

## 原 著

## 酸素安定同位体比から見た新潟県における近年の降水と河川水の特徴

狩野直樹, 藍原弘行\*, 小島 令\*, 竹内香代子, 佐藤明史, 今泉 洋

新潟大学工学部化学システム工学科

\*新潟大学大学院自然科学研究科

950-2181 新潟県新潟市五十嵐二の町 8050

2002年 8月22日 受理

新潟県の降水および河川水中の酸素安定同位体比 ( $\delta^{18}\text{O}$ ) を1999年~2002年まで測定した。 $\delta^{18}\text{O}$  値の測定は, 安定同位体比測定用質量分析装置を用いて行われた。その結果, 以下のことが明らかになった。(1)降水における  $\delta^{18}\text{O}$  値の平均値は $-9\%$ 程度であり, 季節によって $\pm 7\%$ 程度の変動を示す, (2)新潟県内の各地点(9観測地点)において, 同位体比の季節変動は, 互いに似た挙動を示す, (3)降水における  $\delta^{18}\text{O}$  値は, 6月および1月において小さく, 8月において大きい, (4)1月において, 降水の  $\delta^{18}\text{O}$  値と温度との間の相関関係が1年中で最も顕著に見られる, (5)冬期における降水の  $\delta^{18}\text{O}$  値の変動幅は, 他の季節より小さい, (6)新潟県の河川水における  $\delta^{18}\text{O}$  値の平均値は,  $-11\%$ ~ $-10\%$ 程度であり, 年間を通して大きな変動は見られなかった ( $\pm 2\%$ 程度), (7)河川水中の  $\delta^{18}\text{O}$  値は, 融雪水や降水が河川水中に流入するときに変動しうる, (8)地下水中の  $\delta^{18}\text{O}$  値の変動幅は, 河川水に比べて小さい。

Key Words: oxygen stable isotopic ratios, precipitation, river water, groundwater, Niigata prefecture

## 1. 結 言

自然界において, 水素や酸素には, それぞれ数種の同位体が存在しており, これらの同位体から構成されている環境水中には一般に  $\text{H}_2^{16}\text{O}$  (99.7%),  $\text{H}_2^{18}\text{O}$  (0.20%),  $\text{HD}^{16}\text{O}$  (0.032%) をはじめ多種類の水の同位体分子が存在している。自然界において, 蒸発や凝縮などのさまざまな過程を経るとき, これらの同位体の質量差によって, 物質(ここでは特に, 環境水)中の同位体組成に変動が起こる。ただし, 水の同位体分子は化学的には水そのものであり, 溶存化学成分のように周囲の物質との化学反応によって水と異なる挙動をとることはない。その点で, 水の挙動を示す指標として, 天然水中の水素・酸素安定同位体比 ( $\delta\text{D}$ ,  $\delta^{18}\text{O}$ ) やトリチウム(T)濃度は, 化学成分より優れている<sup>1), 2)</sup>。

天然水中において, これらの同位体組成の変

動 ( $\delta\text{D}$ ,  $\delta^{18}\text{O}$ , T) を追跡することは, その地域の水の起源や循環の解明に役立つうえ, 地下水の涵養源の指標としても有用であるなど水文学の見地からさまざまな有力な情報をもたらすため, 国内外で研究が行われている<sup>3)-11)</sup>。

新潟県は日本海沿岸に位置しており, 日本海からの海塩や大陸からの物質輸送, さらには季節風の影響を強く受けるなど地理的に特異な環境にある。新潟県においては, 酸性雨研究との関連から, 降水中の硫酸の安定同位体比や主要イオン成分濃度の分析が精力的に行われている<sup>12)-14)</sup>。ところが, 水素・酸素安定同位体比をトレーサとした水文学的研究については, 十日町市において, 冬の降水の  $\delta^{18}\text{O}$  値を測定した研究例<sup>15)</sup>や長岡市における, 台風や降雪などの短い経時変化での同位体比変動を追跡した研究例<sup>16)</sup>があるものの, 年間を通しての変動を調査した研究例はない。

さらに、同時期に採取した県内各地の降水における同位体比の季節変動の相互比較や、1雨ごとの降水の同位体比について、その時々々の温度や気象条件との関連を追跡した例はほとんどない。また、河川水においては、水素・酸素安定同位体比をトレーサとした水文学的研究は、新潟県内においてはほとんど行われていないのが現状である。

以上から、新潟県の環境水における酸素・水素の同位体比変動の系統的な追跡は、県内の環境水や大気等の動態、気象状況に関して、新たな知見が得られるものと期待される。

こうした観点から、著者らは、1999年4月以降、新潟県内で環境水(降水、河川水)を採取し、これらの試料において、酸素・水素安定同位体比や主要イオン濃度の測定を行ってきた<sup>17)</sup>。

本論では、これらの研究をさらに推し進め、新潟県内の環境水(降水、河川水、地下水など)を用いて、特に酸素安定同位体比( $\delta^{18}\text{O}$ )を中心に測定を行い、新潟県における近年の環境水の同位体的特徴についての知見を得ることを目的とした。

## 2. 実 験

### 2.1 試料

#### 2.1.1 降水

降水試料は、Fig. 1に示した採水器を用いて1999年4月から新潟大学工学部(東経 $138^{\circ}57'$ 、北緯 $37^{\circ}52'N$ )屋上で採水された。本研究では、Fig. 1の採水器を複数作製することによって、①1月ごとの採水と並行して、②1雨ごと(あるいは1週間ごと)の採水を行ってきた。①においては、1ヶ月分の試料をまとめて1試料として、月間降水量の見積もりも行った。

さらに、新潟県保健環境科学研究所の提供による新潟県各地の9地点(Fig. 2の黒丸(●))で示した地点、(1):新潟市、(2):朝日村、(3):津川町、(4):下田村、(5):長岡市、(6):六日町、(7):津南町、(8):上越市、(9):相川町)の2週間ごとの降水試料(1999年4月~2001

年3月)も本研究に供した。

#### 2.1.2 河川水

本研究で研究対象とした河川は、信濃川、中之口川および西川(以上、信濃川水系)ならびに阿賀野川である。代表的な採水地点は、Fig. 2の白丸(○)、すなわち(A)-(D)で示した地点である。1999年4月~2000年4月までの西川における試行的期間を経て、2000年5月から本格的に上記の4河川において、毎月1回採水を行った。

採水は、降水の影響を極力少なくするために、晴れた日を中心に平水時(可能な限り晴天が3日以上続いた翌日)に行った。試料水は、橋の中央部から、ポリバケツを使って、流心部付近の表面水を採取し、ただちに水温、pH、電気伝導度を測定後、試料水で共液洗浄したポリびんに移し、研究室に持ち帰った。

### 2.2 測定方法

酸素安定同位体比( $\delta^{18}\text{O}$ )の測定は、本学積雪地域災害研究センターの安定同位体比測定用質量分析装置(英国Micromass社、PRISM)を用いて行った。

前処理の概略は、渡部らの方法<sup>18)</sup>に基づいて行った。その概略を以下に示す:ポリエチレン製のグローブバッグ(Instruments for research and industry社製、S-20)内で、外径13 mm、高さ29 mm、容積約1.5 mlのガラス製のバイアルに試料水200  $\mu\text{l}$ と炭酸ガスを充填し、恒温槽内で水-二酸化炭素の酸素同位体交換反応を行わせ、炭酸ガスを質量分析計に導入する方法を適用した。

## 3. 理論(酸素同位体比測定)

### 3.1 天然水中の酸素同位体比の表現方法<sup>1),19)</sup>

天然水中の酸素同位体比の変動は小さいため、下式のように、標準平均海水(Standard Mean Ocean Water:略称SMOW)の同位体比からのずれを千分率(‰)で表して表示するのが一般的である。

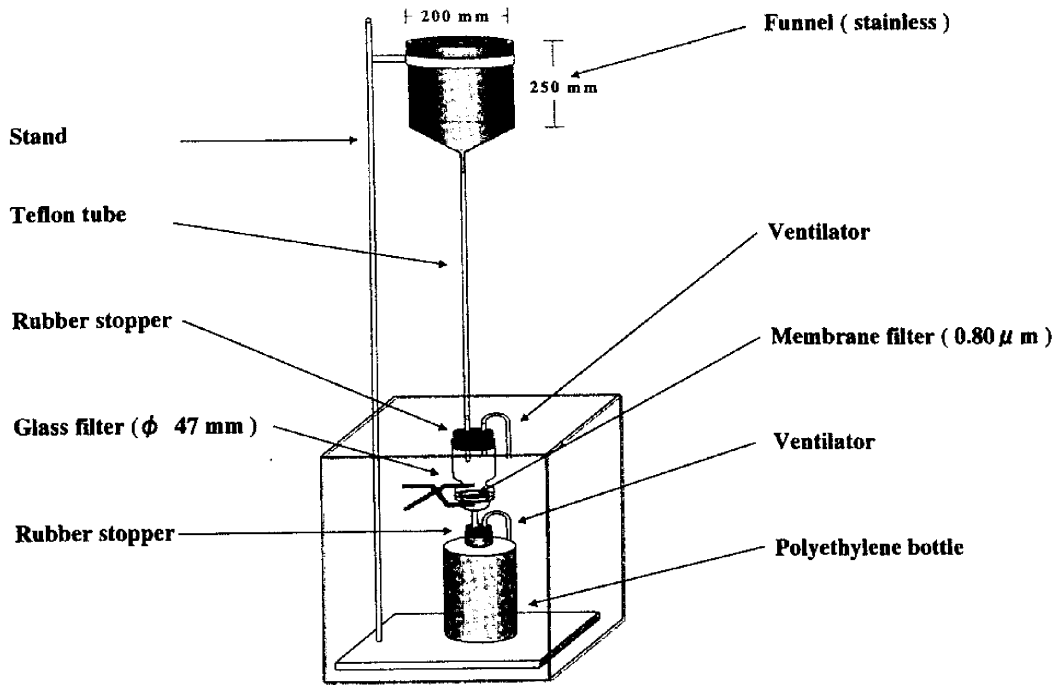


Fig. 1 The precipitation sampler.

$$\delta^{18}\text{O} = \frac{(^{18}\text{O}/^{16}\text{O})_{\text{sample}} - (^{18}\text{O}/^{16}\text{O})_{\text{std.}}}{(^{18}\text{O}/^{16}\text{O})_{\text{std.}}} \times 1000 (\text{‰})$$

ここで,  $(^{18}\text{O}/^{16}\text{O})_{\text{sample}}$ ,  $(^{18}\text{O}/^{16}\text{O})_{\text{std.}}$  は, それぞれ水試料と SMOW における同位体比を表す。

### 3.2 降水の酸素同位体比の支配要因<sup>3), 20), 21)</sup>

$\text{H}_2^{16}\text{O}$  と  $\text{H}_2^{18}\text{O}$  の蒸発・凝縮過程において, 軽い水 (軽い同位体 $^{16}\text{O}$  を含む水) のほうが, 重い水よりも蒸気圧が高いために,  $^{18}\text{O}$  の方が凝縮しやすい。Rayleigh の蒸留モデルによると, 海水 ( $\delta^{18}\text{O} = 0$ ) からの蒸発により生じた水蒸気団が移動する際, その過程で $^{18}\text{O}$  に富んだ水を優先的に降らせる結果, 残った水蒸気は徐々に $^{18}\text{O}$  に乏しく (すなわち  $\delta^{18}\text{O}$  値が小さく) なる。したがって, 残りの水蒸気から凝縮する水も徐々に $^{18}\text{O}$  に乏しく (すなわち  $\delta^{18}\text{O}$  値が小さく) になっていく。上記の Rayleigh の

理論に基づいた以下の効果が一般に知られている。

- (1) 温度効果: 温度が低いほど  $\delta^{18}\text{O}$  が小さい。
- (2) 緯度効果: 高緯度ほど  $\delta^{18}\text{O}$  が小さい。
- (3) 内陸効果: 水分供給源の海岸から離れるほど  $\delta^{18}\text{O}$  が小さい。
- (4) 高度効果: 標高が高いほど  $\delta^{18}\text{O}$  が小さい。
- (5) 雨量効果: 同一気団では降水量が多いほど  $\delta^{18}\text{O}$  が小さい。

以上の効果により, 降水における  $\delta^{18}\text{O}$  の季節変化の一般的な傾向として,

- 1) 夏に海水に近い (相対的に高い) 値を示し, 冬に低い。
- 2) 梅雨前線北上に際して高緯度地方で低い時期がある。

上記を前提理論として, 観測結果について検討を進める。

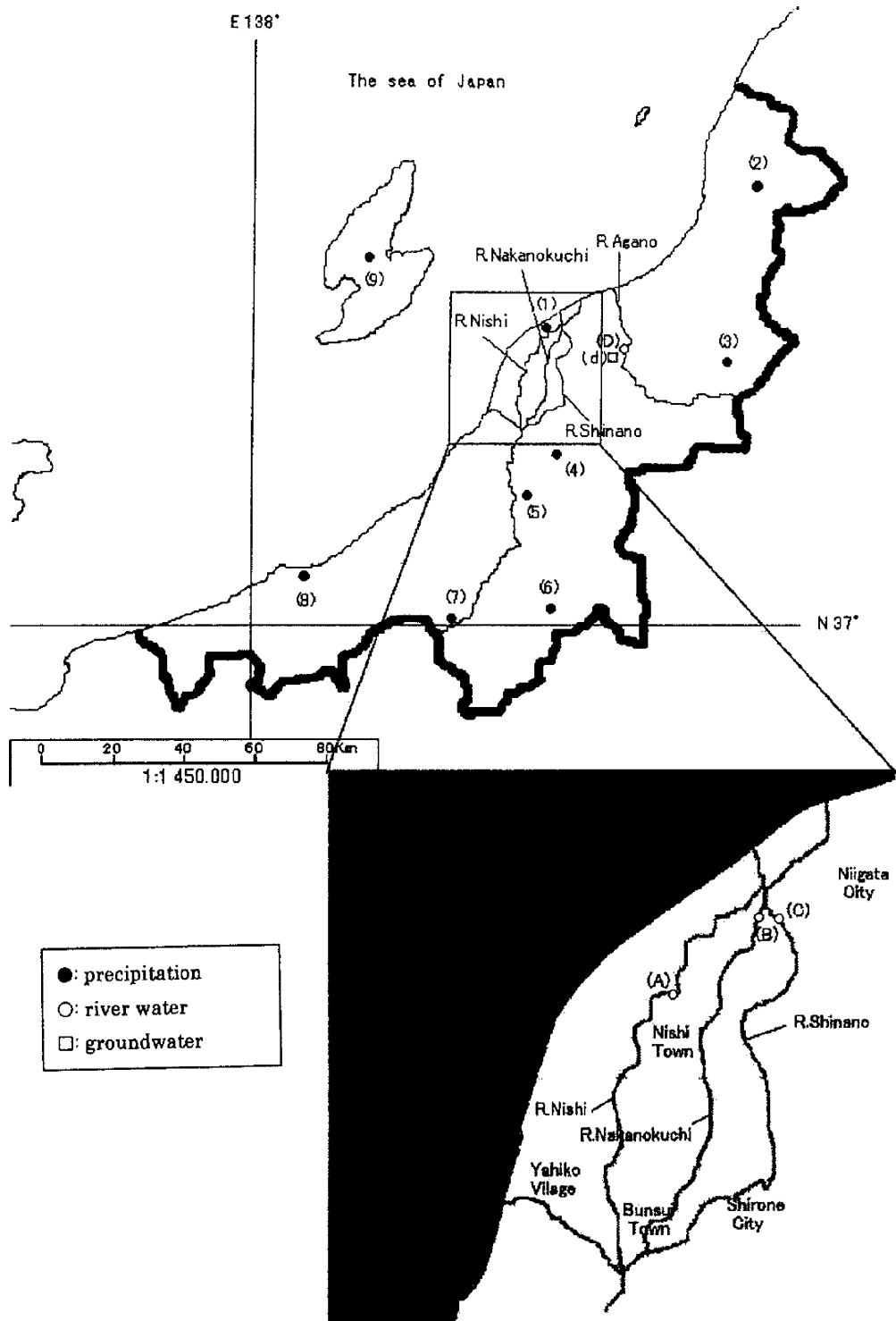


Fig. 2 Location of sampling points in Niigata Prefecture.

(1) : Niigata City, (2) : Asahi Village, (3) : Tsugawa Town, (4) : Shitada Village, (5) : Nagaoka City,  
 (6) : Muikamachi, (7) : Tsunan Town, (8) : Joetsu City, (9) : Aikawa Town.

## 4. 結果と考察

### 4.1 新潟県における降水の酸素安定同位体比 ( $\delta^{18}\text{O}$ ) の特徴

1999年4月～2001年3月における新潟県の9地点の降水における酸素安定同位体比 ( $\delta^{18}\text{O}$ ) の測定結果を Table 1 に示す。また、これらのうち、内陸寄り、臨海、あるいは海洋の例として、長岡市、上越市、相川町の3地点の季節変動について Fig. 3 に示す (他の6地点においても、上記の3地点とおおむね似た季節変動を示した)。一方、臨海である新潟大学工学部屋上で採取した降水 (月間総降水) 中の  $\delta^{18}\text{O}$  値の月変動を、降水量の月変動とともに Fig. 4 に示す。Fig. 3, Fig. 4 より、新潟県の降水の酸素安定同位体比 ( $\delta^{18}\text{O}$ ) には、以下のような特徴が見られる。

(1) Fig. 3 において、年間を通しての県内降水における  $\delta^{18}\text{O}$  値の平均値は  $-9\%$  程度であり、季節によって  $\pm 7\%$  程度の変動を示した。

(2) Fig. 3 および Fig. 4 で、年度および場所を問わず、6月において、 $\delta^{18}\text{O}$  値は低い値を示した。(ただし、Fig. 4 より、2000年度の6月の降水量は必ずしも多くないのに対し、2001年度の6月の降水量は多いことがわかる。)

(3) Fig. 3 および Fig. 4 において、年度および場所を問わず、8月における  $\delta^{18}\text{O}$  値は高い値を示した。(ただし、Fig. 4 より、2000年度の8月の降水量は少ないのに対し、2001年度の8月の降水量は必ずしも少なくないことがわかる。)

(4) Fig. 3 および Fig. 4 で、年度および場所を問わず、1月において、 $\delta^{18}\text{O}$  値は低い値を示した。(ただし、Fig. 4 より、年度を問わず、1月の降水量は多いことが特徴的である。)

(5) Fig. 3 において、梅雨期の前後 (5月～7月) は、 $\delta^{18}\text{O}$  値の変動幅が大きいのに対し、晩秋から冬期 (10月～2月) においては、比較的一様な値を示した。

上記の特徴は、季節によって気団の性質や水

蒸気団の移動経路が、異なることに起因すると考えられるので、先の前提理論 (3.2) に基づき、以下で考察する。

#### 4.1.1 “梅雨期” における降水の $\delta^{18}\text{O}$

日本において、梅雨期には、南よりの暖気と北よりの寒気とによる、前線に伴う雲によって降水がもたらされる<sup>22)</sup>。すなわち、梅雨前線に伴った太平洋または東シナ海に起源を持つ気団が南からゆっくりと雨を降らせ、 $^{18}\text{O}$  を減少させながら北上してくる。

新潟県の梅雨期 (6月) の降水においては、日本海側の富山県<sup>23)</sup> や石川県<sup>3)</sup> の降水の場合と同様、低い  $\delta^{18}\text{O}$  値を示した。ただし、Fig. 4 に示した  $\delta^{18}\text{O}$  値は、1か月貯留水であるため、 $\delta^{18}\text{O}$  値の異なる個々の降水が混合した月平均値を示している。そこで、梅雨期の降水の特徴について、さらに詳細に検討するため、2000年度および2001年度6月の1雨ごと (あるいは1週間ごと) の各降水における  $\delta^{18}\text{O}$  値を Table 2 に示す。

Table 2 を見ると、特に2000年6月14～17日や2001年6月11～18日の降水において、 $^{18}\text{O}$  を減少させながら北上してきた梅雨前線の水蒸気団が通過する様子が如実に表されている。

またこの表から、2000年度は、とりわけ1雨ごとによる降水の  $\delta^{18}\text{O}$  値の変動が非常に大きく ( $-25.14\%$  ～  $-5.70\%$ )、1か月貯留水中の  $\delta^{18}\text{O}$  値は、 $\delta^{18}\text{O}$  値の異なるさまざまな降水が混合した値であることを顕著に示している。

このように梅雨期においては、同時期においても、個々の降水の供給源は多様であることを示唆している。

#### 4.1.2 “夏期” における降水の $\delta^{18}\text{O}$

一方、梅雨期が過ぎた夏期では、梅雨期と異なり、日本列島全体を太平洋高気圧が覆う<sup>22)</sup>。

8月において海水に近い値 (相対的に高い  $\delta^{18}\text{O}$  値) を示したのは、3.2 で述べた一般理論の典型的なパターンを示していると考えられる。

ところが、北陸地方の富山県<sup>23)</sup> や石川県<sup>3)</sup> の降水の場合には、夏期 (7～9月) において、

Table 1  $\delta^{18}\text{O}$  values (‰) of precipitation at 9 sampling points in Niigata Prefecture from April 1999 to March 2001  
 (1): Niigata City, (2): Asahi Village, (3): Tsugawa Town, (4): Shitada Village,  
 (5): Nagaoka City, (6): Muikamachi, (7): Tsunan Town, (8): Joetsu City,  
 (9): Aikawa Town

| Sampling Date | $\delta^{18}\text{O}$ of each sampling point in Niigata Prefecture/ ‰ |        |        |        |        |        |        |        |        |
|---------------|---|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|
|               | (1)   | (2)    | (3)    | (4)    | (5)    | (6)    | (7)    | (8)    | (9)    |
| 1999          |   |        |        |        |        |        |        |        |        |
| 3/30-4/12     | -8.21   | —      | —      | —      | -8.37  | -9.52  | —      | -7.35  | —      |
| 4/12-4/26     | -8.74   | —      | —      | —      | -9.54  | -12.05 | —      | -8.75  | —      |
| 4/26-5/10     | -9.00   | —      | —      | —      | -12.56 | -12.18 | —      | -9.49  | —      |
| 5/10-5/24     | -5.36   | -4.21  | -4.75  | -5.02  | -4.74  | -3.47  | -4.48  | -3.02  | -3.56  |
| 5/24-6/7      | -8.74   | -8.67  | -6.88  | -8.05  | -8.03  | -8.49  | -10.29 | -8.72  | -9.04  |
| 6/7-6/21      | -8.70   | -8.39  | -7.44  | -8.52  | -9.06  | -8.93  | -10.44 | -9.66  | -9.54  |
| 6/21-6/28     | -13.88  | -12.27 | -12.74 | -10.97 | -13.02 | -10.75 | -12.24 | -12.39 | -15.60 |
| 6/28-7/12     | -10.03  | -10.06 | -10.08 | -10.42 | -10.32 | -9.37  | -10.48 | -8.84  | -11.41 |
| 7/12-7/26     | -12.56  | -9.04  | -10.65 | -10.16 | -9.06  | -8.08  | -9.08  | -8.01  | -9.78  |
| 7/26-8/9      | —   | —      | -5.94  | -3.48  | —      | -2.26  | —      | —      | —      |
| 8/9-8/23      | -6.95   | -7.36  | -6.31  | -8.15  | -8.46  | -8.48  | -10.32 | -9.07  | -5.52  |
| 8/23-8/30     | -7.64   | -8.10  | -10.30 | -9.43  | -8.69  | -8.25  | -8.33  | -8.31  | -8.79  |
| 8/30-9/13     | -8.77   | -9.83  | -10.49 | -9.62  | -8.44  | -10.69 | —      | -10.31 | -9.55  |
| 9/13-9/27     | -13.40  | -13.95 | -12.79 | -13.60 | -12.95 | -13.13 | -14.97 | -13.29 | -11.90 |
| 9/27-10/12    | -5.78   | -6.83  | -5.85  | -6.69  | -6.32  | -6.17  | -6.45  | -5.70  | -6.10  |
| 10/12-10/25   | -5.80   | -6.62  | -5.42  | -6.61  | -5.89  | -6.53  | -6.70  | -6.77  | -6.43  |
| 10/25-11/8    | -9.81   | -10.16 | -10.49 | -11.23 | -9.72  | -11.78 | -12.88 | -10.10 | -10.62 |
| 11/8-11/22    | -7.53   | -7.13  | -6.49  | -8.35  | -7.58  | -7.22  | -7.13  | -7.04  | -8.39  |
| 11/22-11/29   | -7.59   | -8.71  | -8.90  | -8.67  | -8.60  | -6.22  | -7.89  | -7.45  | -6.73  |
| 11/29-12/13   | -6.80   | -7.60  | -7.35  | -8.02  | -8.03  | -8.94  | -8.80  | -5.81  | -6.97  |
| 12/13-12/27   | -8.77   | -9.93  | -9.99  | -9.43  | -10.01 | -10.87 | -11.09 | -8.94  | -9.53  |
| 12/27-1/11    | -6.66   | -7.10  | -6.96  | -7.04  | -6.33  | -7.02  | -7.38  | -6.50  | -5.85  |
| 2000          |   |        |        |        |        |        |        |        |        |
| 1/11-1/24     | -8.05   | -9.81  | -10.99 | -10.08 | -10.48 | -10.26 | -10.31 | -6.96  | -9.03  |
| 1/24-2/7      | -7.28   | -7.11  | -6.82  | -8.09  | -7.46  | -9.21  | -10.65 | -7.70  | -6.36  |
| 2/7-2/21      | -8.17   | -9.61  | -9.17  | -9.06  | -9.58  | -10.24 | -10.40 | —      | -8.29  |
| 2/21-2/28     | -11.13  | -9.82  | -11.40 | -9.47  | -9.73  | -10.06 | -10.73 | -10.26 | -11.86 |
| 2/28-3/13     | -9.60   | -8.48  | -7.67  | -7.69  | -8.69  | -10.72 | -11.79 | -8.54  | -6.90  |
| 3/13-3/27     | -10.20  | -11.04 | -9.85  | -10.19 | -10.18 | -10.98 | -11.48 | -9.67  | -11.03 |
| 3/27-4/3      | -6.15   | -6.36  | -7.41  | -7.32  | -6.30  | -8.39  | -7.92  | -3.08  | -4.96  |
| 4/3-4/17      | -8.38   | -8.37  | -5.51  | -8.65  | -7.59  | -8.28  | -10.07 | -8.66  | -5.47  |
| 4/17-5/1      | -7.77   | -8.48  | -8.60  | -8.93  | -8.31  | -8.58  | -8.55  | -6.93  | -6.39  |

Table 1(Continued)

|             |        |        |        |        |        |        |        |        |        |
|-------------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|
| 5/1-5/15    | -4.39  | -6.10  | -7.12  | -6.97  | -5.55  | -5.86  | -7.01  | -4.07  | -5.55  |
| 5/15-5/29   | -5.49  | -5.60  | -6.49  | -7.04  | -6.12  | -5.94  | -8.41  | -4.96  | -4.36  |
| 5/29-6/12   | -5.36  | -5.34  | -5.36  | -6.19  | -6.04  | -5.49  | -7.43  | -5.76  | -4.86  |
| 6/12-6/26   | -16.95 | -16.47 | -15.42 | -14.49 | -13.31 | -12.47 | -15.21 | -12.63 | -7.20  |
| 6/26-7/3    | -8.72  | -9.81  | -7.56  | -8.73  | -8.31  | -7.15  | -8.03  | -7.54  | -9.94  |
| 7/3-7/17    | -9.77  | -11.31 | -11.33 | -13.87 | -10.91 | -12.50 | -13.38 | -7.52  | -9.94  |
| 7/17-7/31   | -8.28  | -7.34  | -8.09  | -8.15  | -9.05  | -6.46  | -9.07  | -11.03 | -9.90  |
| 7/31-8/14   | -7.53  | -8.57  | -8.39  | -9.39  | -7.63  | -7.87  | -9.02  | -3.90  | -5.38  |
| 8/14-8/28   | -4.62  | -6.83  | —      | -4.61  | -4.20  | -4.48  | -5.20  | -4.61  | —      |
| 8/28-9/11   | -7.76  | -10.19 | -7.45  | -8.14  | -6.83  | -8.19  | -8.77  | -7.18  | -8.51  |
| 9/11-9/25   | -7.94  | -7.53  | -7.30  | -8.11  | -7.64  | -8.67  | -11.33 | -8.54  | -10.01 |
| 9/25-10/2   | -7.88  | -9.86  | -7.77  | -8.53  | -6.65  | -7.25  | -8.09  | -7.86  | -7.27  |
| 10/2-10/16  | -6.73  | -6.83  | -6.83  | -6.31  | -5.92  | -7.16  | -7.72  | -5.66  | -6.18  |
| 10/16-10/30 | -9.18  | -8.71  | -9.11  | -9.67  | -9.39  | -10.93 | -11.88 | -9.86  | -10.33 |
| 10/30-11/13 | -7.16  | -6.57  | -5.99  | -5.11  | -5.36  | -5.65  | -6.88  | -5.77  | -9.71  |
| 11/13-11/27 | -6.72  | -8.55  | -6.82  | -7.98  | -6.33  | -7.70  | -8.72  | -5.42  | -6.41  |
| 11/27-12/11 | -6.44  | -7.03  | -7.26  | -7.17  | -6.76  | -6.74  | -7.59  | -5.88  | -5.17  |
| 12/11-12/25 | -7.27  | -7.48  | -7.90  | -7.83  | -7.76  | -8.24  | -8.46  | -7.64  | -5.62  |
| 12/25-1/9   | -11.00 | -9.79  | -11.00 | -7.52  | -8.99  | -9.58  | -9.44  | -9.14  | -10.93 |
| 2001        |        |        |        |        |        |        |        |        |        |
| 1/9-1/22    | -9.16  | -9.63  | -10.05 | -8.46  | -9.24  | -10.43 | -11.27 | -9.38  | -8.72  |
| 1/22-1/29   | -11.17 | -9.54  | -11.65 | -10.77 | -11.27 | -13.81 | -13.84 | -9.43  | -13.17 |
| 1/29-2/13   | -7.09  | -7.59  | -8.80  | -7.52  | -7.47  | -7.92  | -8.51  | -6.90  | -5.97  |
| 2/13-2/26   | -6.79  | -7.55  | -7.31  | -6.36  | -5.95  | -8.06  | -7.82  | -5.55  | -6.84  |
| 2/26-3/12   | -8.50  | -10.12 | —      | -9.64  | -9.31  | -10.88 | -11.44 | -9.74  | -8.64  |
| 3/12-3/26   | -5.71  | -7.51  | -6.25  | -5.63  | -5.46  | -7.93  | -7.89  | -5.12  | -6.26  |
| 3/26-4/2    | -7.76  | -9.61  | -8.37  | -7.95  | -7.68  | -11.21 | -10.73 | -6.83  | —      |

The number (e.g. (1), (2)...) in table corresponds to the number of each sampling point (●) in Fig. 2. "—" represents the defect of data due to the lack of sample.

梅雨期に引き続いて比較的低い  $\delta^{18}\text{O}$  値が得られている。

新潟県の夏期の降水において、富山県や石川県と異なる挙動を示した一因として、本県の降水量が、石川県や富山県に比べて少なかった<sup>24), 25)</sup>ため、これらの県に比べて“雨量効果”による  $\delta^{18}\text{O}$  値の低下があまり見られなかったことによると考えられる。

新潟県の夏期における降水の特徴について、

さらに詳細に検討するため、2000年度および2001年度8月の1雨ごと（あるいは1週間ごと）の各降水における  $\delta^{18}\text{O}$  値を Table 3 に示す（ただし、2000年度の8月は、雨の日がほとんどなかったうえ、降水量も非常に少なかった（Fig. 4参照）ため、1雨データは1回しかとれなかった）。

この表を見ると、夏期の個々の降水は、梅雨期に比べると、比較的那変動幅が小さく、こ

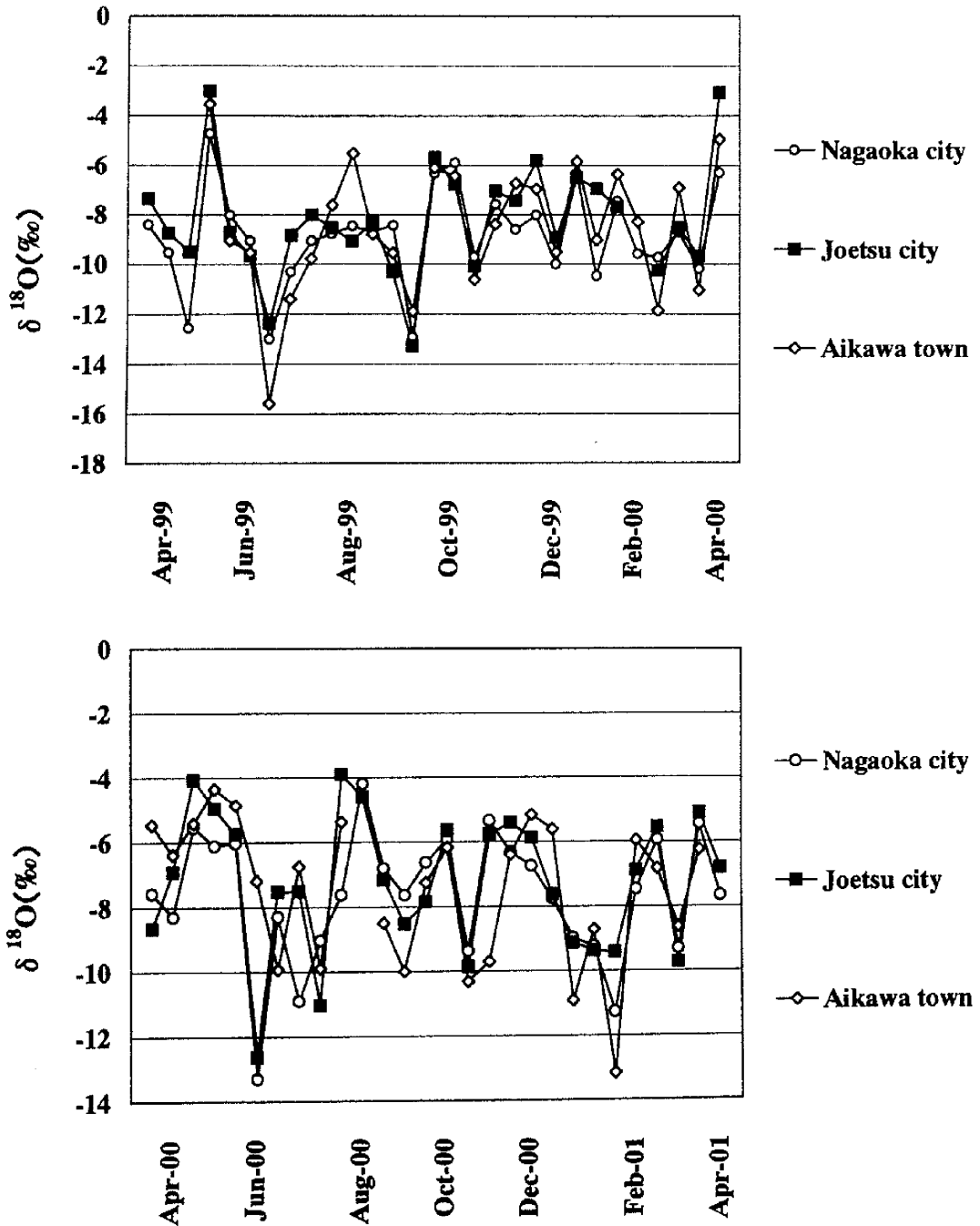


Fig. 3 Monthly variation of  $\delta^{18}\text{O}$  values in precipitation at Nagaoka City, Joetsu City, and Aikawa Town.

の時期の典型的降水が支配的であったことが、Fig. 4の月間平均試料に反映されたものと考えられる。

4.1.3 “冬期”における降水の $\delta^{18}\text{O}$   
 本州日本海側の冬期の降水では、大部分が日本海上で発達した雲によってもたらされる<sup>22)</sup>。



Table 2  $\delta^{18}\text{O}$  values of each rainfall events (or precipitation per one week) on June 2000 and June 2001 collected at Niigata University

| Sampling Date    | $\delta^{18}\text{O}$ ‰ | Sampling Date    | $\delta^{18}\text{O}$ ‰ |
|------------------|-------------------------|------------------|-------------------------|
| 2000 6/8-9       | -6.43                   | 2001 6/4-11      | -6.01                   |
| 6/9-10           | -5.70                   | 6/11-18          | -15.44                  |
| 6/14             | -22.50                  | 6/18-25          | -10.28                  |
| 6/14-17          | -25.14                  | 6/25- 7/1        | -10.43                  |
| 6/23-24          | -12.77                  |                  |                         |
| 6/24-25          | -16.78                  |                  |                         |
| 6/28-29          | -7.50                   |                  |                         |
| 2000. 6 (6/1-30) |                         | 2001. 6 (6/1-30) | -11.51                  |

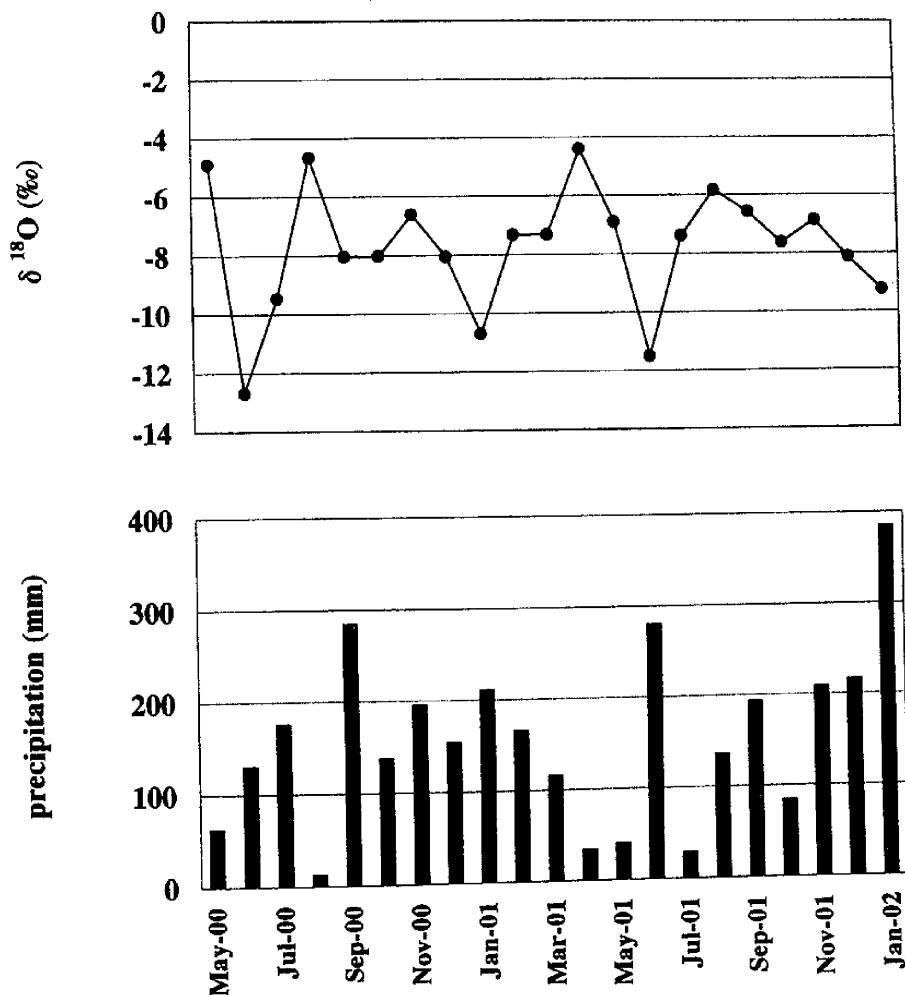


Fig. 4 Monthly variation of  $\delta^{18}\text{O}$  values in precipitation at Niigata City.

Table 3  $\delta^{18}\text{O}$  values of each rainfall events (or precipitation per one week) on August 2000 and August 2001 collected at Niigata University

| Sampling Date    | $\delta^{18}\text{O}$ ‰ | Sampling Date    | $\delta^{18}\text{O}$ ‰ |
|------------------|-------------------------|------------------|-------------------------|
| 2000 8/23        | -4.64                   | 2001 8/7-9       | -7.11                   |
|                  |                         | 8/9-13           | -8.23                   |
|                  |                         | 8/13-21          | -4.89                   |
|                  |                         | 8/21-25          | -6.13                   |
|                  |                         | 8/25-26          | -3.91                   |
|                  |                         | 8/26-29          | -3.63                   |
|                  |                         | 8/29-30          | -4.32                   |
|                  |                         | 8/30-31          | -6.47                   |
| 2000. 8 (8/1-31) | -4.66                   | 2001. 8 (8/1-31) | -5.83                   |

新潟県は日本海沿岸に位置しているため、冬期には、アジア大陸に起源をもつ低温で乾燥したシベリア気団の影響が非常に大きくなる。日本海には暖流が流れているため、シベリア気団からの寒気は、日本海上空で水蒸気を大量に吸収して、日本海側の各地に大雪をもたらす。このように降水の供給経路が比較的一様であるため、冬期の降水における  $\delta^{18}\text{O}$  値は、梅雨期の前後に比べて、比較的変動の小さい値を示したと考えられる。

また、新潟県において、通年比較で  $\delta^{18}\text{O}$  値が低いとは言い切れなかった冬期の中でも、1月においてのみ  $\delta^{18}\text{O}$  値が低くなったのは、1月において“温度効果”が最も顕著に現れたことによると考えられる。

これを検証するため、今回新潟大学において、年間を通して1雨ごとに採取した降水に関して、 $\delta^{18}\text{O}$  値と観測点の日平均気温との間の関係について調査した結果を Fig. 5 に示す。年間を通した値が示されている上段の図(a)において、 $\delta^{18}\text{O}$  値と温度との間には、一見すると明確な相関がないように見えるものの、詳細に見ると低温部分では、比較的良好な相関が見られることがわかる。

そこで、12月から2月までの冬期の降水に限定して、温度と  $\delta^{18}\text{O}$  値との関係を示したのが下段の図(b)である。この図を見ると、温度と

$\delta^{18}\text{O}$  値との間には正の相関が明瞭に見られる。すなわち、夏期および春期、秋期には  $\delta^{18}\text{O}$  値と温度との間に明確な相関が見られないのに対し、冬期では、比較的良好な相関が見られるのが特徴的である。

とりわけ、1月の降水においては、温度と  $\delta^{18}\text{O}$  値の相関係数として  $r=0.83$  が得られ、12月の相関係数  $r=0.57$  や2月の相関係数  $r=0.30$  と比べても高い相関が見られる。

1月の降水の特徴についてさらに検討するため、1月中の1雨ごと（あるいは1週間ごと）の降水における  $\delta^{18}\text{O}$  値を2000年度および2001年度について Table 4 に示す。

この表から、1月においても、1雨ごとでは  $\delta^{18}\text{O}$  値が大きく変動しているのがわかる。さらに気象図などから詳細に検討すると、“典型的な冬型の北西季節風の影響”でもたらされた降水（たとえば、2001年1/11~15の降水をはじめ大部分の降水）は、 $\delta^{18}\text{O}$  値が高く、日本海海水により近い値を示し、“南岸低気圧<sup>26)</sup>（冬期に東シナ海や四国沖などに発生し、本州南岸を東に進むため、日本海沿岸では南からの陸風が吹く）の影響”でもたらされた降水（たとえば、2001年1/6~11や1/24~30の降水など）は低い  $\delta^{18}\text{O}$  値を示す傾向が見られた。すなわち同季節においても、個々の降水をもたらす気団の種類によって  $\delta^{18}\text{O}$  値が大きく変動すると

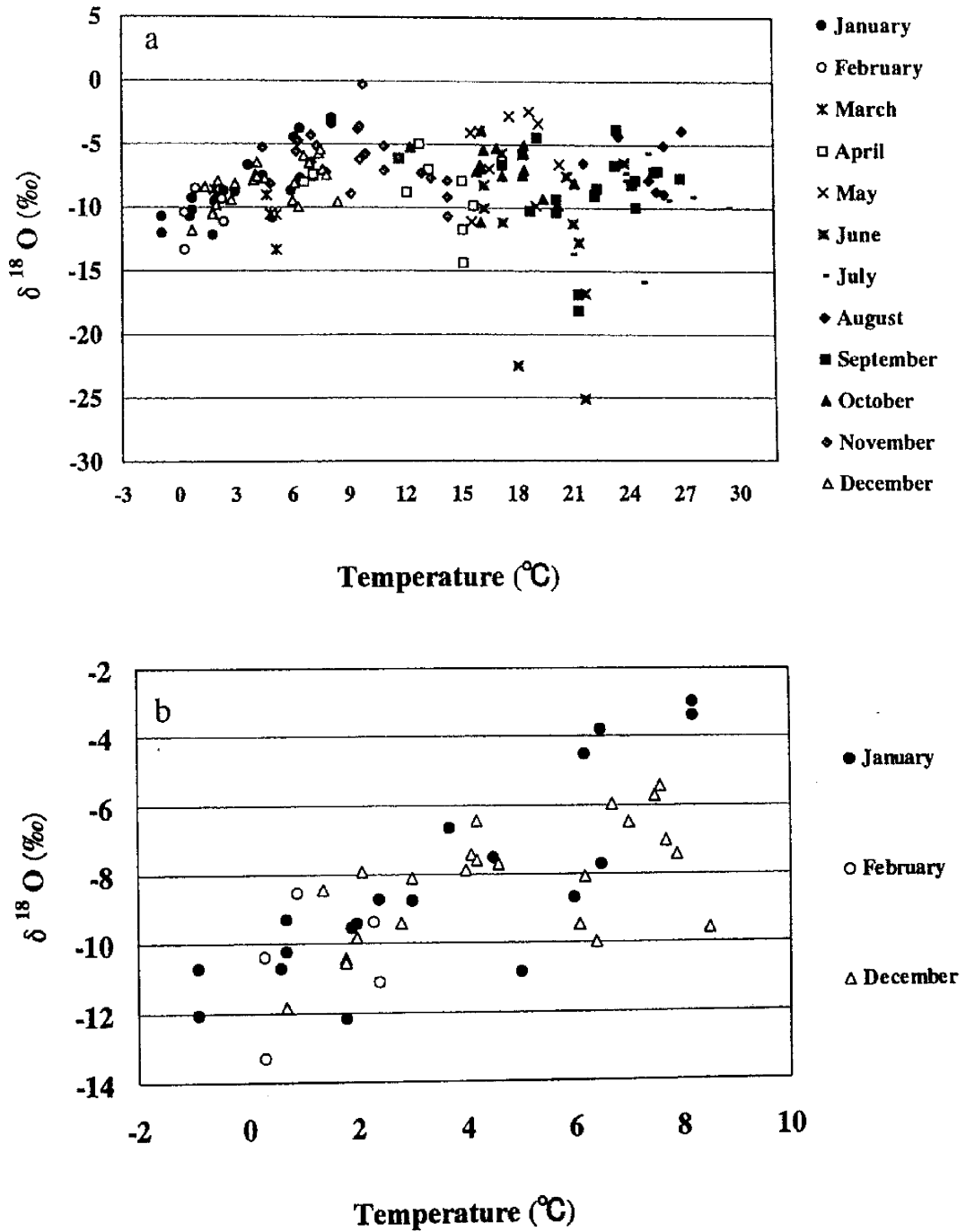


Table 4  $\delta^{18}\text{O}$  values of each rainfall events (or precipitation per one week) on January 2001 and January 2002 collected at Niigata University

| Sampling Date    | $\delta^{18}\text{O}$ ‰ | Sampling Date    | $\delta^{18}\text{O}$ ‰ |
|------------------|-------------------------|------------------|-------------------------|
| 2001 1/6-11      | -13.87                  | 2002 1/4-6       | -9.37                   |
| 1/11-15          | -7.11                   | 1/8-9            | -8.78                   |
| 1/19-24          | -8.90                   | 1/10-11          | -7.51                   |
| 1/24-30          | -12.02                  | 1/11             | -8.70                   |
| 1/30-2/2         | -8.71                   | 1/15             | -3.79                   |
|                  |                         | 1/15-16          | -7.71                   |
|                  |                         | 1/22             | -10.82                  |
|                  |                         | 1/23             | -9.53                   |
|                  |                         | 1/27             | -17.01                  |
|                  |                         | 1/29-31          | -12.19                  |
| 2001. 1 (1/1-31) | -10.71                  | 2002. 1 (1/1-31) | -9.25                   |

推察される。

次に、1月を除いた冬期では、 $\delta^{18}\text{O}$  値の低下が顕著に見られなかった要因について考察する。

北陸地方の冬期の降水は、日本海から急速に吸収された $^{18}\text{O}$ に富んだ水蒸気団が日本に上陸した直後に（長い経路を経ずに）、凝縮してもたらされるために、一般に高い $\delta^{18}\text{O}$ 値を持つ<sup>1), 23)</sup>と考えられている。

このため、臨海部に位置する新潟市において $\delta^{18}\text{O}$ 値の低下が顕著に見られなかったと考えられるが、新潟市より内陸部にある長岡市においても、ほぼ同様の季節変化を示した。この事実は、新潟市と長岡市との間では、“内陸効果”の影響が十分に見られなかったことを示唆している。海岸からの距離が“内陸効果”を示すほど離れていないこと、および長岡市の西側（すなわち海側）は大きな山も存在せずにかけていること、などの可能性が考えられる。

#### 4.1.4 内陸効果による降水の同位体分別

先の項（4.1.3）で、新潟市と長岡市との間では、“内陸効果”の影響が十分に見られなかったと述べた。ところが、新潟県内の降水において“内陸効果”によると思われる挙動を示す部分も見られた。Fig. 6に、2000年11月～2001年3月における上越市（Fig. 2の(8)；臨海部）および津南町（Fig. 2の(7)；山間または内陸

部）の降水の $\delta^{18}\text{O}$ 値の変動を示す。積雪量は、前者が1mに満たないのに対し、後者は3mを超えるほど気象が異なる。2001年1月の両者を比較すると、内陸部は臨海部より $\delta^{18}\text{O}$ が明らかに低いことがわかる。このように、場所と時期（冬期）によっては“内陸効果”が見られるが、特にこの図から、“内陸効果”は、冬期の中でも1月中旬から2月上旬、特に1月下旬において最も顕著であったと考えられる。津南町は関田山地をはさんで海岸から約40 km離れているが、このように一部で“内陸効果”が見られたことから、冬期では日本海上でも、降水の凝縮に伴い、激しい同位体分別が起こっていると推察されるが、前述の長岡市の例もあることから、今後さらに詳細な調査の余地がある。

#### 4.2 新潟県における河川水の酸素安定同位体比 ( $\delta^{18}\text{O}$ ) の特徴

2000年5月～2001年12月における新潟県の河川水中の酸素安定同位体比 ( $\delta^{18}\text{O}$ ) の月変動を、各河川1地点（Fig. 2の(A)～(D)地点）についてFig. 7に示す（比較のために新潟大学屋上で採取した降水中の $\delta^{18}\text{O}$ 値の月変動も同時に示す）。

河川水中の $\delta^{18}\text{O}$ 値は、信濃川水系（信濃川・中之口川、西川）で平均-10.8‰（全地点平

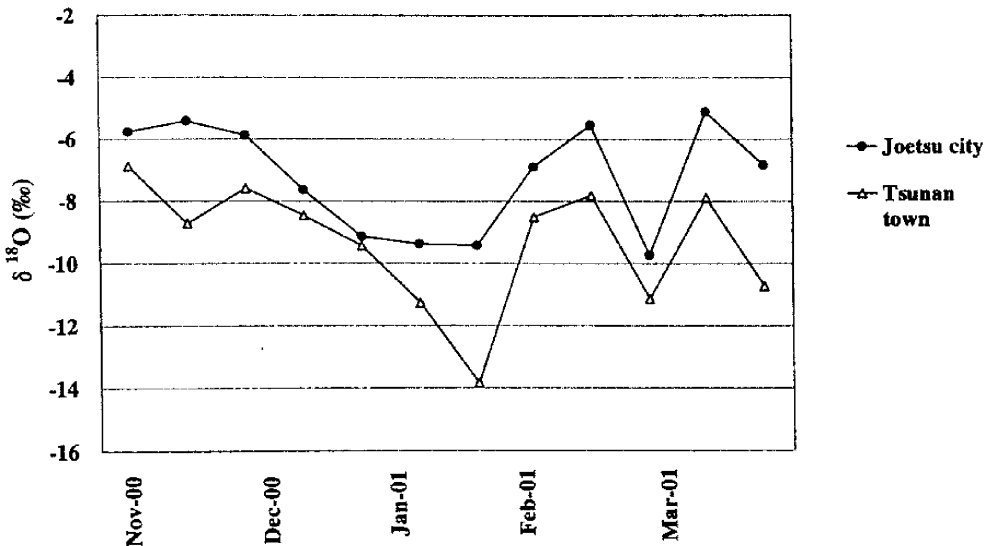


Fig. 6 The variation of  $\delta^{18}\text{O}$  values in precipitation at seaside (Joetsu City) and mountain (Tsunan Town).

均), 阿賀野川で平均 $-10.2\%$  (全地点平均) という値を示し, 降水の場合とは異なり年間を通して $\pm 2\%$ 程度の変動しか見られなかった (各河川間においても, 顕著な変動は見られなかった)。これは, 河川水の起源である降水の大部分が, 一旦地下へ浸透してよく混合されて均一化されており, 成分が均一となった地下水が河川へ流出する<sup>23)</sup>ためと考えられる。

これを検証するために, 河川水との比較対象試料として, 試験的に2001年4月~2001年12月において地下水 (Fig. 2の白四角(□)の(d)地点) 中の $\delta^{18}\text{O}$ 値を測定した結果をTable 5に示す。

地下水中の $\delta^{18}\text{O}$ 値の平均値 (全地点平均) は,  $-8.8\%$ で月変動幅は $\pm 0.5\%$ 程度であった。地下水の方が河川水よりも地下に滞留している期間が長く, また水の均質化の機会がより多い (すなわち, 地下水は年代の異なる水が混合しやすい) ことから, 年間を通した $\delta^{18}\text{O}$ 値の変動幅がさらに小さくなったと考えられる。

このことから, 新潟県の河川水においても,  $\delta^{18}\text{O}$ 値の変動が降水に比べて著しく小さくなった要因として, 周辺地下水による均一化を挙

げることができる。

しかしながら, 新潟県の河川水における $\delta^{18}\text{O}$ 値の季節変化を詳細に検討すると, ①春から夏にかけて比較的低い (ただし8月は高い) 値を示し, ②冬に高い値を示す, 特徴が見られる。

①については, 積雪と融雪水の影響によると考えられる。冬に山間部に降る雪は, "高度効果"により低い $\delta^{18}\text{O}$ 値を持っている。冬はこの降雪の大部分が積雪となり, すぐには河川に流量として現れず, 春から夏にかけて融雪水として河川や地下に流入すると考えられる (実際の採水において, 河川の種類によらず, 4月以降の河川の流量は, 3月以前に比べて多くなっており, この事実も融雪水の影響を支持するものである)。

春から夏にかけて $\delta^{18}\text{O}$ 値が低くなる現象は富山県の河川水<sup>6)</sup>においても報告されているが, 新潟県の河川水の $\delta^{18}\text{O}$ 値は, 富山県の場合と異なり8月に高い値を示している。これは, 4・1・2の項で述べたように降水の $\delta^{18}\text{O}$ 値においても見られた傾向であり, 河川水の $\delta^{18}\text{O}$ 値は, 降水の $\delta^{18}\text{O}$ 値の影響を受けている可能性が大きい。8月において $\delta^{18}\text{O}$ 値が大きくなった理由

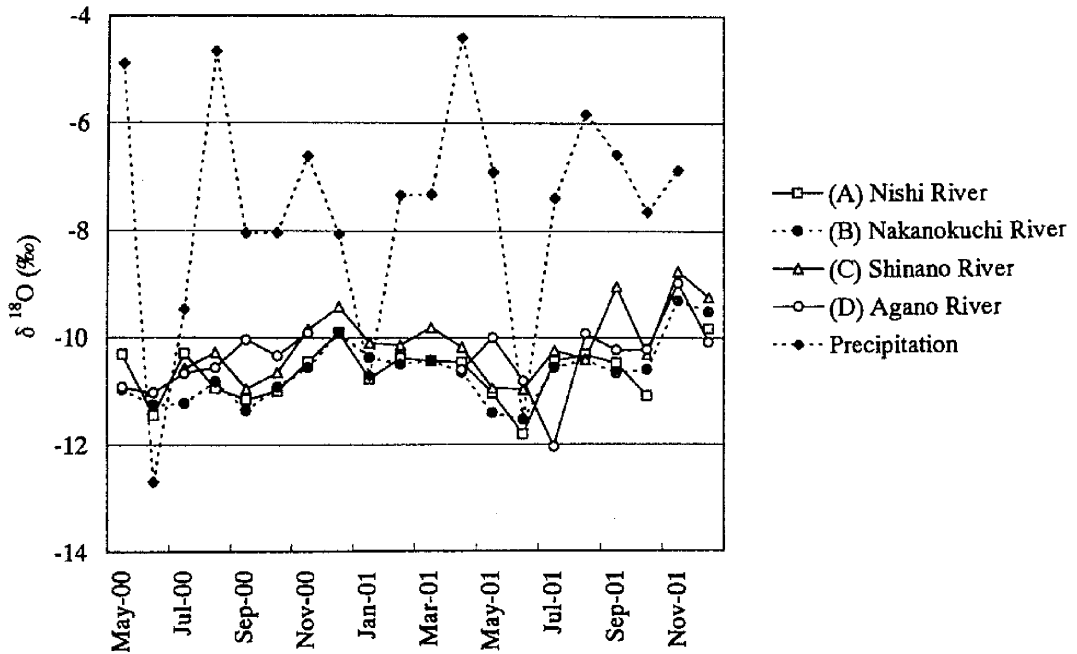


Fig. 7 Monthly variation of  $\delta^{18}\text{O}$  values in some river waters in Niigata City.

として、その他に①8月は、1年の中で気温が最も高く、水の蒸発が他の月に比べて非常に起こりやすいため、水が蒸発する過程で、重い同位体の $^{18}\text{O}$ が濃縮した、⑩渇水期であるため、周辺地下水 (Table 5 に示したように、河川水よりも大きい $\delta^{18}\text{O}$ 値を持つ) によって涵養される割合が大きかった、ことなども考えられるが、降水の変動幅と比して、その変動はあまりに小さく、これらの検証にはさらなる実証が必要となろう。

②については、降水の流入による影響が考えられる。4・1・3の項でも述べたように、1月を除いた冬期の降水では、比較的大きい $\delta^{18}\text{O}$ 値を示しているうえ、新潟の冬は降水が多いため、河川水に流入する降水の寄与が大きかったと考えられる。

## 5. まとめ

以上述べたように、酸素安定同位体比 ( $\delta^{18}\text{O}$ ) をトレーサに用いることにより、さらに降水に

おいては、①1月ごとの採水 (1か月貯留水) と、②1雨ごと (あるいは1週間ごと) の採水を併用することにより、新潟県の近年における環境水の季節的な特徴や気象状況について、以下のような知見を得ることができた。

(1) 降水における $\delta^{18}\text{O}$ 値の平均値は $-9\%$ 程度であり、季節によって $\pm 7\%$ 程度の変動を示す。

(2) 降水における $\delta^{18}\text{O}$ 値は、6月および1月において小さく、8月において大きい。

(3) 梅雨期の前後 (5月~8月) の降水は、 $\delta^{18}\text{O}$ 値の変動幅が大きいのに対し、晩秋から冬期 (10月~2月) においては、比較的一様な値を示した。

(4) 1月において、降水の $\delta^{18}\text{O}$ 値と観測地点の平均気温との間の相関関係が1年の中で最も顕著に見られた。

(5) 同季節においても、個々の降水をもたらす気団の種類によって、 $\delta^{18}\text{O}$ 値は大きな変動を示した。

Table 5  $\delta^{18}\text{O}$  values of the groundwater ((d) in Fig. 2) near Agano River from April 2001 to December 2001  
For comparison,  $\delta^{18}\text{O}$  values of Agano River ((D) in Fig. 2) are also shown

| Sampling<br>Month | Groundwater ((d) in Fig. 2) | Agano River ((D) in Fig. 2) |
|-------------------|-----------------------------|-----------------------------|
|                   | $\delta^{18}\text{O}$<br>‰  | $\delta^{18}\text{O}$<br>‰  |
| 2001. 4           | -8.69                       | -10.60                      |
| 2001. 5           | -7.91                       | -10.00                      |
| 2001. 6           | -8.54                       | -10.81                      |
| 2001. 7           | -8.68                       | -12.04                      |
| 2001. 8           | -8.81                       | -9.93                       |
| 2001. 9           | -8.81                       | -10.23                      |
| 2001. 10          | -9.05                       | -10.23                      |
| 2001. 11          | -8.57                       | -8.97                       |
| 2001. 12          | -8.34                       | -10.08                      |
| (Mean)            | -8.60                       | -10.32                      |

(6) 河川水における  $\delta^{18}\text{O}$  値の平均値は,  $-11\%$ ~ $-10\%$ 程度であり, 年間を通して大きな変動は見られなかった ( $\pm 2\%$ 程度)。

(7) 河川水中の  $\delta^{18}\text{O}$  値は, 融雪水や降水が河川水中に流入する時に変動しうる。

(8) 地下水中の  $\delta^{18}\text{O}$  値の変動幅は, 河川水に比べてさらに小さい。

## 謝 辞

本研究を進めるに当たり, 安定同位体比測定用質量分析装置の使用, 測定などに関して, 本学積雪地域災害研究センター講師渡部直喜博士から御便宜, 御助言をいただいた。また, 新潟県各地 (9 地点) の降水試料は新潟県保健環境科学研究所大気科学科より御提供いただいた。さらに, 地下水の採取にあたり, 同研究所水質科学科, 横越町の佐藤豊次氏および三川村阿賀高原ゴルフ倶楽部の御協力をいただいた。これらの方々には謝意を表します。

本研究の一部は, (財)佐々木環境技術振興財団からの補助を受けた。

この研究の一部は, 「第38回理工学における同位元素・放射線研究発表会」および「第39回理工学における同位元素・放射線研究発表会」で口頭発表およびポスター発表された。

## 文 献

- 1) 水谷義彦: ハイドロロジー, 16, 74-82(1986)
- 2) 島崎英彦, 新藤静夫, 吉田鎮男: "放射性廃棄物と地質科学", pp.128-130, 東京大学出版会 (1995)
- 3) 早稲田 周, 中井信之: 地球化学, 17, 83-91(1983)
- 4) 佐竹 洋: 地球化学, 20, 90-92(1986)
- 5) Mizota, C. and Kusakabe, M.: *Geochem. J.*, 28, 387-410(1994)
- 6) 水谷義彦, 佐竹 洋: 地下水学会誌, 39(4), 287-297(1997)
- 7) Diamond, R. E. and Harris, C.: *South African J. Sci.*, 93, 371-374(1997)
- 8) 池田光良, 高田 茂, 松枝大治: *Radioisotopes*, 47, 812-823(1998)
- 9) Davisson, M. L., Smith, D. K., Kenneally, J. and Rose, T. P.: *Water Resour. Res.*, 35(1), 279-294(1999)
- 10) Abbott, M. D., Lini, A. and Bierman, P. R.: *J. Hydrol.*, 228, 101-112(2000)
- 11) 東田盛善, 佐竹 洋, 渡久山 章: 地球化学, 35, 27-41(2001)
- 12) 大泉 毅, 福崎紀夫, 日下部 実: 日化, 1994, 822-827
- 13) Ohizumi, T., Fukuzaki, N. and Kusakabe, M.: *Atmos. Environ.*, 31, 1339-1348(1997)
- 14) 丸山隆雄, 大泉 毅, 種丘 裕, 南 直樹, 福崎紀夫, 向井人史, 村野健太郎, 日下部 実:

- 目化, 2000, 45-51  
 //www.geolab.co.jp/analyses\_OD.htm
- 15) Suzuki, K. and Endo, Y.: *Geophys. Res. Lett.*, **22**(5), 591-594(1995)
- 16) 小島隆志, 山田隆二, 陶 冠紅, 神田尚子, 東浦将夫: *水環境学会誌*, **23**(3), 173-176(2000)
- 17) Kano, N., Aihara, H., Kozima, R. and Imaizumi, H.: *Proc. of 1st International Symposium on Isotopomers* (Yokohama), 323-330(2001)
- 18) 渡部直喜, 袖原雅樹, 佐藤 修, 鈴木将之, 中川 勉: *新潟大災害研年報*, **20**, 105-110(1998)
- 19) 酒井 均, 松久幸敬: “安定同位体地球化学”, p. 5, 東京大学出版会(1995)
- 20) 株式会社地球科学研究所ホームページ [http:](http://www.geolab.co.jp/analyses_OD.htm)
- 21) Faure, G.: *Principles of Isotope Geology*, pp. 429-459 John Wiley & sons(1986)
- 22) 日本気象学会教育と普及委員会編: “教養の気象学”, pp. 161-166, 朝倉書店(1980)
- 23) 佐竹 洋, 向井利明, 水谷義彦: *富山大学トリウム科学センター研究報告*, **3**, 45-56(1984)
- 24) 文部科学省国立天文台編: “理科年表 2002”, p. 200, 丸善株式会社(2001)
- 25) 高橋浩一郎編: “日本気象総覧 下巻”, pp.959-964, 東洋経済新報社(1983)
- 26) 今井昭二, 神谷直子, 林 康久: *日化*, 1996, 208-211

## Abstract

### Oxygen Stable Isotopic Ratios of Precipitations and River Waters in Niigata Prefecture in Recent Years

Naoki KANO, Hiroyuki AIHARA\*, Ryo KOJIMA\*,  
 Kayoko TAKEUCHI, Akihito SATO and Hiroshi IMAIZUMI

Department of Chemistry and Chemical Engineering, Faculty of Engineering, Niigata University,

\* Graduate School of Science and Technology, Niigata University

8050 Ikarashi 2-nocho, Niigata-shi, Niigata Pref. 950-2181, Japan

*Oxygen stable isotopic ratios ( $\delta^{18}\text{O}$ ) of the precipitation and some river water samples in Niigata prefecture were measured from 1999 to 2002. Isotopic measurements were performed by a stable isotope ratio mass spectrometer. Consequently, the following matters were found. (1) The mean  $\delta^{18}\text{O}$  value of precipitations was  $-9\text{‰}$ , and the variation of  $\pm 7\text{‰}$  was shown throughout the year. (2) All of 9 observation points, the seasonal behavior of isotopic ratio was similar to each other. (3) In June and January,  $\delta^{18}\text{O}$  value of precipitations was small, and was large in August. (4) In January, the relationship between the temperature of observation points and  $\delta^{18}\text{O}$  values in precipitation was most remarkably found throughout the year. (5) The variation of  $\delta^{18}\text{O}$  values in precipitations in winter is smaller than that in the other seasons. (6) The mean  $\delta^{18}\text{O}$  value of river waters in Niigata prefecture was about  $-11\text{‰}$  to  $-10\text{‰}$ , and the variation was not so large ( $\pm 2\text{‰}$ ) throughout the year. (7)  $\delta^{18}\text{O}$  values of river waters may vary when the melted snow or the precipitation flow into the rivers. (8) The variation of  $\delta^{18}\text{O}$  values in groundwater was smaller than that in river waters.*

(Received August 22, 2002)