保健環境科学研究所、4.日本環境衛生センター、5.産総研、6.島根県保健環境科学研究所、7.沖縄県衛生環境研究所、8.長野県環境保全研究所、9.北海道立総合研究機構

1.Asia Center for Air Pollution Research, 2.Forestry and Forest Products Research Institute, 3.Niigata Prefectural Institute of Public Health and Environmental Sciences, 4.Japan Environmental Sanitation Center, 5.National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, 6.Shimane Prefectural Institute of Public Health and Environmental Sciences, 7.Okinawa Prefectural Institute of Health and Environment, 8.Nagano Environmental Conservation Research Institute, 9.Environmental and Geological Research Department

### [緒言]

硫黄同位体比は、発生源によって異なった値を示すことから、環境試料と発生源の硫黄同位体比を比較することにより発生源寄与を定量的に評価できる指標成分として大きな利点を有している。本研究では、東アジア酸性雨モニタリングネットワーク(EANET)の観測網を使用し、降水の硫黄同位体比の測定を行っている。本発表では、降水の硫黄同位体比の時空間変化をもとに、越境輸送による人為起源硫酸イオン沈着量の日本における時空間変動を見積もった。

### [観測及び分析]

2014年以降、降水試料の採取を、利尻、竜飛岬、落石、新潟加治川、佐渡関岬、新潟巻、東京、八方、伊自良、隠岐、辺戸岬、小笠原において行っている。試料採取期間は、サイトにより異なるが、2週間、1カ月、季節(1年を4区分した各期間;1-2月、4-6月、7-9月、11-12月)毎である。硫黄同位体比の測定は、サーモフィッシャー社製質量分析計(NCS2500, Conflo II, Delta-Plus)を用いている。標準物質はCDT(Canyon Diablo Troilite)を使用し、分析精度は標準偏差で $\pm 0.16\%$ であった。非海塩硫黄同位体比は、ナトリウムイオンが海塩起源であると仮定して算出した。

### [結果と考察]

日本海沿岸に位置するモニタリングサイト(利尻、佐渡関、新潟巻、新潟加治川、隠岐)における非海塩硫黄同位体比(例えば新潟加治川  $+2\text{--}+4.9\%$ )は、冬季に高く、夏季に低い、明瞭な季節変化を示した。同様な季節変化は、太平洋側に位置する東京や伊自良でも観測されたが(東京  $-0.73\text{--}+4.0\%$ )、その値や季節変動の振幅は、日本海側のモニタリングサイトと比較して小さかった。中国における硫酸イオンの主な発生源は石炭(0-15%, Xiao et al., 2011)、一方、日本における硫酸イオンの主要な発生源である石油の値はマイナス値(-2.7%, Ohizumi et al., 1997)である。さらに中国中央部の大都市で観測された粒子中硫黄同位体比は $4.5\pm 1.3\%$ であると報告されている(Li et al., 2013)。これらのことから、日本海側と太平洋側に位置するモニタリングサイトにおける降水中の非海塩硫黄同位体比やその季節振幅の違いは、アジア大陸から越境輸送起源の硫酸イオンに、日本国内発生源由来の硫酸イオンが付加されていることを示唆しているものと考えられる。山岳モニタリングサイトである八方(標高1850m)では、春季に観測されたいくつかの試料を除くと、ほぼ一定の値( $4.7\pm 1.2\%$ )であった。このことから、八方で観測される降水中の硫酸イオンは、地表の日本国内発生源の寄与が少ない、越境輸送由来であるものと考えられた。

太平洋上の離島である小笠原における硫黄同位体比は、春-夏季に高く、冬季に低い季節変動をしていた( $+0.74\text{--}+17\%$ )。春-夏季における高い硫黄同位体比は、生物起源の可能性がある。

降水中の硫酸イオンの主な起源を、海塩、越境輸送、ローカル（国内発生源、生物、火山も含む）と仮定して、マスバランスモデルから推定した各起源からの寄与率を推定した。この結果、日本海沿岸で観測された越境輸送に由来する硫酸イオンの沈着量（例えば、新潟加治川 1.1–20 mg/m<sup>2</sup>/day）は、太平洋沿岸域における越境輸送起源の硫酸イオン沈着量（例えば、東京0.03–6.7 mg/m<sup>2</sup>/day）の2-3倍大きいことが明らかになった。  
[参考文献]

Li, X., Bao, H., Gan, Y., Zhou, A., Liu, Y. 2013. Multiple oxygen and sulfur isotope compositions of secondary atmospheric sulfate in a mega-city in central China, *Atmospheric Environment*, 81, 591-599.

Ohizumi, T., Fukuzaki, N., Kusakabe, M., 1997. Sulfur isotopic view on the sources of sulfur in atmospheric fallout along the coast of the sea of Japan, *Atmospheric Environment*, 31, 13339-1348.

Xiao, H.Y., Liu, C-Q., 2011. The elemental and isotopic composition of sulfur and nitrogen in Chinese coals, *Organic Geochemistry*, 42, 84-93.

キーワード：硫黄同位体比、降水、越境輸送

Keywords: sulfur isotopic ratio, precipitation, transboundary transport

## 国内2森林集水域におけるストロンチウム同位体比の年間及び垂直変動

## Annual and vertical variation of strontium isotopic ratio in two forest catchment in Japan

\*齋藤 辰善<sup>1,2</sup>、山下 尚之<sup>1</sup>、諸橋 将雪<sup>1</sup>、猪股 弥生<sup>1</sup>、内山 重輝<sup>1</sup>、中田 誠<sup>2</sup>、中野 孝教<sup>3</sup>、陀安 一郎<sup>3</sup>、申 基  
激<sup>3</sup>、大泉 毅<sup>1</sup>、佐瀬 裕之<sup>1</sup>

\*Tatsuyoshi Saito<sup>1,2</sup>, Naoyuki Yamashita<sup>1</sup>, Masayuki Morohashi<sup>1</sup>, Yayoi Inomata<sup>1</sup>, Shigeki Uchiyama<sup>1</sup>,  
Makoto Nakata<sup>2</sup>, Takanori Nakano<sup>3</sup>, Ichiro Tayasu<sup>3</sup>, Ki-Cheol Shin<sup>3</sup>, Tsuyoshi Ohizumi<sup>1</sup>, Hiroyuki Sase<sup>1</sup>

1.アジア大気汚染研究センター、2.新潟大学、3.総合地球環境学研究所

1.Asia Center for Air Pollution Research, 2.Niigata University, 3.Research Institute for Humanity  
and Nature

## [緒言]

硫黄のような軽元素の場合、生態系内で植物に利用される際、軽い同位体の方が重い同位体よりも取り込まれやすく、同位体分別が生じ、同位体比が変動する。一方、ストロンチウム (Sr) のような重元素では、このような同位体分別はほぼ無視できるレベルであり、異なるソースの成分混合によってのみ同位体比が変動する。このため、生態系内の複数のソースが、それぞれどのように寄与しあっているかを推定するには、同位体分別の影響を受けにくい元素が適していると考えられる。本研究では、新潟県新発田市加治川及び岐阜県山県市伊自良湖の2森林集水域で得られた、Sr同位体比の年間及び垂直変動のデータについて論じる。

## [方法]

それぞれの集水域において、林外雨、渓流水及び斜面土壌中の土壌溶液を採取し、2013年12月以降の試料についてSr同位体比の測定を行った。なお、土壌溶液は斜面上部、中部及び下部の3地点について、それぞれ深度20 cmに加え、可能であれば深度60 cmについても採取した。Sr同位体比は、総合地球環境学研究所(京都府京都市)所有の、表面電離型質量分析装置(TIMS: Thermal Ionization Mass Spectrometry)を用いて測定し、標準物質としてNBS987を用いて算出した<sup>87</sup>Sr/<sup>86</sup>Srとして示す。

## [結果及び考察]

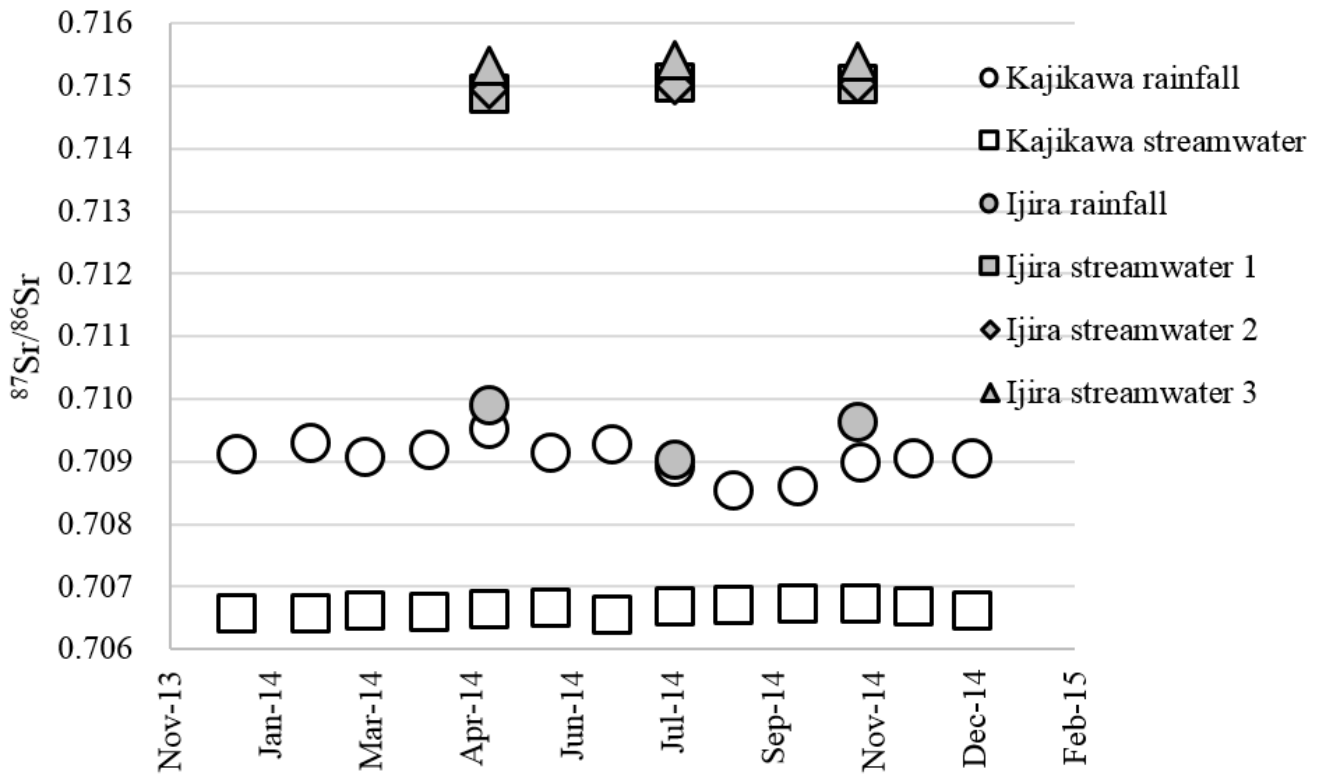
図に両集水域における<sup>87</sup>Sr/<sup>86</sup>Srの測定結果を示す。まず、流入側の林外雨について見ると、流出側の渓流水に比べ年間の変動幅が大きく、加治川集水域では、黄砂の飛来量が増える春季、次いで季節風により海塩及び大陸由来のSrの沈着量が増える冬季の順に高い値を示している。これらの同位体比変動には、異なる起源からの寄与がよく現れており、海塩の寄与が高くなる冬季には、海水の<sup>87</sup>Sr/<sup>86</sup>Sr約0.709に近い値となり、春季は大陸由来のダストに含まれる可溶性鉱物(<sup>87</sup>Sr/<sup>86</sup>Sr: 0.711±0.001)のため、冬季より高い値となっているものと考えられる。一方、流出側の渓流水では、年間を通じて非常に安定した値となっており、両集水域ともに林外雨とは大きく異なる値であった。降水に比べて渓流水のSr濃度は一桁程度高く、カルシウムやマグネシウムとの相関も良い。また、花崗岩が多い加治川集水域の渓流水に対して、中生代の海生堆積岩が分布する伊自良湖集水域の渓流水は高い<sup>87</sup>Sr/<sup>86</sup>Srを示した。これらのことから、両集水域において溪流へと流出しているSrは、大気沈着由来以外、おそらく地質由来のものが大部分を占めているものと考えられる。なお、本発表では土壌溶液を含めた垂直変動及び硫黄(S)同位体比との比較についても論じる。

## [謝辞]

本研究で示すデータは、環境省越境大気汚染・酸性雨長期モニタリングにより得られたものである。また、Sr同位体比測定は、総合地球環境学研究所の同位体環境学共同研究事業により実施し、S同位体比測定は、アジア太平洋地球変動研究ネットワーク(Asia Pacific Network on Global change Research, APN: ARCP2013-13CMY-Sase)の支援により実施した。関係機関の方々に謝意を表します。

キーワード: ストロンチウム同位体比、降水、渓流水

Keywords: strontium isotopic ratio, rainfall, streamwater



## 安定同位体分析のための環境試料の化学的分離法

## Chemical separation of environmental materials for Stable Isotope Analysis

\*SHIN Ki-Cheol<sup>1</sup>\*Ki-Cheol Shin<sup>1</sup>

## 1. 総合地球環境学研究所

## 1. Research Institute for Humanity and Nature

Stable Isotopes (SI), especially Sr-Nd-Pb isotopes, had been widely used as powerful geochemical tracers in Earth sciences. In recent, these isotope ratios have been applied to the biogeochemical tracer in traceability research. Since its invention, multi-collector ICP-MS (MC-ICP-MS) has been widely used for isotope analysis of metal and metalloids, including Sr and Pb because of their higher ionization efficiency of the ICP ion source, the enhanced sample throughput, and the flexibility of sample introduction. However, the chemical separation is still adapted from those developed for TIMS, and not modified for the use of MC-ICP-MS. The higher ionization efficiency makes almost all introduced component to ionize, causing matrix effect to the analyzed data and deterioration of the machine. Diverse environmental samples, especially organic materials cause a problem during chemical separation that could not expect. It should need that the element for MC-ICP-MS analysis should be clearly separated from matrix component not only cation elements but also organic materials.

The purpose of this study is to describe a newly developed sequential separation of Sr, Pb, and Nd with Sr resin and nitric acid solution reducing the processing time, the amount of acid reagent solution, and evaporation steps.

Two type of separation methods has developed depending on the elements. One is single separation method and the other is multi-separation ones. Single separation method separates a small amount of Sr (~1 $\mu$ g Sr) or Pb (~1 $\mu$ g Pb) only with restricted volume of the resin. This method merits fast recovery of the target element and direct analysis of Sr isotope ratios with MC-ICP-MS. The Pb solution recovered by hydrochloric acid evaporated and dissolved in nitric acid for isotope analysis. Multi-separation method uses a large amount of the resin to separate REE, Sr, and Pb in a row. The REE solution follows further separation of matrix elements with a cation exchange resin to purify rare earth elements. Nd elements purified from REEs with Ln resin.

To reduce organic materials from the Sr resin, a polymeric adsorbent resin is used in the lower layer of the Sr resin. For water samples, it is recommended to use hydrofluoric acid during sample evaporation, because natural water contains silica as a major component and poor separation in the resin. During these methods, the elements recovered up to 95% of Sr and 99 % of Pb of the loaded samples, respectively. The blank levels of Sr and Nd in the separation process were ~10pg and ~20pg, respectively.

キーワード：安定同位体、MC-ICP-MS、化学分離、Sr樹脂

Keywords: Stable isotope, MC-ICP-MS, chemical separation, Sr resin

浅間火山年縞トウファの酸素・炭素同位体組成に記録される古気候・イベント情報の評価  
 Evaluation for information on paleoclimate and event recorded in stable isotopic compositions of an annually-laminated tufa, Asama volcano, central Japan

柚原 雅大<sup>1</sup>、\*勝田 長貴<sup>1</sup>、阿部 理<sup>2</sup>、内藤 さゆり<sup>1</sup>、川上 紳一<sup>1</sup>

Masahiro Yuhara<sup>1</sup>, \*Nagayoshi Katsuta<sup>1</sup>, Osamu Abe<sup>2</sup>, Sayuri Naito<sup>1</sup>, Shin-ichi Kawakami<sup>1</sup>

1.岐阜大学教育学部、2.名古屋大学大学院環境学研究科

1.Faculty of Education, Gifu University, 2.Graduate School of Environmental Studies, Nagoya University

トウファは方解石を主体とした縞状堆積物であり、その縞状構造は年間降水量や平均気温を反映した年縞からなることから、高時間分解能で古環境を復元できるものとして注目されている。トウファの酸素・炭素同位体組成に関する研究はこれまで数多く行われており（例えば、Matsuoka et al. 2000）、それらの変動は水温の季節変動やそれによる脱ガス効果を反映するものとみなされている。一方で、 $\delta^{18}\text{O}$ や $\delta^{13}\text{C}$ の変動幅や絶対値については、必ずしも理論値と一致するものではなく、これまでに多くの検討がなされている（例えば、Yan et al. 2012）。本研究では、活火山地帯で初めて発見された浅間火山の年縞トウファ方解石に関して、その $\delta^{18}\text{O}$ や $\delta^{13}\text{C}$ に記録される古気候情報の評価を行なった。

トウファ同位体組成分析は、2012年に採取した濁川河床の現生トウファが用いられた。まず、マイクロドリルを用いて、0.1 mm間隔、深さ0.1 mmで分取した。これらの試料の $\delta^{18}\text{O}$ と $\delta^{13}\text{C}$ を炭酸塩前処理装置付同位体比質量分析計（Delta V + GasBench II、総合地球環境学研究所既設）を用いて測定した。 $\delta^{13}\text{C}$ はDelta Plus、 $\delta^{18}\text{O}$ は $\text{CO}_2\text{-H}_2\text{O}$ 平衡法を用いて分析を行った。DICの化学種（ $\text{CO}_2$ 、 $\text{HCO}_3^-$ 、 $\text{CO}_3^{2-}$ ）の割合とそれらの $\delta^{13}\text{C}$ 同位体分別効果の計算は、CO2SYS (Lewis and Wallace, 1998)が用いられた。

トウファの $\delta^{18}\text{O}$ と $\delta^{13}\text{C}$ は共に、明瞭な季節変動を示し（ $r=0.71$ ）、Mgに富む夏季の縞では相対的に低い値を、Mnに富む冬季の縞では高い値を示す。河川水 $\delta^{18}\text{O}_w$ が年間を通じて源泉とトウファ堆積場で差が見られないことから、トウファ $\delta^{18}\text{O}_c$ の変動は水温効果で生じている（ $\delta^{18}\text{O}_c - \delta^{18}\text{O}_w = -0.0051T + 3.2509$ ;  $R = 0.75$ ）。河川水 $\delta^{13}\text{C}_{\text{DIC}}$ は、アルカリ度、pH、水温から推定されるDIC変動と同調（ $r = 0.64$ ）しながら季節変動する。DICの98%は $\text{HCO}_3^-$ からなり、方解石の沈殿には $\text{HCO}_3^-$ が寄与する。これらのことから、河川水 $\delta^{13}\text{C}_{\text{DIC}}$ の季節変動は、トウファ方解石の沈殿に伴って $\text{HCO}_3^-$ が消費され、より多くの重い $^{13}\text{C}$ が夏季に河川水中から除去されている。

トウファ $\delta^{13}\text{C}$ 変動の最大値と最小値の差は約0.5%であるが、河川水 $\delta^{13}\text{C}_{\text{DIC}}$ から推定される $\text{HCO}_3^-$ 起源の方解石（ $\text{CaCO}_3$ ）の理論値は約3.7%であった（約7.4倍）。一方、 $\delta^{18}\text{O}$ についてもトウファ $\delta^{18}\text{O}$ が約0.6%であるのに対して理論値が約4.9%であった（約8.1倍）。これらの原因は、以下の2つの効果で説明することができる。

Zheng (1999)にもとづくトウファ $\delta^{18}\text{O}$ から推定される平均水温は約17°Cであったことから、トウファ方解石の多くは夏季に形成されたものと見なされる（方解石の成長速度の不均一性）。このことは、トウファ年縞の夏縞が針状方解石（層厚約1.0 mm）、冬の縞が微粒結晶（層厚約0.1 mm）で形成されることから支持される。これに加えて、マイクロドリルで微小に変形した縞状構造を採取したことによって平均化が生じたと考えられる（サンプリングによる平滑化）。

トウファ $\delta^{13}\text{C}$ は2004年の晩夏（9月ごろ）に異常な減少値が認められた。この時期、浅間火山は21年ぶりの中規模噴火（9月1日～11月14日；気象庁）が発生した。濁川の源泉から堆積場にかけての湧水は、火山性由来の低 $\delta^{13}\text{C}$ 値（ガス起源の $\delta^{13}\text{C} = -11\sim-9\%$ ）を持つ $\text{CO}_2$ からなる。その割合は、トウファ堆積場周辺では湧水中の約50%が火山性由来の $\text{CO}_2$ とされる（鈴木・田瀬, 2010）。このため、トウファ $\delta^{13}\text{C}$ に見られた減少値のひとつの可能性として、火山活動に伴って、湧水からの火山性 $\text{CO}_2$ の噴出量が増加し、河川 $\delta^{13}\text{C}_{\text{DIC}}$ さらにはトウファ $\delta^{13}\text{C}$ が一時的に減少した証拠と見なされる。

キーワード：トウファ、安定同位体、火山

Keywords: Tufa, Stable isotope, Volcano



## ストロンチウム安定同位体比と元素濃度を用いた水の動態と魚の過去の移動追跡

Tracing of the freshwater fish movement patterns and water dynamics by strontium stable isotope ratios and the elements concentrations analysis

\*札幌 果<sup>1</sup>、申 基澈<sup>2</sup>、中野 孝教<sup>2</sup>、森 誠一<sup>3</sup>、久米 学<sup>4</sup>、西田 翔太郎<sup>3</sup>、陀安 一郎<sup>2</sup>

\*Konomi Fudamoto<sup>1</sup>, Ki-Cheol Shin<sup>2</sup>, Takanori Nakano<sup>2</sup>, Seiichi Mori<sup>3</sup>, Manabu Kume<sup>4</sup>, Syotaro Nishida<sup>3</sup>, Ichiro Tayasu<sup>2</sup>

1.京都大学大学院理学研究科、2.総合地球環境学研究所、3.岐阜経済大学、4.国立遺伝学研究所

1.Graduate School of Science, Kyoto University, 2.Research Institute for Humanity and Nature,

3.Gifu-keizai University, 4.National Institute of Genetics

岩手県上閉伊郡大槌町沿岸域は2011年3月11日の東日本大震災に伴う津波により甚大な被害を受けた。大槌の沿岸域は豊かな湧水環境のため、冷水性の希少魚である淡水性イトヨ (*Gasterosteus aculeatus*) が生息している。復興工事が進行するこの地域で町を象徴する生物であるイトヨの行動範囲やその生息環境を理解することは適切な生態系管理につながる。ストロンチウム安定同位体比 ( $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ) は、魚の耳石と生息地環境水で一致することから、魚の出生河川を推定する有力な指標として使われてきている。そこで、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を用いてイトヨの移動調査を試みた。

まず、隔離された地域に生息するイトヨ個体群の耳石全量と生息地環境水の間での $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の関係を調査し、イトヨの耳石と生息地環境水の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ がほぼ一致することを確認した。次に、イトヨ生息地域の水を分析したところ、小槌川本流の一つの支流河川では上流と下流で河川水の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ や複数の元素濃度 (Ca、Srなど) に大きな違いがみられた。 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ とSrの濃度から、この支流の下流域は上流域からの水と合流する本流の水や海水が混合する環境であると推定された (寄与率、上流: 約82.6%、本流: 約16.7%、海水: 約0.6%)。 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ に明確な違いがあることから、この支流河川内の上流域と下流域で生育したイトヨを識別することができる。そこで、この上流域と下流域において、採集されたイトヨの耳石全量の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ および元素濃度から、イトヨの過去の移動の調査を試みた。その結果、上流域で採集されたイトヨ (合計40個体) の中には他の地域から移動してきた個体はいないが、下流域で採集されたイトヨ (合計13個体) の中には上流域や本流から移動してきたと考えられる個体があると推定された。さらに、下流域のイトヨの中には、耳石のSr/Caが上流域の個体に比べ顕著に大きく、塩分濃度の高い水域を利用したと考えられる個体が存在し、下流域は多様な環境を利用してきたイトヨ集団であることが示唆された。

キーワード: ストロンチウム同位体比、耳石、魚、水

Keywords: strontium stable isotope ratio, otolith, fish, water



## 日本の積雪域におけるセッケイカワゲラとその食物網の安定同位体解析

The apterous winter stonefly fauna and its feeding on seasonal snowfields in Japan  
- Analysis of the food web using C and N Stable Isotope -

\*岡本 智夏<sup>1</sup>、竹内 望<sup>1</sup>、陀安 一郎<sup>2</sup>、太田 民久<sup>2</sup>

\*Chika Okamoto<sup>1</sup>, Nozomu Takeuchi<sup>1</sup>, Ichiro Tayasu<sup>2</sup>, Tamihisa Ohta<sup>2</sup>

1.千葉大学、2.総合地球環境学研究所

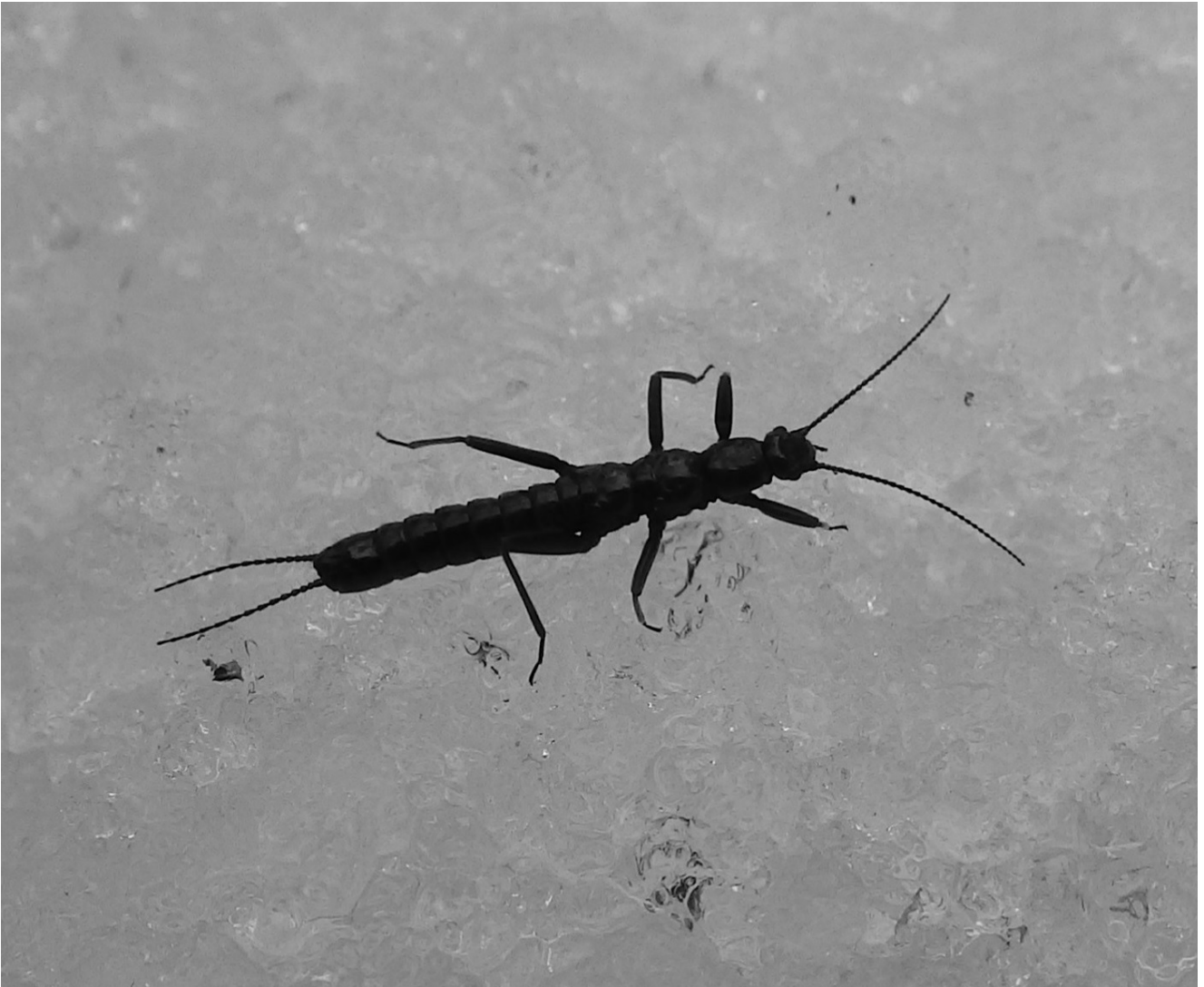
1.Chiba University, 2.Research Institute for Humanity and Nature

In snow and ice environments, there are diverse living organisms that can be active and grow in cold temperature. For example, snow algae, heterotrophic bacteria, and insects can be found on snow fields in Japan. An apterous winter stonefly is one of the typical insects that appear on snow surface in mountainous regions during winter or spring in Japan. However, their food web, particularly food resources of the stoneflies on snowfields, is still not well-known. It is important to clarify the food web of the organisms living on snowfields to understand carbon and nitrogen cycles quantitatively in the snow and ice environments. The stable isotope ratios of carbon and nitrogen of the specimens provide a means of analyzing their food resources. In this study, we analyze the food webs of the winter stoneflies and other organisms on Japanese snow fields using C and N stable isotope analysis.

The stonefly specimens were collected on the snow surface at five sites in Japan during 2015. The study sites included snow fields in Shinjo in Yamagata (altitude: 150 m), in Ushitakeonsen in Toyama (490 m), in Uonumakyuryo in Niigata (210 m), in Mt. Gassan (1300m altitude), in Tateyama Mountains (2300 m). Furthermore, other specimens including springtails, spiders, leaves, snow algae and particulate organic matter in snow were collected. The stable isotopes showed that potential food sources of apterous winter stoneflies are springtails, aphids, small spiders, snow algae, particularly dead leaves.

キーワード：セッケイカワゲラ、食物網、安定同位体

Keywords: stonefly, food web, stable isotope



## 窒素飽和した森林からの流出に下流部の窒素負荷と河川勾配が与える影響

Effects of additional nitrogen input and different river slope on the outflow from upstream nitrogen-saturated forests

\*篠塚 賢一<sup>1</sup>、智和 正明<sup>1</sup>、陀安 一郎<sup>2</sup>、由水 千景<sup>2</sup>、久米 篤<sup>1</sup>

\*kenichi Shinozuka<sup>1</sup>, Masaaki Chiwa<sup>1</sup>, Ichiro Tayasu<sup>2</sup>, Chikage Yoshimizu<sup>2</sup>, Atsushi Kume<sup>1</sup>

1.九州大学生物資源環境科学府環境農学専攻、2.総合地球環境学研究所

1.Kyushu University Faculty of Agriculture, 2.Research Institute for Humanity and Nature

面的な汚染源からの窒素負荷が下流域へ与える影響は大きく、沿岸域などの富栄養化が問題になっている。福岡市近郊を流れる多々良川流域の上流の森林は窒素飽和状態の森林であり渓流水中の硝酸イオン濃度が高く、このような森林が下流部の窒素循環へ与える影響は大きい事が指摘されている (Chiwa et al., 2012)。その一方で、高濃度の渓流水が下流で他の窒素汚染源からさらに負荷を受けるのか、流下過程でどの程度脱窒が起きるのかといった流域全体の窒素動態についての情報は少ない。

本研究の目的は、上流部の森林からの高い $\text{NO}_3^-$ 流出がみられる河川において、河川周囲の土地利用が異なる場所の $\text{NO}_3^-$ 起原や $\text{NO}_3^-$ 利用のメカニズムの変化を解明することである。1) 上流部が窒素飽和状態の森林である河川における下流の窒素動態 2) 下流にある農地と市街地からの窒素流出の影響 3) 地形勾配の脱窒への影響の解明を目的とした。

調査対象河川は、多々良川水系の猪野川、須恵川、宇美川で河川水を採水し $\text{NO}_3^-$ 濃度、 $\text{NO}_3^-$ 中の $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ 、 $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ の分析を行った。地形解析は、DEMデータからArcGISを用いてTopographic Index(TI)を作成して勾配の指標とした。

両河川ともに渓流水中の $\text{NO}_3^-$ 濃度は33.9-82.8 $\mu\text{mol/L}$ となり、他の窒素飽和になっていない森林渓流水と比較して高い傾向を示した。須恵川、宇美川では下流にかけてさらに $\text{NO}_3^-$ 濃度が上昇し、 $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ は下流部にかけて高くなり、 $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ は下流で低くなる傾向を示した。しかし、猪野川では下流へ行くと $\text{NO}_3^-$ 濃度が低下し、 $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ は下流で高くなり、 $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ は下流で高くなった。須恵川、宇美川は、下流で人為的な負荷を受けやすい河川であり、猪野川は農地と市街地が増加すると窒素濃度の低下が見られる河川であった。

須恵川、宇美川の $\text{NO}_3^-$ 濃度や同位体比には季節変化が見られなかった。また、 $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ の値は6-13%となり人為的な排水の影響が強いと考えられた。一方、猪野川では農地と市街地の面積が増加すると $\text{NO}_3^-$ 濃度は低下し、 $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ とともに $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ は高くなり、脱窒の影響が示唆された。

$\text{NO}_3^-$ 濃度が大きく変化する農地と、市街地が増加する集水域におけるTI値の平均は、須恵川、宇美川と猪野川ではあまり違いがみられなかった。しかし、TI値の頻度分布では須恵川、宇美川と猪野川では異なっていた。TI値が高い場所は緩やかな場所であり湿潤な環境になりやすい、そのため猪野川は顕著に脱窒の影響を受け $\text{NO}_3^-$ 濃度が減少していると考えられた。さらに、猪野川では、人為的な負荷源となる農地と市街地が少なく脱窒が行われる場所が多い。そのため、猪野川では須恵川、宇美川とは異なり下流に行くと濃度が減少すると考えられた。

上流に窒素飽和状態の森林を持つ河川は下流への重要な窒素供給源となっているが、特に下流で勾配が急な河川では農地や市街地からの窒素の負荷の影響を受けやすく、勾配が緩やかな河川では農地や都市部が増加しても脱窒の影響が強く下流部への窒素負荷軽減に大きな影響を与えていると考えられた。

キーワード：窒素飽和、河川水質、窒素同位体、土地利用、TI値

Keywords: nitrogen saturation, stream water quality, nitrogen isotope, land use, Topographic Index

炭素、酸素及びストロンチウム安定同位体比分析の戦没者遺骨鑑定への応用  
パプアニューギニア人、日本人及び米国人遺骨の分別の試行的検討

Trial application of oxygen, carbon and strontium isotope analysis in tooth enamel for identification of past-war victims for discriminating between Papuan, Japanese and US soldiers

\*染田 英利<sup>1</sup>、覚張 隆史<sup>2</sup>、赤井 潤子<sup>1</sup>、荒木 義之<sup>1</sup>、申 ギチヨル<sup>3</sup>

\*Hidetoshi Someda<sup>1</sup>, Takashi Gakuhari<sup>2</sup>, Akai Junko<sup>1</sup>, Araki Yoshiyuki<sup>1</sup>, Ki-Cheol Shin<sup>3</sup>

1.防衛医科大学校、2.金沢大学、3.総合地球環境学研究所

1.National Defense Medical College, 2.Kanazawa University, 3.The Research Institute for Humanity and Nature

近年、安定同位体比分析の法科学分野への応用が急激にすすんでいる。特に、ヒト歯牙エナメル質中の炭素、酸素及びストロンチウムの各安定同位体比は、それらの遺骨の身元確認の前段階におけるスクリーニング法として有効な情報を提供できる。本研究の目的は、第2次世界大戦におけるニューギニア戦線における戦没者遺骨分別を想定し、本法による地元民、日本兵及び米兵の分別について評価することである。本研究では、パプアニューギニア人(南ハイランド、東ニューブリテン及びブーゲンビル州)と日本人(鳥取県)の歯牙エナメル質中の炭素、酸素及びストロンチウム同位体比を計測し、先行研究であるアメリカ人におけるデータを参照し、判別分析による統計学的検討をおこなった。これらの3群からアメリカ人の分別は高精度に可能であった。パプアニューギニア人と日本人については一部地域では正確な分別が可能であった。以上の結果から、安定同位体比分析は、ニューギニア戦線における地元民、日本兵及び米兵の遺骨を分別する方法として有効となる可能性が示された。

キーワード：安定同位体比分析、戦争犠牲者、出身地域

Keywords: Stable isotope analysis, War victim, Geographic origin

## 同位体分析による吉胡貝塚人骨の古食性と帰属年代の推定

Stable isotope analysis and radiocarbon dating on human skeletal remains from the Yoshigo shell mound of the Jomon period

\*日下 宗一郎<sup>1</sup>

\*Soichiro Kusaka<sup>1</sup>

1.ふじのくに地球環境史ミュージアム

1.Museum of Natural and Environmental History, Shizuoka

The author investigated radiocarbon ages and carbon and nitrogen stable isotope ratios in human skeletal remains excavated from the Yoshigo shell mound in the Aichi Prefecture. Although a large number of skeletal remains has been excavated from the Yoshigo shell mound, ages of these skeletal remains are still unclear. Radiocarbon dating on human bone collagen can estimate the ages of the individuals, but the precise estimate on marine food dependence is needed to correct marine reservoir effect on radiocarbon dates. This study investigated radiocarbon ages and carbon and nitrogen stable isotope ratios of human skeletal remains from the Yoshigo shell mound during the Late-Final Jomon period. By using the Bayesian mixing model on the carbon and nitrogen isotope ratios, the dietary dependences on marine food of each individual were estimated. Then, the results of radiocarbon dating were corrected. The results of this calibrated ages of human skeletal remains exhibited the ages during the Late-Final Jomon period, and it can enable us to analyze the dietary difference through time.

キーワード：人骨、同位体、食性

Keywords: Human skeletal remains, Stable isotope, Diet

同位体環境学のオントロジーを構築する  
 Building an ontology of isotope environmental science

\*近藤 康久<sup>1</sup>、熊澤 輝一<sup>1</sup>、関野 樹<sup>1</sup>、陀安 一郎<sup>1</sup>、中野 孝教<sup>1</sup>  
 \*Yasuhisa Kondo<sup>1</sup>, Terukazu Kumazawa<sup>1</sup>, Tatsuki Sekino<sup>1</sup>, Ichiro Tayasu<sup>1</sup>, Takanori Nakano<sup>1</sup>

1.総合地球環境学研究所  
 1.Research Institute for Humanity and Nature

総合地球環境学研究所は、2016年度から6年間の第3期中期目標・中期計画期間において、同位体測定データの共有・公開と、同位体環境情報の地図化する同位体景観 (isoscape) の可視化に関する研究開発を重点的に推進する。そのための準備作業として同位体環境学の語彙体系の整理を試みた。具体的には、情報学と同位体環境学の研究者が同席して、地球研市民セミナーの講演から抽出した語彙を記した付箋を壁面にレイアウトする手法を用いてブレインストーミングを行い、同位体環境学のうち特に水文学と生態学、地球化学、社会科学に関連する分野の語彙の関連性を整理した。その結果に基づき、オントロジー解析ソフト「法造」 (<http://hozo.jp>) を用いてオントロジー (知識体系) を構築した。今後は、語彙整理の対象を考古学・地理学など同位体環境学を構成する他の領域に拡張した上で、事象を主語 (subject) ・述語 (predicate) ・目的語 (object) の三つ組 (triple) で記述するRDF (Reference Description Framework) というデータモデルを用いて同位体環境学の知識体系を記述することが課題である。

キーワード：同位体環境学、オントロジー、知識基盤、専門用語  
 Keywords: Isotope environmental science, ontology, knowledge base, terminology

