

琵琶湖の炭素源への石灰岩地帯の寄与
Contribution of carbonate area to carbon source at Lake Biwa

宮田佳樹*

Yoshiki Miyata*

名古屋大学年代測定総合研究センター

Center for Chronological Research, Nagoya University, Chikusa, Nagoya 464-8602, Japan.

*Corresponding author. E-mail: miyata@nendai.nagoya-u.ac.jp

Abstract

Using newly collected data combined with data from previous studies, we compared the measured radiocarbon ages of archaeological samples, which was the pair of the charred seed and molluscan shells, and terrestrial and aquatic animal bones around Lake Biwa, and of pine needles, Phragmites, and molluscan shells, collected in 1966, 1970, 1990 and 2008 at Lake Biwa in Japan, to examine freshwater reservoir effects at Lake Biwa. We also tested for age differences in radiocarbon dating among shell species, tissues and collected locations in the lake, to evaluate the influence for radiocarbon dating of archaeological samples in Lake Biwa. The molluscan shells collected after 1990 were largely unaffected by the nuclear testing that occurred in the 1950s and 1960s, whereas the 1966 and 1970 samples appeared to be affected by it, which make the reservoir ages older than expected. The shells collected after 1990 had radiocarbon ages that were 330–450 ^{14}C years older than those of the coeval atmosphere. The apparent differences in radiocarbon age (about 300 ^{14}C years) for the pair of shell fossils and wood samples, and turtles and terrestrial mammals excavated from the same layer of the submerged Awazu shell midden at Lake Biwa suggest that the freshwater reservoir effect also existed in the middle Holocene (the Middle Jomon period, about 5000 years ago). Because the present-day average residence time of Lake Biwa water is less than a decade, its direct influence on the reservoir effect is small, which suggests that anyway old carbon has been supplied into Lake Biwa. To put it more concretely, there is the high possibility that the system as keeping the value of the freshwater reservoir effect in 300–450 ^{14}C years (steady state) function in Lake Biwa and then the closed Lake Biwa system has been in dynamic equilibrium state from 1950's up to the present, correspondingly enormous ^{14}C input by atmospheric nuclear testing and its gradually decreasing.

Keywords: *Freshwater reservoir effect; Lake Biwa; Carbonate; Average lake water residence time*

キーワード: 淡水リザーバー効果; 琵琶湖; 炭酸塩; 平均滞留時間

1. はじめに

琵琶湖は滋賀県の面積の 1/6 を占め、日本最大の湖である (Fig.1 参照)。その集水域は滋賀県全体とほぼ一致し、おおまかに言えば、湖を中心にして平野が広がり、その外側に分水嶺が囲む同心円状の構造をしている。また、流入する一級河川は 125 本あるが、全て北湖 (湖の容積の 99%以上を占める) へ注ぎ、その水は、平均水深 4m と浅い南湖, 唯一の流出河川である瀬田川へと続く、比較的単純な水理構造をしている。

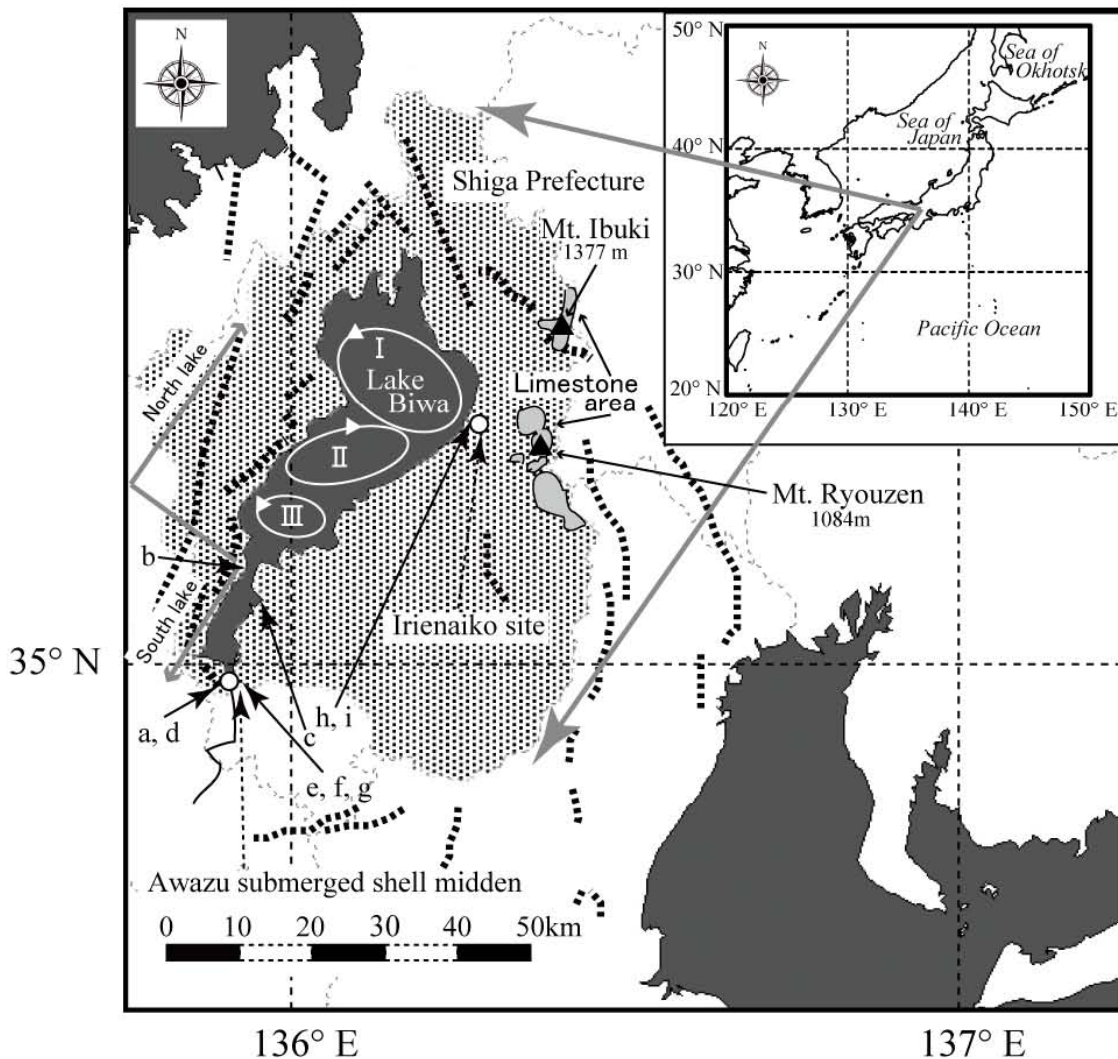


Fig. 1. Sampling locations in Lake Biwa. This figure was modified after Miyata et al. (2013).

a: Offshore Ootsu Water Research Station; b: Ootsu City Katata; c: Kusatsu City Tsutae; d: near submerged Awazu shell midden; e: Ootsu City Setakarahashi; f: Ootsu City Karahashikouen; g: Ootsu City Setasouteijyou; h: Hikone City Matsubara beach; and i: Hikone City Offshore Matsubara. I, II, III means gyres in lake surface layer. Lake catchment covered by screen tone, is almost coincides with the area of Shiga Prefecture and Limestone area was surrounded by grey zone,

Miyata et al. (2013)では、琵琶湖水中の溶存無機炭素(Dissolved Inorganic Carbon : DIC)の炭素 14 濃度 (DI^{14}C 濃度) を栗津湖底貝殻遺跡出土セタシジミと炭化材のペアおよび現生セタシジミなどの貝殻の炭素 14 濃度から推定し、湖水の炭素 14 年代が同時代の大气に比べてどの位古い炭素年代

を示しているのかを調べた（淡水リザーバー効果）。その結果、縄文時代中期（3300～3200 cal BC）から現在まで湖水に含まれる DIC の炭素年代が同時代よりも 330～450 炭素年古い値を示す淡水リザーバー効果が持続している可能性を指摘した（Fig. 2 参照）。

しかし、1914 年～2000 年までの統計データによると、近年の琵琶湖水の平均滞留時間（ τ （年）＝湖水量(V)/河川流入量(V/年))は3-6年である(???)。したがって、この短い湖水の平均滞留時間は、330 年～450 年という湖水のリザーバー効果とは大きく矛盾する。つまり、何らかの古い炭素が琵琶湖水に供給されなければならない（Miyata et al., 2013）。

そこで、本研究では、この湖水のリザーバー年代を示す原因を説明するために、琵琶湖水に対する古い炭素源（old carbon source）の寄与を琵琶湖のシンプルな水理構造を利用して考える。さらに、琵琶湖水圏環境で Dead carbon source である、伊吹山、霊仙山などの石灰岩地帯を起源とする河川水、地下水などから供給される古い炭素の影響を評価するために、伊吹山山系の湧水や姉川などの河川水の DIC と DI^{14}C 濃度を測定した

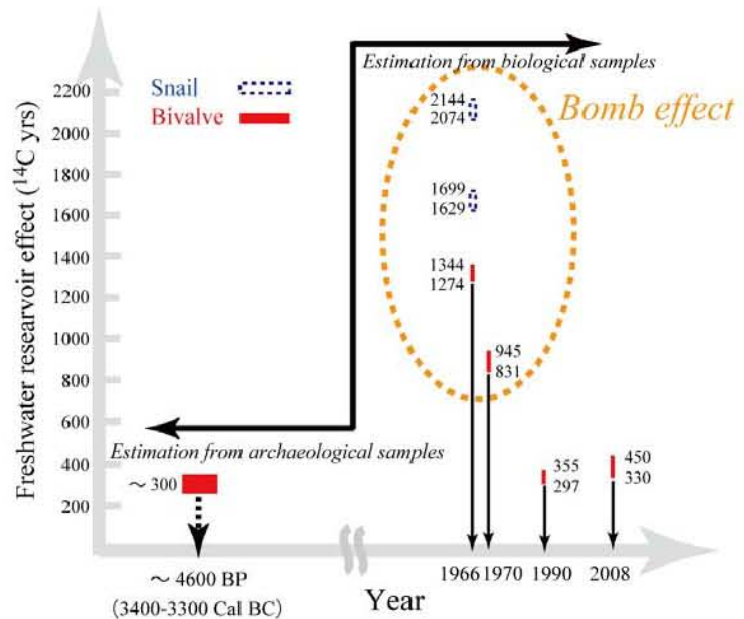


Fig. 2. Fluctuation of the freshwater reservoir effect at Lake Biwa, estimated from archaeological and biological samples. This figure was modified after Miyata et al. (2013).

2. 試料と実験方法

遺跡出土試料は粟津湖底第3貝塚⑤区第Ⅶ層から出土したシカ、イノシシ、スッポンの骨、第④区北壁から出土したオニクルミ、セタシジミを用いた。現生生態試料は、2006～2008年に採取された琵琶湖産のブラックバスと鮎である。また、淡水湖のリザーバー効果を比較する試料として、諏訪湖、野尻湖、八郎潟の2006年産のブラックバスも対照試料として用いた。

DI^{14}C の抽出は、Aramaki et al. ()に従った。

骨試料は、コラーゲン抽出（南他、2000 など）、貝試料はリン酸分解（宮田他、2009）、クルミはAAA処理を行い、それぞれ二酸化炭素を精製した。それから、二酸化炭素をガラス製真空ラインで精製し、鉄触媒を用いて、一晩かけてグラファイトに還元した。生成したグラファイトは、ターゲットに詰め、AMSで炭素年代測定を行った（宮田他、2009）。

3. 結果と考察

3. 1 琵琶湖の炭素源の可能性

そこで、本研究では、この湖水のリザーバー年代を示す原因を説明するために、琵琶湖水に対する

古い炭素源 (old carbon source) の寄与を琵琶湖のシンプルな水理構造を利用して考える。Baisden et al. (2011)では、土壌中の炭素の平均滞留時間を??と仮定して、???の受動的な炭素プールを想定して、????の経年変動を説明している。このアプローチを3-6年の平均滞留時間を持つ湖水という炭素リザーバー (プール) に対して、大気圏核実験以降の大気中炭素 14 という入力に対して、比較的古い 1000BP という炭素年代を持つ受動的なリザーバーの存在を仮定し、貝殻から推定した湖水中の $\Delta^{14}\text{C}$ 濃度変遷 (199?年のみ直接湖水を測定した) に合うようにプロットした。

琵琶湖水に淡水リザーバー効果が存在する可能性に関しては、これまで以下の議論を行ってきた (宮田他, 2009)。

- 1) 琵琶湖沿岸の入江内湖遺跡から出土した同一個体8破片の土器付着炭化物の内、外面付着物を炭素年代測定したところ、内面付着物の年代 (5053 ± 12 BP; $N=5$) が外面付着物の年代 (4961 ± 22 BP; $N=7$) よりも、系統的に 90 ^{14}C yrs 古い値を示した。内面付着物の炭素同位体組成を測定したところ、海洋リザーバー効果の可能性がほとんど考えられないため、その炭素年代差が生じる原因の一つとして、琵琶湖産魚介類を煮炊きした際に生じる淡水リザーバー効果の可能性を指摘した (宮田他, 2007)。
- 2) 琵琶湖の周辺伊吹山、霊仙山などの石灰岩地帯を起源とする死滅炭素 (dead carbon) が河川や地下水などを通じて琵琶湖へ影響を及ぼしている可能性がある (南他, 2005)。また、琵琶湖畔に生息するヨシ (アシ) などの植物遺体などを起源とする非常に古い泥炭層などの存在も古い炭素年代を持つ有機物の供給源の一部かもしれない。1950年前後の琵琶湖の堆積物 (深度3~4 cm) は、 $\Delta^{14}\text{C} = -250 \sim -230\text{‰}$ であり、炭素年代値に換算すると 2400~2200 BP とかなり古い炭素年代を示している。(中村他, 1986)。
- 3) 琵琶湖産現生貝試料の炭素年代測定結果から、1950年代後半以降、大気圏核実験の影響を受けた ^{14}C 濃度の変動にも対応して、二枚貝の炭素年代測定結果は、同時代の大气に比べて調和的に古い炭素年代を示した。2008年産セタシジミの殻は、大気中の ^{14}C 濃度に比べて、330~450 ^{14}Cyr (炭素年) 古い炭素年代を示している。

したがって、これらの炭素年代差を生じる原因として、琵琶湖に供給される古い炭素年代を持つ有機物を起源とする淡水リザーバー効果の影響が考えられる。

3. 2 大気圏核実験以降の琵琶湖水中の $\Delta^{14}\text{C}$ の変遷と炭素源モデル

琵琶湖水中の $\Delta^{14}\text{C}$ 値に基づいて、Trumbore (1993) に提示され、Baisden et al. (2002); Prior et al. (2007); Baisden et al. (2011) と同じボックスモデルと同様なアプローチを用いて、琵琶湖水の炭素年代測定の補正值 (淡水リザーバー効果) を見積もることを試みた。湖水中に異なる滞留時間 (平均寿命) を持つ2つのDICのリザーバー (貯留槽) が存在すると仮定する。1つは、平均滞留時間が3-6年の動的なリザーバー (C_{pool}) で、もう1つは、平均滞留時間が1000年レベルの受動的なリザーバーである。

$$\frac{\Delta C_{\text{pool}}}{\Delta t} = (I - kC_{\text{pool}}) \quad (1a)$$

$$\frac{\Delta(^{14}\text{C}_{\text{pool}})}{\Delta t} = (A_{\text{year-lag}} I - (k + \lambda)^{14}\text{C}_{\text{pool}}) \quad (1b)$$

$$\Delta^{14}\text{C}_{\text{lake water}} = (1 - P_{\text{passive}}) \Delta^{14}\text{C}_{\text{pool}} + P_{\text{passive}} \Delta^{14}\text{C}_{\text{passive}} \quad (2)$$

P_{passive} は、琵琶湖水に含まれる DIC 中の $[C_{\text{passive}} / (C_{\text{passive}} + C_{\text{pool}})]$

栗津湖底第三貝塚⑤区第Ⅶ層出土獣骨（シカ、イノシシ、スッポン）の炭素年代を表 1 に示す。骨コラーゲンの同位体組成について考えてみる。陸獣であるシカ、イノシシと琵琶湖に生息するスッポンを比較すると、骨コラーゲンの炭素同位体比は 1‰高い程度であるが、窒素同位体比は生物濃縮の影響を受け 4‰高い値を示している。したがって、草食動物であるシカ、そして、雑食性であるが草食を主体とするイノシシは、陸上の生態系に属し、当時の大気中の炭素 14 濃度をよく反映している。一方、淡水獣であるスッポンは、琵琶湖産の魚介類を摂取し、湖内の生態系に属しているため、その炭素 14 濃度は、琵琶湖内の溶存無機炭素を反映しているものと考えられる。そこで、スッポンとシカ、イノシシの平均の炭素年代との差をとり、縄文時代中期（3300～3200 cal BC）の琵琶湖水の溶存無機炭素の示す淡水リザーバー効果を 318 ± 66 ^{14}Cyr （炭素年）と推定した。

次に、栗津湖底第三貝塚④区北壁出土遺物の炭素年代に関して考えてみる（表 1）。琵琶湖産の貝は、琵琶湖内の溶存無機炭素を用いて外殻を形成するため、セタシジミの殻の示す炭素年代から当時の湖内の溶存無機炭素の炭素 14 濃度を反映している。一方、陸上の植物であるオニグルミは光合成によって、大気中の CO_2 を吸収するため、当時の大気中の炭素 14 濃度をよく反映している。そこで、セタシジミとオニグルミとの炭素年代との差をとり、縄文時代中期（3300～3200 cal BC）の琵琶湖水の溶存無機炭素の示す淡水リザーバー効果を 290 ± 42 ^{14}Cyr と推定した。

宮田他（2009）などで、報告されている琵琶湖の淡水リザーバー効果の値を合わせて、図 1 としてまとめた。大気圏核実験の影響をまだ強く受けている 1966 年の淡水リザーバー効果は最大 2000 ^{14}Cyr と非常に大きな値を示したものの、リザーバー効果の大きさは大気中の炭素 14 濃度の減少に伴い、速やかに減少し、1990 年には 300～360 ^{14}Cyr 、2008 年には 330～450 ^{14}Cyr と遺跡出土試料から見積もった 300～400 ^{14}Cyr レベルに落ち着いた。琵琶湖の淡水リザーバー効果（溶存無機炭素中の ^{14}C 濃度）は、大気圏核実験という強力でかつ急激な入力に対して、40 年から 50 年程度と比較的速いタイムスケールで通常の状態に復元した。

したがって、縄文時代後期から大正までの琵琶湖水の淡水リザーバー効果の大きさに関する実測データはないため、推測の域を出ないが、琵琶湖周辺の石灰岩地帯や琵琶湖岸の泥炭層などに由来

する古い炭素の影響によって、完新世後期のおよそ 5000 年間、琵琶湖の淡水リザーバー効果は、300~450 ^{14}Cyr レベルの一定の値であった可能性が高いと推定される。

3. 3 石灰岩地域からの寄与

現生生態試料として、2006 年（そのまま）と 2008 年（灰色でマーク）に採取したブラックバスと鮎の $\Delta^{14}\text{C}$ と $\delta^{13}\text{C}$ の関係を図 2 に示す。まず、琵琶湖に関して考える。2006 年産のブラックバスの骨コラーゲン ($N = 3$; 左側の軸) は、350~500 ^{14}Cyr のリザーバー効果を示しており、2008 年産のセタシジミから推定されたリザーバー効果の大きさ (330~450 ^{14}Cyr ; 宮田他, 2009) とほぼ一致した。次に、灰色でマークした 2008 年産の試料 (4 個体; $N = 8$) に関して考えてみる。異なる 2 個体の鮎の身と皮は $\Delta^{14}\text{C}$ 、 $\delta^{13}\text{C}$ 値ともに、誤差範囲内でよく一致し、 $\delta^{13}\text{C}$ 値も -27~-26‰ と琵琶湖の食物連鎖の最上位にランクされるブラックバスよりも遙かに小さい。通常 C_3 植物の $\delta^{13}\text{C}$ 値が -25‰ 前後なので、この鮎の炭素同位体組成は、琵琶湖の鮎がミジンコなどの動物性プランクトンを摂取していることを示唆している。また、 $\delta^{13}\text{C}$ 値が -12.5‰ のブラックバスの骨コラーゲン (右側の軸) のリザーバー効果も、2008 年産のセタシジミから推定されたリザーバー効果の大きさ (330~450 ^{14}Cyr ; 宮田他, 2009) とほぼ一致した。残った同一個体のブラックバスの身と皮と骨コラーゲンに関しては、脂質はタンパク質よりも炭素同位体が軽くなることが知られているが、主として脂質から形成される皮 ($\delta^{13}\text{C} = -20.8\text{‰}$) は、確かに身 ($\delta^{13}\text{C} = -17.8\text{‰}$) よりも軽い。しかし、この同一個体の身、皮、骨コラーゲンの示すリザーバー効果は 500~600 ^{14}Cyr であり、炭素 14 濃度は、セタシジミや他の魚試料に比べて遙かに低いことを示している。もし、琵琶湖に生息する魚介類の示すリザーバー効果が 300~500 ^{14}Cyr 程度で一定と考えてよいならば、ブラックバスは雑食性なので、この個体のみが例外的に、非常に古い炭素年代を持つ餌を多く摂取したためかもしれない。もう少し測定例を増やして状況を観察してみたい。

4. まとめ

本研究では、琵琶湖水の示すリザーバー年代を説明するために、琵琶湖のシンプルな水理構造を利用して、モデル計算を行った。その preliminary results であるが、例えば、平均滞留時間 3~6 年の湖水 ~65% に対して、1000BP の古い炭素が ~35% 寄与すれば湖水の DI^{14}C 濃度の経年変動を説明できることがわかった。さらに、伊吹山や霊前山などの (Dead carbon source である) 石灰岩地帯の湧水、河川水などの DI^{14}C 濃度の測定結果を合わせると、湖水に供給される炭素の最大 15% 程度が石灰岩地帯起源のものであると推定された。今後、パラメーターやモデルの妥当性をさらに検討することで、琵琶湖水圏環境における炭素供給源に関するより詳細なモデルを構築することができる。

遺跡出土試料と琵琶湖産現生試料の炭素年代を測定した結果、石灰岩や泥炭層などに由来する古い炭素の影響によって、琵琶湖の溶存無機炭素中の ^{14}C 濃度は縄文時代中期から現代まで、300~450 ^{14}Cyr 古い炭素年代を示す淡水リザーバー効果が存在していた可能性が高く、大気圏核実験の影響を受ける 1950 年~現代においても、動的な平衡状態にあることから、そのリザーバー効果の大きさは地震や地殻

変動の際の河川水???????へんかや、湖水量の変動などによって、一時的な増減はあるにしてもあまり変動していないものと推測された。

今後、琵琶湖とその他の湖を比較検討することにより、湖水の炭素循環、湖内の食物連鎖、そして、湖沼水圏環境の炭素年代測定値の補正值に関してより包括的な理解が進み炭素年代測定の活用がより広範囲に広がっていくことが期待される。

謝辞

河川水、湧水のサンプリングは鈴木和博博士、南雅代博士に、 DI^{14}C 抽出は荒巻能史博士に、炭素精製、グラファイト化プロセスは太田友子氏に、モデル作成は今村峯雄博士に、加速器分析は中村俊夫博士に協力して頂いた。本稿の内容の一部は、平成23年度 名古屋大学若手研究創成経費 「微量炭素年代測定法の開発と応用」(研究代表者 宮田佳樹)、科研費若手(B) No. 18700679 & No 20700663 (Y. M.). の成果の一部である。

参考文献

- 中村俊夫, 中井信之, 木村雅也, 小島貞男, 前田広人 (1986) 琵琶湖底堆積物中の放射性核種分布, 堆積物研究会 XXV 号, 1-14.
- 南雅代, 種紀彦, 小田寛貴, 横田喜一郎 (2005) 琵琶湖の湖底堆積物ならびに流入河川堆積物の炭素同位体比から探る堆積環境, 名古屋大学加速器質量分析計業務報告書 XVI, 73-83.
- 宮田佳樹, 遠部慎, 坂本稔, 今村峯雄 (2008) 低湿地遺跡における土器付着炭化物の炭素年代測定—内面,外面付着物の年代差と続成作用,淡水リザーバー効果の検討—,名古屋大学加速器質量分析計業務報告書 XIX, 73-78.
- 宮田佳樹, 南雅代, 遠部慎, 坂本稔, 今村峯雄 (2009) 低湿地遺跡における土器付着炭化物の炭素年代測定—内面,外面付着物の年代差と続成作用,淡水リザーバー効果の検討—,名古屋大学加速器質量分析計業務報告書 XX, 73-78.
- K. Kobayashi, E. Niu, S. Itoh, H. Yamagata, Z. Lomtadze, I. Jorjoliani, K. Nakamura, and H. Fujine, Proc. 10th Int'l Conf. Accel. Mass Spectr., Nuc. Instr. Meth. Phys. Res. B 259, (2007) 31.
- K. Sakamoto, K. Touhata, M. Yamashita, and H. Toyohara, Fish Sci. 73, (2007) 675.
- K. Yokota, S. Okunishi, and H. Maeda, Abs. Ann. Meeting Sedimentological Soc. Jap, (1996) 14 (Abs.) (in Jpn.).
- M. Minami, N. Tane, and T. Nakamura, Proc. 9th Int'l Conf. Accel. Mass Spectr., Nuc. Instr. Meth. Phys. Res. B 223-224, (2004) 302.
- M. Minami, N. Tane, H. Oda, and T. Nakamura, Sum. Res. Using AMS Nagoya Univ. XVI, (2005), 73 (in Jpn. with Eng. Abs.).
- Q. Hua, and M. Barbetti, Radiocarbon 46, (2004) 1273.

- S. Onbe in “Yayoi Nougou no Hajimari to Sononendai”, ed. By T. Nishimoto (Yuuzankaku, Tokyo, 2009), p.162 (in Jpn.).
- T. Nakamura, N. Nakai, M. Kimura, S. Kojima, and H. Maeda, J. Sedimentological Soc. Jap. 25, (1986) 1 (in Jpn. with Eng. Abs.).
- T. Nakamura, T. Ohta, I. Iba, M. Minami, and A. Ikeda, Sum. Res. Using AMS Nagoya Univ. XIII, (1997), 237 (in Jpn. with Eng. Abs.).
- Y. Miyata, A. Horiuchi, Paleo Labo AMS Dating Group, and T. Nishimoto, Res. Org. Geochem. 25, (2009) 15.
- Y. Miyata, M. Minami, S. Onbe, M. Sakamoto, H. Matsuzaki, T. Nakamura, and M. Imamura, Pro. J. Acad. Ser. B 87, (2011) 518.
- Y. Miyata, M. Minami, T. Nakamura, Sum. Res. Using AMS Nagoya Univ. XXII, (2011), 49 (in Jpn. with Eng. Abs.).
- Y. Miyata, M. Minami, S. Onbe, M. Sakamoto, T. Nakamura, and M. Imamura, Proc. 12th Int'l Conf. Accel. Mass Spectr., Nuc. Instr. Meth. Phys. Res. B, (2013) 452.
- W.T. Baisden, R. L. Parfitt, C. Ross, L. A. Schipper, and S. Canessa, Evaluating 50 years of time-series soil radiocarbon data: towards routine calculation of robust C residence times. Biogeochem. (2011) DOI 10.1007/s10533-011-9675-y.

〔日本語要旨〕

琵琶湖水中の溶存無機炭素(Dissolved Inorganic Carbon : DIC)の炭素 14 濃度 ($DI^{14}C$ 濃度) を粟津湖底貝殻遺跡出土セタシジミと炭化材のペアおよび現生セタシジミ殻などの炭素 14 濃度から推定し、同時代の大气に比べてどの位古い炭素年代を示しているのかを調べた(淡水リザーバー効果)。その結果、5000 年前～現代まで、ほぼ一定の 330～450 年古い年代を示している可能性が示唆された。

1914 年～2000 年までの統計データによると、近年の琵琶湖水の平均滞留時間 (τ (年) = 湖水量(V)/河川流入量(V/年)) は 3-6 年と計算され、湖水の平均滞留時間のみでは 330 年～450 年という湖水のリザーバー効果を説明することはできない。つまり、何らかの古い炭素が琵琶湖水に影響を与えていることが明らかになった。

そこで、本研究では、このリザーバー年代を説明するために、琵琶湖のシンプルな水理構造を利用して、モデル計算を行った。その結果、例えば、平均滞留時間 3-6 年の湖水～65%に対して、1000BP の古い炭素が～35%寄与すれば湖水の $DI^{14}C$ 濃度の経年変動を説明できることがわかった。さらに、伊吹山や霊前山などの(Dead carbon である)石灰岩地帯の湧水、河川水などの $DI^{14}C$ 濃度の測定結果を合わせると、湖水に供給される炭素の～15%が石灰岩地帯起源のものであると推定された。今後、琵琶湖とその他の湖を比較検討することにより、湖水の炭素循環、湖内の食物連鎖、そして、湖沼水圏環境の炭素年代測定値の補正值に関してより包括的な理解が進むことが期待される。