

研究報告

北海道, 登別の降水の水素・酸素同位体比

川原谷浩**・安孫子勤***・松葉谷治****

Hydrogen and Oxygen Isotopic Ratios of Precipitation at Noboribetsu, Hokkaido

Hirosi Kawaraya**, Tsutomu Abiko***, Osamu Matsubaya****

Abstract

At Noboribetsu, Hokkaido, hydrogen and oxygen isotopic ratios (δD and $\delta^{18}O$) of precipitation collected in about one month interval were measured from 1979 to 1983. Although the measurement is rather old, it is useful to explain the isotopic characteristics of precipitation in the southern coast area of Hokkaido. δD , $\delta^{18}O$ and d value ($d = \delta D - 8\delta^{18}O$) of annual mean precipitation at Noboribetsu are -60‰, -8.9‰ and 11, respectively. The relationships of δD and $\delta^{18}O$ show obvious difference between winter season and spring to fall season, and the d value is 21 in the winter season and higher than the value of 9 in the spring to fall season, as like as the characteristics observed at Akita, Ryori and Rokkasho in the northern Honshu. The relationship in the spring to fall season is similar to those at Akita, Ryori and Rokkasho, and this implies that the Noboribetsu precipitation in the spring to fall season may be brought by the process similar to those in the above three localities. On the contrary, the relationship in the winter season is different from those of above three localities implying some difference in precipitation process. However, the d value of annual mean precipitation at Noboribetsu is the same as Ryori located at the Pacific Ocean coast of northern Honshu, because the precipitation amount in the winter season is fairly smaller than that in the spring to fall season at Noboribetsu as like as Ryori. The isotopic ratios of small rivers in the Noboribetsu area are similar to those of several small rivers at the southern coast of Hokkaido, and this implies that the isotopic ratios of precipitation at the southern coast of Hokkaido have characteristics similar to those at Noboribetsu.

1. はじめに

降水の水素と酸素の安定同位体比 (D/H , $^{18}O/^{16}O$) は気象学や気候学の研究において有力な情報として利用される。また、水文学の分野でもそれら同位体比は地下水や河川水の起源や挙動を解明するための

有力な研究手法となる。日本の降水の水素・酸素同位体比については、Matsubaya and Kawaraya(2014)⁽¹⁾による秋田における23年間の観測結果、またHasegawa et al.(2014)⁽²⁾による青森県六ヶ所における10年間の観測結果の報告がある。また、岩手県、綾里において国際原子力機構(IAEA)による長期間の観測が行われている。その他にも東田ほか(2006)⁽³⁾による石垣島の降水について、中村ほか(2008)⁽⁴⁾の甲府の降水についてなどかなりの報告がなされている。また、田上ほか(2013)⁽⁵⁾による日本各地の測定結果をまとめた報告がある。他方、日本の地下水や河川水の水素・酸素同位体比については様々な目的の研究

2016年7月23日受理

**秋田大学大学院国際資源学研究所

Graduated School of International Resource Sciences,
Akita University

***元室蘭工業大学応用化学科

Formerly, Division of Applied Chemistry, Muroran Institute
Technology

****秋田大学名誉教授

Professor Emeritus of Akita University

の中で多くの測定結果が報告されている（例えば、総括的な報告として、Mizota and Kusakabe (1994)⁽⁶⁾）。地下水や河川水の同位体比は、降水の値が大きな季節変動を示すのとは異なり、多くの場合1年を通じてほぼ一定であり、付近の降水の年平均値（年間総降水の値）と類似する。降水が地下に浸透し、地下水となり、河川へ流出する過程で同位体比が変化するか否かについてはまだ不明な点が多く残されている（例えば、松葉谷・川原谷(2014)⁽⁷⁾）。しかし、少なくとも地下水や河川水の研究において降水の年平均値が比較の対象となることは確かである。ところが、降水の年平均値には年毎に比較的大きな変動が見られる。例えば、秋田の場合、水素同位体比 (δD) は 12‰、酸素同位体比 ($\delta^{18}O$) で 1.5‰、また六ヶ所では水素同位体比は 14‰、酸素同位体比は 1.8‰ の範囲で変動する。秋田と六ヶ所の結果を見ると、年平均値を5年間程度について平均するとそのような変動がほぼ打ち消され、より長期間の平均値と類似した値が得られる。したがって、地下水や河川水と比較する場合、少なくとも5年間程度の平均値が必要となる。ところが、今までの報告されている日本の降水の年平均値は1ないし2年間の短い期間のものが多く、より長期間の観測が望まれる。

登別は温泉として有名な場所であり、その温泉活動の調査の一環として約5年間にわたり降水の採取が行われ、水素・酸素同位体比が測定された。したがって、その結果はこの地域の年間降水の長期間の平均的に近い値を示すと考えられる。観測結果はかなり以前のものであるが、上記のように、最近本州北部の日本海沿岸に位置する秋田と太平洋沿岸に位置する六ヶ所で降水の同位体比の長期間の観測結果が報告され、これらの測定結果と登別の観測結果を比較することにより、北海道南岸の降水の同位体比の特徴が明らかになることが期待される。特に、登別は本州北部の太平洋沿岸と北海道東部の太平洋沿岸よりも海岸線が北西方向に大きく入り込んだところに位置（図1参照）するので、日本海沿岸の秋田と太平洋沿岸の六ヶ所の特徴と比べてどのような差異があるかが興味ある問題である。このような観点から、本論文では登別の降水の同位体比を報告し、秋田、六ヶ所ならびに六ヶ所の南に位置する綾里の降水の同位体比と比較する。さらに、登別地域の小河川と降水の同位体比を比較し、両者の間に見られる関係が北海道南岸の他の地域でも見られるものとして北海道南岸の降水の同位体比の特徴を推定する。

2. 降水の採取法および同位体比測定法

登別は、図1に示すように北海道の南岸に位置する。降水の採取は1979年5月から1983年11月の期間にほぼ1ヶ月間の降水をまとめて採取する方法で行われた。しかし、降水量の多い時にはさらに短い期間に分けて採取したり、降水量の少ない時には2ヶ月あるいはさらに長期間の降水をまとめて採取した。降水の採取はポリエチレン製ロートで行われ、ロートの先端をビニール管で採集びんの底まで届くように延ばし、採集された降水の蒸発を防ぐ方法を用いた。降雪の場合は、降雪を毎回集め、密閉容器に入れ、室内で溶かす方法を用いた。

水の水素と酸素の同位体比は、亜鉛還元法で得られた H_2 、あるいは CO_2-H_2O 同位体交換法で得られた CO_2 について、同位体比用質量分析計 (MAT-250) で測定した。測定された同位体比は、国際的標準水である標準平均海水 (SMOW) と比較した時の同位体比の差を千分率 (‰) で表し、次式で示すように δD または $\delta^{18}O$ で表す。

$$\delta = (R_{SA} / R_{SMOW} - 1) \times 10^3$$

ここで δ は δD または $\delta^{18}O$ 、 R は D/H または $^{18}O/^{16}O$ を表し、 SA は試料を意味する。測定の精度は、ほぼ、 δD で $\pm 1\text{‰}$ 、 $\delta^{18}O$ で $\pm 0.1\text{‰}$ である。また、本論文では、水の同位体比の特徴を表す1つの指標として d 値を用いる。この d 値は次式で求められる。

$$d = \delta D - 8\delta^{18}O$$

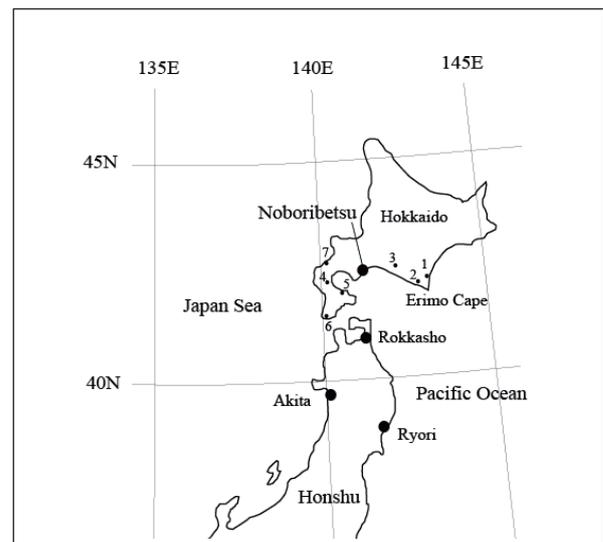


Fig. 1 Localities of Noboribetsu and other places discussed in the text. 1.Hiroo; 2.Horoman; 3.Biratori; 4.Yakumo; 5.Ohfuno; 6.Yoshioka; 7.Raiden coast.

測定された水素・酸素同位体比 (δD , $\delta^{18}O$) は表 1 に示す通りである。降水の δD と $\delta^{18}O$ の関係について、Matsubaya and Kawaraya(2014)⁽¹⁾は秋田の降水について11月から2月までの冬季の降水と4月から9月までの春季から秋季までの降水の間に明らかな違いがあることを指摘し、前者を冬型降水、後者を夏型降水と称した。また、3月と10月は一方から他方への移行期で冬型と夏型の両方の降水が降ることを明らかにした。登別の降水の δD と $\delta^{18}O$ の関係を Matsubaya and Kawaraya(2014)⁽¹⁾が用いた方法に従い Craig(1961)⁽⁸⁾が示した傾き 8 の直線で表すと、図 2 に示すように冬季の降水と春季から秋季の降水がそ

れぞれ明らかに異なる関係を示す。この2つの直線関係の d 値は、冬季のものは 20 で秋田の値、25 よりも低い。春季から秋季のものは 8 で秋田の値、9 とほぼ同じである。また、3月から4月上旬および9月下旬から10月の降水はこの2つの直線関係の間の関係を示し、秋田で示された移行期のものと考えられる。

ここで示す登別の降水については、試料採取期間がやや不規則なため採取月を正確には区分できないが、秋田、六ヶ所および綾里の降水と比較するため11月から2月の降水を冬型、4月から9月の降水を夏型としてそれぞれの δD , $\delta^{18}O$ および d 値の平均値を求めると表 2 に示す通りである。表 2 に示された秋田および綾里の値は Matsubaya and Kawaraya(2014)⁽¹⁾からの引用であり、また六ヶ所の値は Hasegawa et. al.(2014)⁽²⁾に示された測定結果から計算されたものである。夏型降水について見ると、登別は同位体比も d 値も秋田および六ヶ所とほぼ同じで、同位体比が綾里よりも少し低い。秋田と綾里の差について、Matsubaya and Kawaraya(2014)⁽¹⁾は夏型降水では同位体分別が太平洋側から北西方向に進行し、秋田のほうがその進行の程度が平均的に進んでいることに因ると説明している。その考えに因ると、登別が襟裳岬と綾里を結ぶ線よりも秋田と同程度に西方に位置しており、同位体分別の進行により同位体比が綾里よりも低いことが考えられる。しかし、Matsubaya and Kawaraya(2014)⁽¹⁾は同時に綾里と西南日本の和歌山県白浜との同位体比の差を降水の起源水蒸気が蒸発する日本沿岸の太平洋の表面温度

Table 1 δD , $\delta^{18}O$ and d value of precipitation at Noboribetsu. The collection interval is from the last date to the current date. The collection of No.1 started on May 24, 1979. ppt is amount of precipitation(mm).

| No. | Date | ppt | δD | $\delta^{18}O$ | d |
|-----|-----------|-----|------------|----------------|----|
| 1 | 1979 6.24 | 110 | -84 | -11.4 | 7 |
| 2 | 7.10 | 150 | -108 | -14.3 | 6 |
| 3 | 8.07 | 160 | -66 | -9.0 | 6 |
| 4 | 9.08 | 200 | -65 | -8.9 | 6 |
| 5 | 10.05 | 200 | -64 | -9.4 | 11 |
| 6 | 11.05 | 190 | -72 | -10.6 | 13 |
| 7 | 12.06 | 130 | -53 | -8.9 | 18 |
| 8 | 1980 1.12 | 290 | -47 | -9.0 | 25 |
| 9 | 2.14 | 70 | -76 | -12.1 | 21 |
| 10 | 3.14 | 110 | -80 | -12.3 | 18 |
| 11 | 4.18 | 90 | -59 | -8.5 | 9 |
| 12 | 5.20 | 130 | -73 | -11.0 | 15 |
| 13 | 6.30 | 200 | -79 | -10.7 | 7 |
| 14 | 8.01 | 150 | -59 | -8.2 | 7 |
| 15 | 9.16 | 690 | -47 | -7.0 | 9 |
| 16 | 10.30 | 200 | -71 | -10.8 | 15 |
| 17 | 12.01 | 200 | -53 | -9.1 | 20 |
| 18 | 1981 1.31 | 130 | -87 | -13.7 | 23 |
| 19 | 3.17 | 200 | -71 | -11.1 | 18 |
| 20 | 4.12 | 200 | -82 | -11.6 | 11 |
| 21 | 7.01 | 480 | -66 | -9.2 | 8 |
| 22 | 8.06 | 520 | -48 | -6.9 | 7 |
| 23 | 8.12 | 200 | -47 | -6.9 | 7 |
| 24 | 8.22 | 150 | -47 | -6.8 | 7 |
| 25 | 8.23 | 200 | -57 | -8.1 | 8 |
| 26 | 9.04 | 200 | -93 | -12.6 | 8 |
| 27 | 9.18 | 160 | -45 | -6.8 | 9 |
| 28 | 10.24 | 180 | -55 | -8.7 | 15 |
| 29 | 11.27 | 200 | -67 | -11.1 | 22 |
| 30 | 1982 4.23 | 200 | -61 | -9.8 | 17 |
| 31 | 5.01 | 200 | -61 | -9.9 | 18 |
| 32 | 6.11 | 190 | -66 | -9.2 | 8 |
| 33 | 7.17 | 200 | -32 | -4.9 | 7 |
| 34 | 8.20 | 200 | -33 | -4.8 | 5 |
| 35 | 8.30 | 200 | -45 | -6.4 | 6 |
| 36 | 10.21 | 200 | -52 | -7.7 | 10 |
| 37 | 12.18 | 200 | -75 | -11.7 | 19 |
| 38 | 1983 2.22 | 180 | -86 | -13.3 | 20 |
| 39 | 5.08 | 200 | -61 | -8.7 | 9 |
| 40 | 6.07 | 150 | -64 | -8.9 | 7 |
| 41 | 6.20 | 200 | -79 | -11.3 | 11 |
| 42 | 8.23 | 520 | -71 | -9.7 | 7 |
| 43 | 9.13 | 490 | -52 | -7.4 | 7 |
| 44 | 9.26 | 130 | -58 | -8.8 | 12 |
| 45 | 10.09 | 130 | -49 | -7.9 | 14 |
| 46 | 11.23 | 160 | -49 | -8.4 | 18 |

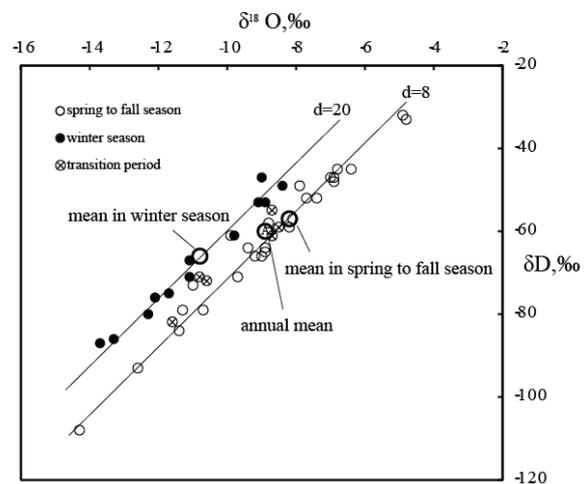


Fig. 2 Relationships between δD and $\delta^{18}O$ of Noboribetsu precipitation grouped into the winter season(November to February), the spring to fall season(April to September) and the transition periods(March, October). The d values are $\delta D - 8\delta^{18}O$, if δD and $\delta^{18}O$ of each groups are fitted by a linear relation of slope 8, respectively.

Table 2 Mean values of δD , $\delta^{18}O$ and d value of precipitation at Noboribetsu as well as Akita, Ryori and Rokkasho on the average annual, in the winter season(November to February) and in the spring to fall season(April to September), respectively.

| 観測値 | 年平均 | | | 冬型 | | | 夏型 | | | W/S ¹⁾ (%) | 観測期間 |
|-------------------|------------|----------------|----|------------|----------------|----|------------|----------------|----|--------------------------|-------------------------|
| | δD | $\delta^{18}O$ | d | δD | $\delta^{18}O$ | d | δD | $\delta^{18}O$ | d | | |
| 登別 | -60 | -8.9 | 11 | -65 | -10.7 | 21 | -57 | -8.2 | 9 | 33 | 1979-1983 |
| 秋田 ²⁾ | -54 | -8.6 | 15 | -49 | -9.2 | 25 | -58 | -8.3 | 9 | 58 | 1981-2004 |
| 六ヶ所 ³⁾ | -57 | -9.0 | 15 | -55 | -10.0 | 25 | -57 | -8.4 | 10 | 55 | 2000-2011 |
| 綾里 ⁴⁾ | -54 | -8.1 | 11 | -53 | -8.7 | 17 | -53 | -7.9 | 10 | 22 | 1979-2005 ⁴⁾ |

1)Ratio of precipitation amount between the winter season and the spring to fall season, 2)After Matsubaya and Kawaraya(2014)¹⁾, 3)Calculation based on data by Hasegawa et al.(2014)²⁾, 4)no observation from 1986 to 1997.

の差で説明している。したがって、登別あるいは六ヶ所と綾里の差を太平洋の表面温度の差で説明することも可能なように思われる。また、登別では6月から9月の間に短期間に多量の降水が起こることが多く、夏型降水の同位体比がそのような豪雨の影響を強くうけていることも否定できない。

冬型降水については、六ヶ所のd値が25で秋田の値と同じである。ところが、登別の値は秋田と綾里の中間の値である。六ヶ所の値が秋田と同じ25であることは、冬季の日本海から蒸発する水蒸気を起源とする降水が六ヶ所まで到達することを示す。恐らく、津軽山地や下北丘陵の標高が共に500m位であるので、それらの山々を越えて冬季日本海側の降水が六ヶ所まで到達すると推定される。冬型降水と夏型降水の量比も秋田と六ヶ所ではほぼ同じであり、その結果年平均値のd値も同じである。ところが、登別についてはその西方に標高1000mを越す山が位置し、冬季日本海側の降水が登別まで到達しないのではないかと考えられる。綾里の冬型降水のd値(17)が高い理由が不明なように登別のd値が高い理由は現在のところ明らかでない。ただし、冬型降水と夏型降水の量比が綾里と同程度に低いので、登別の年平均値のd値は綾里と同じになる。しかし、同位体比は登別の冬型の値が低いため綾里よりも低い。

4. 降水と周辺の地下水・河川水の比較

上記の登別降水の年平均値を周辺の小河川水の値と比較すると、図3に示すように河川水のほうが δD はほぼ同じであるが、 $\delta^{18}O$ が0.5ないし0.9‰低く、結果としてd値が高くなる。秋田の降水および六ヶ所の降水とそれらの周辺の地下水や河川水の間にも同様な傾向が見られる。この降水と地下水・河川水の差が、降水が地下に浸透し、河川に流出するまで

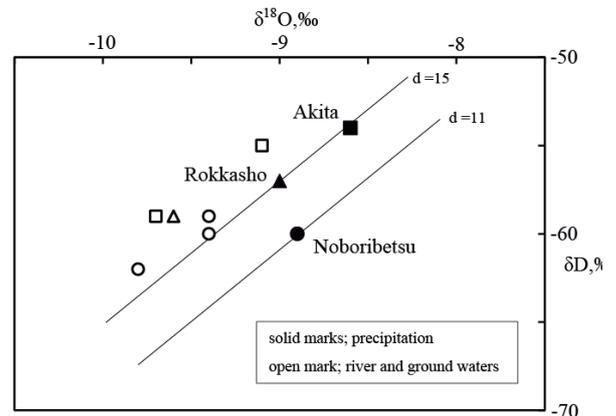


Fig. 3 Comparison of δD and $\delta^{18}O$ of precipitation with those of groundwater and water of small river at Noboribetsu, Akita and Rokkasho. The data of groundwater and river water are quoted from; Noboribetsu, Matsubaya et al.(1978)⁹⁾; Akita, Matsubaya and Kawaraya(2014)⁷⁾; Rokkasho, Ioka et al.(2013)¹⁰⁾.

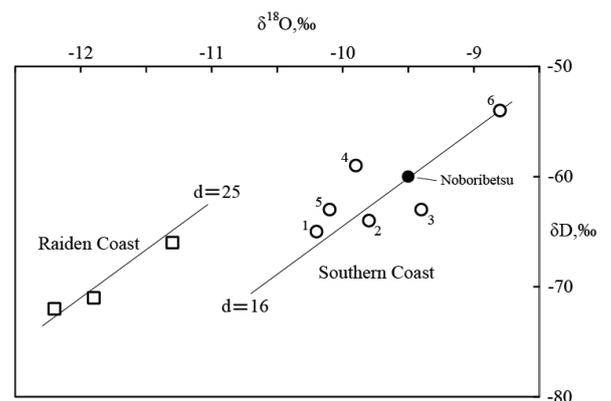


Fig. 4 δD and $\delta^{18}O$ of water of small river and groundwater at Noboribetsu and several localities at the southern coast of Hokkaido as well as at Raidein Coast of western coast. Attached numbers correspond with those in Fig. 1. Data of Noboribetsu and Nos.4,5 and 7; after Matsubaya et al. (1978)⁹⁾.

の過程において同位体比が変化することに因るのか、あるいは各降水の混合が季節、降水量、降水の間隔などについて均等でないことに因るのかなど幾つかの可能性が考えられるが、現在のところまだ明らかな説明は得られていない。ただし、図3に示した秋田の河川水については4月と10月で同位体比に明らかな差があり（松葉谷・川原谷(2014)⁽⁷⁾），それにもかかわらずd値に差がないので同位体比の差が冬季降水と夏季降水の混合の割合が異なることに因るのではないことは確かである。

このように、地下水や河川水の同位体比と降水の同位体比の関係についてはまだ十分には解明されていないが、両者が類似することから地下水や河川水の同位体比が降水の同位体比の特徴を反映しているとみることができるであろう。そこで、北海道南岸の襟裳岬から松前半島の間を図1に示す地点の河川水や地下水の δD と $\delta^{18}O$ の関係を登別と比較すると、図4に示すように、西端の吉岡(No.6)がやや高い同位体比を示すが、それ以外はほぼ同じ関係を示す。また、東端の日高山脈の東側に位置する広尾(No.1)でもほぼ同じ関係が見られる。このように地下水や河川水の同位体比の特徴が類似していることから、北海道南岸の降水の同位体比の特徴は登別の特徴と類似しているものと推定される。また、東西方向についても特に差が見られない。前節で述べたように登別の夏季降水の同位体比が六ヶ所とは類似するが綾里よりは低い理由として、太平洋から北西方向に進行する同位体分別の差あるいは起源水蒸気が蒸発する海水の表面温度の差の2つの可能性が考えられるが、東西方向に差がないことから、海水の表面温度の差による可能性のほうが高いことが示唆される。

また、登別の北西の日本海沿岸に位置する雷電海岸付近の河川水は、図4に示すように登別とは大きく異なり、 δD と $\delta^{18}O$ が低く、d値が高い。このような関係は日本海沿岸の降水に特徴的なもので、冬型降水の寄与が大きいことを示す。しかも、このような河川水の高いd値(25)が降水の年平均値に近いとすると、冬型降水のd値は秋田や六ヶ所などよりもさらに高い値であることを示す。したがって、登別の冬季の降水が日本海側の降水の影響を直接受けているとは考え難い。

5. まとめ

登別における降水の δD と $\delta^{18}O$ の約5年間にわたる観測の結果、次のことが判明した。 δD と $\delta^{18}O$ の

関係には、東北の日本海側の秋田や太平洋側の綾里や六ヶ所で見られる関係と同様に、冬季の降水と春季から秋季の降水の間で明らかな差がある。春季から秋季の降水の δD と $\delta^{18}O$ の関係は、秋田、綾里および六ヶ所の関係と類似し、太平洋から供給される水蒸気を起源とすると考えられる。ところが冬季降水の関係は他の3ヶ所と異なり、その成因は不明である。降水の年平均値は $\delta D = -60\text{‰}$ 、 $\delta^{18}O = -8.9\text{‰}$ 、 $d = 11$ であり、冬季降水の寄与が少ないため、d値は綾里と同じである。ところが、 δD と $\delta^{18}O$ は冬季降水の値が低いいため、綾里より低い。

北海道南岸の数ヶ所の地下水や河川水の δD と $\delta^{18}O$ が登別の河川水と類似することから、北海道南岸の降水の δD と $\delta^{18}O$ は登別の降水と類似するものと推定される。また、東西方向については同位体比に特に差はない。

参考文献

- (1) Matsubaya O., Kawaraya H. (2014): Hydrogen and oxygen isotopic characteristics of precipitation in coastal areas of Japan determined by observations for 23 years at Akita and for 1-2 years at other several localities. *Geochemical Journal* 48 ; 397-408. DOI: 10.2343/geochemj.2.0314.
- (2) Hasegawa H., Akata N., Kawabata H., Sato T., Chikuchi Y., Hisamatsu S. (2014): Characteristics of hydrogen and oxygen isotope ratios in precipitation collected in a snowfall region, Aomori Prefecture, Japan. *Geochemical Journal* 48 ; 9-18. DOI: 10.2343/geochemj.2.0279.
- (3) 東田盛善・隈田昌良・佐竹 洋(2006): 石垣島の降水の水素・酸素同位体組成および化学組成の特徴. *地球化学* 40 ; 111-123.
- (4) 中村高志・長田淑美・風間ふたば(2008): 水素・酸素および窒素安定同位体組成からみた甲府盆地東部地下水の涵養源と硝酸イオン濃度分布特性. *水環境学会誌* 31 ; 87-92.
- (5) 田上雅浩・一柳錦平・嶋田 純(2013): 日本における降水の安定同位体比の季節変動と空間分布. *日本水文科学会誌* 43 ; 73-91.
- (6) Mizota C, Kusakabe M. (1994): Spatial distribution of $\delta D - \delta^{18}O$ values of surface and shallow groundwaters from Japan, south Korea and east China. *Geochemical Journal* 28 ; 387-410.
- (7) 松葉谷治・川原谷浩(2014): 水素・酸素同位体比から見た地下水，河川水および降水の関係—秋田に

における若干の観測結果についての考察一. 日本地下水学会誌 56 ; 309-320.

(8) Craig, H. (1961): Isotopic variation in meteoric water. *Science* 133; 1702-1703.

(9) 松葉谷治・酒井 均・上田 晃・堤 真・日下部実・佐々木昭(1978): 北海道の温泉ならびに火山についての同位体化学的調査報告. 岡山大学温泉研究所報告 47 ; 55-67.

(10) 井岡聖一郎・村岡洋文・丸井敦尚・井川怜欧 (2013): 青森県太平洋岸地域におけるオープン方式地中熱ヒートポンプシステムのための地下水質評価. 日本地熱学会誌 35 ; 111-117.