

洞内滴水水の ^{14}C 濃度

Radiocarbon concentration of drip water in cave

南 雅代^{1*}・堀川恵司²・植村 立³・中村俊夫¹

Masayo Minami^{1*}, Keiji Horikawa, Ryu Uemura and Toshio Nakamura²

¹名古屋大学宇宙地球環境研究所・²富山大学大学院理工学部・³琉球大学理学部

¹ Institute for Space-Earth Environmental Research, Nagoya University, Nagoya 464-8601, Japan

² Department of Environment and Chemistry, Toyama University, Toyama 930-8555, Japan

³ Faculty of Science, University of the Ryukyus, Okinawa 903-0213, Japan

*Correspondence author. E-mail: minami@nendai.nagoya-u.ac.jp

Abstract

Speleothem ^{14}C has recently emerged as a potentially powerful proxy for hydrology changes in comparison with atmospheric ^{14}C calibration curve. Some possible causes for the relationship between speleothem ^{14}C (or DCF: Dead Carbon Fraction) and karst hydrology have been proposed, such as changes in temperature, precipitation, and drip water flow dynamics. Minami *et al.* (2015) investigated ^{14}C of drip water in Ryugashi Cave, Shizuoka Prefecture, central Japan, and reported that different DCF of drip water were exhibited at different sites, which had different temperature, air pCO_2 , and flow paths, and that the DCF in drip waters with conduit dominated flow paths could reflect rainfall amount around the cave. Accordingly, it is important to know DCF feature of drip water in advance on use of speleothem DCF as a terrestrial proxy for paleoenvironment and paleoclimate. Here, some DCF data of speleothems from Bahama, Hullu Cave, and Heshang Cave, and drip waters from Ryugashi Cave, Outaki Cave, and Gyokusen Cave, are compiled to understand the relationship between speleothem DCF and karst hydrology.

Keywords: speleothem; drip water; ^{14}C ; paleoclimate

1. はじめに

石筍は、鍾乳洞内の床上に成長する炭酸カルシウム鉱物である。降水は、大気、土壌を通過する間に二酸化炭素を溶解して酸性となり、鍾乳洞内の石灰岩を溶解し、 CaCO_3 飽和水となる。鍾乳洞内は土壌中よりも二酸化炭素濃度が低いため、この CaCO_3 飽和水が滴下する際、 CaCO_3 の沈殿反応が促進され、石筍が生成する。この沈殿成長の過程で石筍は降水や土壌の同位体組成の情報を取り込む。このため、石筍は鍾乳洞周辺の環境を連続的に記録している可能性があり、陸域の古環境・古気候復元試料として注目されている (e.g. MacDermott, 2004; Fairchild *et al.*, 2004)。特に、石筍の酸素同位体比 ($\delta^{18}\text{O}$) を用いた古環境・古気候復元の研究は、世界中で多くなされている (e.g. Wang *et al.*, 2001)。

近年、石筍の ^{14}C は、年代測定のツールとしてよりも、過去の水循環を知るための有効なプロキシとして注目を浴びている。石筍中の ^{14}C は、石灰岩母岩に由来する ^{14}C -free (dead) 炭素の混入によって希釈されており、この ^{14}C -free 炭素の寄与率 (DCF: Dead Carbon Fraction) は、気温の変化、降水量、滴水水の水系、洞内の換気状態、土壌大気の pCO_2 などの影響を受けて変化する (Griffiths *et al.*, 2012; Noronha *et al.*, 2014)。Hendy (1971) は、石筍カルサイトのもととなる石灰岩母岩の溶解システムとして、1) 開放系 (DCF = 0%) : 水に溶存する炭素と土壌 CO_2 が絶えず反応し、溶存炭素と土壌由来炭素との間で同位体平衡が成り立っている、2) 閉鎖系 (DCF = 50%) : 石灰岩母岩の水への溶解が土壌 CO_2 とは切り離された状態で生じ

ている、の2つの場合があると報告している。実際の石筍は、この2つの中間の条件下で生成するため、滴下水、石筍の DCF は 0~50% の間の値を示すことになり、この DCF の値は石灰岩母岩の溶解システムの情報を反映している。

本稿においては、これまでに報告されている石筍ならびに滴下水の DCF の値をまとめ、今後の石筍の ^{14}C を用いた古環境・古気候復元研究の手がかりにすることを目的とする。

2. これまでの石筍の DCF 報告例

バハマの Bahama 石筍 GB89-24-1 の DCF は Hoffmann *et al.* (2010)により $22.7 \pm 5.9\%$ (1512 ± 244 ^{14}C yr)と、また、中国の Hulu Cave 石筍 H82 の DCF は Southon *et al.* (2012)により $5.4 \pm 0.7\%$ (460 ± 50 ^{14}C yr)と報告されている。比較的小さい DCF を示す Hulu Cave 石筍は、DCF 補正した ^{14}C 値が、Younger Dryas 亜氷期 (12.9–11.6 Kyr)においても、IntCal09 の年輪データ、Pine のデータにほぼ重なることから (図 1)、気候変動によって DCF は変化しないと結論している (図 1)。一方で、大きな DCF を示す Bahama 石筍は、図 2 に示すように、Hulu Cave 石筍よりも変動幅が大きく、石筍が成長している期間、DCF は一定ではなく、変動していたと考えられる。

また、Noronha *et al.* (2014)は、中国の Heshang Cave 石筍 HS4 を測定し、 $10.3 \pm 1.5\%$ (875 ± 130 ^{14}C yr) という DCF 値を報告している。図 3 の赤線は $\delta^{18}\text{O}$ から求めた過去の降水量の記録を示しており、DCF の変動 (黒線) は、過去の降水量の変化とよく一致していることがわかる。このことから、Noronha *et al.* (2014)は、完新世中期 (5.5–7.1 Kyr) は気候が温暖・湿潤で、降水量が増加し、土壌湿潤度が増加 (saturated) したために、石灰岩母岩の溶解システムがより閉鎖系となり、石筍の DCF が増加したと報告している。つまり、Heshang Cave 石筍においても、Bahama 石筍と同様、成長している期間、DCF は一定ではなかったと考えられる。

以上の3つの石筍の結果から、DCF が小さい場合は、気候変動によって DCF があまり変動しないため、石筍が成長している間 DCF が一定としても問題がなく、石筍から年代測定が可能であると予想できる。一方、DCF が大きい場合は、気候変動 (降水量) の影響を受けて DCF の値が変化するため、一定の DCF 補正を行って年代測定のツールとして用いる場合は問題であるが、古気候変動のプロキシとしては有効であることが予想される。

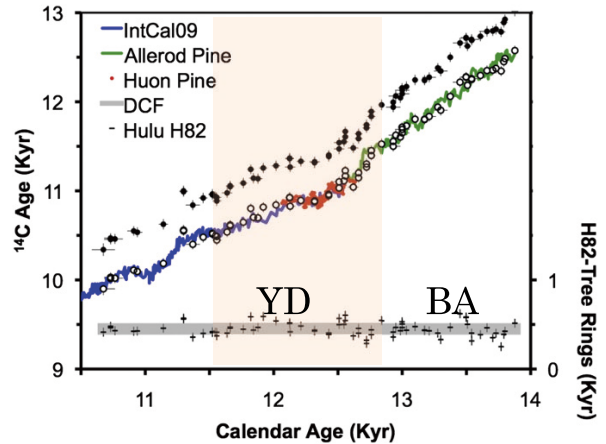


図 1 Hulu Cave 石筍 H82 の ^{14}C 結果 (Southon *et al.* (2012)の Fig.3 に加筆)

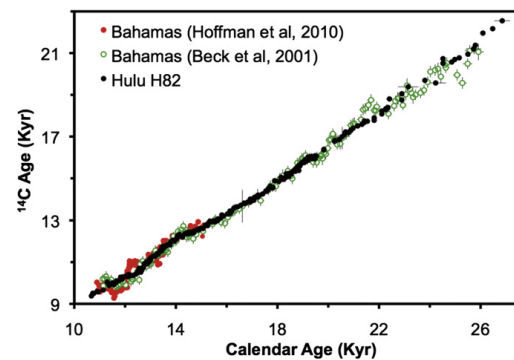


図 2 Bahama 石筍と Hulu Cave 石筍 H82 の ^{14}C 結果 (Southon *et al.* (2012)の Fig.5 を転載)

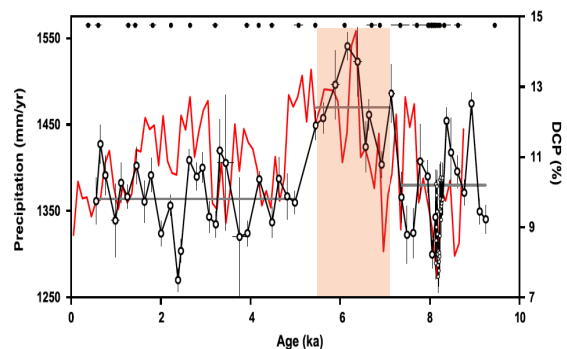


図 3 Heshang Cave 石筍 HS4 の ^{14}C (黒線) と $\delta^{18}\text{O}$ から見積もった降水量の記録 (赤線) (Noronha *et al.* (2014)の Fig.3 に加筆)

3. 竜ヶ岩洞での滴下水の ^{14}C 測定

竜ヶ岩洞は、静岡県浜松市竜ヶ岩山の南西麓に開口する、総延長約 1 km の洞窟である。Minami *et al.* (2015) は、竜ヶ岩洞の 1 号洞の Site A (水たまり)、B、C (水たまり)、4 号洞の Site D、さらに 3 号洞の Site 2、3 の滴下水を ^{14}C を約 1 年間調べた。その結果、滴下地点によって、滴下速度、Mg/Ca 比、 ^{14}C 濃度が異なることが明らかになった。特に ^{14}C は洞窟の位置によって異なり、1 号洞と 4 号洞の滴下水は DCF が 2–6% と非常に低く、上述の Hulu Cave の石筍が示す DCF に近いのに対し、3 号洞の滴下水は DCF が 12–15% と高く、上述の Heshang Cave の石筍に近い値となった。

Wong *et al.* (2011) は、滴下水の Mg/Ca 比から、どのような石灰岩母岩との反応、岩石–水反応を経てきたかを推定しており、竜ヶ岩洞の滴下水は Group 2 (Mg/Ca 比が 0.01–0.26、中央値 0.08) の、水の通り道があり、降雨に反応する性質をもつことがわかる。

図 5 に滴下水の ^{14}C 濃度の季節変化を示す。このグラフから、降水量が多いと滴下水中の ^{14}C が高く (DCF が小さく) なる傾向があることがわかる。この結果は、Noronha *et al.* (2014) が、石筍の ^{14}C 変動から求めた傾向とは逆であった。逆の傾向となった理由として、滴下水の生成環境の違いのほか、時代の違い、そして滴下水と石筍の違いが考えられる。今回の結果は、降水量が増加することにより、土壌湿潤度が増加し、降水の溶存炭素と土壌 CO_2 が絶え間なく交換することにより、滴下水の DCF が減少したことを示すものである。

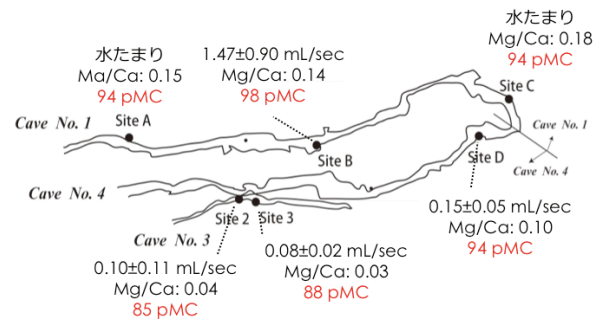


図 4 竜ヶ岩洞の平面図。各試料採取地点の数字は、上段が滴下速度、中段が Mg/Ca 比、下段が ^{14}C 濃度を示す。

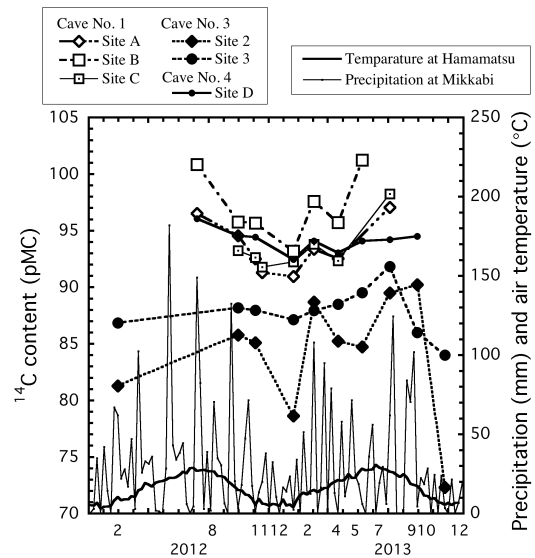


図 5 竜ヶ岩洞の滴下水の ^{14}C 変化
浜松で観測された気温、三ヶ日で観測された降水量とともに示す。
(Minami *et al.* (2015) の Fig.7 を転載)

4. 大滝鍾乳洞と玉泉洞の滴下水の ^{14}C

2014 年 9 月、郡上八幡に位置する総延長 2 km に及ぶ大滝鍾乳洞において、大滝の脇の水を採取し、 ^{14}C を測定したところ、1.1% (91 ^{14}C yr) という、小さい DCF 値が得られた。この鍾乳洞は、水気が少なく、乾燥しており、石筍も碎屑物が多く混じったものであった。滴下水は、石灰岩母岩との反応が少なく、土壌 CO_2 との反応が多かったと考えられる。

また、沖縄に位置する、全長 5 m の国内最大級の規模をもつ玉泉洞の 2 地点から滴下水を採取し、 ^{14}C を測定した。地点 1 の滴下速度は 0.021 mL/sec、pH は 7.1 であり、地点 2 の滴下速度は 0.020 mL/sec、pH は 7.0–7.1 であった。この滴下速度は、竜ヶ岩洞の滴下水の滴下速度に比べて非常に低かった。竜ヶ岩洞の滴下水の pH が 7.7–8.4 とアルカリ性であるのに対し、玉泉洞の滴下水の pH はほぼ中性であった。 ^{14}C 結果は、地点 1 の滴下水の DCF が 18.7% (1670 ^{14}C yr)、地点 2 の滴下水の DCF が 13.2% (1140 ^{14}C yr) とあった。第 2 章の考え方を適用すると、玉泉洞の石筍は気候変動 (降水量)

の影響を受けて DCF の値が変化する可能性が考えられ、古気候変動のプロキシとして有効である可能性がある。

5. まとめ

鍾乳洞の滴下水 ^{14}C の DCF は、その滴下水の滴下地点の洞外内環境、水の通りみちの違いによって異なる。今回の結果は、石筍を年代測定のツールあるいは、古環境復元のプロキシとして用いる場合は、あらかじめその地点の滴下水の DCF を知っておくことが有効であることを示している。DCF が小さい滴下水をもととしている石筍は、過去に DCF の変動が少ないと考えられ、年代測定のツールとして有効であり、また、DCF が大きい滴下水をもととしている石筍は古環境・古気候復元のプロキシとして有効であることが示唆された。

謝辞

竜ヶ岩洞支配人の小野寺秀和氏には石筍試料の提供および貴重なご意見をいただきました。滴下水の採取にあたっては、富山大学ならびに名古屋大学旧年代測定総合研究センターの皆様にご協力いただきました。ここに記して感謝の意を表します。

引用文献

- Fairchild, *Earth Sci. Rev.* 75 (2006) 105.
Griffiths *et al.*, *Quat. Geochron.* 14 (2012) 81.
Hoffmann *et al.*, *Earth planet. Sci. Lett.* 289 (2010) 1.
MacDermott, *Quat. Sci. Rev.* 23 (2004) 901.
Minami *et al.*, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B* 362(2015)202.
Noronha *et al.*, *Earth planet. Sci. Lett.* 394 (2014) 20.
Southon *et al.*, *Quat. Sci. Rev.* 33 (2012) 32.
Wang *et al.*, *Science* 294 (2001) 2345.

日本語要旨

近年、石筍の ^{14}C は、年代測定のツールとしてよりも、大気の ^{14}C 較正曲線 (IntCal ^{14}C 曲線) と比較することにより、過去の水循環を知るための有効なプロキシとして注目を浴びている。石筍中の ^{14}C は、石灰岩母岩に由来する ^{14}C -free (dead) 炭素の混入によって希釈されており、この ^{14}C -free 炭素の寄与率 (DCF: Dead Carbon Fraction) は、気温の変化、降水量、滴下水の水系、洞内の換気状態、土壤大気の pCO_2 などの影響を受けて変化する。Minami *et al.* (2015) は、静岡県竜ヶ岩洞の滴下水の ^{14}C を測定し、滴下地点によって、滴下速度、 Mg/Ca 比、 ^{14}C 濃度が異なること、竜ヶ岩洞の滴下水は、水の通り道があり、降雨に反応する性質をもっていること、滴下水中の ^{14}C は降水量と相関しており、降水量が多いと、滴下水中の ^{14}C が高く (DCF が小さく) なる傾向があることを明らかにした。Bahama 石筍、Hulu Cave 石筍、Heshang Cave 石筍の結果も踏まえ、滴下水の DCF が小さい場合は、気候変動によって DCF があまり変動しないため、DCF が一定として石筍の ^{14}C 年代測定が可能であると予想できる。一方、DCF が大きい場合は、気候変動 (降水量) の影響を受けて DCF の値が変化するため、正しい年代測定が難しい一方、IntCal ^{14}C 曲線と比較することにより、古環境・古気候変動の情報を得るための有効な手段になると考えられる。