

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 6 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2013～2016

課題番号：25287131

研究課題名(和文) 新規同位体解析法の導入による石筍古気候観測点の整備

研究課題名(英文) Peleo-climatic observatories based on stalagmite geochemical proxies and newly developed isotopic analyses

研究代表者

狩野 彰宏 (Kano, Akihiro)

東京大学・理学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：60231263

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,400,000円

研究成果の概要(和文)：人口が集中する温帯～亜熱帯の長期的古陸域気候媒体として石筍は優れた題材である。本研究では気候条件が異なる国内の4地点(広島県神石高原町・新潟県糸魚川市・岐阜県郡上市・三重県大紀町)で採集した石筍を題材に、高解像度の古気候プロキシの分析を行った。その結果、1) Sr同位体比が涵養地での風化プロセスの変化を反映すること、2) 糸魚川市の石筍酸素同位体比が完新世における冬期降水量の変動を記録していること、3) 郡上市と大紀町の石筍が数千年周期の変動(Heinrich events)を記録していること、4) 大紀町の酸素同位体変動が気温変動の成分を含むことなどの知見が提示された。

研究成果の概要(英文)：Stalagmite is a suitable archive of the terrestrial paleo-climate in densely-populated temperate-subtropical areas. We have analyzed paleo-climatic proxies of the Japanese stalagmites collected from four sites with different climatic settings (Jinseki-kogen in Hiroshima Prefecture, Itoigawa in Niigata Prefecture, Gujo in Gifu Prefecture, and Taiki in Mie Prefecture). Our high-resolution Sr records from these stalagmites reveals new aspects on the Japanese paleo-climates; 1) stalagmite Sr isotopic ratio reflected from change in weathering processes in water reserve area, 2) oxygen isotope of the Itoigawa stalagmite recorded variation in winter monsoon intensity during Holocene, 3) the stalagmites from Gujo and Taiki sites recorded the millennial-scale Heinrich events, and 4) variation in the oxygen isotope of the Taiki stalagmite includes a fraction of the paleo-temperature change.

研究分野：地質学

キーワード：石筍 古気候 安定同位体 微量元素

1. 研究開始当初の背景

(1) 完新世～後期更新世の古気候研究は、地球温暖化に伴う気候変動予測を目的として、近年ますます盛んである。中でも、深海堆積物コアや氷床コアの研究は、海水準・海水温・大気組成の変動パターンを示し、気候プロセスの理解に多大な貢献をしてきた。しかし、気候変動が人類に及ぼす影響を考える時、人口が集中する温帯～亜熱帯の陸域気候予測が問題になる。大型計算機の進歩とともに発達してきた気候モデルの予測結果も、特に降水量変動に関しては研究者によって異なり、どれが正しいのか判断できない。重大な問題は、気象観測が行われる以前の陸域気候情報が少ないことにある。

(2) 陸域の長期的気候記録媒体として、鍾乳石は極めて優れている。それは、炭酸カルシウムが主成分なので古気候の化学指標になる炭素・酸素安定同位体や微量元素組成の測定が簡便であり、極めて精度の良い U-Th 年代法が適用できるという特長を持つからである。海外では 1990 年代後半から鍾乳石を用いた古気候研究が盛んになり、多くの新知見が明らかにされてきた。例えば、中国南部の石筍に記録された過去 30 万年間の酸素同位体曲線は、この地域の降水現象が北半球の夏の太陽放射量と強い相関を持ち、夏のモンスーン強度を示すと考えられている。

(3) そこで、研究代表者は約 10 年前に鍾乳石を用いた古気候研究を開始した。これまで実施した国内の数地点での研究のうち、広島県の石筍では、後氷期 (16～10 千年前) の温暖化変動が北半球の他地域の記録と同調することが示されていた (Shen et al., 2010)。

2. 研究の目的

本研究では、国内の数カ所から採集された鍾乳石 (石筍) 試料の年代軸を確立し、多様な分析方法から得た結果を用いて古気候情報を抽出する。また、単に石筍の分析だけではなく、野外観測と雨水や滴下水の解析を並行し、古気候プロキシとして特に重要な酸素同位体比を慎重に解釈する。これに加え、流体包有物の同位体分析や、温度の直接プロキシとされる炭酸凝集同位体比の分析も行う。

3. 研究の方法

(1) 野外調査：まず、研究代表者 (狩野) が柏木とともに上記調査候補地において、分析に用いる水 (滴下水・河川水) と鍾乳石 (石筍) 試料を採集する。なお、洞窟の調査においては、管理する地方自治体や地権者からの許可を得るとともに、調査中の安全に配慮して鍾乳洞の探査を行った。

(2) 水質分析：水質データの中で特に重要なものは、 Mg^{2+}/Ca^{2+} 比、水の酸素同位体 ($\delta^{18}O_{water}$)、溶存炭酸の炭素同位体 ($\delta^{13}C_{DIC}$) である。溶存

成分濃度は原子吸光分析計とイオンクロマトグラフを、同位体は軽元素質量分析計を用いて測定する (狩野)。

(3) 年代測定：採集した石筍を半割・研磨し、その半分を U-Th 法による年代測定に用いる。測定にはマルチコレクター ICP 質量分析計を使った方法が最も適切であり、35 万年前より新しい試料であれば、0.1g のサンプルから誤差 1% の年代が求められる。しかし、測定に必須の放射性添加物 (^{233}U など) に対する厳格な使用規制のため、国内での測定は極めて困難である。そこで、国立台湾大学の沈川洲教授に協力を依頼した。石筍 1 試料につき、約 10 層準で測定し、年代軸を確定した。

(4) 安定同位体と Mg/Ca 比分析：もう 1 つの半割試料は主に酸素・炭素同位体と Mg/Ca 比分析に用いる。まず、0.2mm の間隔で多数のサブサンプルを削り出し、分析試料とする。ここでは、多数のサブサンプルの酸素・炭素同位体 (軽元素質量分析計) と微量元素 (Mg, Sr; 原子吸光分析計) の測定が必要である。九州大学の軽元素質量分析計は一日 40 試料 (8mm 分) の測定が可能だが、例えば、大紀町で採集済みの長さ 40cm の石筍の場合、測定完了には 50 日を要する。そこで、研究補助要員を雇用する他、進行状況を考慮し、同等の分析環境を持つ坂井に分析を依頼した。

(5) 水包有物の同位体分析：石筍に含まれる水包有物の同位体比を、琉球大学の植村准教授の協力により分光型質量分析計で測定した。具体的には、密閉粉砕器の中で石筍試料を破壊し、加熱して水を蒸発させ、液体窒素トラップにためる。次に、He キャリアガスとともに分光計質量分析計へ導入し、同位体比を測定した。この方法は水を H_2 に還元して測定する従来型の方法に比べて簡便であり、 δD と $\delta^{18}O_{water}$ が同時に計測できた。

(6) 炭酸凝集同位体温度計：炭酸塩鉱物中では重い同位体 (^{18}O と ^{13}C) どうしが結合しやすい性質があり、 ^{18}O - ^{13}C 結合の存在度異常が温度と逆相関することが知られている。この原理では、炭酸塩-リン酸反応で生じた CO_2 の中で、質量数 47 ($^{13}C^{18}O^{16}O$) の存在度異常 (Δ_{47}) が絶対温度の -2 乗に比例することになる。本研究ではこれを九州大学に配備された高精度質量分析計を用いて測定した。測定システムは平成 25 年度から開発を開始し、平成 28 年度始めに運用することができた。

(7) 以上の分析で得られた石筍の化学指標の時系列結果から、場所ごとに、気候変動を復元する。本研究で研究題材となったのは、広島県神石高原町、新潟県糸魚川市、三重県大紀町、岐阜県郡上市から採集した石筍であり、それらがカバーする年代は現在から約 8 万年前までさかのぼる。

4. 研究成果

(1) 広島県神石高原町: ここからは長さ 14cm の石筍 (Hiro-1) が既に採集されており、酸素同位体比が夏の東アジアモンスーン強度を示しているという研究成果が既に出ている (Shen et al., 2010)。本研究では、これを基礎試料として、Sr 同位体比や希土類元素濃度の測定を行った (Hori et al., 2013, 2014)。これら微量元素関連の指標は、いずれも降水量や地下水の供給量に関連する涵養地での風化速度や洞内沈殿強度を示していると考えられ、完新世に降水量が増加したという従来の結論を裏付ける結果となった。

(2) 新潟県糸魚川市: 石筍の酸素同位体は降水量の指標となることが多いので、冬季に降水が多い日本海側での試料は冬季モンスーンの指標になると考えられる。そこで、日本海側最大の石灰岩地域である新潟県糸魚川市で採集した石筍 FG01 を試料として研究を行った (Sone et al. 2013, 2015)。

石筍 FG01 は過去 1 万年間に連続的に沈殿したものである。酸素同位体の分析結果は 5300 年前に著しい降水量減少を示すとともに、それ以降の時期に 2500 年の周期性があることを認定した (図 1)。これは日本海の表面海水温度を支配する対馬海流の強度変化を反映したものと解釈できる。また、Mg/Ca 比は 6000 年前頃から増加しており (図 1)、全体的な降水量がこの時期から減少したことが示唆された。

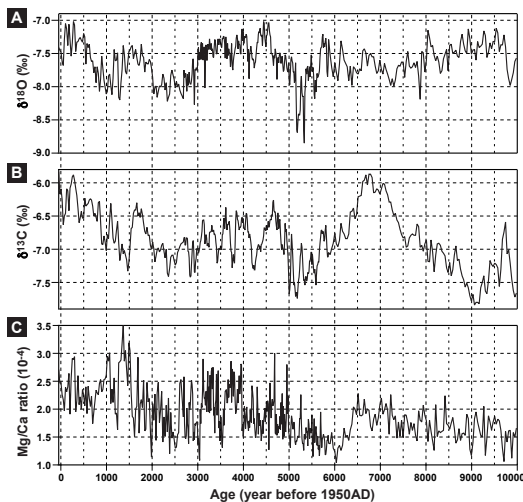


図 1. 新潟県糸魚川市の石筍 FG01 の測定結果 (Sone et al., 2015)。A) 酸素同位体, B) 炭素同位体, C) Mg/Ca 比。

(3) 岐阜県郡上市: 大滝鍾乳洞で採集した長さ 13 cm の石筍 OT02 は下部 7.5cm が 25000 ~ 68000 年前に、上部 5.5cm が完新世に成長したものである。下部には北大西洋の氷床-海洋変動と寒冷化イベント (Heinrich events) に対比される数千年スケールの変動パターンが記録されており、この時期に寒冷化か冬

期降水量の低下があったことが示唆された。一方、完新世の酸素同位体比は約 700 年周期で変動していた。今後は、その変動の起源を解明するために、微量元素などの指標を測定する予定である。

(4) 三重県大紀町: 霧穴で採集した長さ 10 cm の石筍 KA03 はウランの含有量が極めて高く、年代が確定しやすい点で優れた試料である。12000 ~ 18000 年前に中断があるものの、KA03 は過去 8 万年間にほぼ連続的に成長している。この石筍を 0.1mm 刻みでミリングし、その酸素同位体比を測定したところ、OT02 と同様に Heinrich events に対比される変動が確認された。しかも、グリーンランドの氷床と同様のノコギリ状の変動も明確に見られ、それが汎世界的な気候変動を反映したものと結論付けられた。酸素同位体比は 32000 年前以降に漸進的に増加しており、氷期最盛期に向けての寒冷化が記録されているものと思われる。

KA03 の記録を中国で報告されているもの (Wang et al. 2001) と比較したところ (図 2)、変動の振幅が明らかに小さいことが分かった。これは、日本列島での雨水の酸素同位体比が、東アジアモンスーンのような外的要因の変化に対して敏感でないことを示唆している。むしろ、霧穴の KA03 の酸素同位体比は気温変化を反映していると考えられ、それに由来した成分の変動を基にすると、完新世最暖期と最終氷期最盛期の気温差は約 5°C と評価できる。霧穴の石筍記録は世界的にみてもユニークなものであり、今後も試料の分析を継続し、更新世後期以降の日本列島の古気候について新しい知見を提示していく予定である。

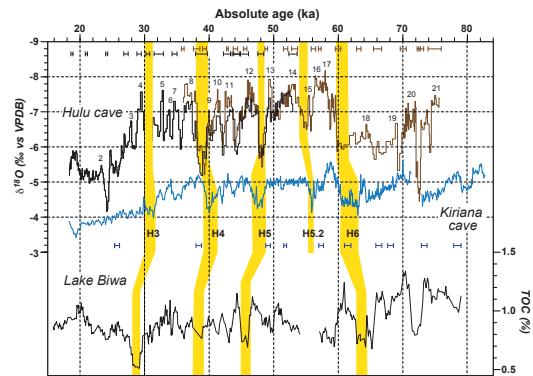


図 2. 8 ~ 2 万年前の古気候記録の比較。上) 中国南部の石筍 (Wang et al. 2001), 中) KA03 の酸素同位体比, 下) 琵琶湖の有機物含有量 (Iwamoto and Inouchi, 2007)。

(5) その他: 本研究では石筍以外の試料を用いた古気候研究も行った。特に重要なものは沖縄本島の遺跡で最終されたカワニナ遺物を題材にしたものである (Fujita et al. 2016)。これにより、遺跡に人類が定住したころの気候

に言及するとともに、旧石器人がカワニナを食用にしていたことを明らかにした。また、石筍に含まれる流体包有物の分析 (大嶺ほか 2016) や炭酸凝集同位体 (加藤ほか 2016) のような新しい分析手法にも取り組み、その成果を国内の学会で発表した。

<引用文献>

- Iwamoto, N., Inouchi, Y. (2007) Reconstruction of millennial-scale variations in the East Asian summer monsoon over the past 300 ka based on the total carbon content of sediment from Lake Biwa, Japan. *Environmental Geology* 52, 1607-1616.
- Shen, C.-C., Kano, A., Hori, M., Lin, K., Chiu, T.-C., Burr, G.B. (2010) East Asian monsoon evolution and reconciliation of climate records from Japan and Greenland during the last deglaciation. *Quaternary Science Reviews*, 29, 3327-3335.
- Wang, Y.J., Cheng, H., Edwards, R.L., An, Z.S., Wu, J.Y., Shen, C.-C., Dorale, J.A. (2001) A high-resolution absolute-dated late Pleistocene monsoon record from Hulu Cave, China. *Science* 294, 2345-2348

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 11 件)

- ① Sakai, S., Matsuda, S. (2017) A practical cryogen-free CO₂ purification and freezing technique for stable isotope analysis. *Analytical Chemistry* 89, 4409-4412. doi: 10.1021/acs.analchem.7b00544, 査読有り
- ② Fujita, M., Yamasaki, S., Katagiri, C., Oshiro, I., Sano, K., Kurozumi, T., Sugawara, H., Kunikita, D., Matsuzaki, H., Kano, A., Okumura, T., Sone, T., Fujita, H., Kobayashi, S., Naruse, T., Kondo, M., Matsu'ura, S., Suwa, G., Kaifu, Y. (2016) Advanced maritime adaptation in the western Pacific coastal region extends back to 35,000-30,000 years before present. *Proceedings of the National Academy of Science of USA*, 113, 11184-11189. doi: 10.1073/pnas.1607857113, 査読有り
- ③ Ohno, M., Hayashi, T., Sato, M., Kuwahara, Y., Mizuta, A., Kita, I., Sato, T., Kano, A. (2016) Millennial-scale interaction between ice sheets and ocean circulation during marine isotope stage 100. *Frontiers in Earth Science*, doi: org/10.3389/feart.2016.00055. 査読有り
- ④ Sone, T., Kano, A., Kashiwagi, K., Mori, T., Okumura, T., Shen, C.-C., Hori, M. (2015) Two modes of climatic control in the Holocene stalagmite record from the Japan Sea side of the Japanese islands. *Island Arc*, 24, 342-358. doi: 10.1111/iar.12118, 査読有り

- ⑤ 狩野彰宏・森大器・柳川勝紀 (2014) 凝集炭酸同位体温度計の原理と実践. *地球社会統合科学*, 21, 83-92. URL: catalog.lib.kyushu-u.ac.jp/ja/recordID/1477910, 査読無し
- ⑥ 柏木健司・狩野彰宏 (2014) 三重県大紀町阿曾カルストの霧穴 (鍾乳洞) 洞口付近の陸産貝類相. *南紀生物*, 56, 34-39. 査読有り
- ⑦ Hori, M., Ishikawa, T., Nagaishi, K., You, C.-F., Huang, K.-F., Shen, C.-C., Kano, A. (2014) Rare earth elements in a stalagmite from southwestern Japan: a potential proxy for chemical weathering. *Geochemical Journal*, 48, 73-84. doi: org/10.2343/geochemj.2.0287, 査読有り
- ⑧ 奥村知世・狩野彰宏 (2014) 陸成炭酸塩堆積物の年縞・日輪発達過程. 月刊地球号外「第四紀研究における年代測定法の新展開: 最近 10 年間の進展一(III) 相対年代と古環境の高精度復元」, 82-88. URL: http://ci.nii.ac.jp/naid/40020207951, 査読無し
- ⑨ Sone, T., Kano, A., Okumura, T., Kashiwagi, K., Hori, M., Jiang, X., Shen, C.-C. (2013) Holocene stalagmite oxygen isotopic record from the Japan Sea side of the Japanese Islands, as a new proxy of the East Asian winter monsoon. *Quaternary Science Reviews*, 75, 150-160. doi: org/10.1016/j.quascirev.2013.06.019, 査読有り
- ⑩ Hori, M., Ishikawa, T., Nagaishi, K., Lin, K., Wang, B.-S., You, C.-F., Shen, C.-C., Kano, A. (2013) Prior calcite precipitation and source mixing process influence Sr/Ca, Ba/Ca and ⁸⁷Sr/⁸⁶Sr of a stalagmite developed in southwestern Japan during 18.0-4.5 ka. *Chemical Geology* 347, 190-198. doi: org/10.1016/j.chemgeo.2013.03.005, 査読有り
- ⑪ 狩野彰宏 (2013) 古気候学と歴史気象学: 気候研究に関する文理融合のすすめ. *比較社会文化*, 19, 11-18. URL: catalog.lib.kyushu-u.ac.jp/handle/2324/26207/p011. 査読無し

[学会発表] (計 23 件)

- ① 加藤大和・狩野彰宏・森大器・柳川勝紀 (2016) 炭酸凝集同位体温度計の実態と陸域炭酸塩への適応. 日本地質学会, 日本大学 (東京都・世田谷区)
- ② Kano, A. (2016) Holocene stalagmite growth and farming by Jomon Man in Japan. 26th Goldschmidt Conference, Yokohama (Japan)
- ③ Mori, T., Kano, A., Hu, H.-M., Shen, C.-C., Kashiwagi, K. (2016) Heinrich events in a stalagmite record from central Mie, Japan. 26th Goldschmidt Conference, Yokohama (Japan)
- ④ 狩野彰宏 (2016) 中期完新世の石筍成長と縄文人の農耕活動. 地球惑星科学関連合同学会, 幕張メッセ (千葉県千葉市)
- ⑤ 欒天・森大器・狩野彰宏・沈川洲・柏木健司 (2016) 岐阜県中部の完新世石筍の酸素同位体に記録された数百年周期. 地球惑星科

学関連合同学会，幕張メッセ（千葉県千葉市）

- ⑥森 大器・狩野彰宏・胡 訓銘・沈 川洲・柏木健司 (2016) 三重県産石筍に記録されたハインリッヒイベントと最終氷期. 地球惑星科学関連合同学会，幕張メッセ（千葉県千葉市）
- ⑦大嶺佳菜子・植村 立・三嶋 悟・狩野彰宏・曾根知実・柏木健司 (2016) 新潟県の石筍を用いた完新世の流体包有物中の酸素・水素同位体分析. 地球惑星科学関連合同学会，幕張メッセ（千葉県千葉市）
- ⑧Hsu, C.-H., Chen, J.-P., Shen, C.-C., Mii, H.-S., Kano, A., Uemura, R., Chen, Y.-G., Mishima, S. (2015) Stalagmite-inferred precipitation and temperature dynamics in East Timor over the past 16.5 thousand years. Fall AGU Meeting, San Francisco (USA)
- ⑨狩野彰宏 (2015) 石筍古気候学：新潟県南西部の例. 九州大学総合研究博物館公開講座「地球一人と自然 恐竜発掘最前線」, 九州大学（福岡県福岡市）
- ⑩大嶺佳菜子・植村 立・三嶋 悟・柏木健司・狩野彰宏・曾根知実 (2015) 完新世の本州日本海側の石筍の流体包有物中の水素・酸素同位体分析. 日本地球化学会，横浜国立大学（神奈川県横浜市）
- ⑪Mori, T., Kano, A., Kashiwagi, K., Shen, C.-C. (2015) Holocene climatic changes recorded in a stalagmite oxygen isotope from central Mie, Japan. 19th International Union for Quaternary Research Congress, Nagoya (Japan)
- ⑫Kano, A., Sone, T., Mori, T., Kashiwagi, K., Hori, M., Shen, C.-C. (2015) East Asian winter monsoon variability recorded in a Holocene stalagmite from the Japan Sea side of the Japanese Island. 19th International Union for Quaternary Research Congress, Nagoya (Japan)
- ⑬狩野彰宏・森大器・曾根知実・沈川洲・柏木健司 (2015) 中部日本の完新世石筍の酸素同位体に記録された数百年周期. 地球惑星科学関連合同学会，幕張メッセ（千葉県千葉市）
- ⑭狩野彰宏・森大器・曾根知実・沈川洲・柏木健司 (2015) 岐阜県郡上市で採集された石筍 OT02 の酸素同位体気候記録. 地球惑星科学関連合同学会，幕張メッセ（千葉県千葉市）
- ⑮森大器・狩野彰宏・曾根知実・沈川洲・柏木健司 (2015) 三重県霧穴で採集された石筍 KA01 の酸素同位体気候記録. 地球惑星科学関連合同学会，幕張メッセ（千葉県千葉市）
- ⑯狩野彰宏 (2015) 石筍記録から見る日本海側での気候変動. 平成 26 年度京都大学霊長類研究所共同利用研究会：豪雪地域におけるニホンザルの洞窟利用，京都大学霊長類研究所（愛知県犬山市）
- ⑰森 大器・狩野彰宏・曾根知実・柏木健司 (2014) 三重県中部の過去 1 万 4 千年間の石

筍酸素・炭素同位体プロフィール. 日本地質学会，鹿児島大学（鹿児島県鹿児島市）

- ⑱狩野彰宏 (2014) 日本の石筍古気候学の現状と今後の展開. 応用地質学会講演会「第四紀の地球環境変動」, 都久志会館（福岡県福岡市：招待）
- ⑲曾根知実・狩野彰宏・森 大器・奥村知世 (2014) 岐阜県中央部の石筍に記録された数千年スケールの変動. 地球惑星科学連合大会，パシフィコ横浜（神奈川県横浜市）
- ⑳藤田ひかる・曾根知実・狩野彰宏・奥村知世・藤田祐樹・山崎真治・片桐千亜紀 (2014) カワニナ遺物の酸素同位体比曲線に記録された沖縄県サキタリ洞遺跡での旧石器人の活動と夏期の温度条件. 地球惑星科学連合大会，パシフィコ横浜（神奈川県横浜市）
- ㉑狩野彰宏・曾根知実・奥村知世 (2014) 石筍酸素同位体比に記録された後期更新世の数千年スケールの変動：岐阜県中部の例. 日本堆積学会，山口大学（山口県山口市）
- ㉒藤田ひかる・曾根知実・狩野彰宏・藤田祐樹・山崎真治・片桐千亜紀 (2014) 沖縄県サキタリ洞遺跡のカワニナ遺物に記録された旧石器人の活動. 地質学会西日本支部，佐賀大学（佐賀県佐賀市）
- ㉓曾根知実・狩野彰宏・柏木健司 (2013) 新潟県糸魚川市で採集した石筍の酸素同位体比と冬季東アジアモンスーン. 地球惑星連合大会，幕張メッセ（千葉県千葉市）

〔図書〕（計 0 件）

〔産業財産権〕

○出願状況（計 0 件）

○取得状況（計 0 件）

〔その他〕

ホームページ等

<http://www-gbs.eps.s.u-tokyo.ac.jp/~kano/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

狩野 彰宏 (KANO, Akihiro)

東京大学・大学院理学系研究科・教授

研究者番号：60231263

(2) 研究分担者

柏木 健司 (KASHIWAGI, Kenji)

富山大学・大学院理工学研究部・准教授

研究者番号：90422625

坂井 三郎 (SAKAI, Saburo)

国立研究開発法人海洋研究開発機構・生物

地球科学研究分野・技術研究員

研究者番号：90359175

(3) 連携研究者

なし

(4)研究協力者

沈 川洲 (SHEN, Chuan-Chou)

藤田 祐樹 (FUJITA, Yuki)

植村 立 (UEMURA, Ryu)

堀 真子 (Hori, Masako)

早野 智子 (HAYANO, Tomoko)