



有害性金属元素の降雨時河川流出機構

A Study on Scheme of Stream Discharge of Hazardous Metals in Rainfall Events

松永 武 柳瀬 信之 半澤 有希子 都築 克紀 長縄 弘親

Takeshi MATSUNAGA, Nobuyuki YANASE, Yukiko HANZAWA
Katsunori TSUDUKI and Hirochika NAGANAWA

原子力基礎工学研究部門

環境動態研究グループ

Research Group for Environmental Science
Nuclear Science and Engineering Directorate

July 2007

本レポートは日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。
本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ (<http://www.jaea.go.jp/index.shtml>)
より発信されています。このほか財団法人原子力弘済会資料センター*では実費による複写頒布を行っ
ております。

〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根2番地4
日本原子力研究開発機構 研究技術情報部 研究技術情報課
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920

*〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根2番地4 日本原子力研究開発機構内

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency
Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to
Intellectual Resources Section, Intellectual Resources Department,
Japan Atomic Energy Agency
2-4 Shirakata Shirane, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920

有害性金属元素の降雨時河川流出機構

日本原子力研究開発機構 原子力基礎工学研究部門 環境・放射線工学ユニット

松永 武、柳瀬 信之、半澤 有希子、都築 克紀、長縄 弘親

(2007年5月9日受理)

大気と陸面とを含む物質循環モデルの研究の一環として、森林集水域における土壌から河川への元素流出を研究した。北関東の小田川（流域面積 40 km²）で降水時の野外実験を行った。降水により河川流出が常に促進される元素として、溶存形態の有害性金属元素(Sb、Cu、Cr)及び希土類元素を特定した。特に、Sb と Cu の降水時の濃度増加は明確であり、最高濃度は平水時の 2 - 3 倍に達し、集水域単位面積あたりの一日換算流出率は平水時の 1.6 - 2.0 倍に増加した。これらの有害性金属元素の降雨時河川流出は、i)流量の初期の立ち上がりと同期した早い流出と、ii)流量ピークと同期しない緩やかな増加と減少を示す流出の 2 つの流出形式から構成されることがわかった。後者の流出形式は、雨水・河川水の水素同位体比を指標とした手法と溶存有機物を指標とした手法によるハイドログラフ分析の結果、土壌の表層からの有機物に随伴した流出であることが示唆された。有機物の流出と関連した後者の流出形式は、希土類元素にも効果的に作用することが見いだされた。以上の知見は、大気から森林集水域に沈着する人為由来の有害性元素の移行モデルの構築に有用と考えられる。また、大気から沈着する人工放射性核種への応用も期待できる。

A Study on Scheme of Stream Discharge of Hazardous Metals in Rainfall Events

Takeshi MATSUNAGA, Nobuyuki YANASE, Yukiko HANZAWA, Katsunori TSUDUKI
and Hirochika NAGANAWA

Division of Environment and Radiation Sciences,
Nuclear Science and Engineering Directorate,
Japan Atomic Energy Agency
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received May 9, 2007)

In the course of development of a transport model of hazardous materials in the atmospheric and the terrestrial environment, stream discharge of metallic elements from the ground was investigated in a forested catchment. The investigation was carried out in the Oda River watershed (catchment area: 40 km²) located in the north part of the Kanto plain in the central Japan. The investigation revealed that several hazardous metals such as Cu, Sb and Cr in dissolved form and also rare earth elements (REE) are peculiar elements whose stream discharges are always accelerated in a rainfall event. Especially, concentrations of dissolved Sb and Cu clearly increased. Their maximum concentrations and their daily discharges normalized for unit catchment area increased to 2-3 times and 1.6-2.0 times larger than those under fine weather conditions, respectively. Further, two different schemes of elemental transport in this peculiar discharge were suggested. They were i) a coincidentally occurring discharge with an initial increase in a flow rate of a stream, and ii) a discharge with slower increase and prolonged decrease, which were poorly corresponding to the change in the stream flow rate. An analysis of hydrological discharge, using chemical signatures of natural organic materials (NOM) and isotopic signatures of deuterium of water suggested that the latter discharge is associated with that of NOM of the soil layer. The latter discharge scheme was also applicable to REE. These experimental results will serve to model development to describe transport of atmospherically derived hazardous elements. Expansion to atmospherically derived radionuclides is also expected.

Keywords: Field Investigation, Forested Catchment, Stream, Rainfall, Discharge, Transport, Hazardous Metals, Cu, Sb, Cr, REE, Deuterium, Natural Organic Matter, DOC.

目 次

1. 研究の背景	1
2. 研究の概要	2
3. 実験方法	3
3.1 実験地域	3
3.2 試料採取	3
3.3 分析方法	5
3.4 河川水の流出成分分離	7
4. 実験結果	14
4.1 第1回降水時実験	14
4.2 第2回降水時実験	15
4.3 第3回降水時実験	16
4.4 第4回降水時実験	18
4.5 秋季平水時実験	19
4.6 冬季平水時実験	20
5. 考察	37
5.1 小田川集水域における降水時の元素流出の特徴	37
5.2 水流出成分の関与	37
5.3 溶存有機物の関与	39
5.4 土壌水の関与	41
5.5 流出機構の推定	43
6. 結論	64
謝辞	64
参考文献	65
付録1 水の同位体を利用した流出成分分離	68
付録2 小田川集水域の表面水・降水における水素・酸素同位体比の特徴	72
付録3 河川水中有害性金属元素の起源	74
付録4 実験記録	81
付表A 第1回降水時実験データ	83
付表B 第2回降水時実験データ	97
付表C 第3回降水時実験データ	110
付表D 第4回降水時実験データ	124
付表E 秋季平水時実験データ	136
付表F 冬季平水時実験データ	138

Contents

1. Background	1
2. Introduction	2
3. Experimental	3
3.1 Study area	3
3.2 Sample collection	3
3.3 Analytical method	5
3.4 Separation of stream discharge	7
4. Results	14
4.1 1st rainfall event	14
4.2 2nd rainfall event	15
4.3 3rd rainfall event	16
4.4 4th rainfall event	18
4.5 Fall monitoring	19
4.6 Winter monitoring	20
5. Discussion	37
5.1 Stream discharge of selected elements	37
5.2 Role of separated stream discharges	37
5.3 Role of dissolved organics	39
5.4 Role of soil solution	41
5.5 Discharge scheme of hazardous metals	43
6. Conclusion	64
Acknowledgements	64
References	65
Appendix 1 Isotope hydrograph separation of stream discharge	68
Appendix 2 Isotopic diagram for water bodies in the Oda River catchment	72
Appendix 3 Origin of hazardous metals	74
Appendix 4 Records of experimental analysis	81
Tables A Records of the 1st rainfall event	83
Tables B Records of the 2nd rainfall event	97
Tables C Records of the 3rd rainfall event	110
Tables D Records of the 4th rainfall event	124
Tables E Records of the fall monitoring	136
Tables F Records of the winter monitoring	138

目 次

図 3.1	久慈川・小田川流域の位置	10
図 3.2	小田川流域図と試料採取地点	10
図 3.3	自動採水システムの構成	11
図 3.4	自動採水システムの設置状況	12
図 3.5	河川水試料の溶存有機物に関する指標の相関	13
図 4.1	第1回降水時実験における雨量・流量ならびに水質の経時変化	21
図 4.2	第1回降水時実験における溶存元素濃度の経時変化	22
図 4.3	第1回降水時実験における雨水広域採取地点	23
図 4.4	第1回降水時実験における雨水と河川水の水素同位体比	23
図 4.5	第2回降水時実験における雨量・流量ならびに水質の経時変化	24
図 4.6	第2回降水時実験における溶存元素濃度の経時変化	25
図 4.7	第2回降水時実験における雨水中の溶存微量元素濃度	26
図 4.8	第2回降水時実験における雨水の水素・酸素同位体比	27
図 4.9	第2回降水時実験における雨水・河川水の水素同位体比の変動	27
図 4.10	第3回降水時実験における雨量・流量ならびに水質の経時変化	28
図 4.11	第3回降水時実験における溶存元素濃度の経時変化	29
図 4.12	第3回降水時実験における河川水の水素・酸素同位体比の変動	30
図 4.13	第3回降水時実験における雨水・河川水の水素同位体比の相互比較	30
図 4.14	第4回降水時実験における雨量・流量ならびに水質の経時変化	31
図 4.15	第4回降水時実験における溶存元素濃度の経時変化	32
図 4.16	第4回降水時実験における雨水の水素同位体比の変動	33
図 4.17	第4回降水時実験における河川水の水素同位体比の変動	33
図 4.18	冬季平水時実験における溶存元素濃度の地点変化(1)	34
図 4.19	冬季平水時実験における溶存元素濃度の地点変化(2)	35
図 4.20	冬季平水時実験における水素・酸素同位体比の地点変化	36
図 5.1	第2回降水時実験における河川水中主要溶存元素濃度の経時変化	45
図 5.2	第2回降水時実験における河川水の流出成分分離	46
図 5.3	降水時実験における雨量・成分流量・溶存元素濃度・分光特性の相互比較(1)	47
図 5.4	降水時実験における雨量・成分流量・溶存元素濃度・分光特性の相互比較(2)	48
図 5.5	第1回降水時実験における代表元素濃度と紫外吸光度との連動性	49
図 5.6	第2回降水時実験における代表元素濃度と紫外吸光度との連動性	50
図 5.7	第3回降水時実験における代表元素濃度と紫外吸光度との連動性	51
図 5.8	第4回降水時実験における代表元素濃度と紫外吸光度との連動性	52
図 5.9	第4回降水時実験における河川水と土壤水の蛍光強度と 溶存有機炭素濃度の比較	53
図 5.10	蛍光強度と紫外吸光度による河川水と土壤水の特性比較	53
図 5.11	第2回降水時実験における河川水の水素・酸素同位体比ダイアグラム	55
図 5.12	第2回降水時実験における河川水、雨水、土壤水の水素・酸素同位体比比較	56

図 5.13	土壤水中の微量元素濃度(1) - Cr -	57
図 5.14	土壤水中の微量元素濃度(2) - Cu -	58
図 5.15	土壤水中の微量元素濃度(3) - Sb -	59
図 5.16	着目した有害性金属元素と希土類元素に関して推定される降水時河川流出機構	61

表 目 次

表 5.1	着目した有害性微量元素と希土類元素の降水時流出負荷	63
表 5.2	第2回降水時実験における元素の累積流出負荷	63
表 5.3	第2回降水時実験における降水流出成分の累積流出負荷割合	63

1. 研究の背景

大気には様々な人為起源の汚染物質が放出される。それらの中で、長半減期の人工放射性核種そして数種の金属元素の有害性は、元素（核種）としての性質に本質的に起因する。そして、環境に放出された後、潜在的な有害性を保ち続ける。したがって、それらの大気への放出に続く陸圏・水圏での「長期的な挙動」は重大な関心事である。

大気へ放出された有害元素の陸圏・水圏への蓄積は現在も進んでいる。環境庁（現・環境省）は、1975年から1997年にわたり、国内各地での大気中浮遊塵調査を実施して、浮遊塵の元素組成を報告している¹⁾。この報告を分析すると、1990年代においても、浮遊塵に含まれる多くの重金属元素濃度が人間活動による影響を強く受けていることが示唆される。その影響は人口の少ない地方や山間部であっても明らかである。このことは、大気浮遊塵の金属汚染は都市域で顕著である一方で、山間部をも含めた広域的な問題でもあることを意味している。特に、日本の国土の67%を占める森林集水域が大気汚染降下物の受け取り手として働き、土壌そして淡水資源の汚染につながるものが懸念される。

大気に出された汚染物質が、土壌沈着を経て河川を汚染し、あるいは河川により遠方に運ばれる過程は、原子力施設事故時に放出される可能性のある放射性核種についても重要である²⁾。1986年に起きたチェルノブイリ原子力発電所の事故の結果は、沈着した放射性核種を河川が遠方まで移動させることを示している。同発電所近傍のドニエプル川支流の遊水池に沈着した放射性汚染（特に⁹⁰Sr）の一部はまず近傍の河川・人造湖に移動し³⁾、さらにドニエプル川を経て600 kmも運ばれて黒海まで到達している⁴⁾。

以上の事例は、大気中に放出された有害性元素（人工放射性核種）の影響評価には、大気圏・陸圏・淡水圏・海洋圏を包含する広域的な移動の理解が必要であることを意味している。とりわけ、土壌と大きな水域（自然湖沼・ダム湖・沿岸海洋）を結びつける河川に関する研究の必要性が示唆される⁵⁾。この観点から、当研究グループ（原子力基礎工学研究部門 環境・放射線工学ユニット 環境動態研究グループ）では環境中における包括的な物質循環について、数値予測システムの研究を進めている^{6,7)}。現在の重点項目の一つは大気圏から陸圏に供給される物質の移行モデル開発である⁸⁾。本研究は、その移行モデル開発に資するために、土壌中の微量元素の河川流出について実施した実験研究である。この研究課題に関しては、2003年10月に実施した実験において、水の同位体比を利用して河川に流入する降水を分別することにより、Cu等の金属元素の河川流出に降水成分流出が関与することを見いだした^{9),10)}。また、それら金属元素の降水時河川流出の促進は他の集水域においても同様に見いだされることを報告した¹¹⁾。本稿は、上記の降水成分流出の関与の内容をより明らかにすることを目指し、i)複数の降水時実験結果についての横断的な議論と、ii)溶存有機物等の溶質データの検討を新たに加えて、森林集水域から河川への降水時の元素流出機構を考察したものである。

2. 研究の概要

本研究では、大気降水物に由来し、そして人為的な寄与の大きな可能性がある元素に注目した。河川環境での検出報告例¹²⁾、そして、各元素の有害性¹³⁻¹⁴⁾を考慮して、Ni・As・Mo・Cr・Cu・Sb・Pbに着目した。(一般に、金属元素には単体が金属結合を備える等の性質を持った多数の元素が含まれる。本稿では、これら7元素を便宜的に「金属元素」と一括して記す。)一方、土壌中の希土類元素は岩石風化物由来の寄与が大きいと考えられる。また、大気降水物に含まれる金属元素とは、地表面での分布も異なっていると推察される。そこで、金属元素の挙動理解の1つの手段として、希土類元素との挙動の比較を行った。

土壌表面に蓄積している人為的汚染物質が河川に流出する過程では、降水時の表面流出が大きな役割を有する可能性がある。すなわち、それら汚染物質を河川に運び出す主な媒体は、降水時に表面土壌層を通る表面流出水と、その表面流出水的作用により動かされる流出土壌と推定される。つまり、汚染物質の挙動を明らかにする上で、降水時の表面流出成分の研究が有効と考えられる。

表面流出成分の実験的分別には、水の水素・酸素同位体比を用いた。河川を涵養する地下水と個別の降水とでは、水の水素・酸素同位体比が一般に異なる。このことを利用して、河川への降水流出成分と地下水流出成分を分別した¹⁵⁻¹⁷⁾。

水の水素・酸素同位体比を用いて、2成分混合モデルにより河川水の成分分離を行う方法は、原理的には広く知られた方法である。たとえば、平田ら¹⁸⁾は雨水・河川水・地下水の酸素同位体比分析と主要溶存イオン濃度・pH・電気伝導度分析結果を組み合わせて地下水・表流水の動態を考察している。狩野ら¹⁹⁾は冬季に積雪がある地域における雨水・河川水の酸素同位体比の通年観測を行い、河川涵養水の「同位体比シグナル」の変動と要因について論じている。流出成分別の水の同位体比の相違を汚染物質の水系流出問題へ適用した例はほとんど報告されていないが、水そのものを用いて水移動を追跡できることは、地層内の滞留時間が異なる水成分を扱うモデル^{8), 20)}の検証に有用である。

本研究では、降水時に河川水中の微量元素の濃度変化を経時的に追うことにより、その流出機構を検討した。このとき、対象領域が広い場合には、時間的応答が大きく異なる複数の部分流域を含むために、時間的にずれた応答が重なり合って、解析が難しい。一方で、対象領域をあまり小さくすると、その小さな面積の範囲の特性だけを見ることになり、一般性を欠いた結果を得る可能性がある。そこで、面積約40 km²の中規模の集水域を選択した。

対象とした集水域の複数点に雨量採取器を、最下流の定点に自動採水器を設置して、降水時に雨水・河川水試料の採取を行った。また、集水域の上部では降水時、平水時に土壌水・河川水を手作業で採取した。採取した雨水・河川水・土壌水をろ過して「溶存態」の元素濃度、溶存イオン濃度、ならびに水素・酸素同位体比を測定した。河川水・土壌水について、紫外吸光分析・蛍光分析を行い、溶存有機物の相対的な存在濃度を把握した。最下流の定点には水位計を設置して、河川の流量を測定した。以上の分析結果に基づいて、着目した「溶存態」の金属元素ならびに希土類元素の河川流出機構を考察した。

3. 実験方法

3. 1 実験地域

3. 1. 1 久慈川集水域の特性

実験を行った地域は北関東を流れる久慈川の支流、小田川である。久慈川は、栃木・茨城・福島の3県の県境にある八溝山(標高 1022 m)を源流としている。流路長約 124 km、流域面積約 1490 km²を有し、茨城県日立市と東海村の境界で太平洋に注いでいる(図 3.1)²¹⁾。久慈川は八溝山脈(おもに右岸)と阿武隈山脈(おもに左岸)の狭隘部を流れる。その地形には山地・丘陵地・台地・扇状地を含み、山地の比率が大きい。国土庁資料^{22,23)}によれば、両山脈は古生代層花崗岩質類、黒雲母片麻岩、閃緑岩及び蛇紋岩を含む古期岩類から構成される。阿武隈山脈南部には、深成火成岩類(花崗閃緑岩、雲母花崗岩)・変成岩類(片麻岩、結晶片岩)が多く分布する。本研究の小田川集水域は、この地域に属している。また、流域の低地部には、第三紀層が分布している。スギ等の針葉樹そして広葉樹の人工林が良く発達し、かつ、都市域が少ないため、広域的な大気輸送による森林域への人為物質の移動という課題研究に適っている。流域の平均年間降水量は、流域中央部の茨城県大子町において 1371 mm²⁴⁾ - 1480 mm²³⁾である。6月と9月の降水がその多くの部分を占める。年間降水量は、国内平均 1718 mm、関東地方の平均 1551 mm に比較するとやや少ない²³⁾。久慈川では農業用水取水のための小規模な堰以外には、ダム等の大型構造物が流路にないために、降水の自然流出過程の研究に適している。

3. 1. 2 小田川集水域の特性

小田川は、久慈川左岸の、阿武隈変成帯に位置する支流で、流域面積は 40 km²、流路長は 10 km である。小田川集水域は、久慈川集水域の 1 部を成し、その上流域に属する。小田川の源流は阿武隈山塊稜線(標高 700-800 m)の斜面に発している。中流部(標高 300-500 m)は山林斜面で、その中を小田川は溪谷状に下っている。下流部(標高 200-300 m)において、川沿いの水田地帯を通り、小田川は久慈川本流に合流している。小田川集水域の 92%は山林で、平地は 2.8%に限られている。河川の開水面面積は 1.2 km²(3%)である²²⁾。その上流部は台地状の地形である(標高 500-600 m)。平地は少ないが、畑地・水田・畜産に利用されている。こうした自然条件から小田川集水域を選択した。小田川における種々の金属濃度は国内河川における一般的な水準である。

3. 2 試料採取

3. 2. 1 実験期間

本稿で述べる野外実験は、2003年7月から2004年6月までの間に行ったものである。この間に計4回の降水時実験を行った。第1回の降水時実験(2003年7月)では、久慈川流域全体にわたる地域的な特徴を把握するために、流域全体にわたって降水を採取した。第2回、第3回、第4回降水時実験(それぞれ2003年10月、11月、2004年6月)では、小田川集水域に集中した降水採取を行った。第2-4回の降水時実験の数日-数週間前の期間には、降水時と対照させるための平水時観測を実施している。また、河川を涵養する地下水(基底地下水)の化学特性と同位体比特性を把握するために、秋季の数日間(2003年9月)、そして季節的に降水が少なくなる冬季(2004年2月)に小田川の上流から下流までの河川水の採取と溶存イオン、水素・酸素同位体比等の分析を行った。

3. 2. 2 自動採水システム

図 3.2 に、河川水・雨水・土壌水の試料採取地点を示した。小田川集水域下流部の 1 地点を降水時観測の定点とした。この定点に降水時の河川水試料の自動採水と水質の連続測定システム（図 3.3）を設置した。システムの設置状況を図 3.4 に示す。このシステムは、自動採水器（型式 6312、ISCO 社）、多項目水質計（型式 U-22XD、堀場製作所、測定項目：pH、水温、電気伝導度、濁度、溶存酸素濃度、酸化還元電位）、水位計（型式 SS-202-10M-30、ケネック社）、プログラマブルデータロガー、電源部から構成される。自動採水器には、容量 1000 ml の採取容器（ポリプロピレン製）が 24 個納められている。ガラスボトル（350 ml）も用いることができる。あらかじめ設定した時間間隔により、または、水位等の外部信号により採水が行われる。河川水は、河川中層に固定したビニールチューブから非接触式のポンプでくみ上げられる。水質計のセンサーを、その採水位置付近に設置した。電源には、太陽光で充電するバッテリーを用いた。

3. 2. 3 降水時の河川水試料

無降水が 7 日間以上続いた場合を基準にして、観測する降水イベントを選択した。定点において自動採水装置により河川水試料を時系列的に採取した。多くの場合、降水の前日から 2 時間間隔でボトルに採水した。流量のピークを越えた時点からは 4 時間間隔で採水した。採水ボトルにはポリプロピレン製ボトルを用いた。一部の実験では、ガラスボトルを併用した。採水後の試料は、冷蔵して実験室に持ち帰った。元素分析用試料は実験室において PTFE メンブレンフィルタを組み込んだフィルターユニット（孔径 0.2 μm ）により濾過後、0.3 M となるように硝酸を添加して保管した。溶存イオン分析用には濾過後の試料に酸を加えずに、そのまま冷蔵して保管した。溶存イオン分析用試料からガラスバイアル（2 ml）に試料 1 ml を分取して同位体比測定用試料とした。同位体比測定用試料はその分析まで凍結して保管した。懸濁物の重量濃度を求めるために、河川水試料の 500 ml または 1000 ml を計量して、重量既知のヌクレオポアフィルタ（孔径 0.2 μm ）により濾過した。フィルタを乾燥後、秤量して懸濁物の重量濃度を求めた。

溶存有機物に関する分析のため、現地においてグラスファイバーフィルタ（孔径 0.8 μm ）により河川水を濾過して分析用試料とした。溶存有機炭素濃度測定には、有機性の不純物溶出の影響がないガラスボトルで採水した試料を用いた。グラスファイバーフィルタについては、あらかじめ 450°C で 4 時間加熱処理して不純物として含まれる有機物を除去した。濾過後の試料はガラス容器に入れ、冷凍して保管した。

3. 2. 4 平水時の河川水試料

降水時観測の定点に加えて、上流の複数地点で平水時に河川水の採水を行った。秋季平水時の採水地点を付表 E-1 に、冬季平水時の採水地点を付表 F-1 に示す。定点における降水時試料以外のこれらの試料についてはプラスチック容器を用いて河川中央部から手作業で採取した。採取後、現地において PTFE メンブレンフィルタを組み込んだ濾過器（孔径 0.2 μm ）により試料を濾過した。濾過後の試料を複数のポリエチレン容器（125 ml）に入れて、冷蔵して実験室に持ち帰った。これらを降水時の自動採水器試料と同様に元素分析用試料、溶存イオン分析用試料、同位体比測定用試料とした。一部の採取においては、溶存有機物試料、懸濁物の重量濃度試料も降水時試料と同様に調製した。

3. 2. 5 雨水試料

降水観測時に、図 3.2 に示す 3 地点（図中 a、b、下関河内）において雨水を採取した。地点 a、b はそれぞれ小田川集水域の上流部、中流部に位置する。地点 s（下関河内）は、下流部に位置し、国土交通省の下関河内雨量観測所構内である。雨水の採取には、約 1 mm ごとに分割採取できる仕組みの簡易型雨水採取器（AR-8 II、堀場製作所）を用いた。採水口径は 80 mm (50 cm²) である。この採取器では、降水量約 1 mm ごとに（採水量約 5 cm³）、8 個の容器が受水位置に順に移動する。通算 9 mm 以後は、1 つの容器でまとめて受水する。この採取器を 1 つの地点に 4 基設置して、対応する容器ごとに 4 基の試料を合併した。ただし、第 1 回降水時実験での雨水の採取は小田川の河川水採取定点と久慈川流域内に位置する複数の国土交通省雨量観測所で行った。各雨量観測所では、同口径のロートを用いて、一括試料を採取した。雨水試料は現地で濾過後、冷蔵して持ち帰り同位体比測定用試料と元素分析用試料を分取した。

3. 2. 6 土壌水試料

河岸の近傍の 4 地点（図 3.2 の地点 b、c、e、f）で土壌水を降水時の前後または平水時に採取した。土壌水の採取には、多孔質のセラミック製採取筒を用いた。1 つの地点で、表層用（約 5 cm 深さ）、下層用（約 20 cm 深さ）を使い分けた。専用のプラスチック製シリンジ（容量 50 ml）により負圧にして 1-2 日間静置した。シリンジに吸引された土壌水を、現地でメンブランフィルタにより濾過して冷蔵して持ち帰り、元素分析ならびに同位体比測定用試料とした。溶存有機物の分析を含めた場合には、負圧を手動ポンプで施した後、ガラス製のフラスコに接続して溶液を採取した。この試料を冷蔵して持ち帰り、元素分析、同位体比測定、溶存有機物分析の試料とした。

3. 3 分析方法

3. 3. 1 溶存元素

溶存元素の分析には、ICP-MS 分析装置（HP-4500、横河アナリティカルシステムズ）を用いた。外部標準として米国 SPEX 社製の混合標準液（XSTC-1、XSTC-7、XSTC-8、XSTC-13）を用い、対象とする元素の濃度レベルに応じて、グループ分けをして分析した。フィルタ、前記の硝酸、標準試料の調製試薬については、高純度の試薬を用い、不純物が十分少ないことを確認してから使用した。希釈水には蒸留・脱イオン後、さらに紫外線照射・脱イオン処理をした高純度の純水を用いた。

3. 3. 2 溶存陰イオン

溶存する陰イオン濃度（Cl⁻、NO₃⁻、SO₄²⁻）をサプレッサー付きイオンクロマトグラフィー（型式 IC-7000、横河アナリティカルシステムズ）により定量した。イオンの検出は電気伝導度により行った。

3. 3. 3 水素同位体比

同位体比測定用質量分析装置（型式 MAT252、Finnigan MAT 社）により水素同位体比を測定した。この装置では、試料水バイアルからオートインジェクタで採取された水試料（1.2 μl）が金属クロム粉末による還元炉（温度 840℃）に注入される。つぎに還元炉で生成した水素ガスが質量分析部に導入される。質量分析部では、試料から生成した水

素ガスと、標準水素ガスが交互に複数回測定される（デュアルインレット方式）。この測定結果から、標準水素ガスを基準とする同位体比が計算される。

実試料の測定時には、作業用標準試料を入れた2個のバイアルで、同じ実試料を分け入れた3個のバイアルをはさんで測定を行った。この作業用標準試料により、装置状態の日変動を補正した。また、測定では、より軽い部分（ ^1H に富む）から標準水素ガスが消費されるために測定順序が遅いほど、試料の値は見かけ上軽くなる。この変動も作業用標準試料により補正した。作業用標準試料は、実験室で作成した超純水（紫外線照射灯付き超純水製造装置）であり、ガラスボトルに入れて密栓して保存した。その値付けには、水素の同位体比に関する国際標準水試料（VSMOW、SLAP、GISP）²⁵⁾を用いた。標準試料側には高純度の水素ガスを作業用標準ガスとして用いた。この作業用標準ガスの値付けは、水素同位体比の値付けが保証された標準気体により行った。

3. 3. 4 酸素同位体比

水試料の酸素同位体比を水-二酸化炭素平衡法の原理²⁶⁾により測定した。同位体比分析用質量分析装置（Isoprime-Multiflow System, VG Instruments）を用いた。容量5 mlのガラスバイアルに、試料水200 μl を入れた後、グローブバッグ内で空隙を CO_2 ガス（ CO_2 濃度3%、高純度Heバランス）で置換した。バイアルを40°Cの恒温槽（アルミニウムブロックにヒーターが組み込まれたもの）にセットして、7時間静置した。原則として、1種類の試料水について4個の測定バイアルと1個の標準水試料を組にして、酸素同位体比の測定を行った。この測定において、標準気体には国際標準試料で校正した CO_2 ガスを用いた（一次校正）。また、作業用標準水試料は、国際標準水試料（VSMOW、GISP、SLAP）で値付けした（二次校正）。実試料の測定の都度、作業用標準水試料を基準として測定値を補正した（三次校正）。

3. 3. 5 溶存有機炭素濃度

河川水採取の項で述べたように、溶存有機炭素濃度の測定は、ガラスボトルで採水した試料について行った。これには、i)手採水でガラスボトルに採水した平水時の河川水試料、ii)ガラスフラスコに採水した土壌水試料、iii)ガラスボトルに採水した自動採水器河川水試料（第4回降水時実験）が含まれる。

試料水中の溶存有機炭素濃度を全有機態炭素測定装置（TOC-5000、島津製作所）により測定した。グラスファイバー濾紙を用いて濾紙をした試料水約9 mlを容量10 mlの栓付試験管に移した。これに、2 N HClを50 μl 加えて、pH2以下の酸性にした。この酸性条件で溶存無機炭素（主に重炭酸イオン）は CO_2 となる。試験管を装置にセットして、高純度空気を通気し、その CO_2 を追い出した。試験管内の試料20 μl -100 μl を680°Cに加熱された燃焼炉に注入し、溶存有機炭素から生成する CO_2 を赤外分光により定量した。

3. 3. 6 吸光度測定

紫外・可視部の吸光度を分光光度計（型式U-3210、日立製作所）を用いて測定した。目的とする腐植物質は、一般に波長範囲200 - 400 nmにブロードな吸収を持つことが知られている²⁷⁾。ここで用いた測定条件はつぎの通りである。走査速度：120 nm/分、バンド幅：2.0 nm、光源切り替え波長（タングステンランプ→ D_2 ランプ）：360 nm。純水をバックグラウンドとして、試料のスペクトルから差し引いた。測定セルには、光路長1 cmの石英セルを用いた。

3. 3. 7 蛍光強度測定

腐植物質は、およそ励起光波長 200 - 500 nm、発光波長 300 - 600 nm の範囲で、溶存性・環境条件・起源に応じて、特徴的な複数のピークを示す^{28, 29)}。そこで、この波長範囲で、いわゆる 3 次元蛍光分析を行った。これは、励起光波長と測定する発光波長の両者を変えながら、発光強度を測定する方式である²⁹⁾。蛍光波長、発光波長の平面上に発光強度を等強度線で描くことによって、特徴的なピークの把握が容易になる。

測定では 5 nm 刻みで両波長を変化させて、蛍光強度を測定した（日立製作所製、F-4500 分光蛍光光度計）。標準溶液として、硫酸キニーネ溶液（10 μg/l、0.1 M 硫酸溶液）を同時に測定した。測定は室温で行い、温度制御は行っていない。純水をバックグラウンドとして用いて、試料のスペクトルから差し引いた。硫酸キニーネが示すピーク（励起波長 340 nm、発光波長 450 nm）における蛍光強度を 10 とし、バックグラウンド差し引き後の試料の蛍光強度を規格化した（相対蛍光強度）。本稿では、この相対蛍光強度の単位を QSU と記す。

自動採水器でガラスボトルを用いた河川水試料採取を行っていない第 1 回 - 第 3 回降水時実験では、前項の有機炭素濃度に代えて、紫外・可視部の吸光度、蛍光強度（次項）を溶存有機物の指標に用いた。ポリエチレンボトルからの溶出が吸光度、蛍光強度には影響を与えないことをブランク試験で確認した。また、ガラスボトルとポリエチレンボトルを併用した第 4 回降水時実験の試料を用いて、溶存有機炭素濃度と紫外・可視部の吸光度、蛍光強度の間に良好な直線的相関があることを確かめた（図 3.5）。

3. 4 河川水の流出成分分離

(1) 2 成分混合モデル

降水と河川水の同位体比を用いて河川水の成分分離を行った。本研究では、この成分分離に 2 成分混合モデル^{15, 17)}を用いた。すなわち、降水前から存在して河川水を涵養している地下水（深層地下水、浅層地下水）の成分（以下、地下水流出成分）と、降水が流出する成分（以下、降水流出成分）の両者の混合により降水時の河川水が成り立っていると考える。この地下水流出成分は“pre-event water”（または“old water”）、降水流出成分は“event water”（または“new water”）ともよばれる。

2 成分混合モデルでは、河川水の同位体比 (δD あるいは $\delta^{18}O$) は次式で与えられる。

$$C_r(t) = f_1(t) C_1 + (1-f_1(t)) C_2 \quad (1)$$

C_1 : 降水流出成分の同位体比

C_2 : 地下水流出成分の同位体比

f_1 : 時間 t における降水流出成分比率 ($0 \leq f_1 \leq 1$)

C_r : 時間 t における河川水の同位体比

この 2 成分混合モデルは、河川集水域における同位体水文学の基本となる考え方である^{17, 31)}（付録 1 参照）。地下水の流出機構、降水の同位体比の時間変動、降水と流出までの遅れ時間の分布等の観点から、より詳細な成分分離モデルも提案されている¹⁶⁾。この成分分離は、本来、流域からの溶質の移動の理解を大きな目標の 1 つとして発展した手法であるが、実際に流出成分と溶質との関係を論じた報告は森林地域の酸性化を引き起こす降下物に関連した研究に限られている。成分分離については付録 1 で補足している。

(2) 拡張した 2 成分混合モデル

雨水の δD の一定性を前提とした河川水の流出成分分離方法(式(1))は、雨水の δD の時間変化が大きい場合には、このままで適用することができない。そこで、降水を時間区分し、複数の区分 δD が、順次、河川水の δD に反映するという、2成分混合モデルを拡張したロジックを作成した。このロジックでは“時間 T における降水寄与は遅れ時間 L を持った過去の期間 p の降水で決まる”と考える。未定のパラメータ L、p については、それぞれについてあり得ると考えられる値を独立に設定する。つぎに、それらのすべての組合せについて降水寄与の計算を行う。1つの組合せに対応して、各時刻で1通りの降水寄与が計算される。そして、降水寄与が負になる組み合わせや、推定誤差が非常に大きな組み合わせを除外する。こうして、合理性がある組み合わせで得られる降水寄与を各時刻について選出する。1つの時刻に関して選出される組合せは複数あり得るので、その時刻の降水寄与の値も複数選出される。この結果、降水寄与は一意的に決定されるのではなく、ある範囲で決定されることになる。このロジックによる降水成分比率の推定手順を以下に記す。

- 1) 毎正時(1時、2時、...)を基本にして、1時間単位で降水の同位体比を計算する。(たとえば、2時という時刻に関しては、1時から2時までに降った雨水の平均同位体比を計算する。簡易型雨水採取器で測定を行った結果、その1時間に2つ以上の測定値が該当するなら、雨量で重みづけて平均する。)
- 2) 遅れ時間 L と影響期間 p の範囲を推定する(単位は時間)。その推定範囲で、L と p の組み合わせを作る。
- 3) L と p の組み合わせの1つ目を選ぶ。
- 4) 河川水の採水時刻を、仮に毎正時とする。ある採水時刻に着目して、その時刻に河川に流入する降水成分の同位体比を次のように計算する。すなわち、その時刻から、L+p 時間前から L 時間前までの区間に降った雨水の平均同位体比を求める。(たとえば、採水時刻が6時で、遅れ時間3時間(L)、期間2時間(p)の場合は、1時(=6-3-2)から3時(=6-3)までに降った雨水の平均同位体比を求める。平均同位体比は時間雨量で重みづけた平均値とする。こうして、実際の採水時刻をすべて含む毎正時について、降水成分の同位体比を計算する。
- 5) 実際の採水時刻における、河川に流入する降水成分の同位体比を、4)で求めた毎正時の数値から、内挿で求める。あるいは採水時刻に近い正時の値を採用する。(たとえば、実際の採水時刻が6時15分ならば、6時と7時の降水成分の同位体比から内挿する。あるいは、6時の数値を近似的に採用する。
- 6) 各採水時刻における河川水の同位体比(測定値)と、5)で決めた降水成分の同位体比を、2成分混合式に当てはめて、降水成分の比率 $f_1(t)$ を計算する。
- 7) L、p の組み合わせを変えて、4)-6)を繰り返す。
- 8) 以上の計算の結果、L、p の組み合わせごとに、 $f_1(t)$ 、 $t=1, \dots, N$ (最終採水回)が用意される。
- 9) $f_1(t)$ が負の値となった場合には、その採水時刻の状況に対して設定した L、p の組み合わせは不合理と解釈して、この組み合わせを不採用にする。また、 $f_1(t)$ についての誤差計算も同時に行い、相対誤差が大きな $f_1(t)$ も不採用にする(例えば相対誤差 30% 以上は不採用。) 誤差の源は同位体比の分析精度である。そのような相対誤差が大きなケースでは、分析精度が不十分で、成分分解できなかったと解釈する。

また、連続する時刻で、 $f_1(t)$ が、ひどく不連続なケースにも留意して、採否を判断する。 $f_1(t)$ が不連続に大きく変化するとは考えにくいので、そのような不連続は排除する。

10)を以上の手順で計算された $f_1(t)$ のすべてについて選別する。

11)採用にした $f_1(t)$ を集約する。

ただし、雨水の δD と河川水の δD が近接しすぎる時間帯に対しては、このロジックも適用できない。後出の降水寄与推定において、寄与が推定されていない区間があるのは、このためである。

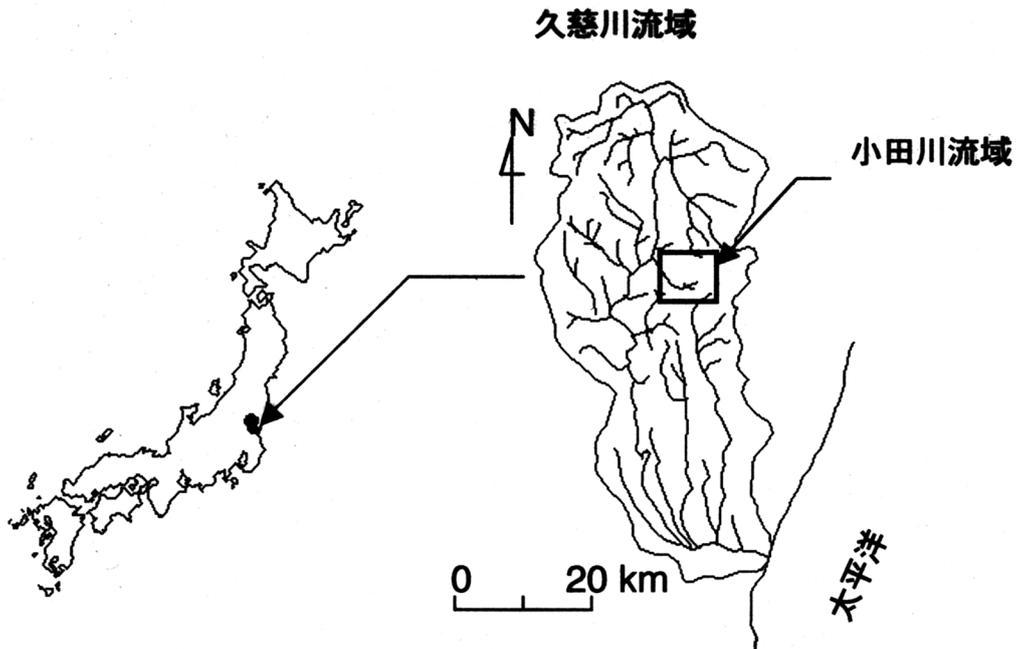


図 3.1 久慈川・小田川流域の位置

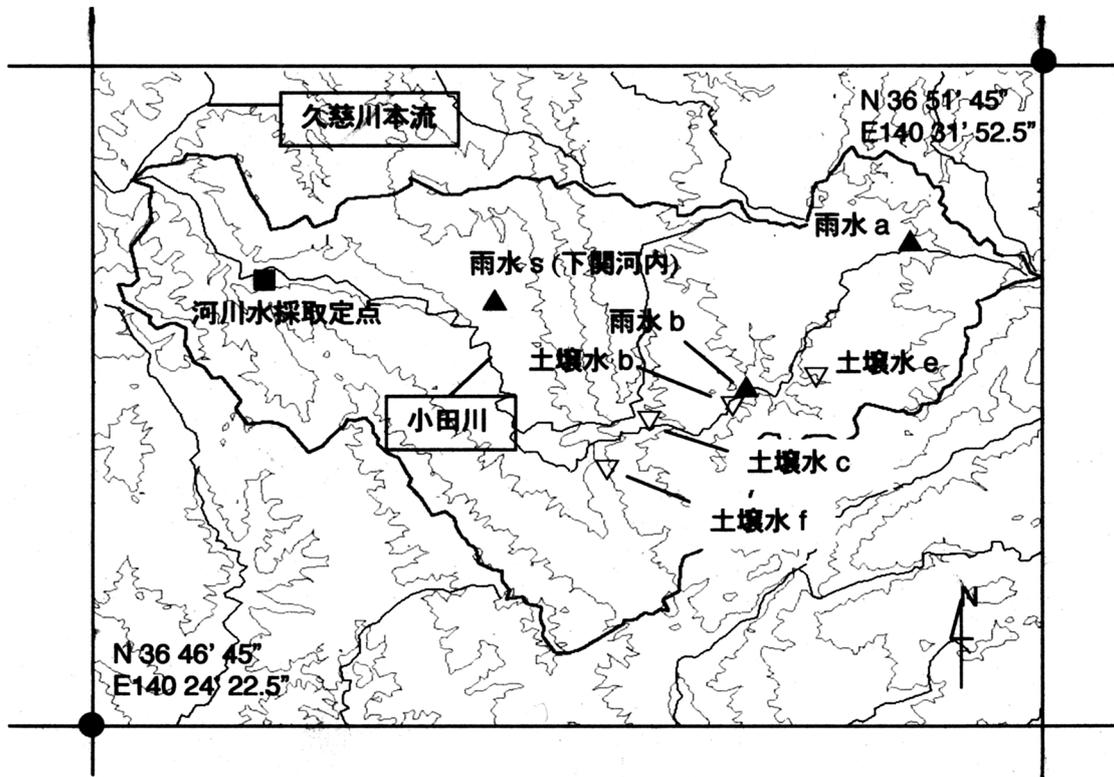


図 3.2 小田川流域図と試料採取地点

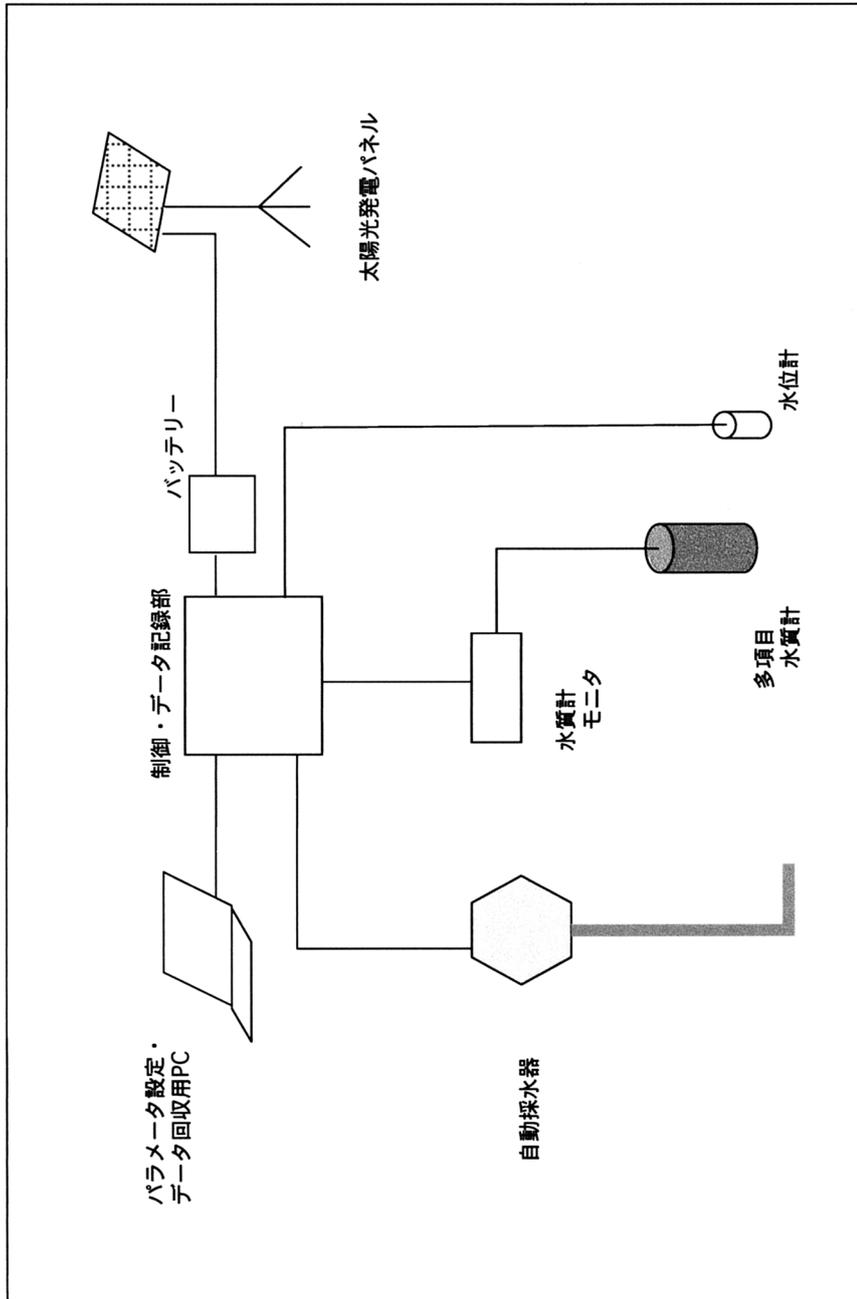


図 3.3 自動採水システムの構成

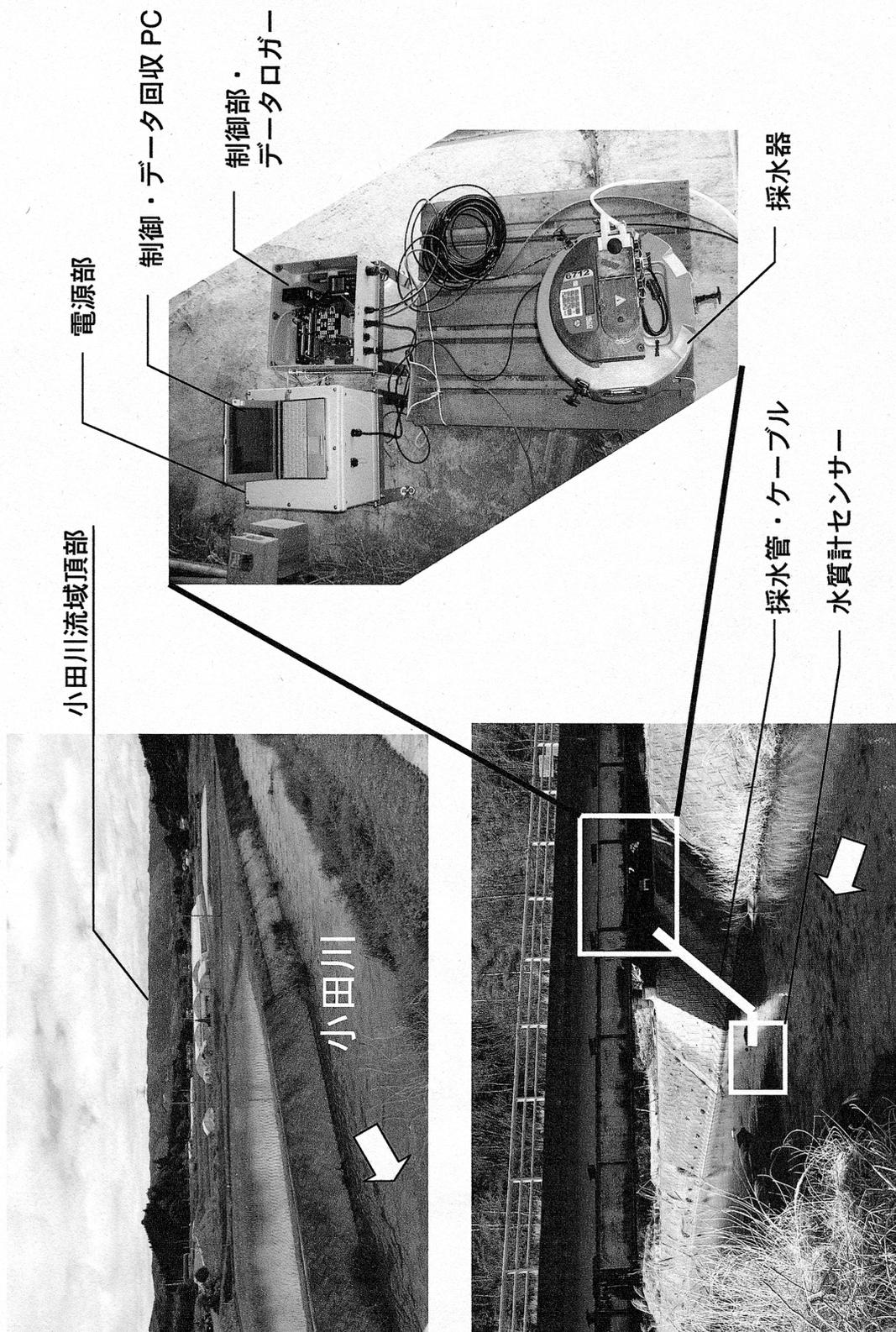


図 3.4 自動採水システムの設置状況

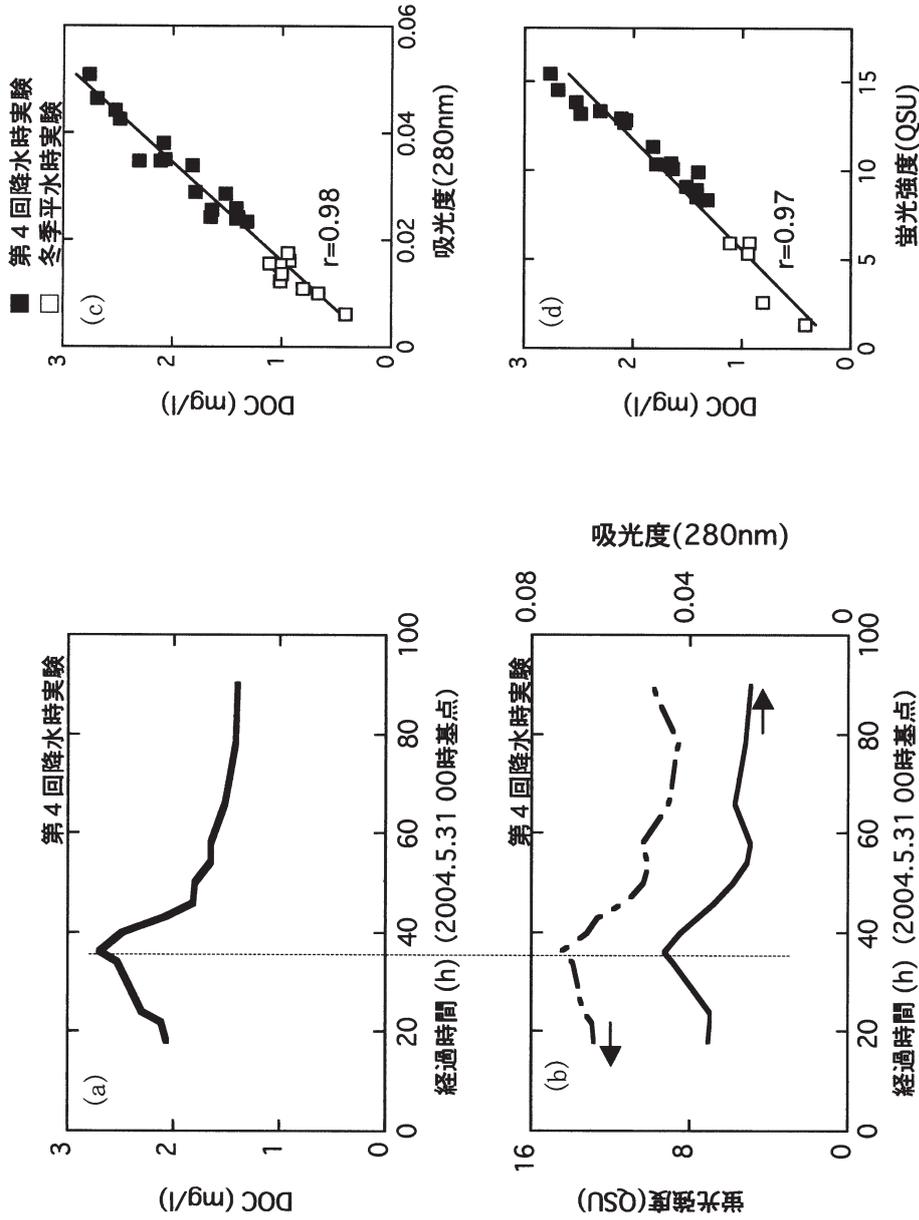


図 3.5 河川水試料の溶存有機物に関する指標の相関

第4回降水時実験における溶存有機炭素濃度(DOC)の経時変化(a)は、紫外吸光度と蛍光強度の変化(b)と、よく同調している。また、河川水のDOCと紫外吸光度(c)そしてDOCと蛍光強度(d)は直線的な相関を持つ。これらのことは、本研究の系において、紫外吸光度、蛍光強度が溶存有機物の良い指標になることを示している。ここで、蛍光強度は励起光330nm、蛍光430nmにおける相対蛍光強度(QSU)である。(c)、(d)に記した回帰係数に関する回帰式は、それぞれ $y=54.47x+0.13$ 、 $y=0.16x+0.11$ 、ここでyはDOC、xは吸光度(c)、蛍光強度(d)である。(d)における記号は(c)と同様である。

4. 実験結果

4. 1 第1回降水時実験

4. 1. 1 降水状況

2003年7月7日の降雨時に行った実験結果を示す。このときの小田川流域における雨量記録を図4.1(a)に示す。7日の09時から21時までに合計で19mmの降水があった。

4. 1. 2 流量

小田川定点における流量を図4.1(b)に示す。同図の記号は、実測値であり、実線は流量実測値ならびに懸濁物濃度の変動に基づいて推定した流量である。流量は、増水が本格化する前の値、 $0.70 \text{ m}^3/\text{s}$ (2003年7月7日00時を基点とした経過時間で10時間目、以下同様) からピーク流量($1.60 \text{ m}^3/\text{s}$ 、20時間目)に至り、 $0.71 \text{ m}^3/\text{s}$ (42時間目)、 $0.60 \text{ m}^3/\text{s}$ (60時間目)とゆっくりと減少した。ただし、降水開始(9時間目)直前のデータは得られていない。

4. 1. 3 河川水質

懸濁物濃度と電気伝導度の変動をそれぞれ図4.1(c)、図4.1(d)に示す。懸濁物の重量濃度は、流量の増加・減少とよく対応して変化した。ただし、自動採水器試料で得られた懸濁物重量濃度(実線)は、手採水・現地濾過で得られた数値(■)よりも小さい。電気伝導度は、流量の増加に呼応して減少を示した。しかしながら、その変化は小さく 8.1 mS/m (13時間目)から 7.3 mS/m (18時間目)に減少した程度であった。

4. 1. 4 溶存元素濃度

着目した金属元素の河川水中溶存態濃度を、図4.2(a)-(c)に示した。Ni、As、Moについては、明確な濃度変化の特徴は見られなかった。それでも、降水日(7月7日)の昼間に濃度ピークが認められた。Sb、Cuでも、降水日の昼間に濃度ピークが存在した。そして、以後しばらくは単調な濃度減少を示した。Sb、Cuは、金属元素の中で降水日の濃度ピークが最も明瞭であった。Pb、U、Cdでは、降水日のピークも見あたらなかった。Ni、As、Mo、Cr、Cuでは観測後半に変動が大きいが、降水記録とは対応せず、その変動理由にははっきりしなかった。降水記録は、試験集水域下部(下関雨量観測所)で取得されたものである。試験集水域上部の降水の影響を受けている可能性はあるが、根拠となる上部の雨量データを、この観測回では欠いている。

希土類元素の濃度変動を図4.2(d)-(e)に示した。軽希土類のLa、Ce、Ndでは、経過時間20時間付近でそろった立ち上がりを見せた。そして、その後の経過時間では単調に減少した。この濃度変動は、金属元素とは異なり、特徴的であった。中希土類のSm、Gd、Dyでも同様な挙動であった。重希土類については、この観測では、検出限界以下の試料が多い。付表に溶存元素濃度の全データを示した。

4. 1. 5 水素同位体比

小田川集水域を含む久慈川集水域全体における広域的な雨水試料の採取地点を図4.3に、それらの雨水試料の水素同位体比(δD)を図4.4(a)に示す。地点間の相違はかなり大きかった。高度の高い地点では、 δD が小さい傾向があった。これは標高が高いほど、雨水の同位体比が小さくなるという「高度効果」と解釈される。小田川定点において採

取した河川水と雨水の水素同位体比 (δD) の時間変動を図 4.4(b)に示す。ただし、この実験では降水初期の雨水ならびに河川水の採取ができなかった。このため、降水開始時点の 2003 年 7 月 7 日 08 時から 12 時までの 4 時間についてデータを欠いている。採取した試料の範囲では、雨水の δD はほぼ一定で -42% から -40% であった。河川水の δD は観測を始めた時点(2003 年 7 月 7 日 12 時、12 時間目) の値 -47.5% から徐々に小さくなり、その 48 時間後(60 時間目)には -50.4% となった。

4. 2 第 2 回降水時実験

4. 2. 1 降水状況

2003 年 10 月 22-23 日に、第 2 回の降水時実験を行った。図 4.5(a)に雨量記録を示す。同 22 日の 06 時から 14 時までの間に主要な降水があり、この間の雨量は 22 mm、最大雨量強度は 5 mm/h であった。翌 23 日に、2 度の小降雨(雨量 8 mm)があった。なおこの降水に対する、直近の先行降水は 10 月 12-15 日の総量 37 mm の降水であった。

4. 2. 2 河川流量

小田川定点における流量変化を図 4.5(b)に示す。降水に呼応して、流量は $2.2 \text{ m}^3/\text{s}$ というピーク値(2003 年 10 月 21 日 00 時を基点とした経過時間で 38 時間目)まで増加した。流量は、いったん急激に低下した後、2 回の小降雨に対応する小さな増加を示しながら、全体としては緩やかに低下した、しかしながら、4 日後においても、着目降水直前の値 ($0.5 \text{ m}^3/\text{s}$) を上回る流量 ($0.8 \text{ m}^3/\text{s}$) にあった。

4. 2. 3 河川水質

懸濁物濃度の変動を図 4.5(c)に示す。第 1 回降水時実験と同様に、懸濁物の重量濃度は、流量変化にほぼ対応して変化した。しかしながら、流量と対応させると懸濁物濃度が特異的に高い試料も見いだされた。また、懸濁物濃度の最大値は、流量ピークよりやや遅れている。自動採水器試料で得られた懸濁物重量濃度(図中、太い実線)は、手採水・現地濾過で得られた数値(図中、黒丸印)とほとんど一致した。

図 4.5(d)は溶存陰イオン濃度の変動を示している。硫酸イオンと塩素イオンの濃度は、流量が増加する直前でいったん増加してから、減少に転じるという複雑な変化を示した。硝酸イオン濃度は流量ピークと対応した減少ピークを示すが、時間的な遅れを伴っている。

4. 2. 4 溶存元素濃度

第 2 回降水時実験における河川水中溶存元素濃度の時系列変化を図 4.6 に示す。Ni, As, Cr, Cu, Sb について、降水そして流量増加のタイミングとほぼ対応して増加が見いだされた(図 4.6(a)-(c))。ただし、Cr, Pb では、降水以外の不明な要因による変動が大きかった。U は大きな変動を示さなかった。

希土類元素濃度の変動を図 4.6(d)-(e)に示した。この観測回では、検出可能な濃度であったすべての希土類元素において、最大雨量強度のピークにほぼ対応する濃度ピークが見いだされた。次に続く弱い雨の 2 つの降水量ピークに対しては、希土類元素濃度の増加は認められない。付表に溶存元素濃度の全データを示した。

雨水中の微量元素の中で特に有害性として知られる元素について降水時間にともなう

濃度変化を図 4.7 に示す。一般に、雨水中の元素濃度は降り始めの雨に高いことが知られている。しかしながら、この降水時試料では、微量元素濃度はこの原則に従う例が少ない。また、元素ごとに連動する場合、連動しない場合、両者認められる。元素ごとの濃度変動の相関分析から、個別の元素の起源を考えると考えられるので、今後、粒子状の降下物の分析を加えて、起源の検討をしていくことが必要である。

降水（溶存成分）による微量元素の降下量は、Cr で $0.005 - 0.02 \text{ g/km}^2$ 、Cu で $0.07 - 1.2 \text{ g/km}^2$ 、Sb で $0.002 - 0.005 \text{ g/km}^2$ であった（範囲は雨水採取地点の違いによる）。これらは、Cu についての 1 地点の値を除いて、いずれも河川流出負荷よりも 1 桁 - 2 桁小さい。したがって、降水に含まれるその元素の溶存成分が河川の溶存成分に直結しているとは考えにくい。河川の開水面の比率も流域面積の 3% に過ぎない¹⁹⁾。Cu を含むいくつかの元素について、下関河内地点の雨水の最終 14 mm 部分の濃度が特例的に高かった。このケースが、上記の Cu 降下量 1.2 g/km^2 を与えている。この高い原因については不明である。

4. 2. 5 水素同位体比

雨水の水素同位体比 (δD) の地点 a における変動を図 4.8(a), (b) に示す。 δD は降り始めの 1mm の値では -17.2% であった。そして、通算 6-7 mm では -38.3% に減少し、8 mm 以降では -34.1% から -27.5% に増加した。この変動を、酸素同位体比 ($\delta^{18}O$) を加えたプロット (同図 b) で示した。同図で記号の番号は雨水採取器の採水カップの番号であり、1 から BK までの時間順序である。時間雨量で重みづけをした平均値は、 -28.0% であった。一方、河川水の δD (図 4.9) は降水直前 (30 時間目) に -47.9% であり、徐々に増加して -44.1% (40 時間目) となり、その後減少に転じて、12 時間後 (52 時間目) には、 -48.2% とほぼ降水直前の値に戻った。河川水の δD については、さらに時間経過とともに、わずかな低下が続いて、84 時間目には、 -50.2% となった。40 時間目付近に見いだされた δD の増加は降水流出のためと考えられる。また、52 時間目以後の緩やかな低下の理由は明確ではないが、深部地下水の流出と関係している可能性がある。

4. 3 第 3 回降水時実験

4. 3. 1 降水状況

第 3 回の降水時実験を 2003 年 11 月 20-21 日の降雨の機会に実施した。同 20 日の 12 時から 20 時までの間 (2003 年 11 月 20 日 00 時を基点とした経過時間で 12 時間目から 20 時間目までの間) に断続的な弱い雨があった。そして、23 時間目から連続降雨となり、30 時間目まで継続した (最大時間雨量 4 mm)。41 時間目から 42 時間目までの間に、時間雨量 6 mm の降雨があった。以上の間の総雨量は 27 mm であった。この降水に対する、直近の先行降水は 11 月 10-11 日の総量 21 mm の降水であり、約 10 日間の無降雨期間が続いていた。図 4.10(a) に雨量記録を示す。

4. 3. 2 河川流量

小田川定点における流量変化を図 4.10(b) に示す。降水直前の流量は $1.0 \text{ m}^3/\text{s}$ であった。11 月 20 日午後から 21 日朝までの降水によって、30 時間目に $2.1 \text{ m}^3/\text{s}$ という最大流量に達した。そして、41 時間目から 42 時間目にかけての短時間だが強い雨によって、流量は $1.8 \text{ m}^3/\text{s}$ まで再び増加した。その後、流量はゆっくりと低下して、120 時間目に

は $1.1 \text{ m}^3/\text{s}$ となって、降雨前の流量にほぼ復帰した。

4. 3. 3 河川水質

小田川定点に設置した多項目水質計による河川水の水質変動記録を図 4.10(c)-(f)に示す。同図には比較のために流量も示した。流量が増加しても pH は、ほぼ 7 のままで変動していない。濁度は、最大流量ピーク (30 時間目、11 月 21 日 06 時) 前後で、まず増加し、さらに同日午後の短時間の強雨時に、顕著な増加を示した。濁度の増加には、時間雨量の大きさが強く働くことが示唆される。この後、濁度は一方的な増加となり、明らかに正当な測定ができていない。これは、増水で運ばれた多くの砂・土壌が濁度計のセンサー部に詰まってしまったためである。水温については、流量の増加時期に合わせた上昇が観測された。これは、おそらく地下水成分の流出寄与によるものである。電気伝導度は、流量が増加を始めると、すぐに低下しはじめた。そして、流量が元にもどるにつれて、降雨前の値に戻っていった。電気伝導度の変動は、流量変化に比較して小さかった。pH、水温、電気伝導度の各量に日周変化が認められた。1 日の正午頃を中心として、pH はアルカリ側に、水温は高めに、電気伝導度は増加側に小さなピークが認められた。昼間の水温が高いのは、気温・日射のためと考えられる。pH、電気伝導度の日周変化の理由は不明である。

4. 3. 4 溶存元素濃度

この観測回においても、第 1 回、第 2 回降水時実験と同様に、Ni、As、Cr、Cu、Sb について、降水 (流量増加) にともなう濃度増加が明確であった (図 4.11(a)-(b))。この観測回では、15-20 時間目付近で、初期の弱い雨、そして流量はほとんど変化していない時期において、濃度増加が観測された点が特徴的である。Pb では、変動が大きく特徴がつかめず、U の大きな濃度変化は無かった (図 4.11(c))。希土類元素でも濃度増加が見いだされた (図 4.11(d)-(f))。その増加ピークは、最も大きな降水 (流量) ピークにほぼ対応した。また、経過時間 41 時間目の、単発的な強い雨 (時間雨量 6 mm) に対応し、La、Ce、Nd では小さな「肩」が生じている。この肩は、他の希土類では不明瞭である。これは、他の希土類では、全体的に濃度が低いと推測される。

4. 3. 5 水素同位体比

第 3 回降水実験における河川水試料の水素同位体比の経時変化を図 4.12(a)に示した。この実験回では、河川水の水素同位体比が、経過時間 40 時間目を境にして大きく変化した。その水素・酸素同位体比を両軸に取った図においても、河川水の水素・酸素同位体比が途中で大きく切り替わったことが分かる。雨水の水素同位体比の時間変化を河川水と相互に比較した結果を図 4.13 に示す。小田川定点における降雨直前河川水の水素同位体比 (δD) は -51.8% であった (2003 年 11 月 20 日 00 時を基点とする経過時間で 6 時間目、8 時間目、10 時間目の平均値)。雨水の δD は、この降雨直前河川水の δD に対する大小関係が途中で交替するという複雑な変化をたどった。この大小関係の交替が、先の図 4.12 において、40 時間目を境にする同位体比変動に関係していると考えられる。図 4.13 において、雨水採取地点 a における δD は、降り始めの 7 mm までは、 -3.6 から -25.1% の間であった。これは、降雨直前河川水の δD よりも大きな値である。そして、次の 7-8 mm の降雨では、 δD は -63.0% に転じた。つまり、はじめの 7 mm までは、水素同位体比に関して河川水よりも「重い」雨であり、その後「軽い」雨になっていった。雨水の δD の変

動は、重い水分子がより凝縮しやすいので、降雨初期の降水は重くなる同位体効果のためと考えられる。さらに、2003年10月など他の降水実験の結果を考えると、この変動の大きさは、降水イベントごとにより異なっていることが明らかになった。この観測における河川水の成分分離に関しては、雨の δD を一定とみなす方法は適用できないので、別の分離方法（3.4節参照）を適用した。

4.4 第4回降水時実験

4.4.1 降水状況

第4回の降水時実験は、2004年5月31日-6月1日の降雨機会を対象としたものである。5月31日00時を基点とした経過時間で17時間目から19時間目の間に、最大時間雨量5mmの比較的強い雨が2時間継続した。いったん小止みになり、20時間目から、再度降り始めて、断続的に降り、35時間目までに断続的な弱い雨がかった。17時間目から35時間目までの総雨量は27mmであった。直近の先行降水は5月24日の総量18mmの降水であり、中6日間の無降雨期間が続いていた。図4.14(a)に雨量記録を示す。

5月には、この第4回降水時実験に先行して数度の降水が続いたことに注意が必要である。5月の主な降水イベントは、5月9日(17mm)、19日(19mm)、21日(40mm)、24日(20mm)であり、実験日までの累積雨量は140mmに達した。この結果として、「平水時」の流量は5月当初の $0.5 \text{ m}^3/\text{s}$ (5月1日)から増加し、実験日直前(5月30日)には $1.0 \text{ m}^3/\text{s}$ であった。

4.4.2 河川流量

小田川定点における流量変化を図4.14(b)に示す。降雨直前の流量は $0.8 \text{ m}^3/\text{s}$ (16時間目)であった。17時間目から19時間目の間の降雨は比較的強い雨であったため、降雨直後(17時)から、流量の増加が始まった。断続的な降雨に対応して、流量は2つのピークを示した。初めのピークは27時間目の $1.9 \text{ m}^3/\text{s}$ であり、17時間目-19時間目、20時間目から24時間目の間の降雨に対応している。流量は、 $1.5 \text{ m}^3/\text{s}$ (30.5時間目)まで低下した後、28時間目-34時間目の降雨によって、第2のピーク、 $2.2 \text{ m}^3/\text{s}$ (36時間目)に達した。120時間目付近で降雨直前の流量 $0.8 \text{ m}^3/\text{s}$ にほぼ復帰した。

4.4.3 河川水質

多項目水質計による河川水の水質変動記録を図4.14(c)-(f)に示す。pH、酸化還元電位、溶存酸素濃度、水温の各項目で日周変化が存在した。pH、水温の日周変化は第3回実験と同様、昼間でアルカリ側、水温は上昇という傾向である。溶存酸素の変動も類似している。酸化還元電位では、pHの増加する時間帯に低下した。電気伝導度では、他の項目ほど、日周変化が明確ではない。

河川水のpHに関しては、日周変化は目立つが、降水の影響がほとんど見いだされなかった。他の集水域での観測例として、岐阜県伊自良川では、降水にともなうpHの明瞭な低下が報告されている^{32,33)}。しかし、この小田川集水域での観測では、計4回の降水時実験すべてにおいて、pHの低下は非常に僅かであった。流量ピークの生じた6月1日においては、電気伝導度の日周的な増加が小さかった。また続く2日間(6月2日、6月3日)は全体に低い値であった。

4. 4. 4 溶存元素濃度

第4回降水時実験における河川水試料の溶存元素濃度を図4.15に示す。第1回から第3回までの降水時実験で特徴的な濃度増加を示したCr、Cu、Sbにおいては、Cuは306 ppt（2004年5月31日00時を基点とする経過時間10時間目）から1246 ppt（24時間目）まで、約4倍に変化して明確な濃度増加を示した（図4.15(b)）。Sbも濃度増加を示したが、降水前の濃度34 ppt（10時間目）から最高濃度53 ppt（22時間目）であり、1.5倍程度の増加にとどまった。Crの濃度は60-80 pptの間の小さな範囲で変動した。希土類元素では、経過時間約40時間目をピークとする濃度増減が、LaからYbまでの検出10元素について同様に見いだされた（図4.15(d)-(f)）。

4. 4. 5 水素同位体比

この観測回の雨水の同位体比も第3回実験（2003年11月）と類似して、変動が大きかった。経過時間17時間目に降り出した雨水では、累積7 mmまでの δD は-38.2‰から-38.9‰であったが、以後、より軽い方向に大きく変化した（図4.16）。20時以降の雨水を捕集した2つの試料（8番カップおよびバックアップカップ）では、それぞれ-106‰、-64.6‰であった。最後の2つの雨水は、20時間目から25時間目までの降水ならびに28時間目から34時間目までの降水を含んでいる。

河川水では、降水直前の-48.8‰（11.5時間目）が降雨前の水準であった。18時間目、22時間目の河川水試料では、その値から、重い方向に僅か変化した（両試料ともに-45.8‰）（図4.17）。これは、初期の降水の影響と考えられる。その後、河川水の δD は軽い方向に変化した。24時間目には、降水前の基準値に近い-48.2‰となり、28時間目には、この観測で最も軽い数値-51.0‰を記録した。ここから、ゆるやかに、基準値に向けて復帰した。78時間目には、基準値と同じ値となり、以後の30時間は、この値でほぼ安定した。

時間変化の大きかった雨水の δD に対して、上に記した河川水の δD の応答は定性的には極めて合理的である。しかしながら、このままでは雨水の δD の一定性を前提とした河川水の流出成分分離を行うことができない。そこで、降水の同位体比変動を考慮した分離方法（3.4節参照）を適用して成分分離を行った。

4. 5 秋季平水時実験

4. 5. 1 試料

降水時実験結果の解釈には、平水時の河川水の同位体比把握が必要であると考えられる。2003年9月の中旬に、そのための試料採取を行った（付表E-1）。しかしながら、採取日9月24日、25日は、9月21日-22日の総量35 mmの降水から2日後であり、この降水の影響を受けていることが考えられるので、最適な平水時の試料にはなっていない。

4. 5. 2 同位体比分析結果

河川水の水素・酸素同位体比分析結果を付表E-2に示した。最上流であり、高度も高い採水地点aでは、定点に比較して δD が軽い方向に、僅かながらずれている。これは、標高の高い場の方が軽い雨になる「高度効果」のためと思われる。酸素同位体比に関しては、測定誤差のために、この点是不明確である。他の地点、採取日の試料間では、ほ

ば一定した水素・酸素同位体比であった。

土壌水の結果を、付表 E-3 に示す。土壌水では、この時の河川水とは、すべて大きく異なる同位体比を示している。直近の、あるいはさらに以前の雨水が貯留され、その反映ではないかと推測される。また、土壌水試料ごとの相違も大きい。この結果は、土壌水の保水容量が大きければ、降水時の河川水の同位体比変動に影響する可能性があること、そして、その効果は前降雨の同位体比に依存する可能性を示唆している。

4. 6 冬季平水時実験

4. 6. 1 試料

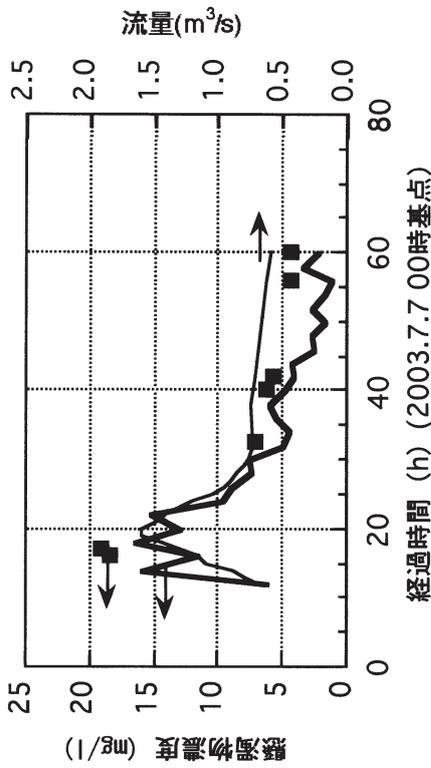
基底地下水の特徴を把握するために、降水が少なくなる冬季を選んで、小田川の上流から下流にわたって、河川水（9 地点）と湧水（2 地点）の採取と分析を行った。採取地点を付表 F-1 に示す。最上流の地点(w)は、降水時に雨水採取器の 1 つを設置した地点より、さらに 2 km 上流である。最下流の地点 (No. 15) は降水時の河川水試料採取定点である。

元素分析・溶存イオン分析用試料に関して、「平水時試料」に述べた手順で行った。採水現場では、可能な限り表層水をさけて、流れの中層からポリエチレン製容器で採水した。試料を現地で濾過し、冷蔵して持ち帰った。

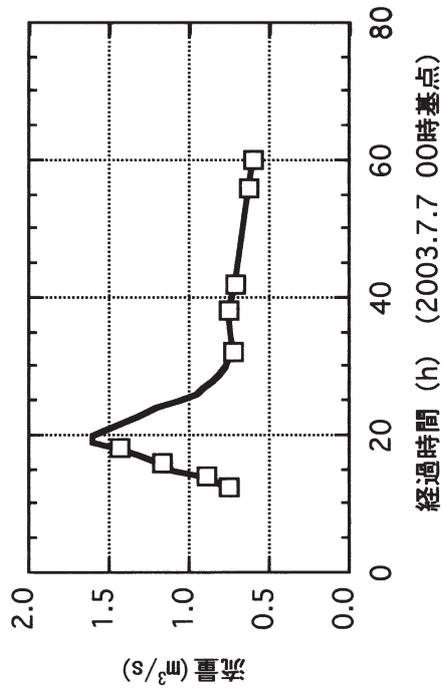
4. 6. 2 分析結果

小田川の上流部の採取地点から、下流部の採取地点に至る河川水ならびに湧水中溶存元素濃度の地点変動を図 4.18 と図 4.19 に示した。降水時実験で濃度増加を示した Sb、Cr、Cu の降水時実験定点における濃度は、夏季・秋季の平水時のレベルと同程度である。冬季になって大きな濃度減少は認められなかった。その地点変動を見ると、Sb と Cu は極めて同調した変動を示すことが分かった。また、下流部の地点 h と定点で濃度が増加している。両地点ともに、この集水域では車両の通行や生活活動・産業活動が最も活発な場所にあり、その影響を受けている可能性がある。下流地点で濃度が増加する傾向は、As、Mo でも認められた。Ni、Cr では見いだされなかった。最上部 w における Cr の値は例外的に高いが、この理由は不明である。

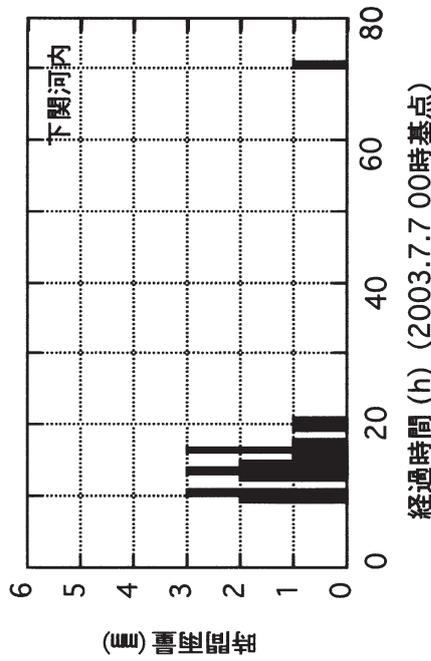
図 4.20 に試料水の水素・酸素同位体比を示す。水素同位体比は上流（標高 713 m）から下流の定点 (No. 15) (標高 178 m) に向かって、僅かだが 2‰大きくなった（同図 a）。これは、標高の違いによる雨水の同位体比の違い（「高度効果」）が、河川を涵養する地下水に反映しているためと考えられる。冬季という少雨の季節の観測でも、この傾向が見いだされるのは、冬季の河川水を涵養する基底地下水に過去の降水履歴が反映しているためと思われる。しかしながら、河川水に見いだされた同位体比の差（2‰）は、単純に標高差から雨水について期待されるよりも小さい。これは、試験集水域では標高の異なる場所に降った雨水が浸透し、混合して地下水帯をつくるためと推定される。この冬季観測の結果から、降水時の実験で、水素同位体比を用いて流出成分分離を行うとき、小田川定点では、-52‰ から -50‰が地下水成分の下限の値になることが確かめられた。



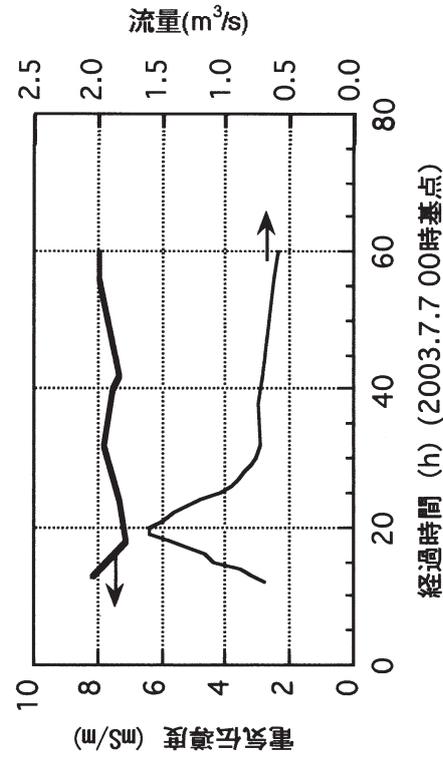
(a) 下関河内観測所地点雨量



(b) 小田川定点の流量



(c) 小田川定点の河水懸濁物濃度



(d) 小田川定点の河水電気伝導度

図 4.1 第1回降水時実験における雨量・流量ならびに水質の経時変化

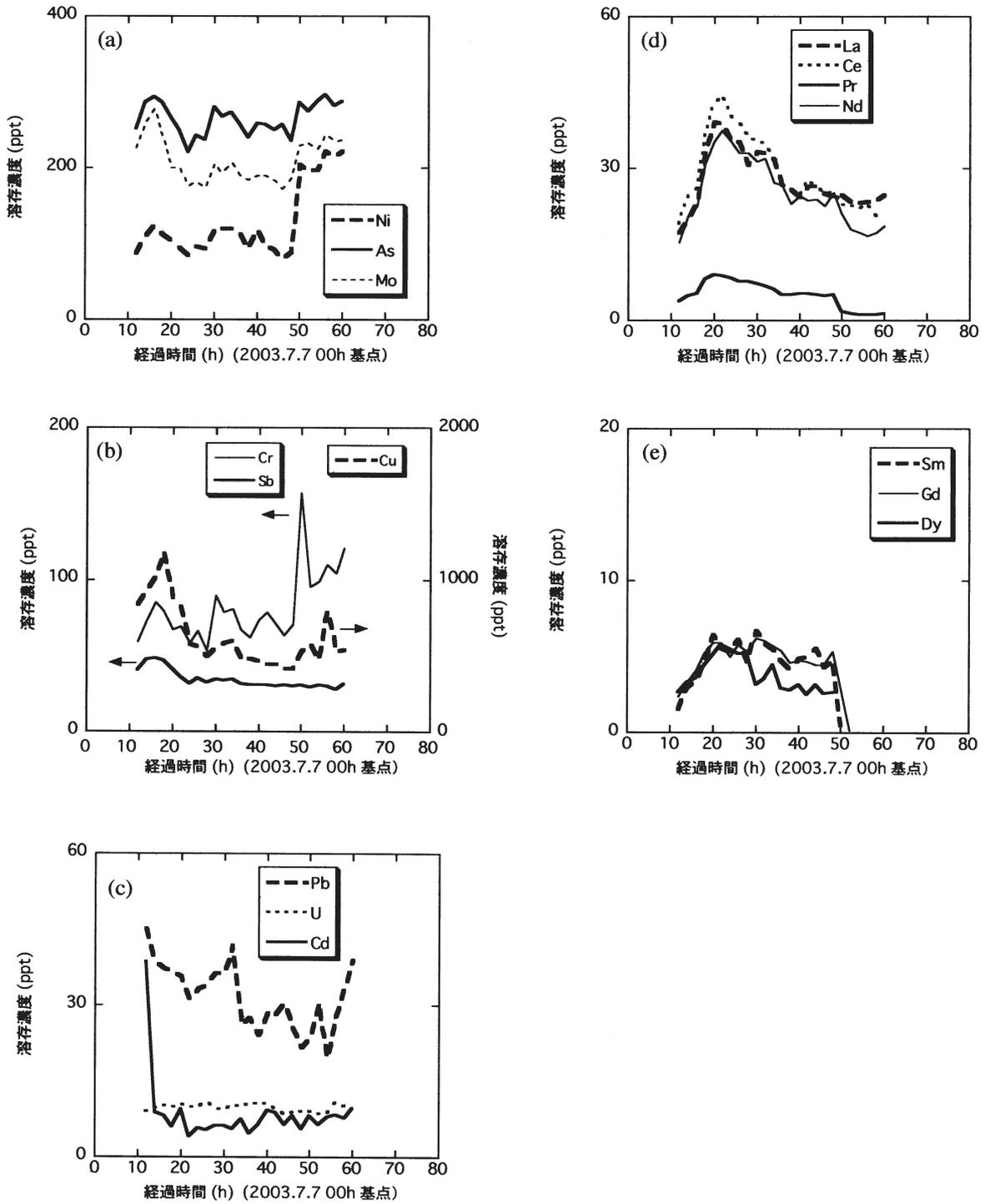
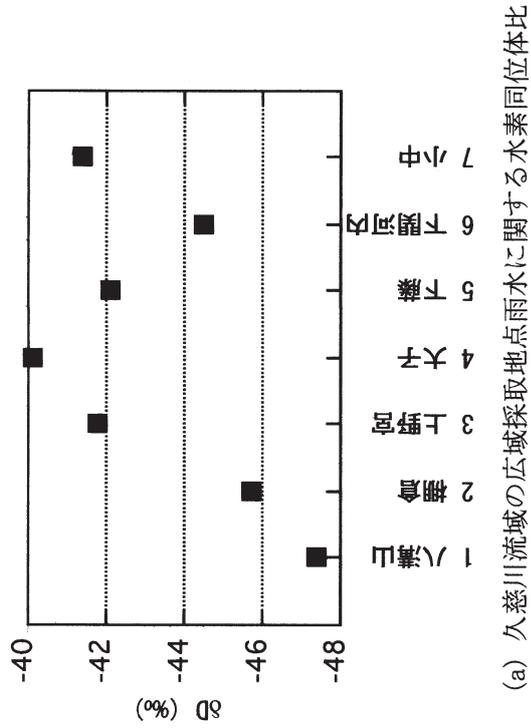
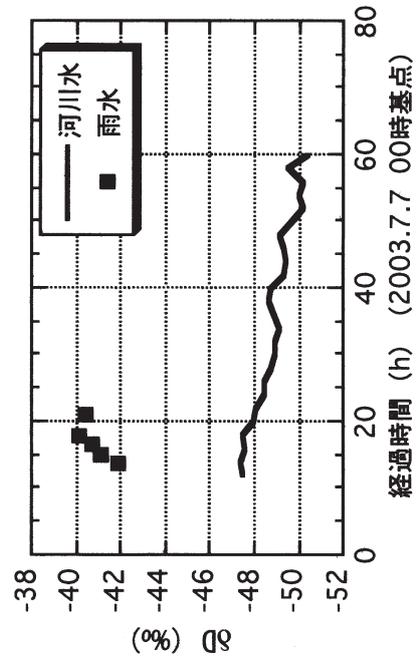


図 4.2 第1回降水時実験における溶存元素濃度の経時変化



(a) 久慈川流域の広域採取地点雨水に関する水素同位体比



(b) 小田川定点河川水と雨水に関する水素同位体比

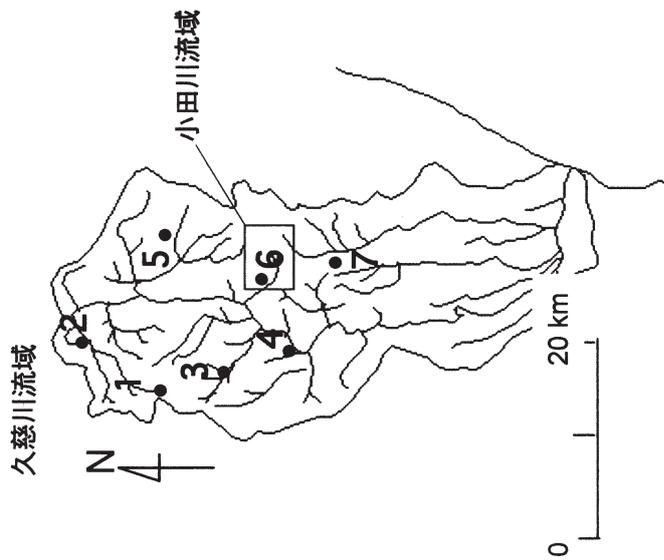
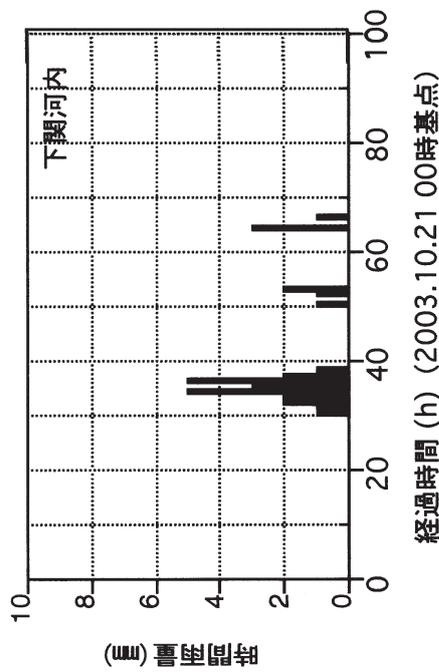
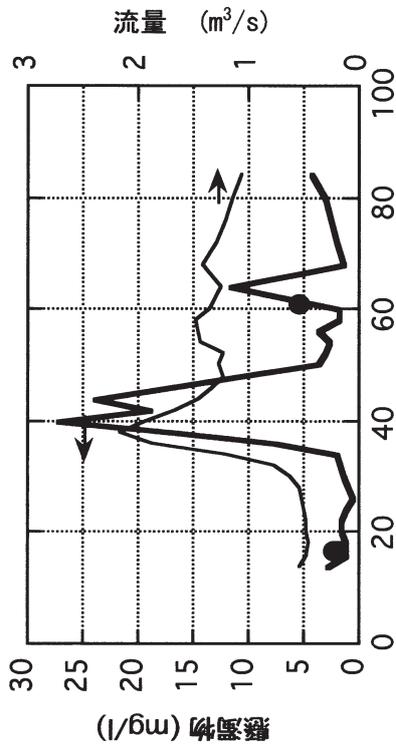
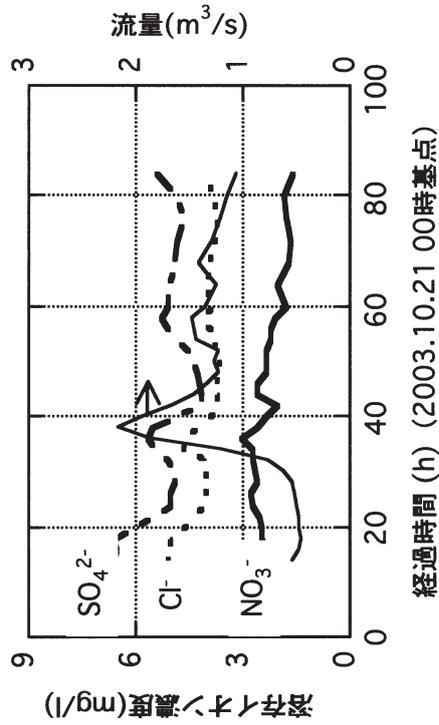


図 4.3 第 1 回降水時実験における雨水広域採取地点 (地点名については図4.4に記載)

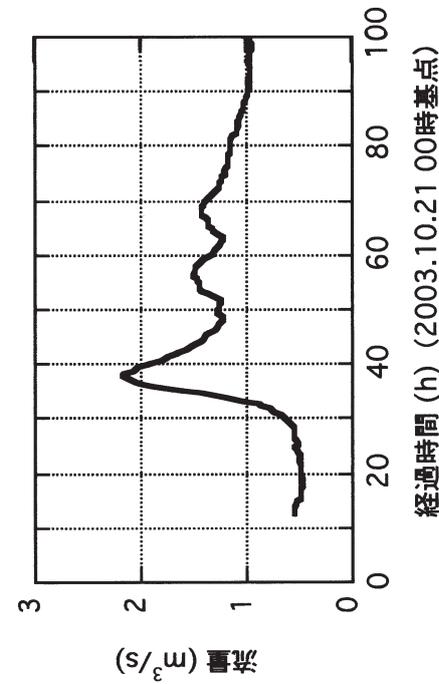
図 4.4 第 1 回降水時実験における雨水と河川水の水素同位体比



(a) 下関河内観測所地点雨量



(c) 小田川定点の河川水懸濁物濃度



(b) 小田川定点の流量

(d) 小田川定点の主要溶存イオン濃度

図 4.5 第2回降水時実験における雨量・流量ならびに水質の経時変化

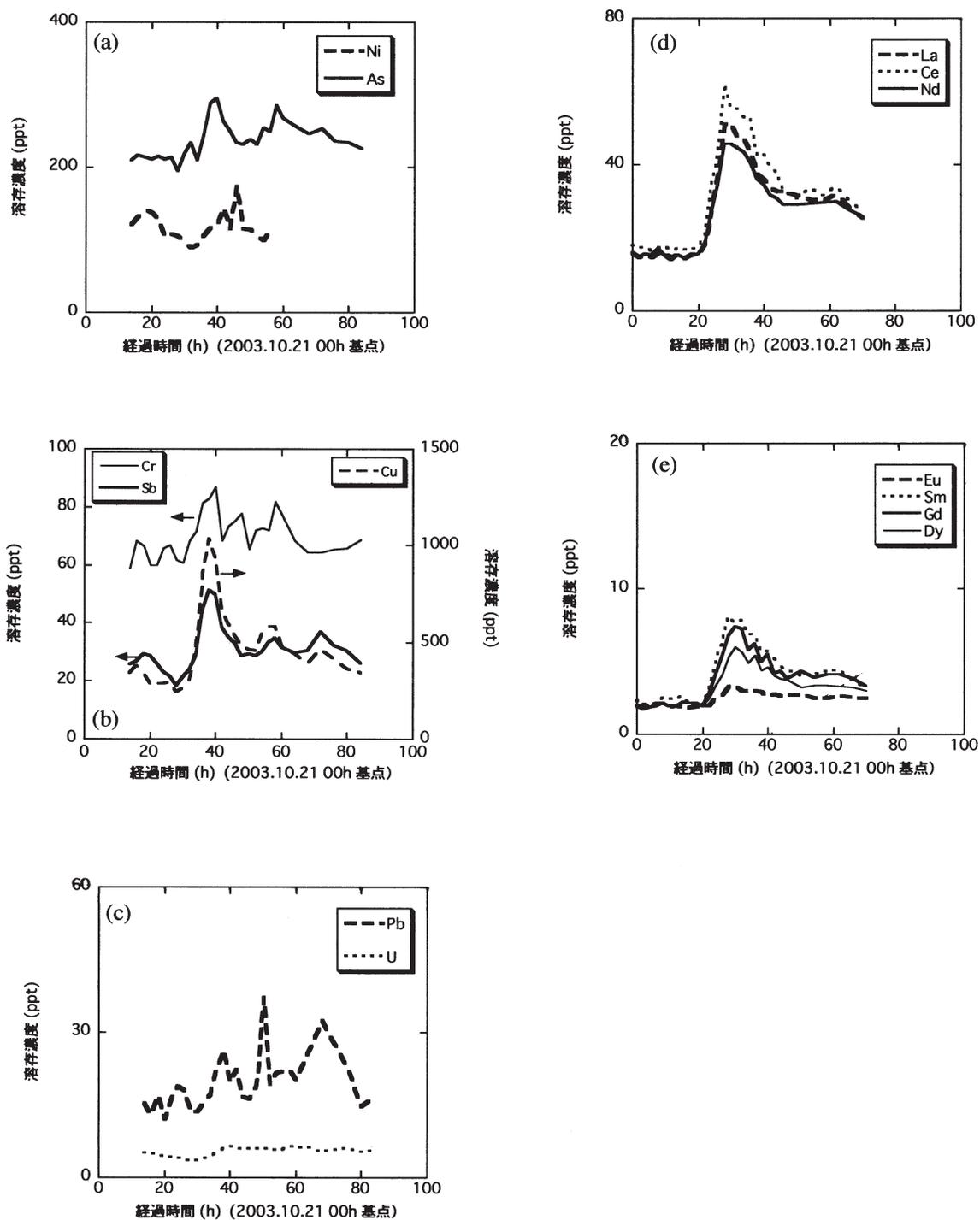


図 4.6 第2回降水時実験における溶存元素濃度の経時変化 (小田川定点)

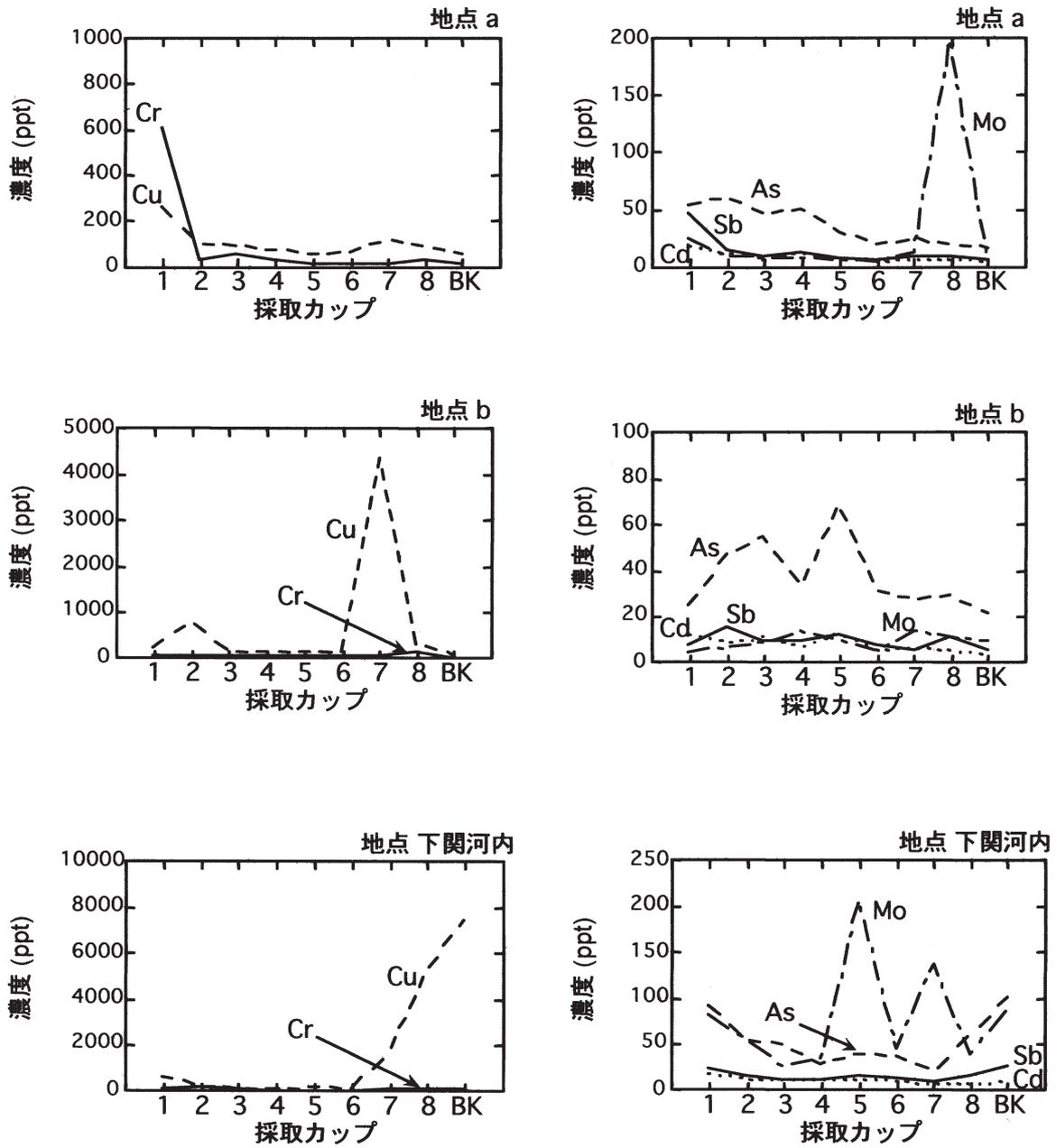


図 4.7 第2回降水時実験における雨水中の溶存微量元素濃度 (小田川流域)

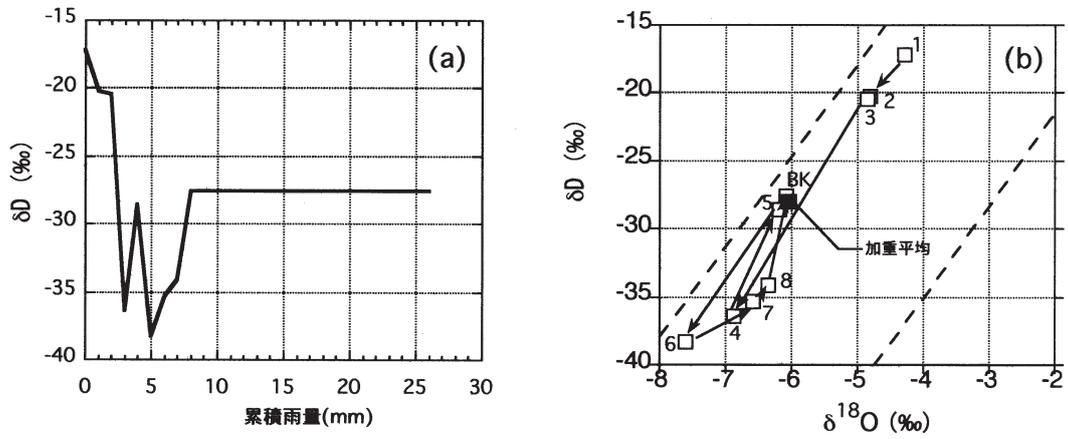


図 4.8 第2回降水時実験における雨水の水素・酸素同位体比 (小田川流域地点a)

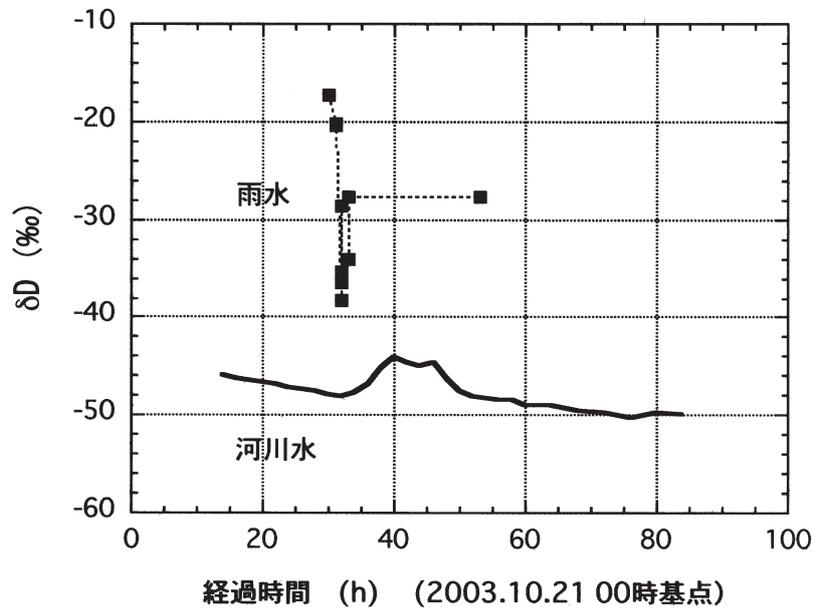
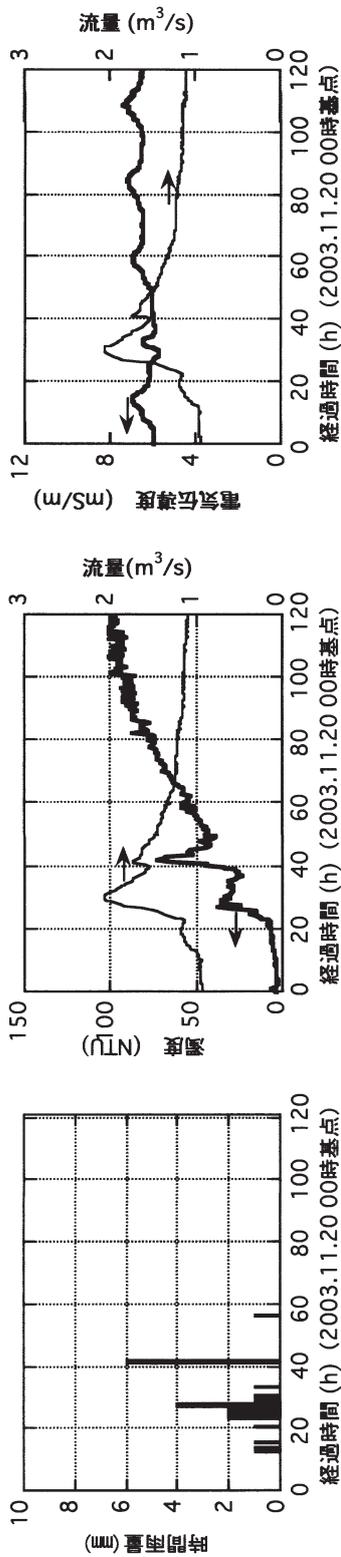
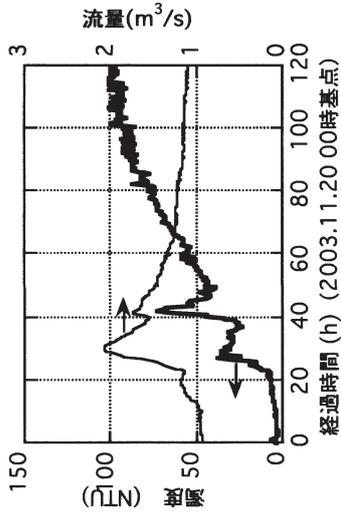


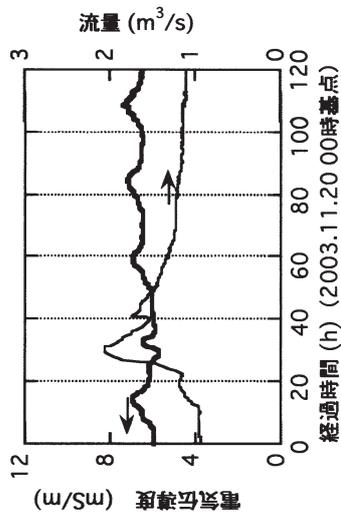
図 4.9 第2回降水時実験における雨水・河川水の水素同位体比の変動 (雨水：小田川流域地点a； 河川水：小田川定点)



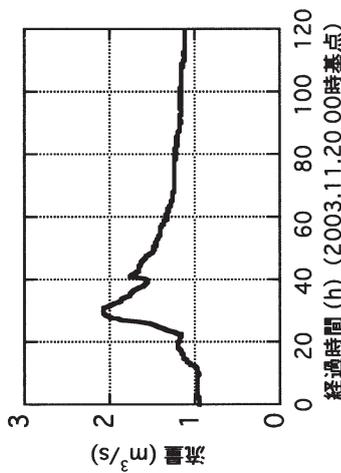
(a) 下関河内観測所地点雨量



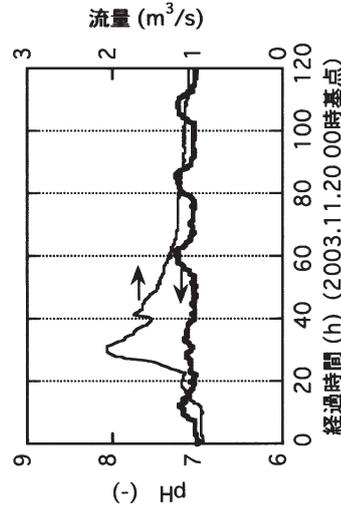
(c) 小田川定点の河川水濁度



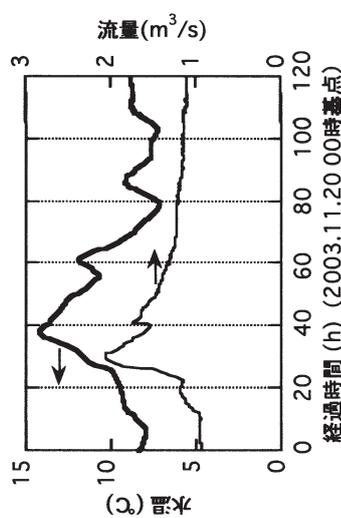
(e) 小田川定点の河川水電気伝導度



(b) 小田川定点の流量



(d) 小田川定点の河川水pH



(f) 小田川定点の河川水温

図 4.10 第3回降水時実験における雨量・流量ならびに水質の経時変化

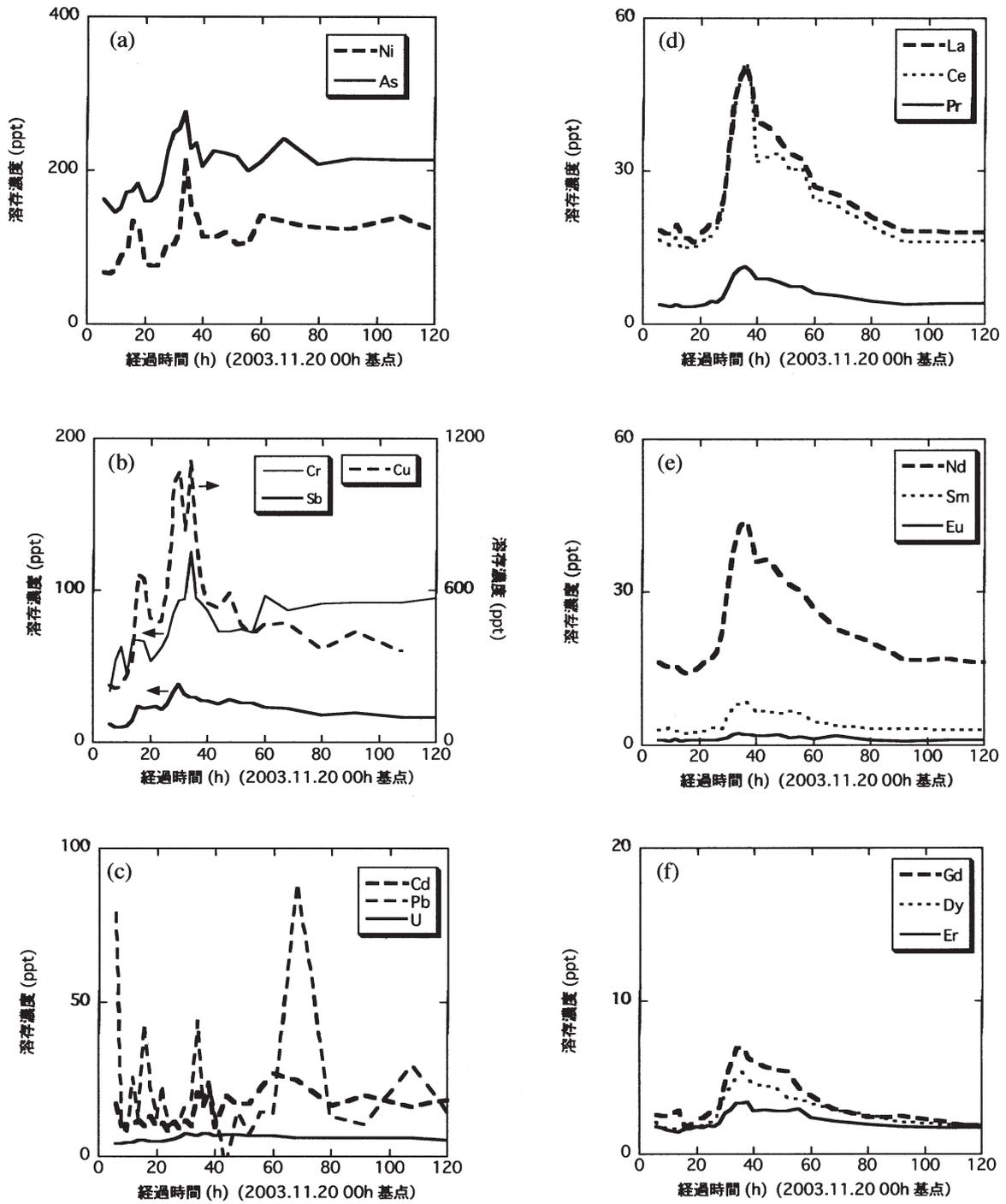


図 4.11 第3回降水時実験における溶存元素濃度の経時変化

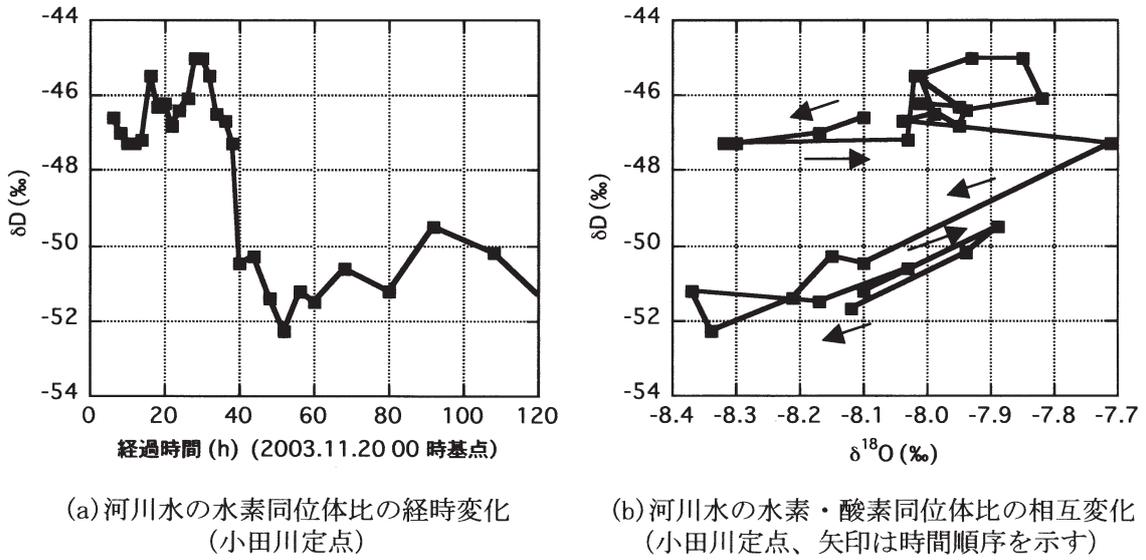


図 4.12 第3回降水時実験における河川水の水素・酸素同位体比の変動

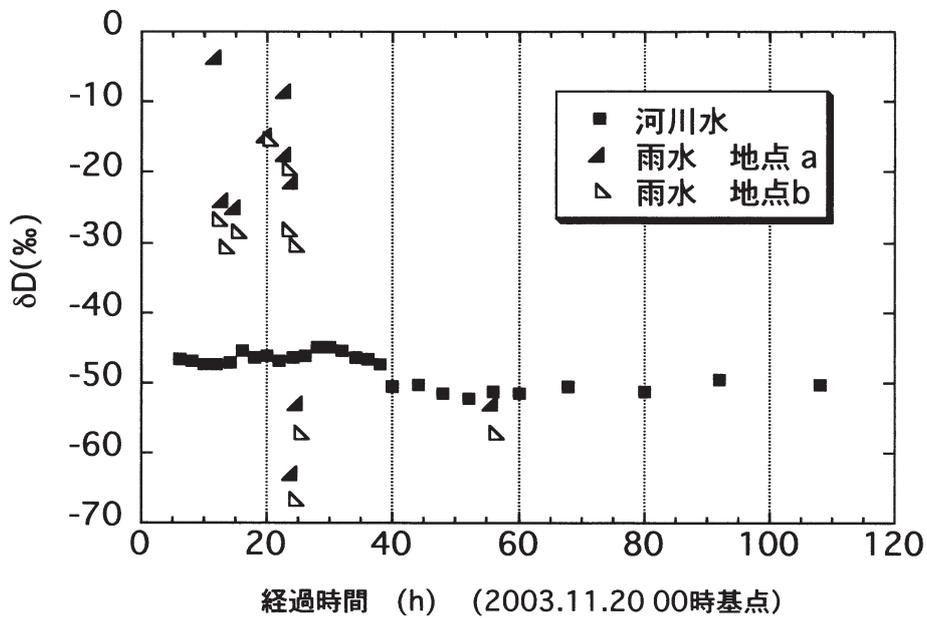


図 4.13 第3回降水時実験における雨水・河川水の水素同位体比の相互比較
(河川水：小田川定点；雨水：小田川流域)

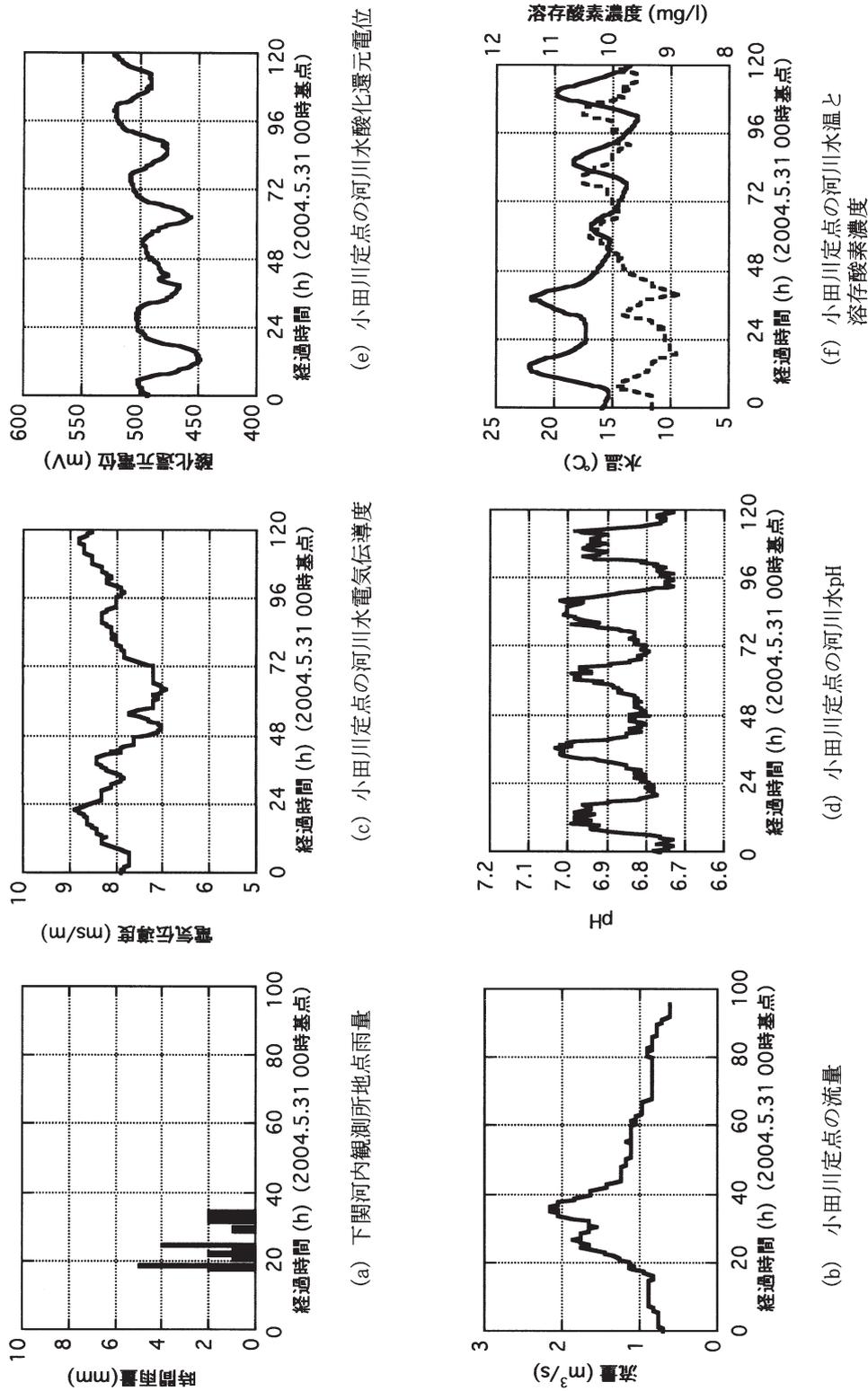


図 4.14 第4回降水時実験における雨量・流量ならびに水質の経時変化 (c-fでは、日周変化に留意して24時間刻みにしてある)

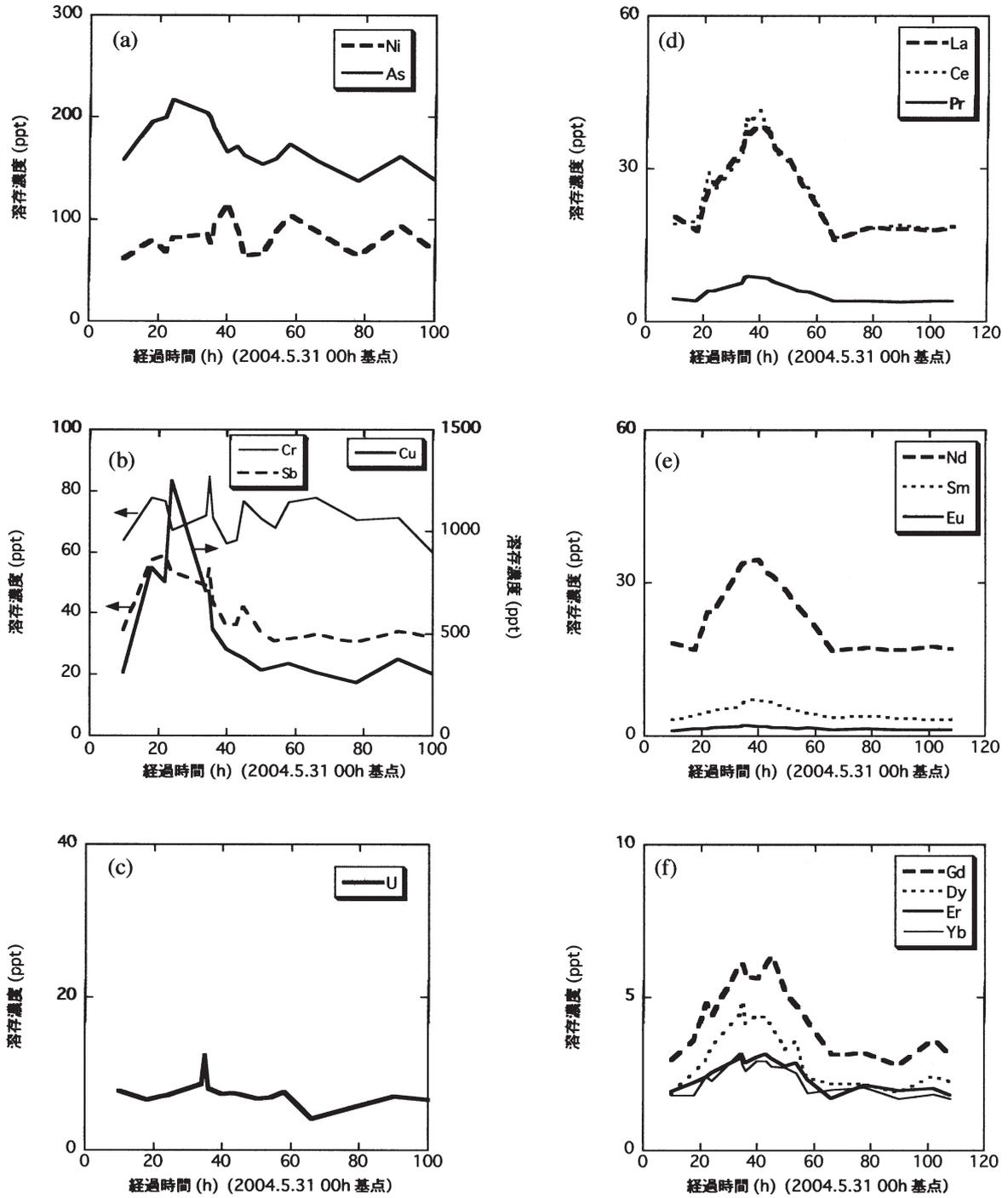


図 4.15 第4回降水時実験における溶存元素濃度の経時変化

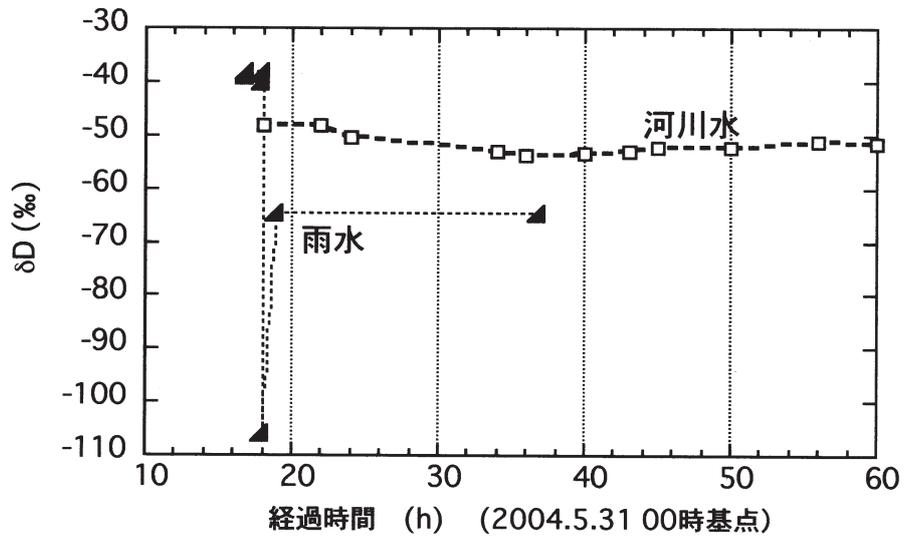


図 4.16 第4回降水時実験における雨水の水素同位体比の変動
(雨水：小田川流域地点a；河川水小田川定点)

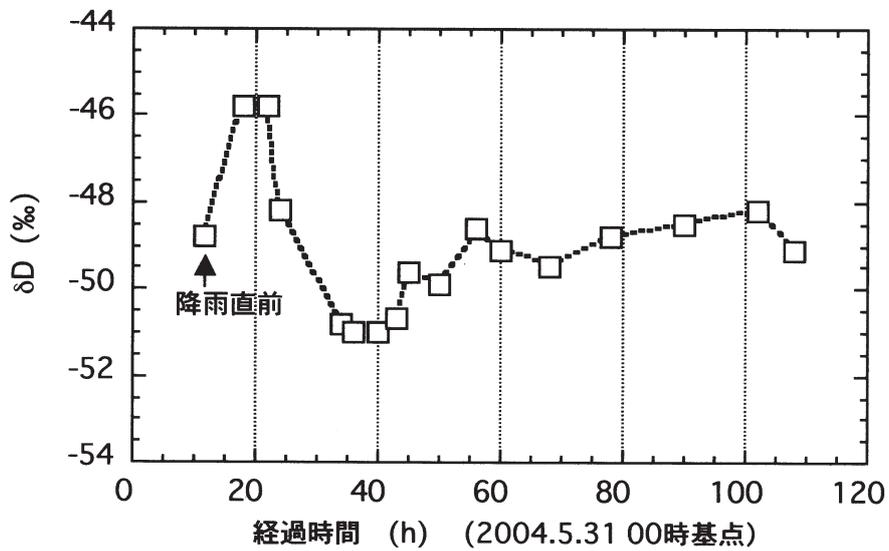


図 4.17 第4回降水時実験における河川水の水素同位体比の変動
(河川水：小田川定点)

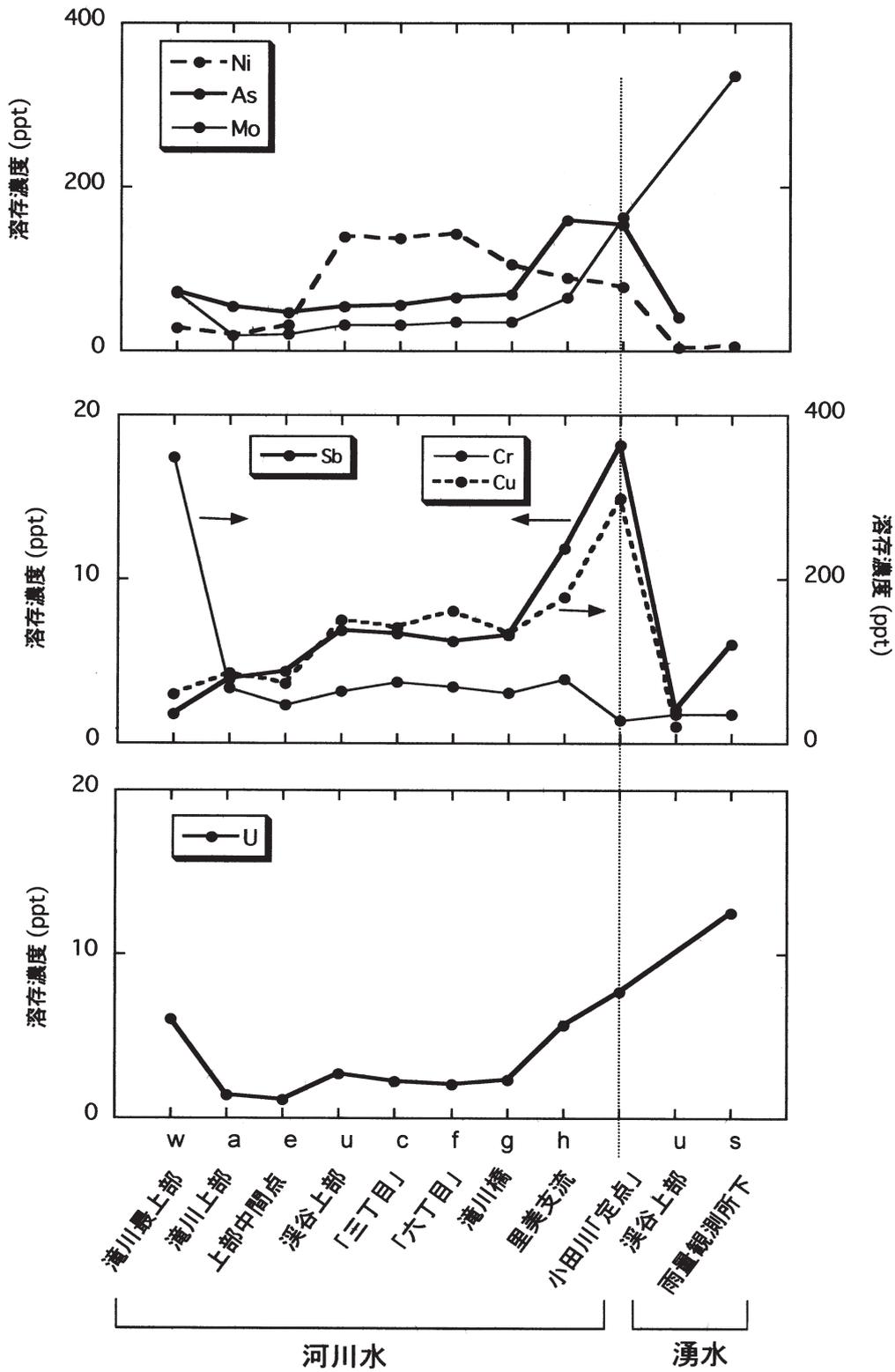


図 4.18 冬季平水時実験における溶存元素濃度の地点変化(1)
 (小田川上流から定点までの各地点。付表F-1参照。)
 (見やすさのために線で結んである。線で描いた変動を意味しない。)

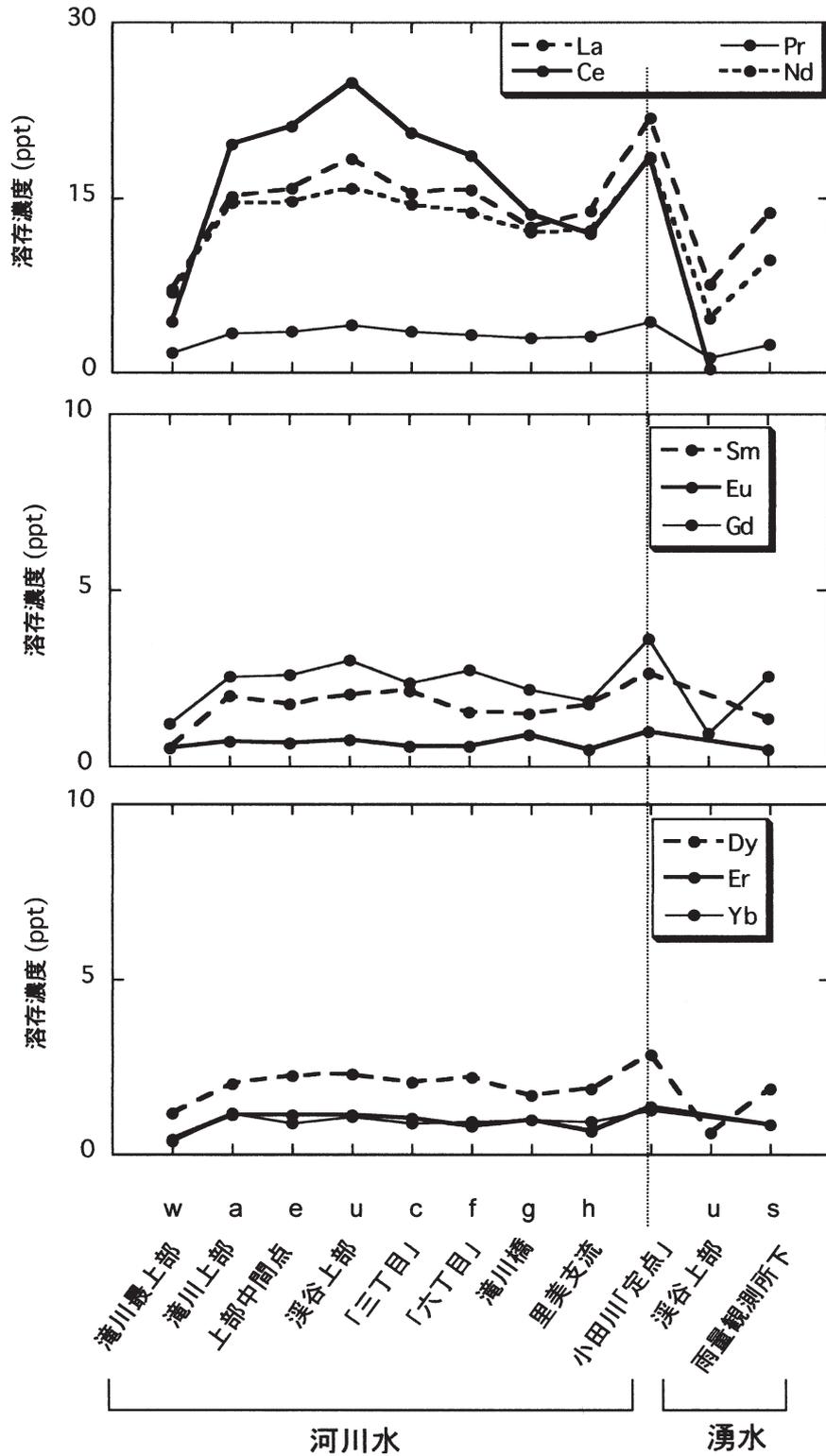
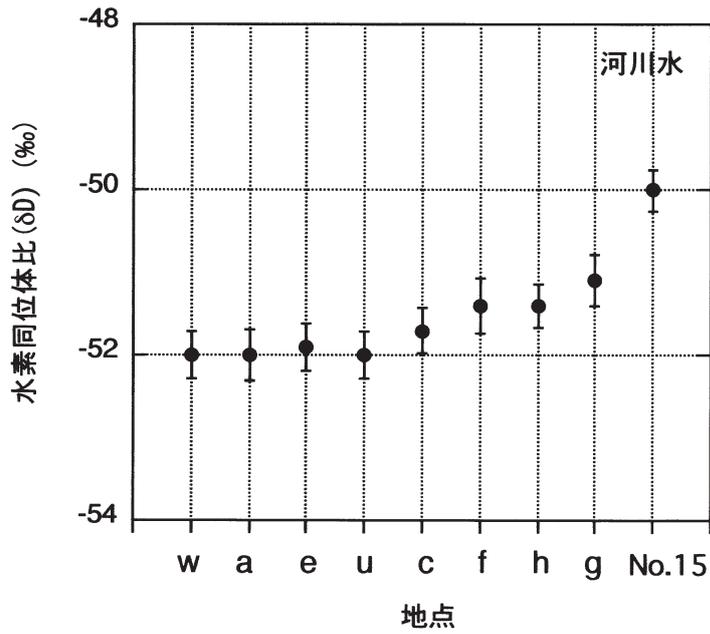
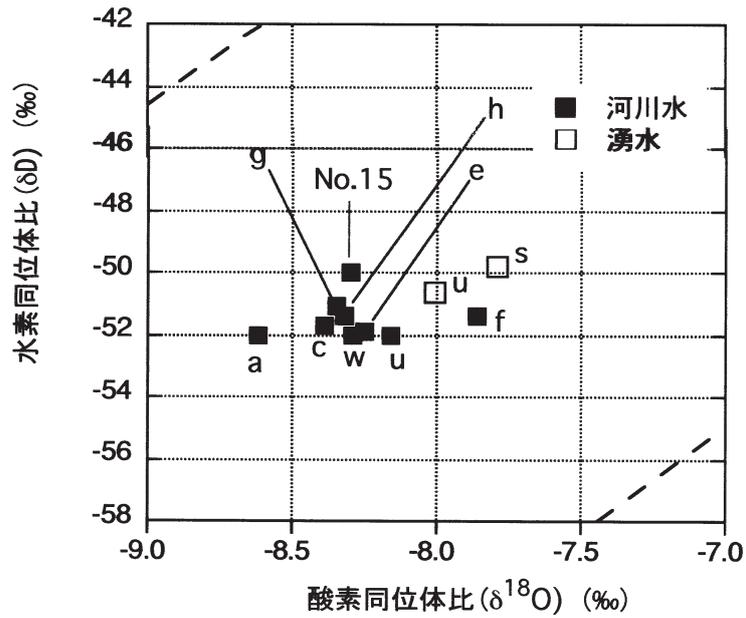


図 4.19 冬季平水時実験における溶存元素濃度の地点変化(2)
 (小田川上流から定点までの各地点。付表F-1参照。)
 (見やすさのために線で結んである。線で描いた変動を意味しない。)



(a) 水素同位体比の地点依存性



(b) 水素・酸素同位体比ダイアグラム

図 4.20 冬季平水時実験における水素・酸素同位体比の地点変化
 (河川水：小田川上流から定点までの各地点。付表F-1参照。)
 ((b)において、破線内側は国内浅層地下水の平均的範囲を示す。付録2参照。)

5. 考 察

5. 1 小田川集水域における降水時の元素流出の特徴

降雨時における河川水中溶存元素の濃度変化は、減少・増加・複雑変動の3つのパターンに概略的に区分できた。降水機会が異なっても、元素ごとに同じパターンを示す場合が多く、流出挙動は元素ごとに固有の特徴を有することが示唆された。

図 5.1 に、第2回降水時実験を例として溶存主要元素濃度の変動を示した。濃度減少が最も明確な元素は Si である。この Si は岩石の風化に由来する。Si の濃度は河川水に比べて降水では大変低い。河川水の Si 濃度の減少は、降水の河川流入のためと推測される。Si 以外に濃度減少を示した元素は Na である。Na は岩石には、本来微量にしか含まれない元素である。主に降水物中の海塩に由来している。そして、その溶解性の高さと土壌構成物への吸着性の低さのために、地下水にも広く分布する。地表面土壌・地下水における既存量に対して、当該降水が持ち込む Na は微量であり、そのため、Si とは起源を異にするものの、見かけ上は Si と同様に濃度の低下が生じていると考えられる。Mg はほぼ一定で、K は流量の変化と同調しない増減を示した。

一方で、Sb などの金属元素そして希土類元素は、観測した降水時において、常に濃度増加を示した。たとえば、Sb の河川水中溶存濃度は増水前の 22 ppt から約 2.5 倍に増加した(第2回降水時実験)。Cu では平水時の約3倍のピーク濃度となった。Cr についても、Sb、Cu に次いだ濃度増加が認められた。希土類元素では、たとえば、降雨前に 18-20 ppt であった La、Ce 濃度が、増水期間に最大 50 ppt、60 ppt まで増加した。Nd、Eu、Sm、Gd、Dy についても同様な増加が見いだされた。

河川水中の溶存元素濃度と河川流量から降水時に河川に運ばれた量(負荷)を計算した。表 5.1 に、本研究での挙動を代表する金属元素(Cr、Cu、Sb)、希土類元素(La、Dy)についての負荷を示す。この表の数値は、これらの元素について、新たな供給源が降水時に生じていることを意味する。この結果に基づいて、金属元素・希土類元素の流出機構を検討した。

5. 2 水流出成分の関与⁹⁾

5. 2. 1 推定手順

上述の供給源として、降水時の水流出の増加分が関与していると考えられる。その増加分は、水の由来から、地下水流出成分と表面流出成分に分けて考えることができる。そこで、両成分の関与の大きさをつぎの手順で概略的に推定した。ここで、表面流出成分を実験的に評価することはできないので、その大部分を構成すると推測される降水流出成分で代表させて考えた。

- i) 着目する元素の河川水中の溶存濃度と河川流量から降水時に河川に運ばれた当該元素の量(全寄与)を計算する。
- ii) 河川水の地下水流出成分と降水流出成分を、水素(酸素)同位体比を用いて分離する。成分別の水流出量として、時系列データとして算出する。
- iii) 地下水流出成分に含まれる溶存元素濃度を一定と仮定する。
- iv) 地下水流出成分の水流出量と溶存元素濃度から、地下水流出成分による元素の流出量(地下水成分寄与)を求める。
- v) 全寄与から地下水成分寄与を差し引いて、降水流出成分による元素の流出量

(降水成分寄与) を求める。

iii)項の地下水流出成分に含まれる溶存元素濃度を一定とする仮定は、降水時に地下水の流動経路が変化しても、地下水流出成分に溶け込む着目元素の濃度は大きく変化しないという仮定を意味している。ほとんど基底地下水で涵養されていると考えられる冬季の河川水中元素濃度は、降水の多い季節である秋季の降水時実験における降雨前の平水時の時と同程度であったことは、この仮定を部分的に支持している。すなわち、冬季採水時の小田川定点での Cr、Cu、Sb の溶存態の濃度はそれぞれ 28、298、18 ppt であった。これに対して、第 2 回降水時実験での降雨前の濃度は、それぞれ 59、341、26 ppt であった。また、第 3 回降水時実験では、34、194、12 ppt であった。

しかしながら、地下水を直接採取したような直接的なデータは無いので、この仮定には検証の余地がある。それでも、本稿では、この仮定の下でという条件付きで議論を進める。v)項は、地下水寄与に帰着できない流出(元素)を降水流出に帰着させるという発想に基づいている。

5. 2. 2 水素同位体比を用いた河川水の流出成分分離

第 2 回の降水時実験の観測データに基づいて、水素同位体比を用いた河川水の成分分離を行った。用いた装置の性能に依存して、酸素同位体比よりも水素同位体比の分析誤差が小さいので、酸素同位体比は、この手順では用いなかった。2 成分混合モデルを適用して、降水流出成分の比率を求めた結果を図 5.2 に示す。ここで、降水前の河川水の δD は -47.9‰ (22 日 06 時)、降水の δD は重みづけ平均値 -28.1‰ (地点 a) とした。計算された比率は明確な山型を示し、その最大比率は 0.21 (22 日 16 時) であった。つぎに、この比率を河川流量に適用して、降水流出成分と地下水流出成分の両者に成分分離した。この降水イベントにおける累積流量を求めた結果、降水流出成分は全流出の約 6% を担うと推定された。

5. 2. 3 微量元素の流出

第 1 回降水時実験では、降水直前時点での採水を行っていない。また、第 3 回、第 4 回降水時実験では、偶発的に、雨水の同位体比の時間的変動が非常に大きかった。そのために、河川水の同位体比に対して雨水の同位体比を一定とみなすという 2 成分分離の前提条件(付録 1 参照)が満たされなかった。このため、2 成分分離の前提条件が、ほぼ満たされた第 2 回降水時実験(2003 年 10 月)についてのみ、同位体比による成分分離を観測時間全体にわたって行うことができた。こうした実際の観測結果からの制約のために、第 2 回降水時実験に限って、同位体比を用いて分離した河川水の流出成分と微量元素の流出との関係を解析した。すなわち、この降水イベントにおける微量元素の流出量(負荷)を、その 2 つの流出成分ごとに評価した。まず、観測した河川流量と元素濃度の時系列データから、着目元素ごとに累積負荷(以下、全流出負荷と記す)を求めた。

$$ML_{total} = \sum_i C_i \times Q_i \times T \quad (2)$$

ここで、

ML_{total} : 全流出負荷 (g)

C_i : 着目元素の河川水中濃度 (g/m^3)

Q_i : 河川流量 (流域面積で除した数値) [$(m^3/s)/(km^2)$]

T: 観測時間インターバル(s)

累積する期間は、この第2回降水時実験における中心的な増水期間（22日00時 - 23日16時）とした。つぎに、地下水流出成分の負荷（MLold）については、同成分における着目元素の濃度が一定という仮定（作業仮説）を置いて、同様な式で評価した。降水直前の河川水は地下水流出成分から成るとして、この時点の着目元素の河川水中濃度を地下水流出成分におけるその元素濃度とした。降水流出成分負荷（MLnew）は、全流出負荷と地下水流出負荷の差として求めた（次式）。

$$ML_{new} = ML_{total} - ML_{old} \quad (3)$$

こうして求めた、成分ごとの流出負荷を代表的な主要元素と微量元素について表5.2に示す。以上に述べた考え方によれば、Naでは、この降水における全流出負荷（MLtotal）は 26×10^3 (g/km²)であり、そのほとんど（ 25.7×10^3 ）を地下水流出負荷（MLold）が担う。Siでは、ある程度を降水流出成分が担う。微量元素の流出負荷の絶対量は主要元素と比較して小さく、数g/km²のオーダーである。微量元素の中でCuは降水流出成分負荷が地下水流出成分負荷を上回ると評価され、その濃度変動と流量変動の類似性と共に特徴的である。

つぎに、MLtotalに対するMLnewの割合によって元素をクラス分けした（表5.3）。この割合が最も大きい元素群には、Al、Ti、Y、U、Thが含まれる。これまでに報告されている種々の元素の河川水中での分布についての研究^{34, 35)}から、これらの元素の一部は河川水中で何らかのコロイドとして存在することが推察される。実際、本実験ではこれらの元素濃度の間の相関が高い。そして、このクラスには、Sb、Cuが属した。それぞれの降水流出成分負荷の割合は36%、52%であった。

以上の検討結果から、降水が土壌を通過して河川に流出する成分は、水流出としての寄与は小さいにもかかわらず、地表面土壌に蓄積するいくつかの微量元素の河川流出に大きな役割を有する可能性を示唆している。

5. 3 溶存有機物の関与

5. 3. 1 微量元素濃度の時系列変化

つぎに、降水流出成分が、どのように微量元素の河川流出機構に関与するのかを検討した。微量元素濃度などの時系列変化を流量の変動と対比することは、この検討の役に立つ。図5.3、図5.4は、各降水実験における流量、金属元素濃度、希土類元素濃度、紫外吸光度、蛍光強度相互の比較を示している。この図において、流量には推定した降水流出成分も示してある。第1回降水時実験の場合には、降水直前の河川水の採取を行っていない。そこで、降水から最も遅く離れた時間の河川水試料の値（水素同位体比）を降水前の値と仮定して計算している。第3回、第4回降水時実験では、雨水の水素同位体比が大きく変動した。これに対しては、雨水の同位体比が時間変動する場合の成分分離法（3.4節）を適用した。

第1回実験では、Sb、Cu濃度のピークが、河川流量のピークに僅か先行している。一方、希土類元素（La, Ce, Ndで代表）では、流量ピークに遅れて、ピーク濃度に達している。類似の応答は、他の回の降水実験でも見いだされた。第2回降水実験では、Sbのピークは、流量ピークとほぼ一致するが、希土類元素ピークはより遅れている。第3回降水実験では、流量を僅かに増やしている初期の小さな降雨（1mm/h）により、Cuは濃度ピークを示している。この時に、希土類（La, Dyで代表）では濃度の増加は全く認め

られない。第4回降水実験においても、Cuと希土類元素では濃度の変動パターンが異なっていた。Cuでは、最初の流量ピークの以前に濃度ピークが現れているが、La、Dyの濃度ピークではそれよりもかなり遅れており、また変化もより緩やかであった。この回においては、Sb、Crの濃度はほとんど変化せず、はっきりとした濃度ピークが見いだされた他の回とは異なっていた。

5. 3. 2 微量元素流出と溶存有機物流出

以上の検討から、金属元素と希土類元素では、少なくとも部分的には、流出機構が異なっていることが示唆される。希土類元素は溶存有機物と錯形成をして流域土壌から移行することが報告されている。これは、遷移元素である希土類元素の特徴の反映と解釈できる。Cr、Cu等の遷移金属も同様に溶存有機物との錯形成能は高い。そこで、溶存有機物との関連を調べた。

本稿では、溶存有機物を紫外吸光度・蛍光強度という分光特性で特徴づけた（4章実験方法参照）。図5.3の各降水時実験における、それらの時系列変化から、降水時の河川流量の増減に伴って紫外吸光度・蛍光強度も増減することが分かった。このことは、両者で代表される溶存有機物も降水時の流出が増加することを意味している。紫外吸光度・蛍光強度の時系列変化を注意深く見ると、それらのピークは流量のピークより遅れて出現しており、しかも、その増減は希土類元素濃度の増減に類似していることが見いだされた。

この類似性をよりはっきりさせるために、各降水時実験について、希土類元素及びCu、Sbの濃度と紫外吸光度（280 nm）を両軸に取ってプロットした（図5.5 - 図5.8）。各回に共通するつぎのような特徴が見いだされた。まず、希土類元素濃度と紫外吸光度は連動して増減した。一方で、降雨初期に吸光度が僅かに増加する間に、特定の金属元素（Cu、Cr、Sb等）では、多くの場合に濃度が大きく増加してピーク濃度に達した。結果として、元素濃度-吸光度の2元図上で、希土類元素濃度では直線的な往復線に近い形状に、特定の金属元素では円状のプロットとなった。第3回実験、第4回実験のCuについては、金属元素プロットでは流量減少期に左下がりの線分をなす部分が認められる。このことは、その部分では、金属元素濃度の減少が溶存有機物の濃度の減少と単純に同調していることを示唆している。

5. 3. 3 水流出成分と溶存有機物

図5.3、図5.4の流量には水素同位体比で分離した降水流出成分の寄与を示している（図中の流量でSと記した部分）。各回の降水の同位体比の変動性のために、同寄与の推定が時系列軸上で部分的になっている。推定された降水流出寄与のピークは、全流量のピークよりも時間的に遅れていることが分かる。本研究では降水流出成分は土壌表層を横方向に通過して発生すると考えている。そこで、同成分は土壌表層に多い有機物を、地下水流出成分よりも多く含むことが推察される。降水流出成分のピーク、溶存有機物濃度（吸光度）のピークの出現時間が、ともに全流量ピークよりも遅れて、互いに近くなっていることは、この推察を支持している。ただし、両者の出現時間は非常に良く一致しているとまでは云えない。これまでの実験結果では、降水流出成分のピークが溶存有機物ピークよりも明らかに先行している。この理由については不明である。

5. 3. 4 河川水中溶存有機物の由来

河川に流出する溶存有機物の由来を知るために、河川水中と土壌水中の溶存有機物の分光特性比較を行った。図 5.9 は、第 4 回降水時実験における、蛍光強度と溶存有機炭素濃度 (DOC) を比較したものである。土壌水の採取深さは、この図の試料では 20 cm である。この図で蛍光強度には、河川水試料で最も特徴的な発光 (励起光 330 nm、蛍光 430 nm) を選んでいる。河川水については、下流の定点の試料である。降水時の河川水では降水前後に比較して、DOC と蛍光強度どちらも高くなった。また、両者は概ね直線関係を有して増加・減少した。このことは、流量増加期間・流量ピーク期間・流量減少期間という期間に依存せずに、単位炭素量あたりの蛍光強度がほぼ一定の性質を持った溶存有機物が降水時に流出したことを示唆している。

一方、土壌水試料のプロットは、河川水試料のプロットを外挿した付近から離れて散在している。このことは、単位炭素量あたりの蛍光強度という指標で溶存有機物を特性づけた場合に、土壌水試料は河川水試料と異なっていることを示唆している。

図 5.10 は、蛍光強度と紫外吸光度 (280 nm) により、土壌水と河川水の特徴比較を各降水時実験について示したものである。「土壌水」として記した試料は採取深さ 20cm、または 5cm で、複数地点の分析結果を含んでいる。「河川水」として記した試料の大部分は下流の定点で採取したものであるが、冬季に小田川の上流部から下流部まで採水した河川水試料 (一部は湧水試料) の結果も示してある。この図からも、土壌水試料の分光特性に関するプロットが採取機会によって散在することが分かった。

以上の結果については、2つの解釈が成り立つ。1つは、降水時に河川に流出する溶存有機物のソースを本実験では捕捉できていない、という解釈である。もう一つは、土壌水中に不均質に局在する有機物が河川水では混合してほぼ均質な特性の有機物集団を作るという解釈である。後者の解釈では、土壌水試料のプロットは散在しても、平均的には、河川水試料のプロットの延長上に位置することになる。本実験では、土壌水試料の採取地点が実質的に 1 地点 (地点 e) であり、地点数が決定的に少なく、結論的な解釈を導くことは難しい。

図 5.10 において土壌水試料のプロットが散在していることは、土壌水試料相互の間でも採取地点・採取日により性質が異なることを意味している。例えば、図に示した「地点 e-上部 1」と「同 2」は 20cm しか離れていないが、このように、それぞれ分光特性、DOC 濃度が異なり、日変化も相違している。この土壌水試料間に見いだされる相違は、土壌の性質 (透水性・含有有機物等) が局所的に大きく異なるためと推察される。実際、土壌水についての同位体比分析の結果も、土壌の透水性が局所的にかなり変動していることを示唆している。

5. 4 土壌水の関与

5.2 節では、降水時の河川流出を降水と地下水との 2 成分混合概念で整理した。ここでは、河川へ流出する地下水への土壌水の関与の可能性を水素同位体比・酸素同位体比の分析結果から検討した。

5. 4. 1 酸素同位体比・水素同位体比ダイアグラム

(1) 河川水

第 2 回降水時実験試料について、酸素同位体比・水素同位体比を両軸に取ったプロッ

ト(ダイアグラム)により、同位体比から見た河川水の特性的経時変化を調べた(図 5.11)。このように同位体比の変動を詳細に調べると、河川水のプロットは図上で主に縦方向に変動し、降水と地下水の単純な 2 成分混合の場合に期待される対角線に沿った変動とは少し異なっている。

両同位体比を河川水、雨水、土壌水で対比したダイアグラムを図 5.12 に示した。参考のために冬季の河川水試料等も同時にプロットした。ここで、冬季の河川水は基底地下水に近いものと考えた。図において、河川水の同位体比は図中に示した矢印に沿って変動した。第 2 回降水時実験で流量が最も多い時間帯のプロットは、雨水の平均値と、その冬季河川水の重心とを結ぶ直線上(図中直線)にある。つまり、その時間帯については、降水と深部地下水の 2 成分をエンドメンバーとして河川水が形づくられているように思われる。一方で、その流量ピークの前後の河川水プロットの動きを見ると、ピーク前では、その直線からは少し離れた位置から出発して、上記の直線に載るように移動し、ピーク後には、その直線から離れて、初めの位置へ戻っている。その位置付近には、土壌水のプロット(部分)が存在する。以上をまとめると、この第 2 回降水時実験においては、河川水はつぎのような成分混合で推移したと解釈できる。

- i) 降水前：土壌水の影響を少し受けた同位体比を持つ。
- ii) 降水 - 流量ピーク：土壌水の影響がより小さくなる方向で、そして深部地下水と降水との 2 成分混合ラインに近づく方向で変動する。
- iii) 流量ピーク：上記の 2 成分混合ライン上で変動する。
- iv) 流量ピーク - 逓減期間：深部地下水と降水の両者の直接影響は次第に小さくなり、再び、土壌水の影響を僅かに受けた、そして季節的にもこの時期の河川水の同位体比に漸近する。

(2) 土壌水

他の実験機会(秋季平水時、第 3 回降水時)の土壌水試料のいくつかでは冬季河川水試料付近を通る仮想的な地域天水線上から下方にはずれている。また、研究地域の河川水に比較して大変小さい δD 、 $\delta^{18}O$ を示す試料も見いだされた(図 5.12)。土壌水が河川水と異なる同位体比を取る理由として、一般には、土壌水の一部の蒸発による同位体比の変動や以前の雨水を保持していることが考えられる。蒸発による同位体比の変動では、ダイアグラムの上で、天水線よりも勾配の緩い「蒸発線」に沿った変化となり下方にはずれることになる。また、以前の雨水を保持している場合には、その雨水に応じたさまざまな同位体比が見いだされることになり、 δD 、 $\delta^{18}O$ が河川水に比較して大きく離れる場合も起こり得る。同図に示す土壌水の同位体比プロットには、この 2 つの事例がともに存在しているように考えられる。

5. 4. 2 土壌水中の微量元素濃度

地点 e、b での土壌水中の微量元素濃度(Cr、Cu、Sb)を図 5.13 - 図 5.15 に示す(第 2 回降水時実験試料)。同図には、比較のために河川水中の濃度の変動を示した。土壌水中の濃度は河川水中の濃度と同様な濃度レベルであるので、河岸の土壌水が河川水に対して微量元素を供給していること、または、その逆も断定できない。両地点以外の土壌水採水地点(c、f)における土壌水中微量元素の分析結果では、河川水中の濃度をほとんどの元素で超えている。すなわち、濃度の観点からは、河川水に対して供給の立場に

ある。ただし、例えば f ではイオン組成や pH も、河川水の平均からは大きくはずれているので、こうした地点が小田川流域で多数分布しているとは考えられない。地点 c, f は調査した小田川の渓谷状の場所にあり、局所的な岩質の影響と考えられる。

5. 5 流出機構の推定

流量等の現地観測、元素分析、同位体比分析、そして同位体比分析の結果を総合し、金属元素、希土類元素についての河川流出機構を推定した。しかし、金属元素の溶存有機錯体としての流出など、実験的検証を要する事項を含んでいる。

5. 5. 1 金属元素の流出特性

元素濃度-吸光度の2元図（図 5.5 - 図 5.8）で、いくつかの金属元素が示す円状の変化は、その降雨時河川流出が2つの機構により形成されることを示唆している。第1の機構は、河川の流量増加に時間遅れなく呼応して、早い濃度増加を示す。第2の機構は、時間的に第1の機構より遅れて出現し、よりも緩い立ち上がりで、より低い濃度を与える。第1の機構の特性、早い応答、ヒステリシスの存在（増水時に濃度が高く、減水時に低いこと）を考慮すると、第1の機構としてつぎの内容が考えられる。

a. 陸上にある可動性の高い成分が、初期の降水で動かされる機構（樹木、葉、土壌の落葉、河岸に近い裸地、傾斜面などの表面に存在する成分）；

b. 河底堆積物に貯留されている成分が、河川の総流量の増加で巻き上げられ、その結果、河川水中の溶存態成分濃度増加がもたらされる機構。

第2の機構については、溶存有機物と着目元素が錯体を形成して流出する機構が推定される。本稿で述べた各降水時実験の時系列試料について、有機物の指標として分光特性を測定した結果に基づけば、第2の機構は第1の機構よりも遅れて働くと考えられる。

5. 5. 2 希土類元素の流出特性

第2の機構は、希土類元素の流出にも強く関係していると考えられる。土壌から水系への希土類元素の流出と有機物の流出が同期することについては、すでにいくつかの報告がある³⁶⁻³⁸⁾。たとえば、降水の多い季節に湖水中の希土類元素と自然有機物が同期して増加することが Riise ら^{36),37)}により報告されている。また、Anderson ら³⁸⁾は降雨時に河川水中の希土類元素が時系列で増加することを報告している。ただし、後者の報告では有機物の関与を論じていない。これら既往の報告に対して、本研究では、降雨時の希土類元素濃度変動に加えて、有機物濃度変動を実際に分光特性により把握し、より明確に両者の関係を示した。また、その有機物の流出は降水の表面流出により促されていることを、同位体比による河川流出水の成分分離から示唆している。

5. 5. 3 微量元素の流出機構

これまでの議論により、小田川集水域における微量元素の流出機構として以下の事項が示唆される（図 5.16）。

すなわち、降水前の段階では、Cr、Cu、Sb 等の大気降下物由来の金属元素は、植生を含めた土壌表層と河底堆積物に存在している。土壌表層には、風化により岩石から遊離した希土類元素、そして腐植物質を主とする有機物も存在している（図 5.16(a)）。降水時の現象は、降水の初期、中期、後期の段階に分けられる。降水初期には、地表に届い

た降水の多くは土壌下層・岩石層に鉛直浸透する。一方で、一部の降水は、植生・裸地・傾斜面から着目金属元素を動かし、これを伴って河川に流出する（同図(b)）。中期では、この作用が活発になると同時に、それらの植生・裸地・傾斜面における着目金属元素の貯留量が減る。このため、元素の流出量は単調増加にはならない。一方、降水の浸透による透水性の変化により、地下水水位の上昇が起きる。この結果、地下水の河川流出が増大する。河川の全流量はピークに達する。流量増加は河底堆積物の巻き上げを起し、河川水中の溶存態成分の濃度も増加する（同図(c)）。後期になると、土壌下層・岩石層の含水率が上昇するために、降水の鉛直浸透は小さくなる。代わって、地表に到達した降水は横方向に土壌表層を流れる。この流出により、土壌表層に存在していた金属元素、希土類元素は同じ表層の場にある溶存有機物と錯体を形成して、河川に流出すると推定される（同図(d)）。

降水時に河川流出が促進される有害性金属 Cr、Cu、Sb の起源について文献資料（土壌、大気降水物、大気浮遊塵、上部地殻の元素組成）に基づき検討を行った（付録3）。この結果、それらの金属の多くが人為利用に由来することが推定された。

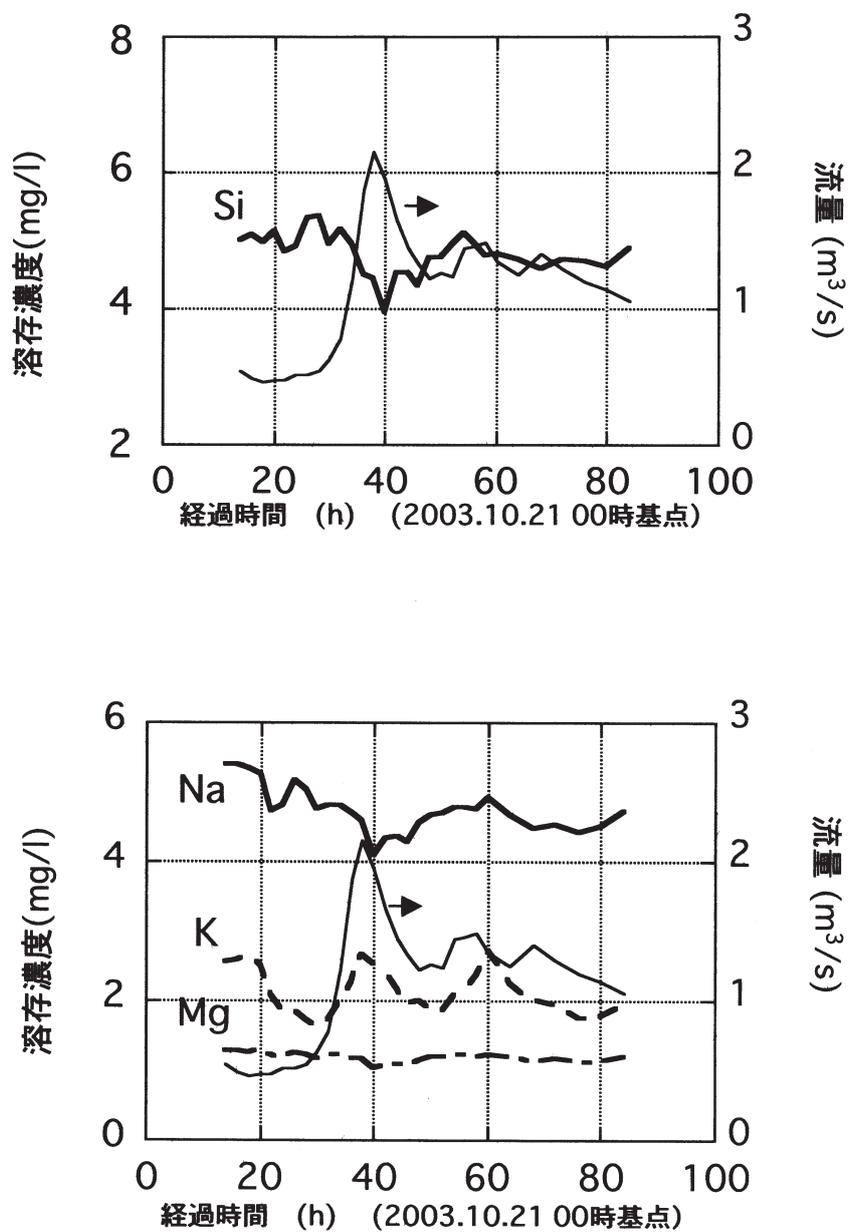


図 5.1 第2回降水時実験における河川水中主要溶存元素濃度の経時変化
(地点：小田川定点)

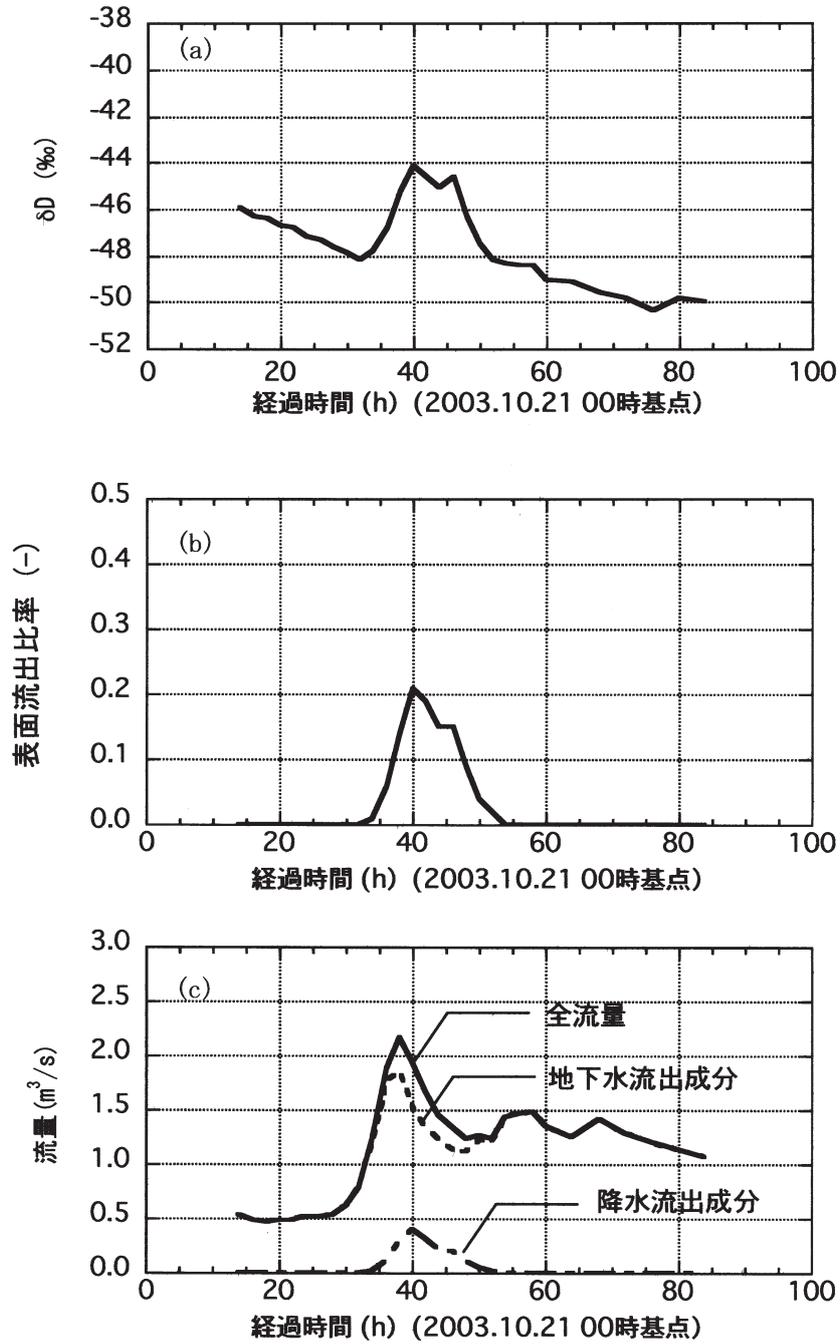


図 5.2 第2回降水時実験における河川水の流出成分分離
 (a:河川水の水素同位体比；b:表面流出比率；c:流出成分別流量)
 (地点：小田川定点)

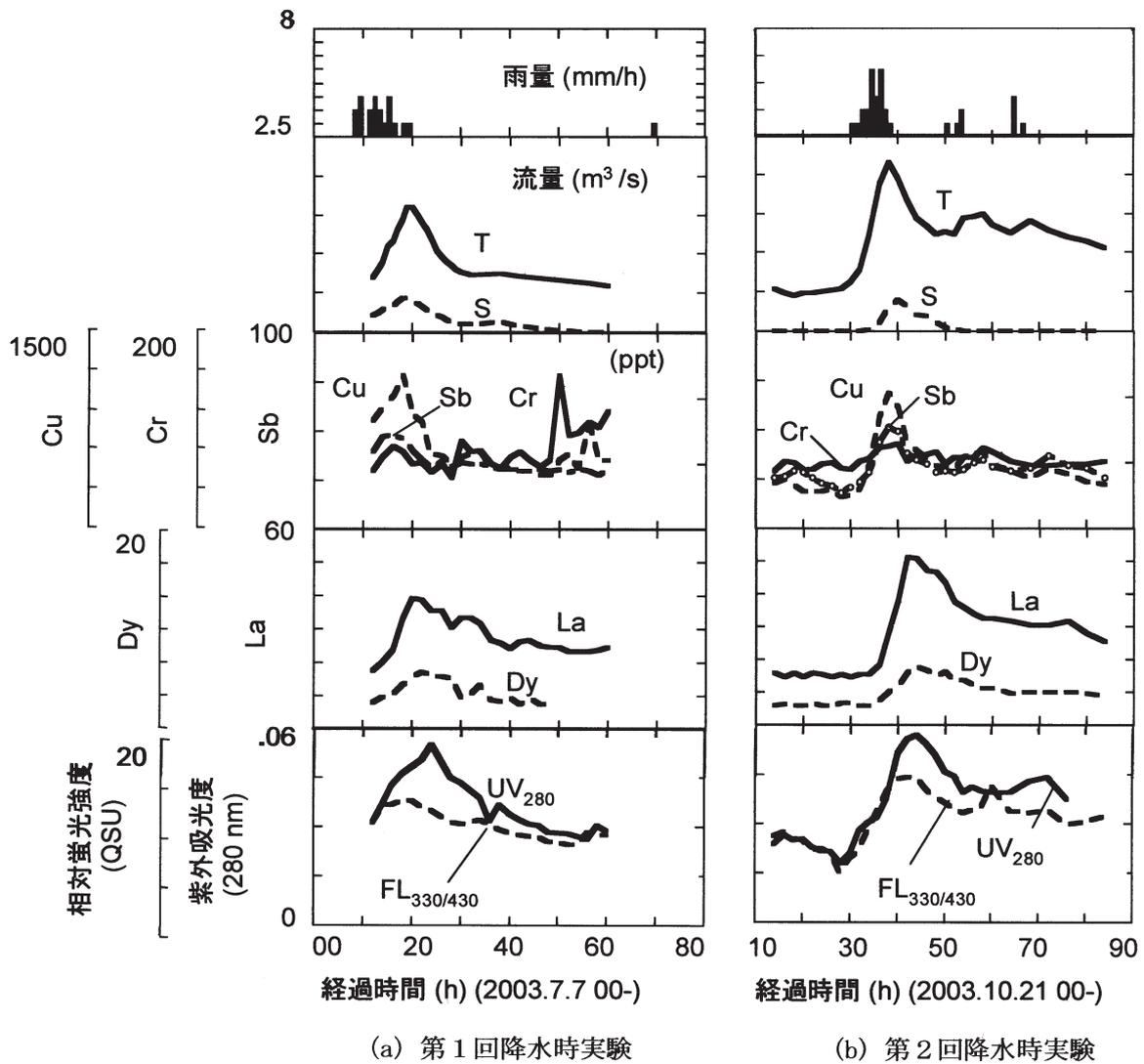


図 5.3 降水時実験における雨量・成分流量・溶存元素濃度・分光特性の相互比較(1)
 (流量図において、T は全流量 (=地下水流出成分+降水流出成分)、
 S は降水流出成分を示す。FL_{330/430}は励起光330 nm、蛍光430 nmの相对蛍光強度を示す。
 UV₂₈₀は280 nmにおける紫外吸光度を示す。)

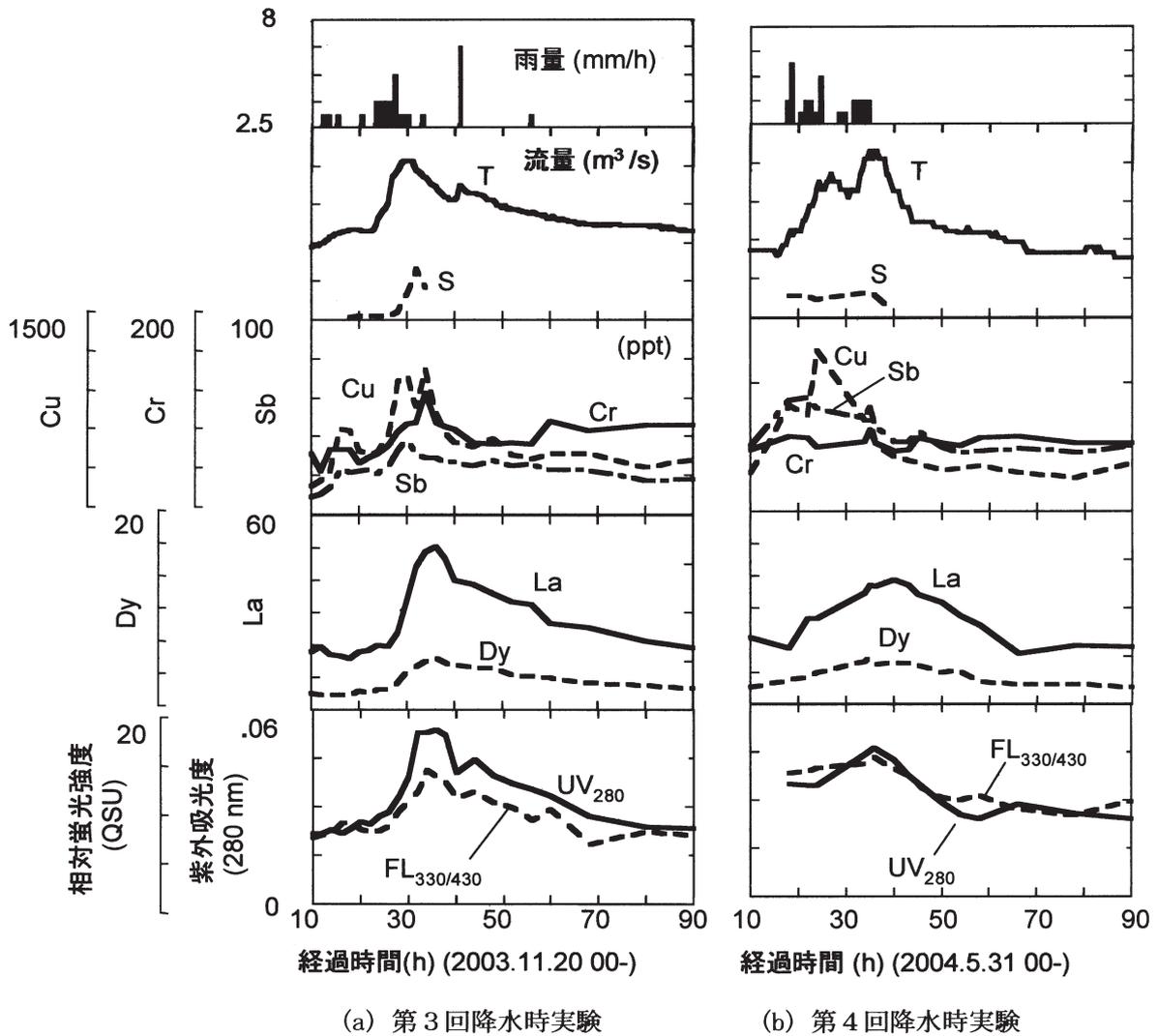


図 5.4 降水時実験における雨量・成分流量・溶存元素濃度・分光特性の相互比較(2)
 (流量図において、T は全流量 (=地下水流出成分+降水流出成分)、
 S は降水流出成分を示す。FL_{330/430}は励起光330 nm、蛍光430 nmの相対蛍光強度を示す。
 UV₂₈₀は280 nmにおける紫外吸光度を示す。)

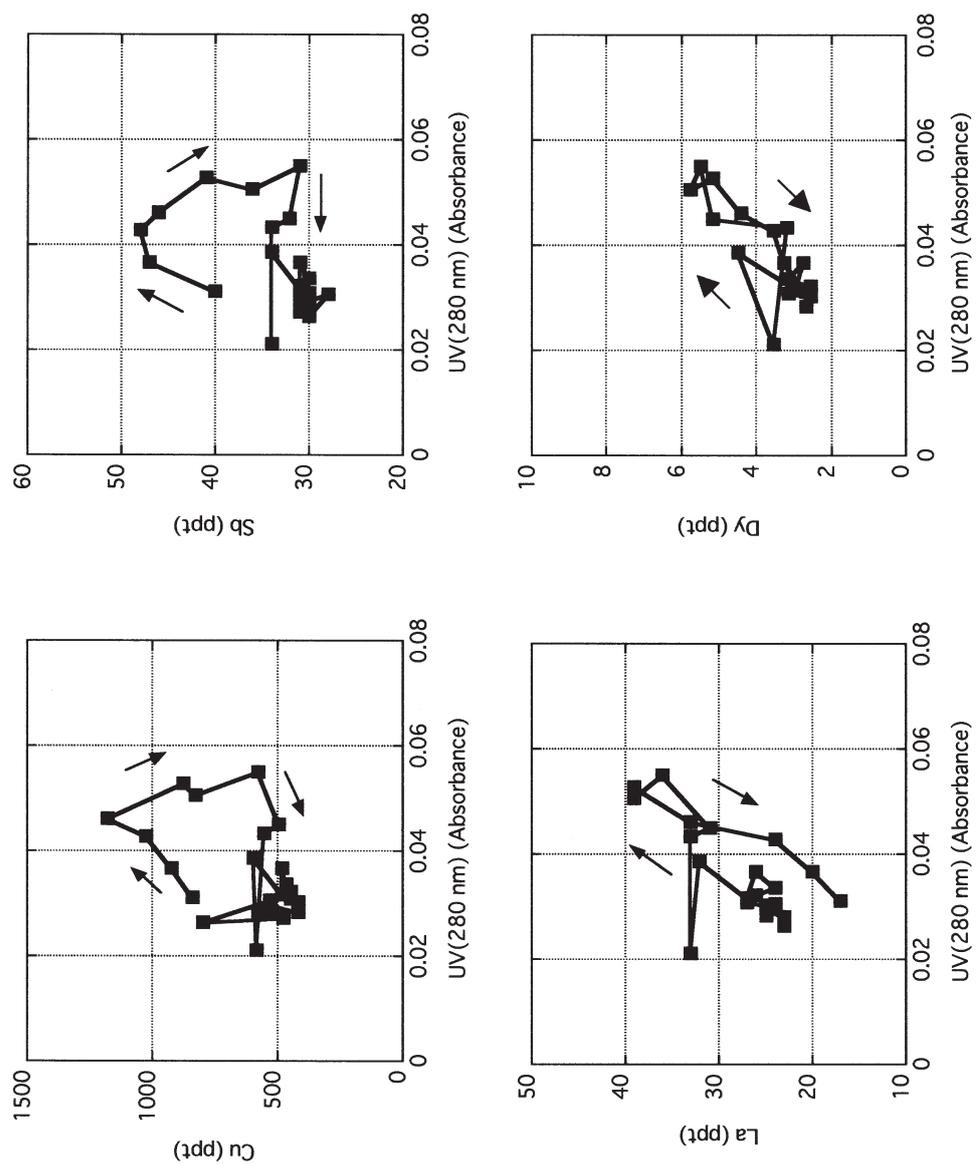


図 5.5 第1回降水時実験における代表元素濃度と紫外吸光度との連動性
(矢印は時間順序を示している。)

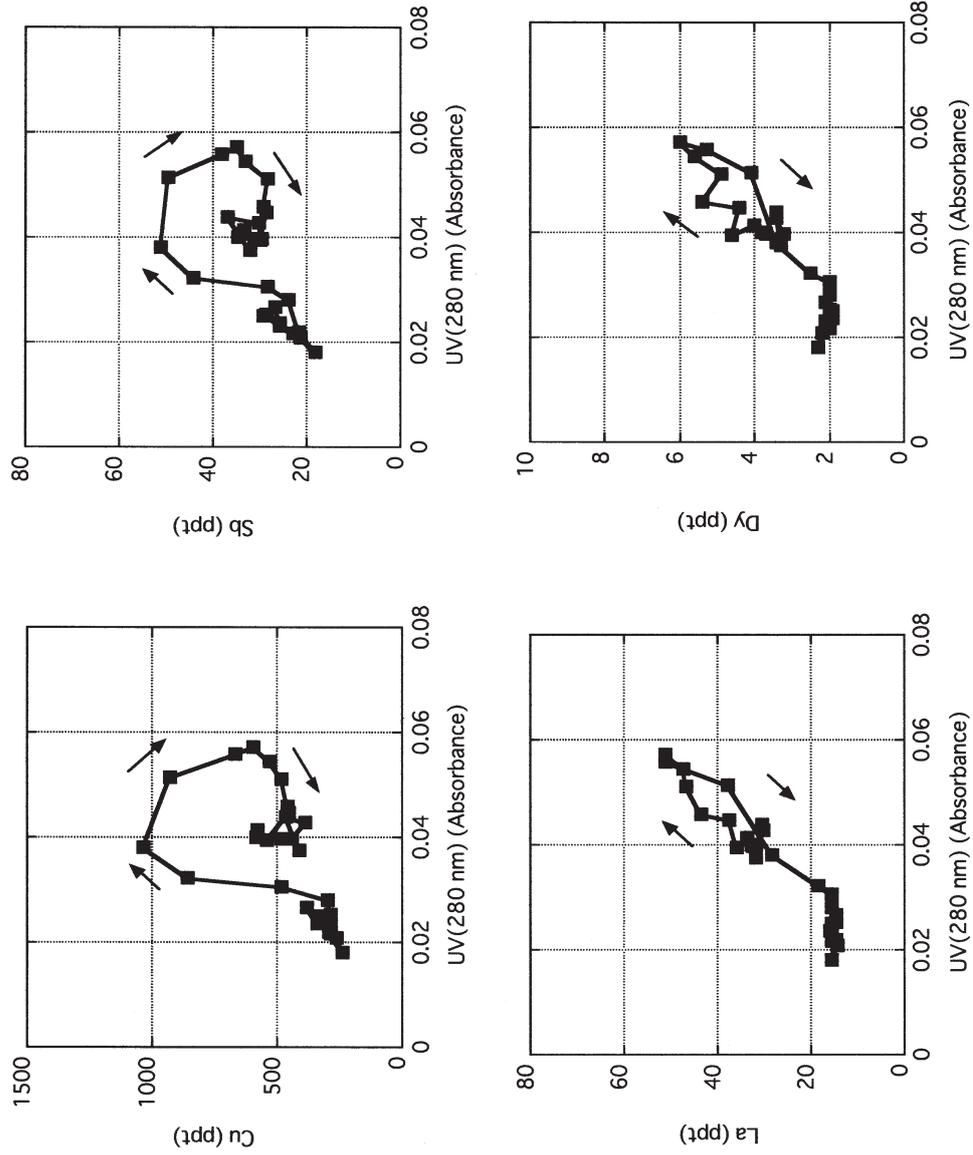


図 5.6 第2回降水時実験における代表元素濃度と紫外吸光度との連動性
(矢印は時間順序を示している。)

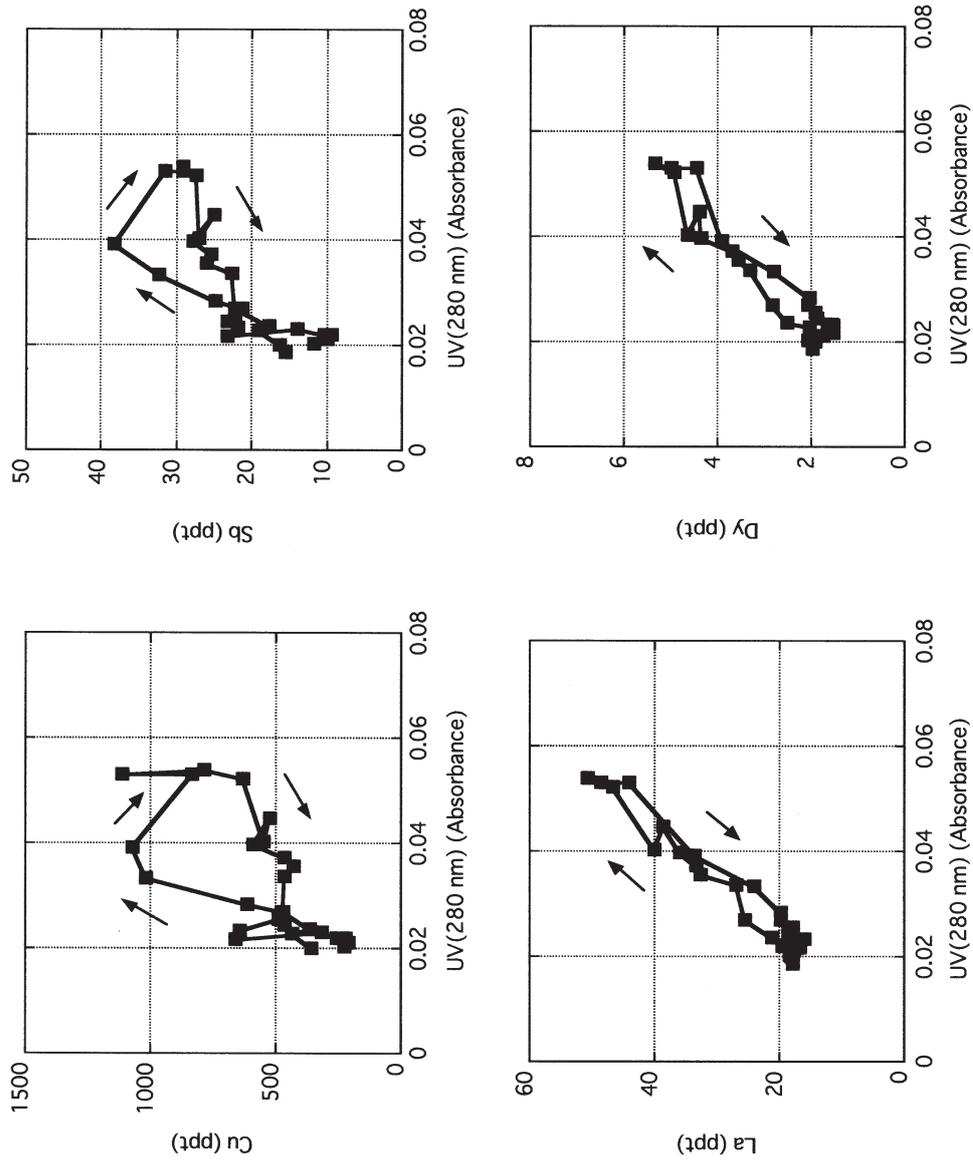


図 5.7 第3回降水水時実験における代表元素濃度と紫外吸光度との連動性
(矢印は時間順序を示している。)

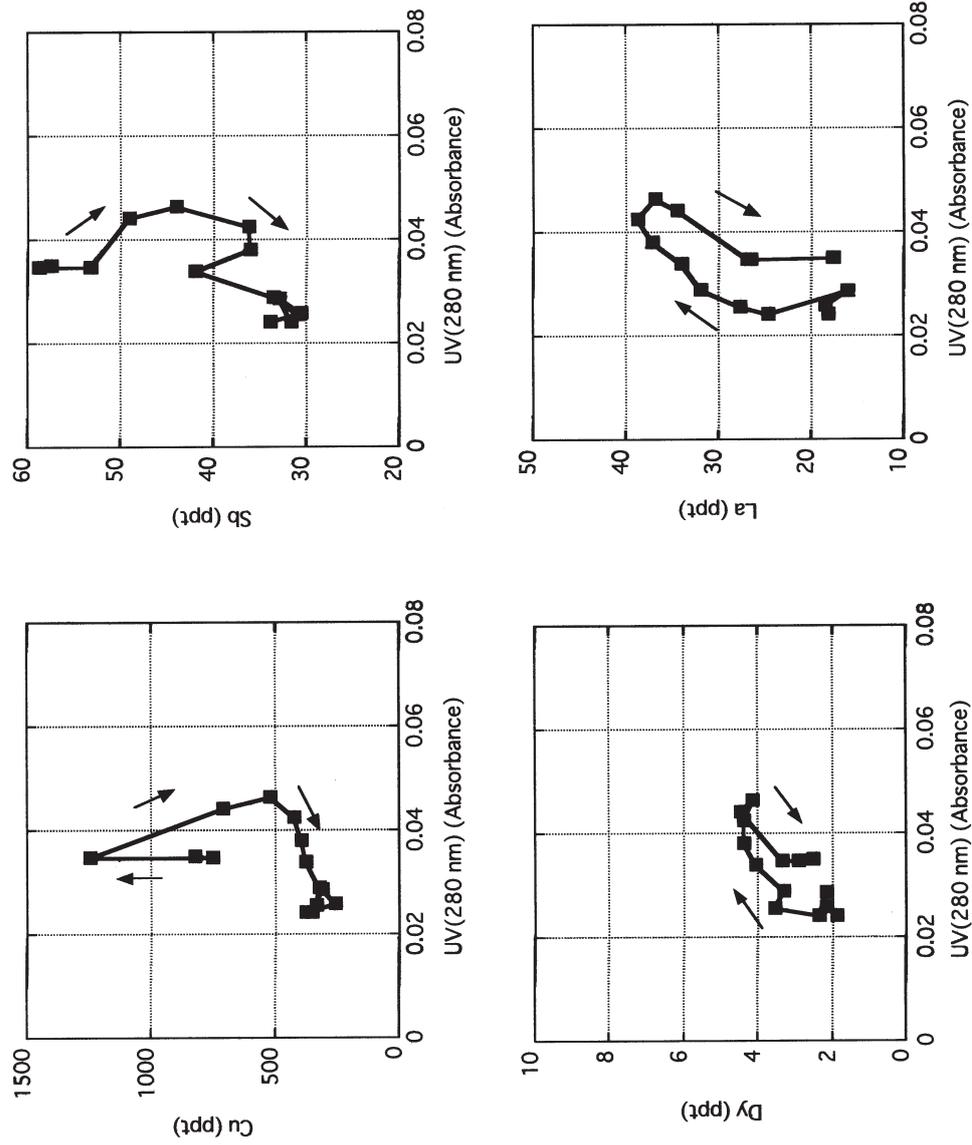


図 5.8 第4回降水水時実験における代表元素濃度と紫外吸光度との連動性
(矢印は時間順序を示している。)

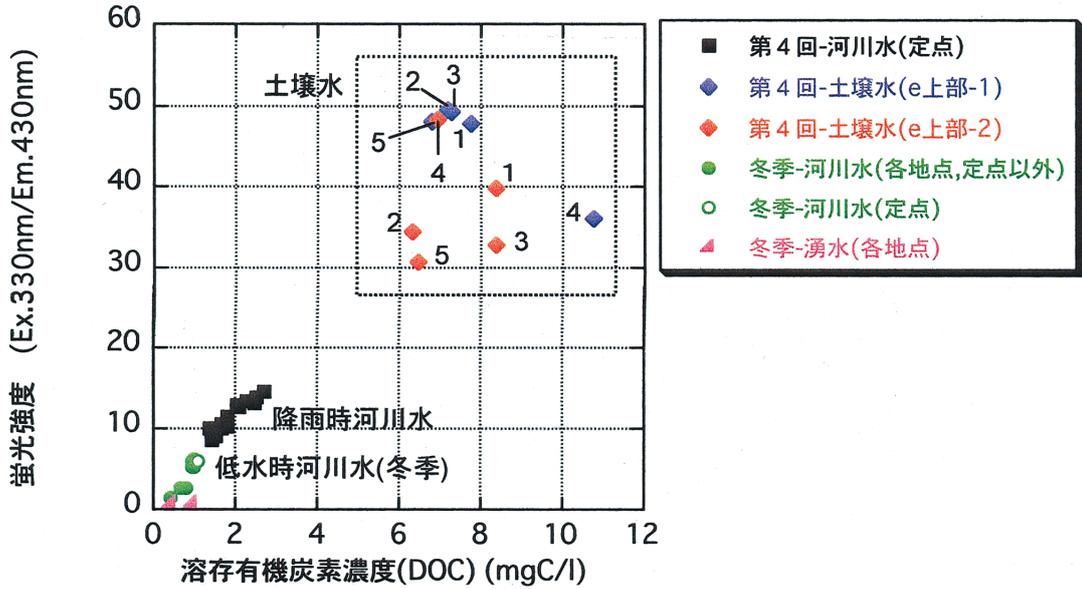


図 5.9 第4回降水時実験における河川水と土壌水の蛍光強度と溶存有機炭素濃度の比較
 (数字の順に変動。降雨日には、数字3が対応。各々ほぼ1日間試料。)

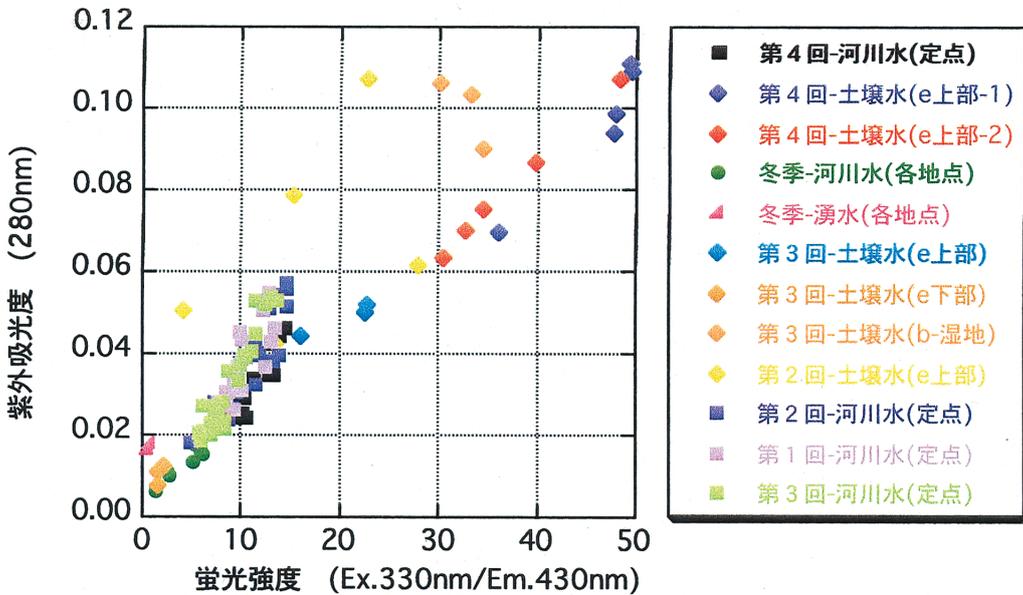


図 5.10 蛍光強度と紫外吸光度による河川水と土壌水の特性比較
 (凡例において、回数は降水時実験回を示す。かっこ内は採水地点を示す。)

This is a blank page.

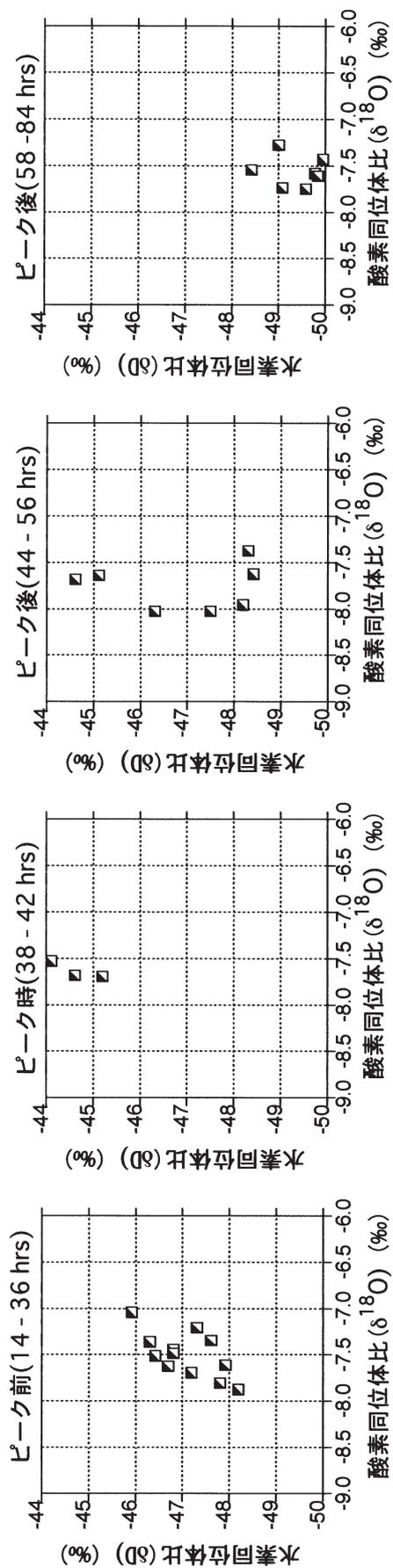


図 5.11 第2回降水時実験における河川水の水素・酸素同位体比ダイアグラム

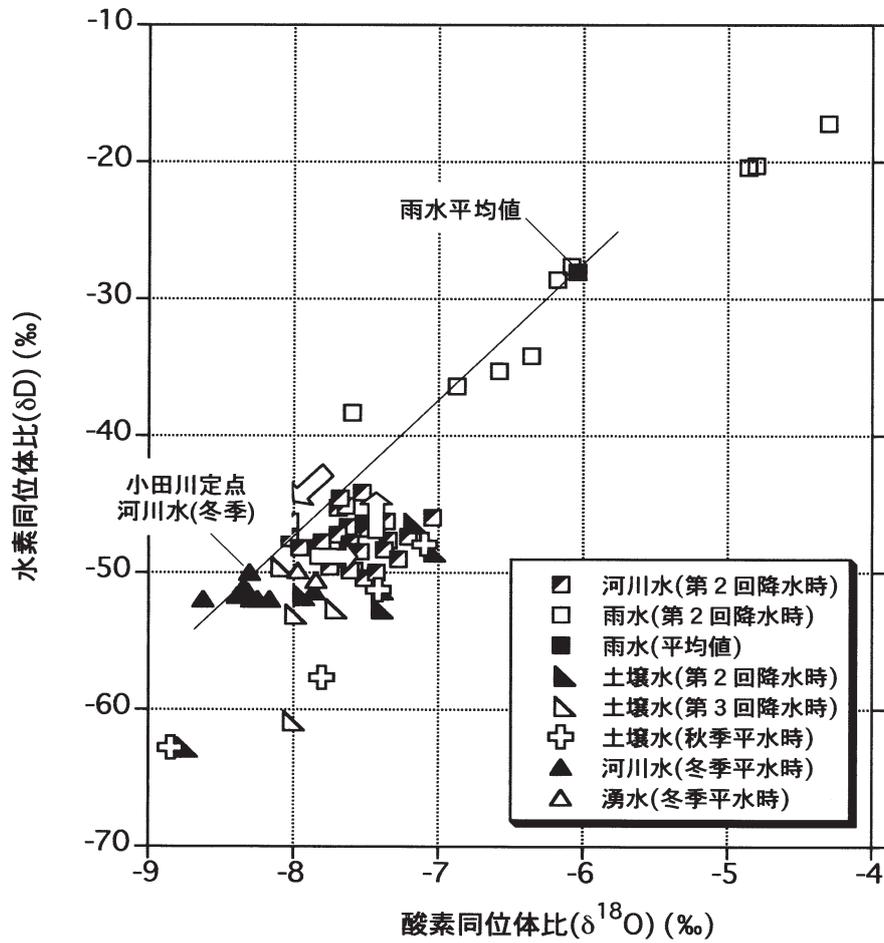


図 5.12 第2回降水時実験における河川水、雨水、土壌水の水素・酸素同位体比比較

(直線、矢印については本文参照。第3回降水時実験土壌水、秋季平水時土壌水、冬季平水時河川水、冬季平水時湧水についてのプロットも参考のために示した)

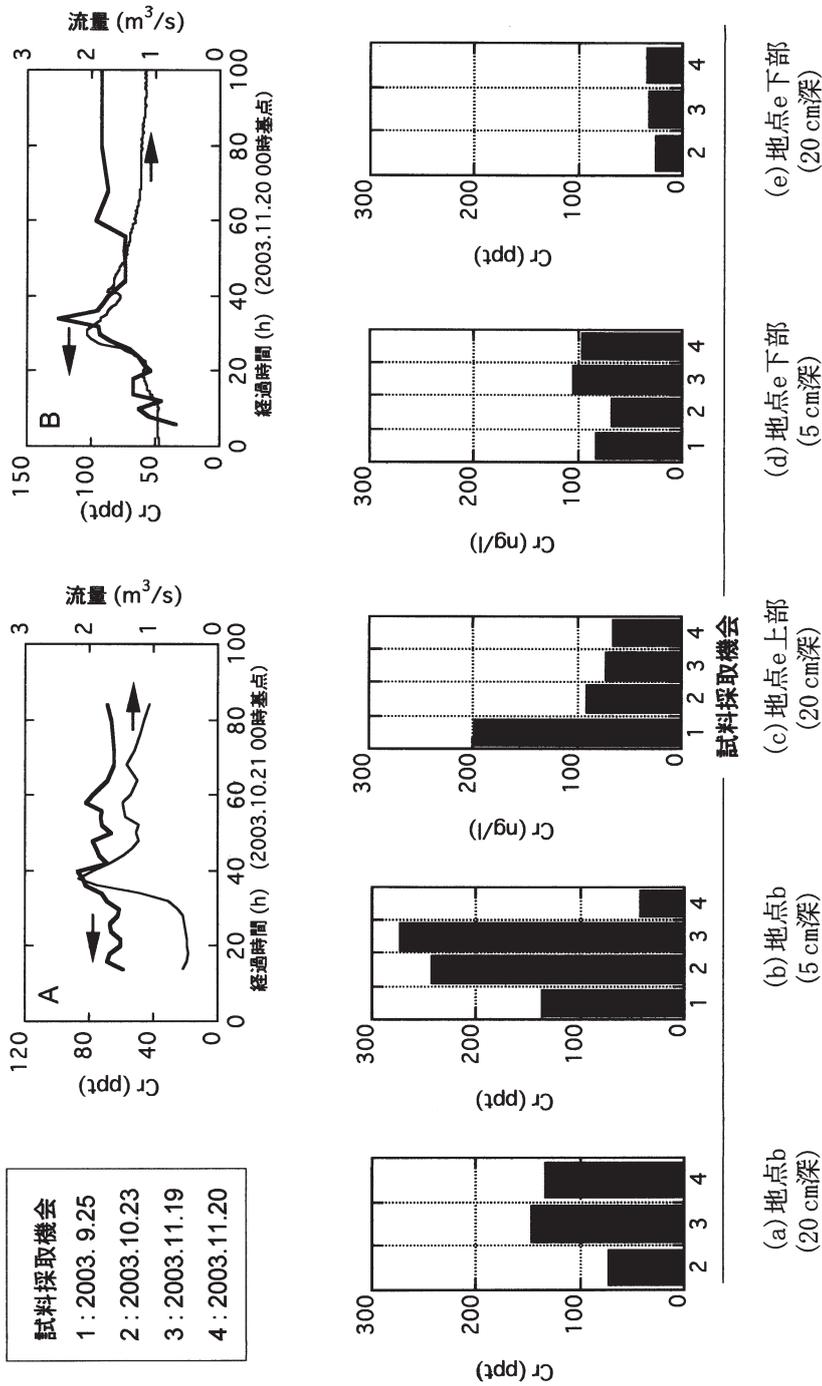


図 5.13 土壌水中の微量元素濃度(1) - Cr -

(比較のために降水時の河川水中濃度を示した：A：第2回降水時実験；B：第3回降水時実験)

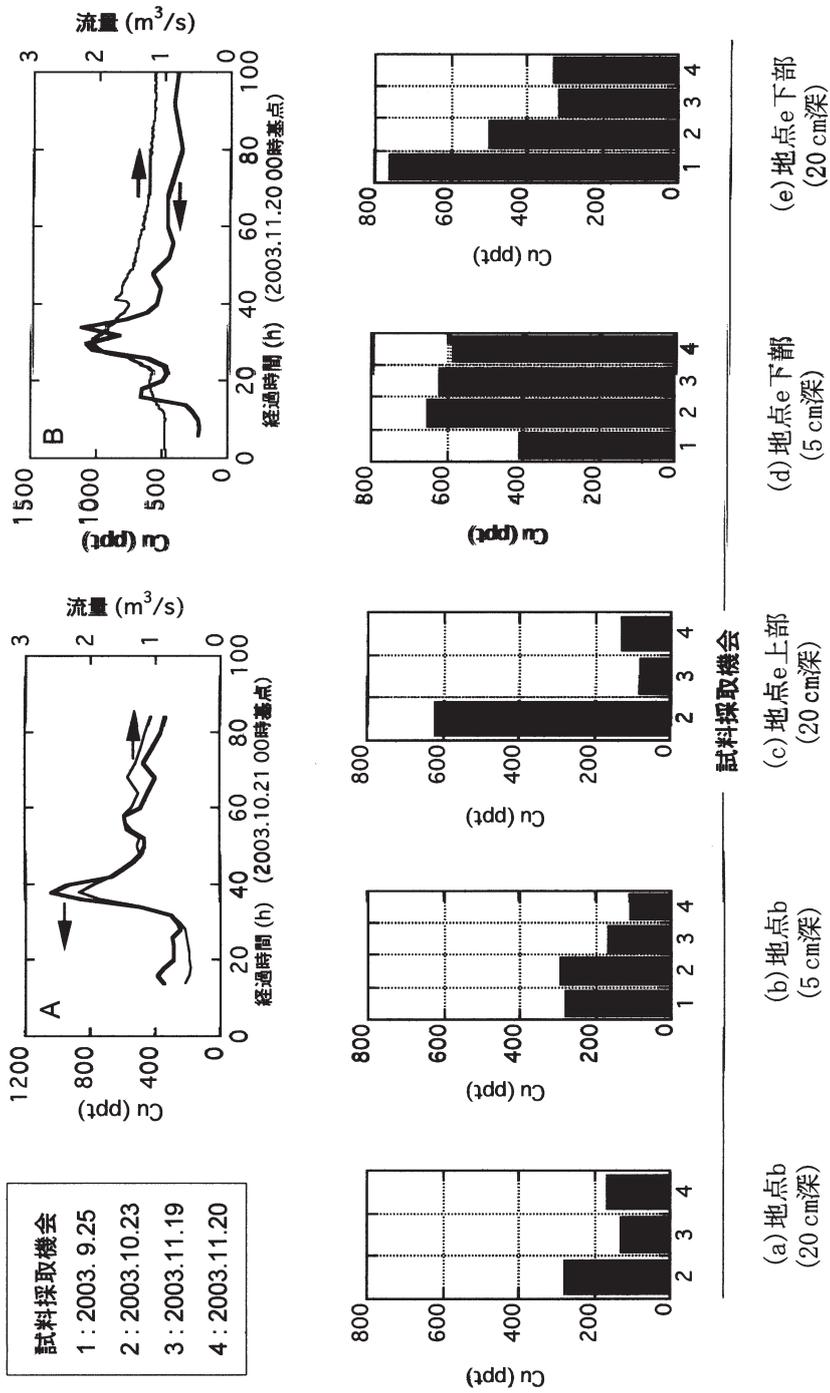
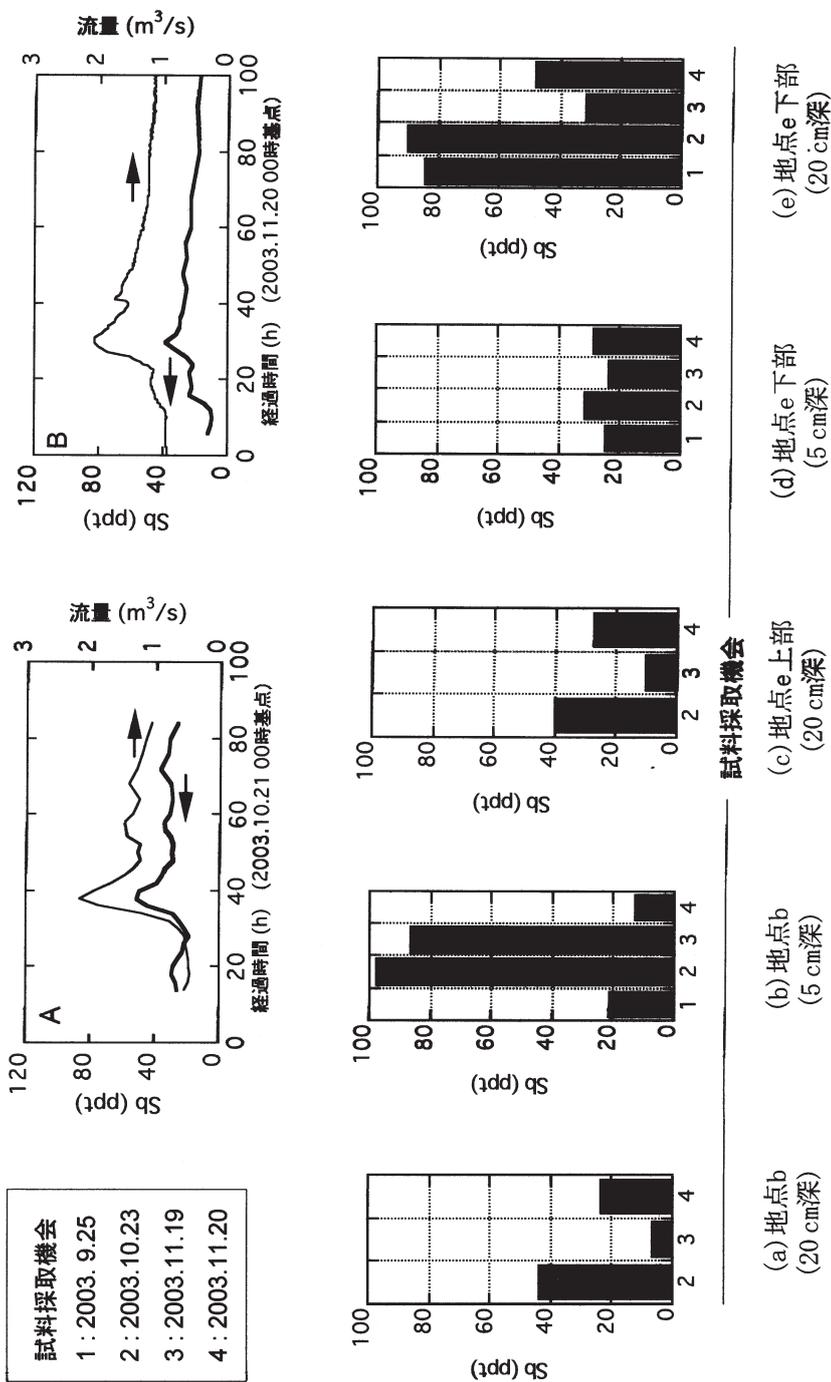


図 5.14 土壌水中の微量元素濃度(2) - Cu -

(比較のために降水時の河川水中濃度を示した：A：第2回降水時実験；B：第3回降水時実験)



This is a blank page.

This is a blank page.

表 5.1 着目した有害性微量元素と希土類元素の降水時流出負荷

降水時実験	降水量 mm	期間*	日流出負荷**					
			河川水 $10^3 \text{ m}^3 \text{ km}^{-2} \text{ d}^{-1}$	Cr	Cu	Sb $\text{mg km}^{-2} \text{ d}^{-1}$	La	Dy
第1回 (2003.7.7-9)	19	降水前	0.9	90	700	60	27	4
		降水時	2.4	190	1500	80	70	10
第2回 (2003.10.21-24)	26	降水前	1.0	70	350	30	16	2
		降水時	2.3	160	1300	80	80	10
第3回 (2003.11.20-23)	27	降水前	1.5	70	460	30	40	5
		降水時	3.2	260	1900	80	100	10
第4回 (2004.5.31-6.1)	27	降水前	1.1	120	580	70	40	3
		降水時	2.8	210	1600	120	80	10

*「降水前」：降水直前。「降水時」 降水による流量増加が10%を越えてから60時間（第1回では40時間）までの区間。

*「降水時」の60(40)時間の累積負荷を比較のために1日あたりに換算した。

表 5.2 第2回降水時実験における元素の累積流出負荷

元素	累積流出負荷(g/km^2) *		
	ML_{total}	ML_{old}	ML_{new}
Na	26×10^3	25.7×10^3	0.3×10^3
Si	7.6×10^3	6.0×10^3	1.6×10^3
Cr	0.4	0.34	0.06
Cu	3.2	1.5	1.7
Sb	0.19	0.12	0.07
流出高 (mm)	5.6	5.3	0.3

* 流域面積 (40 km^2)で規格化した数値である。

表 5.3 第2回降水時実験における降水流出成分の累積流出負荷割合

降水流出成分 の負荷割合* (%)	微量元素	主要元素
0-10%	Li, B	Na, Mg, Ca
10-20%	V, Cr, Fe, Ni, Rb, Cs	K, Si
20-30%	Zn, As, Pb	
30-60%	Al, Ti, Cu, Y, Sb, U, Th	

* ML_{total} に対する ML_{new} の割合 (本文参照)

6. 結 論

本研究では、大気降下物に含まれる有害性元素が土壤に滞留した後、どのように河川系に運搬されるのか、その機構を野外実験を通じて探索した。有害性元素の動態を予測する数値モデル開発への貢献を前提として、推定される機構をシンプルに表すことを目指した。

北関東の小田川における 2003 年から 2004 年にかけての実験の結果、潜在的有害性の大きな数種の金属元素(溶存態)の河川流出負荷が降水時に増加することを見いだした。元素濃度の時系列変動、水の同位体比を用いた河川水の流出成分分離、溶存有機物流出の関与の考察の結果、それら金属元素の河川流出が 2 つの機構により形成されることが示唆された。第 1 の機構は、河川の流量増加に時間遅れなく呼応して、早い濃度増加を示す。第 2 の機構は、時間的に第 1 の機構より遅れて出現する。本研究では、それらの機構を現象的に、あるいは「機能的」に捕捉することができた。しかしながら、その機構の具体的なプロセスについては、さらなる実験的根拠が必要である。可能性のあるプロセスとして、第 1 の機構については

a. 植生・傾斜地の土壤表面などに滞留する着目元素の一部が、少量の初期降水でも効率的に、そして迅速に運搬される過程；

b. 河底堆積物に貯留されている成分が巻き上げられ、溶存態濃度増加に至る過程などが考えられる。

第 2 の機構については、溶存有機物と着目元素が錯体を作り流出する機構が推定される。

以上の知見は、大気から森林集水域に沈着する人為由来金属元素の流出モデルの構築に有用と考えられる。また、大気から沈着する人工放射性核種への応用も期待できる。今後、この数値モデルと観測との融合をさらに進め、物質流出機構の検証を進めて行く予定である。

謝 辞

本研究における野外実験の実施にあたり、施設・管理地の利用便宜を与えてくださった国土交通省関東地方整備局常陸河川国道事務所、福島県土木事業所、矢祭町建設課に感謝致します。同位体比分析装置の利用では安藤麻里子氏(日本原子力研究開発機構)、熊田政弘氏(同)の支援を、蛍光分析装置に関しては上田正人氏(同(当時))の協力を受けました。狩野直樹氏(新潟大学)は酸素同位体比分析について御教示くださいました。長尾誠也氏(北海道大学)からは、蛍光分析の手法と解釈について助言を受けました。野外実験の遂行では、高田盛生氏(金沢大学(当時))、室内分析については森実武士氏(豊橋技術科学大学(当時))、海谷慎一氏(同(当時))、伊藤静香氏(北海道大学(当時))、浪岡久恵氏(同(当時))に協力いただきました。本研究の実施にあたり研究費の助成を受けた河川環境管理財団に謝意を表します。報告書原稿の作成においては、桜井 聡氏(日本原子力研究開発機構)から多くの助言をいただきました。記して、感謝致します。

参考文献

- 1) 環境庁：“国設大気汚染測定網(NASN)浮遊ふんじんおよび浮遊粒子状物質分析結果報告書”，日本環境衛生センター（編）(1975-1997).
- 2) T. Matsunaga：“The fate of several radionuclides derived from atmospheric fallout in a river watershed”，In: Trace metals in the environment, (B. Markert & K. Friese eds.), Elsevier Sci. Ltd., pp.549-564 (2000).
- 3) Y. Sanada, T. Matsunaga, N. Yanase, S. Nagao, H. Amano, H. Takada, and Y. Tkachenko：“Accumulation and potential dissolution of Chernobyl-derived radionuclides in river bottom sediment”，Applied Radiation and Isotopes, 56, 751-760 (2002).
- 4) Vargo G. J. (ed.)：“The Chornobyl Accident: A Comprehensive Risk Assessment”，Battelle Press, Columbus (2000).
- 5) 高田 秀重：“陸域から沿岸海域への物質フラックス”，沿岸海洋研究, 34, 111-117(1997).
- 6) H. Nagai：“Incorporation of CO₂ exchange processes into a multilayer atmosphere-soil-vegetation model”，J. Appl. Meteor., 44, 1574-1592 (2005).
- 7) 永井 晴康, 茅野 政道, 寺田 宏明, 原山 卓也, 小林 卓也, 都築 克紀, 金 庚玉, 古野 朗子：“数値環境システム SPEEDI-MP”，JAEA-Research 2006-057, 日本原子力研究開発機構, 67p. (2006).
- 8) K. Tsuduki and T. Matsunaga：“Importance of hydrological parameters in contaminant transport modeling in a terrestrial environment”，In: Proceedings of International Symposium on Environmental Modeling and Radioecology, Institute for Environmental Sciences, Rokkasho, Aomori, October 18-20, 2006, 65-72 (2007).
- 9) T. Matsunaga, N. Yanase, Y. Hanzawa, K. Tsuduki, and H. Naganawa：“Isotope hydrograph separation for modeling of runoff mechanisms of atmospherically derived chemical and radioactive pollutants”，J. Water & Environ. Technol., 3, 243-252 (2006).
- 10) 松永 武, 柳瀬信之, 半澤有希子, 都築克紀, 上野 隆, 長縄弘親：“水素・酸素同位体を用いた降水時水質形成機構の研究”，平成 15 年度河川整備基金助成事業報告書, 15-1-①-7(研究代表者 松永 武), 44 pp. (2004).
- 11) T. Matsunaga, K. Tsuduki, N. Yanase, Y. Hanzawa, H. Naganawa, I. Takanobu, Y. Toshiro, A. Miyata：“Stream discharge of metals and rare earth elements in rainfall events in a forested catchment”，In: Proc. Int. Symp. Environ. Modeling & Radioecology, Institute for Environmental Sciences, Rokkasho, Aomori, October 18-20, 2006, 243-246(2007).
- 12) Y. Tanizaki, T. Shimokawa, and M. Nakamura：“Physicochemical speciation of trace elements in river water by size fractionation”，Environ. Sci. Technol., 26, 1433-1444 (1992).
- 13) 大橋 優子：“金属・半金属の毒性”，化学物質と環境, エコケミストリー研究会, No.43 (2000.9), pp.1-3 (2000).
- 14) 有菌 幸司：“水環境に存在する重金属(微量元素)の毒性”，水環境学会誌, 22,

- 341-345 (1999).
- 15) C. Kendall, M. G. Sklash, T. D. Bullen: "Isotope tracers of water and solute sources in catchments", In: Solute Modelling in Catchment Systems, (ed. Trudgill S. T.), John Wiley & Sons, Chichester; pp.261-303 (1995).
 - 16) D. M. Harris, J. J. McDonnell: "Hydrograph separation using continuous open system isotope mixing", Water Res. Res., 31, 157-171 (1995).
 - 17) 日野 幹雄・太田 猛彦・砂田 憲吾・渡辺 邦夫: "洪水の数値予報", 森北出版, pp.33-36. (1989).
 - 18) 平田 健正 (研究代表者): "環境同位体からみた土地利用の特性が河川水の水質に与える影響について", 河川整備基金報告書, 2000-1-(1)-12, 河川環境管理財団 (2000).
 - 19) 狩野 直樹, 藍原 弘行, 小島 令, 竹内 香代子, 佐藤 明史, 今泉 洋: "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", RADIOISOTOPES, 52, 65-80 (2003).
 - 20) K. Tsuduki: "Development of a mathematical model to describe the transport of artificial radionuclides and trace elements in a river watershed", In: Consideration for modeling studies in migration of accidentally released radionuclides in a river watershed, JAERI-Review 2003-039, pp.49-55 (2003).
 - 21) 日本河川協会(編): "1998 日本河川水質年鑑", 山海堂, pp.345-351 (2001).
 - 22) 国土庁: "茨城・栃木・東京地域主要水系調査書", 国土庁土地局国土調査課 (1980):
 - 23) 国土交通省 関東地方整備局 常陸河川国道事務所: "環境百科 久慈川", (on line) available from <<http://www.ktr.mlit.go.jp/hitachi/info/kouhou/index04.htm>> (accessed 2006-12-27), 国土交通省 (2006).
 - 24) 国土交通省 (編): "平成 13 年度雨量年表", 国土交通省河川局, 日本河川協会 (2003).
 - 25) National Institute of Standards & Technology: "Report of Investigation, Reference Materials 8535, 8536, 8537", RM 8535, 8536, 8537, NIST (2001).
 - 26) S. Epstein and T. Mayeda: "Variation of ^{18}O content of waters from natural sources", Geochim. Cosmochim. Acta, 4, 213-24 (1953).
 - 27) F. J. Stevenson: "Humus Chemistry -Genesis, Composition, Reactions-", Wiley-Interscience Pub., pp.264-267 (1982).
 - 28) S. A. Visser: "Fluorescence phenomena of humic matter of aquatic origin and microbial cultures", In: Aquatic and Terrestrial Humic Materials (eds. R. F. Christman and Gjessing E. T.), Ann Arbor Sci., 183-202 (1983).
 - 29) S. Nagao, T. Matsunaga, Y. Suzuki, H. Amano, A.V. Kovalyo, and Y. V. Tkatchenko: "Fluorescence properties of humic substances in river waters from Chernobyl, Ukraine", In: The Role of Humic Substances in the Ecosystems and in Environmental Protection (eds. J. Drozd et al.), Polish Society of Humic Substances, Wroclaw, Poland, pp.617-622 (1997).
 - 30) J. M. Buttle: "Isotope hydrograph separation and rapid delivery of pre-event water from drainage basins", Progress in Physical Geography, 18, 16-41 (1994).
 - 31) 嶋田 純: "環境同位体と地下水涵養", 「21世紀の地下水管理 雨水浸透・地下水涵養」, 日本地下水学会(編), 理工図書, pp.65-73 (2001).

- 32) 井上 隆信：“溪流河川の水質変化特性と降水の酸性化との関係”，環境技術，32，906-911 (2003).
- 33) 井上 隆信，松下 拓，山田 俊郎，松井 佳彦：“溪流河川における pH・電気伝導度の自動連続観測”，水文・水資源学会誌，18，681-687 (2005).
- 34) O. S. Pokrovsky, J. Schott：“Iron-colloids/organic matter associated transport of major and trace elements in small boreal rivers and their estuaries (NW Russia) ”，Chemical Geology，190，141-179 (2002).
- 35) B. Lyven, Hasselov, D. R. Turner, C. Haraldsson, and K. Anderson：“Competition between iron- and carbon-based colloidal carriers for trace metals in a freshwater assessed using flow filed-flow fractionation coupled to ICP-MS” ，Geochim. Cosmochim. Acta，67，3791-3801 (2003).
- 36) G. Riise, B. Salbu, R. D. Vogt, S. B. Ranneklev, and T. C. Mykkelblost：“Mobility of humic substances, major and minor elements in lake Skjervatjern and its catchment area” ，Environment International，20，287-298 (1994).
- 37) G. Riise：“Transport of NOM and trace metals through macropores in the Lake Skjervatjern catchment” ，Environment International，25，325-334 (1999).
- 38) K. Andersson, R. Dahlqvist, D. Turner, B. Stolpe, T. Larsson, J. Ingri, and P. Andersson：“Colloidal rare earth elements in a boreal river: Changing sources and distributions during the spring flood” ，Geochim. Cosmochim. Acta，70，3261-3274 (2006).

付録 1 水の同位体を利用した流出成分分離

本研究では水の水素・酸素の安定同位体比を利用して、河川水の表面流出成分の実験的な分別を行った。欧米に比較して、日本国内では水素・酸素の安定同位体比を河川水涵養の問題に適用することは未だ一般的ではない。そこで、その手法の要点をここに記しておく。

付 1. 1 水分子の同位体効果

自然水の水分子をつくる水素原子・酸素原子には質量数の異なる安定同位体が存在する（付表 1）。水素原子を例にとると、自然水全体として質量数 1 の ^1H が 99.9844%、質量数 2 の ^2H が 0.0156% 存在する。重い水素原子 ^2H （以下 D と記す）を含む水分子 (^1HDO) は、軽い水素原子 ^1H を含む水分子 ($^1\text{H}_2\text{O}$) よりも、分子間の結合エネルギーが大きく、より安定である。換言すれば、 ^1HDO の方が水蒸気になりやすく、かつ凝縮しやすい^{付 1)}。このため、蒸発・大気輸送・凝縮・降水という過程からなる地表面の水循環の中で、水素に関しての同位体存在比の偏りが生じる。酸素原子についても同様である。結果として、海水では重い水素（酸素）原子の比率が高く、淡水では少ない。また、赤道から極地方への水蒸気の大規模移動を背景として、高緯度ほど、降水ならびに地域循環水の水では重い水素（酸素）原子の比率が低下する。自然水に見いだされる、この同位体比の偏りは水と水蒸気間の平衡過程で生ずる「平衡同位体効果」、そして、蒸発・凝縮過程で現れる「動的同位体効果」が総合した結果である^{付 1)}。

付 1. 2 水素（酸素）同位体比の単位

水の水素（酸素）同位体比（以下、同位体比）は、原子数比率として表すのに非常に小さな数値である。また分析手法の観点からは、試料水の同位体比は、標準と定めた水の同位体比からの差として検出される。このような事情から、試料水の同位体比は、「標準試料水の同位体比からの差の相対値（千分率、‰）」として、次式のように表される。

$$\delta D (\delta^{18}O) = [(R_{\text{sample}} - R_{\text{SMOW}}) / R_{\text{SMOW}}] \times 1000 \quad (\text{付 1})$$

ここで、 R_{sample} 、 R_{SMOW} はそれぞれ試料水、標準試料水の同位体比（原子数比率）である。試料水が重い同位体をより多く含めば、上式の値は正となり、少なれば負となる。標準試料水としては、慣例として標準平均海水が用いられる。この標準平均海水として、国際原子力機関が頒布しているものが利用されている。同機関の本部はウィーン (Vienna) に置かれていることから、Vienna の頭文字をとって、その標準平均海水は VSMOW とも呼ばれる（付表 2）。そして、VSMOW を基準とした表示は VSMOW スケールと呼ばれる。本研究でも、VSMOW を用いて装置校正を行い、その同位体比を 0‰ とする VSMOW スケールに従っている。淡水は、一般に海水よりも軽い水素（酸素）同位体に富むので、標準海水を 0‰ とするとき、淡水の同位体比は一般に負の値となる。VSMOW スケールによる千分率偏差、原子数比、原子数比率相互の関係を付表 3、付表 4 に示した。その千分率偏差には、中緯度地帯の野外研究で遭遇する範囲を選んである。たとえば、 δD_{VSMOW} が -10‰ の雨水と -50‰ の河川水の混合を考えると、重水素 D の原子数比率の差 0.000623% (=0.15418-0.014795) という微量を議論していることになる。

付1. 3 水素・酸素同位体比を用いた流出成分分離

付1. 3. 1 基本的考え方

降水により増水した河川には、降水前から存在した地下水流出成分そして降水から生じる表面流出成分という由来が異なる2種の水が流入する。地下水はいろいろな深さに存在し、滞留時間もさまざまである。それであっても、地下水を1つの成分とみなすのが、この方法で最も単純な考え方である。発展的な方法として、地下水に複数成分を設定する考え方も存在する。

さて、このとき、ある条件を整えば、両者を水の水素同位体比（または酸素同位体比）で区別できる。これは、以下の仕組みによっている。

1つの地域を定めても、そこにはさまざまな海域ならびに陸域を起源とする水蒸気から形成される雨が降る。そのため、雨ごとに水素同位体比は異なる。一方、地域の地下水は、過去から現在までの降水が混合しているために通年でほぼ一定の水素同位体比を示す。結果的に、ある個別の雨の同位体比は、その一定値とは相違するケースが多い。

（単純には、その地域の多数回の雨の水素同位体比を平均するとその地域の地下水が示す一定の水素同位体比になる。）そこで、同位体比の測定誤差よりも、雨と地下水との水素同位体比の差が大きい場合には、水素同位体比を、雨・地下水それぞれのトレーサーとして用いることができる。

酸素原子についても、同様のことがいえる。本研究では用いた同位体比分析装置の精度の観点から水素同位体比を利用したが、一般には、酸素同位体比、水素同位体比のどちらも利用される。ただし、質量数の大きな水素原子、酸素原子の軽い原子に対する比率はそれぞれ1:6700、1:500であり、重い原子を2個または2種類含む水分子の存在比率は極端に小さいために、それら多重の同位体はトレーサーとして利用できない。酸素原子に関しては質量数17と質量数18の2つの重い酸素原子が存在するが、存在比率がより大きな質量18の酸素原子が利用される。

付1. 3. 2 適用条件

降水と地下水の水素同位体比（または酸素同位体比）が相違することを利用した水移動の研究は、1970年代から始まった^{付2)}。この手法は、「同位体によるハイドログラフの分離手法」として知られている。その適用条件は次のとおりである^{付2)}。

- 1) 降水と降水前地下水との間に同位体比の十分な差があること。
- 2) 降水の同位体比は、対象集水域において時間的・空間的に一定であること。
- 3) 降水前地下水の同位体比は、対象集水域において時間的・空間的に一定であること。
- 4) 通気層中の水分の流出寄与は無視できること。または、土壌水の同位体比は地下水と類似していること。
- 5) 湖沼・池など貯水されている水からの流出寄与は無視できること。

降水で増水した河川水が、降水と降水前地下水の2つの起源の水の混合であるという2成分近似の下で次式が成り立つ。以下で同位体比とは水素同位体比を意味する。酸素同位体比についても同様の定式化が適用できる。

$$Q_r(t) = Q_p(t) + Q_e(t) \quad (\text{付2})$$

$$C_r(t)Q_r(t) = C_p Q_p(t) + C_e Q_e(t) \quad (\text{付 3})$$

ここで、

- $Q_r(t)$: 時間 t における河川水流量、 m^3/s ;
- $Q_p(t)$: 時間 t における地下水流出寄与、 m^3/s ;
- $Q_e(t)$: 時間 t における降水流出寄与、 m^3/s ;
- $C_r(t)$: 時間 t における河川水の同位体比。
- C_p : 降水前の地下水流出成分の同位体比。
- C_e : 降水流出成分の同位体比。

同位体比を用いた流出成分分離手法で、目的とする未知量は河川水全流量に対する降水流出寄与比率 f である。

$$f_1(t) = Q_e(t) / Q_r(t) \quad (\text{付 4})$$

以上から、 $f_1(t)$ は次式で求められる :

$$f_1(t) = (C_r(t) - C_p) / (C_e - C_p) \quad (\text{付 5})$$

通例、 C_p は降水直前の河川水の同位体比とする。また、 C_e については、これまでに 2 つの設定方法が使われてきた^{付 2)}。1 つは、当該雨水の平均同位体比とする方法である。この方法は、最もシンプルで、 $f_1(t)$ は一意的に決まる。実験的には、降り出しから降り終わりまでの雨水の全量を 1 つの容器に採取して、その同位体比を分析する。あるいは、降水の間、時間分割して雨水を採取し、各試料の同位体比を採取雨量で重みづけて平均値を求める。この方法は、しかしながら、降水継続時間が長く、かつ降水の河川への到達時間が短い場合に、これから降る雨の同位体比まで先取りした計算になるという矛盾が起こる。第 2 の方法は、そうした場合に適用される。 $f_1(t)$ を求めるのに、時間 t まで降った雨水の平均同位体比を用いるという方法である。降り終わりの時間以降は、第 1 の方法と第 2 の方法は同じ結果を与える。第 2 の方法の弱点は、雨水の δD の時間変化が大きい場合には、中途時間までの平均値を計算しても意味をなさなくなることである。降水前の河川水の同位体比をはさんで、雨水の同位体比が変動すると、雨水の形式的な平均値は降水前の河川水の値に接近する。そして、あたかも降水流出寄与はきわめて少ないかのように計算される。あるいは、計算ができない (付 5 式)。このような状況は、すでに、前述の適用条件 2) を満たしていない。

本研究では、降水を時間区分し、複数の区分 δD が、順次、河川水の δD に反映するというロジックを作成した (3.4 節参照)。つまり、“時間 T における降水寄与は遅れ時間 L を持った過去の期間 p の降水で決まる” と考えるものである。このとき、遅れ時間がゼロ、期間 p が降水継続時間全体のケースでは、このロジックは、上述の第 1 の方法に帰着する。また、遅れ時間がゼロ、期間 p が降水寄与評価時間までの降水継続時間であれば、第 2 の方法に帰着する。したがって、このロジックは上述の 2 つの方法をより一般化し、拡張したものになっている。複数地域での降水時実験を通じて、同ロジックの有効性が確立されれば、水の同位体比を用いた流出分離手法の適用範囲が広がるであろう。

付 1) 酒井 均, 松久 幸敬 : “安定同位体地球化学”, 東京大学出版会, p. 29-142 (1996).

付 2) D.P. Genereux and R.P. Hooper : “Oxygen and hydrogen isotopes in rainfall-runoff studies”, In: Isotope Tracers in Catchment Hydrology (eds. C. Kendall and J.J. McDonnell), Elsevier Science B.V., p. 319-346 (Chapter 10) (1998).

付表 1 自然水全体の酸素・水素の安定同位体組成^{付1)}

水素		酸素	
同位体	原子数比率(%)	同位体	原子数比率(%)
¹ H	99.9844	¹⁶ O	99.763
² H	0.0156	¹⁷ O	0.037
		¹⁸ O	0.200

付表 2 同位体標準水 VSMOW*の同位体組成²⁵⁾

水素		酸素	
同位体	原子数比率(%)**	同位体	原子数比率(%)**
¹ H	99.984426	¹⁶ O	99.7617
² H	0.015574	¹⁷ O	0.0379
		¹⁸ O	0.2004

* Vienna Standard Mean Ocean Water の略記.

** 複数の研究機関による相互比較測定から決定された値.

付表 3 水素同位体比の偏りに関する表示の相互関係

千分率偏差(‰)	原子数比(-)	原子数比率(%)	
δD_{VSMOW}	² H/ ¹ H	¹ H (%)	² H (%)
+10	0.0001573	99.984270	0.015730
0	0.0001558	99.984426	0.015574
-1	0.0001556	99.984442	0.015558
-10	0.0001542	99.984582	0.015418
-50	0.0001480	99.985205	0.014795
-100	0.0001402	99.985983	0.014017

付表 4 酸素同位体比の偏りに関する表示の相互関係

千分率偏差(‰)*	原子数比(-)		原子数比率		
	¹⁷ O/ ¹⁶ O	¹⁸ O/ ¹⁶ O	¹⁶ O	¹⁷ O	¹⁸ O
$\delta^{18}O_{VSMOW}$					
$\delta^{17}O_{VSMOW}$					
+10	0.000384	0.002029	99.7593	0.0383	0.2024
0	0.000380	0.002009	99.7617	0.0379	0.2004
-1	0.000380	0.002007	99.7619	0.0379	0.2002
-10	0.000376	0.001989	99.7641	0.0375	0.1984
-50	0.000361	0.001908	99.7736	0.0360	0.1904
-100	0.000342	0.001808	99.7855	0.0341	0.1804

*¹⁷O と ¹⁸O は、¹⁶O に対して同等の同位体分別を生ずると仮定した。このとき、¹⁷O と ¹⁸O は同一の千分率偏差をもって変動する。この条件の下で、各同位体の原子数比率を算出した。

付録2 小田川集水域の表面水・降水における 水素・酸素同位体比の特徴

ここでは、小田川集水域で取得した表面水（河川水・土壌水）と雨水における水素・酸素同位体比の特徴を検討する。降水、河川水そして土壌水について、酸素同位体比を横軸に、水素同位体比を縦軸にとり、付図 2.1 に示した（水素・酸素同位体比ダイアグラム）。雨水の同位体比は、広い数値範囲に分布する（たとえば $(\delta^{18}\text{O}, \delta\text{D})$ が $(-4\text{‰}, -20\text{‰})$ から $(-15\text{‰}, -120\text{‰})$ ）。一方、河川水の同位体比分布は、酸素で $-6 \sim -8\text{‰}$ 、水素で $-45 \sim -55\text{‰}$ の狭い数値範囲に限られている。このことは、さまざまな同位体比の降水が混合して、河川へ流入する地下水の同位体比は、ほぼ均一になっているという基本的な特徴を示している。

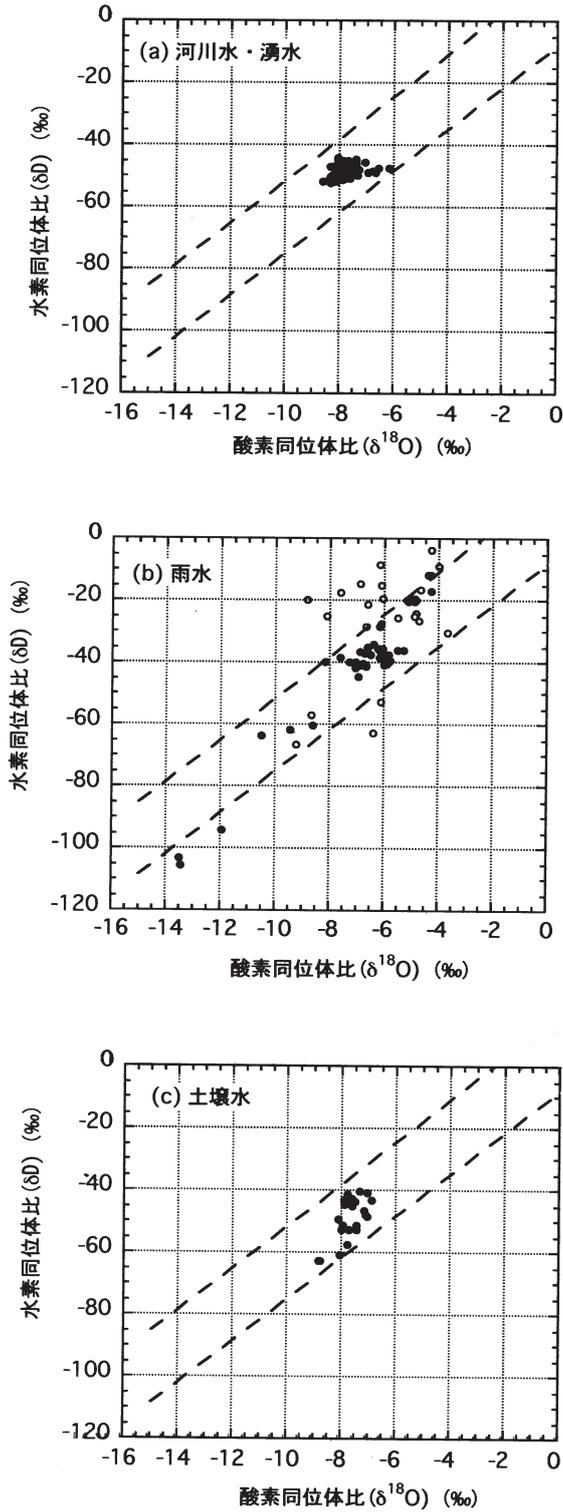
一方、土壌水について見ると、ダイアグラム上で河川水とほぼ重なる。これは、今回の土壌水の採取地点が河岸であるので、河川水の影響があるためと考えられる。しかしながら、ダイアグラム上での土壌水の分布範囲は、河川水のそれと完全に一致はしていない。また、 $(\delta^{18}\text{O}, \delta\text{D})$ がおよそ $(-9\text{‰}, -62\text{‰})$ のように、河川水と大きく異なるケースも存在している。

町田・近藤^{付3)}は、日本国内の浅層地下水・河川水の水素・酸素同位体比の報告をデータベース化して、これを統計的に解析した。そして、その報告値は、極めて少数の例外を除いて、次式の範囲に収まることを明らかにした。

$$\delta\text{D} = 6.72 \delta^{18}\text{O} + 3.94 \quad (n=1067, R^2=0.91)$$

ここで、切片は 3.94 ± 11.88 (正規分布を仮定して、標準偏差の 3σ) という変動範囲を持つ。付図 2.1 に示した破線は、その変動範囲を示している。本研究で得られた久慈川流域の表面水・雨水の同位体比は、ほとんどの場合、両破線の範囲内にあり、特異的な同位体分別効果を受けていないと考えられる。ただし、一部の雨水ではその範囲より水素同位体比が大きい方向に逸脱した（図 2.1 (b)において○で示した第3回降水時実験雨水の一部）。これについては、特異的な気象条件が原因となっている可能性と、酸素同位体比の大きな測定誤差が原因となっている可能性の2つが考えられる。第3回降水時実験時の雨水データは、ダイアグラム上で直線的な変動になっていないことから、後者の可能性が高い。

付3) 町田 功, 近藤 昭彦: “わが国の天然水における水素・酸素安定同位体比-環境同位体データベースを用いた解析-”, 水文・水資源学会誌, 16, 556-569 (2003).



付図2.1 小田川集水域の雨水・河川水試料の水素・酸素同位体比ダイアグラム。
 第1回～第4回降水時実験、秋季・冬季平水時実験で得られたデータを一括して示した。
 (b) 雨水において、○は第3回降水時実験時データ、●は他の実験機会におけるデータを示す。

付録3 河川水中有害性金属元素の起源

小田川集水域における実験から、いくつかの金属元素の河川流出移行は降水時に増加することが示された。ここでは、それらの金属元素の起源について検討した結果を補足する。

付3.1 富化率について

一般に大気降下物の主体は地表面の土壌であり、岩石の風化物である。他に、海塩、火山放出物、地表からの揮発成分等を自然起源の物質として含んでいる^{付4-7)}。人為起源としては、種々のスタックからの大気排出物、車両塵埃、焼却煙等が考えられる。

国内の地殻表層の平均元素組成に比較して、その元素が降下物や表面土壌に特異的に濃集していないかを調べて、人為起源の影響がどの程度及んでいるかを推定した。その指標にA1を基準とした「富化率」を選んだ。

$$E = [X]/[Al]_{\text{対象物質}} / [X]/[Al]_{\text{基準物質}} \quad (4)$$

ここで、

E：富化率（無次元）；X：対象元素；Al：アルミニウム；[]：元素濃度（任意単位で統一）。

浮遊塵や降下物あるいは土壌試料において、富化率が1であれば、その元素に関して、風化から大気への浮遊あるいは土壌沈着までの間に、想定した平均的岩石マトリクス以外からの供給や損失はないことが推定される。一方、1を越えると、何らかの「外的」な供給があったと推定される。外的な供給が人為起源、自然起源のどちらであるかは、採取地点、候補放出源、経年変動、他地点との相関など他の因子を考慮して判断することになる。

基準物質組成として国内の平均岩石組成を、比率の基準としてA1（アルミニウム）を選択した。A1を基準に選択したのは、A1が岩石そしてまた大気浮遊塵の主要元素であり（灰分の約15%を占める）、人為的・自然的要因による付加や減少があっても、含有率が大きく変化しないためである。人為的な利用ができるだけ少なく、かつ、保存性の大きな（反応性の少ない）元素としてTiが基準に選ばれることもある。しかし、本研究で参照した降下物の研究データ、大気浮遊塵データでは、Tiは分析対象になっていないため、Tiを基準元素に選択しなかった。

国内の平均岩石組成は、富樫ら^{付8)}が近年に集大成した日本国内の表面地殻元素組成データに基づいた。富樫らの原著では、日本国内は37の地質帯に分けられ、それぞれに平均組成が与えられている。しかしながら、ある地点の降下物に関して、その地域が属する地質帯の風化物の卓越の程度、他の地質帯の寄与の程度を知ることは難しい。そこで、国内の地質帯平均組成をその地質帯の面積で重みづけた国内総平均組成を用いて富化率の分析を行った。この起源検討で対象としたのは、国内大気浮遊塵^{付9)}、名古屋市道路脇粉塵^{付10)}、茨城県東海村大気降下物^{付11)}、そして久慈川集水域の表面土壌^{付12)}である。茨城県東海村は久慈川集水域の最下流部に位置し、太平洋に面している。以下に述べる富化率を求める過程では、まず、A1の重量濃度を10000として、各元素の重量濃度を規格化した。この結果を付図3.1に示す。対象試料の規格化重量濃度を上述の国内総平均組成における規格化重量濃度で除した数値が富化率となる。

付 3. 2 対象物質の金属元素富化率

(1) 国内大気浮遊塵

富化率の計算結果を付図 3.1 に示した。環境庁が実施した全国の大気浮遊塵組成データ^{付 9)}に基づくと、Sb の富化率は 360-3300 (1974-1993 年の平均値) であり、分析された主な 18 元素 (As, Ba, Ca, Cd, Ce, Co, Cr, Cu, Fe, K, Mn, Na, Ni, Pb, Sb, Ti, V, Zn) の中で突出して高い (対象年を 1990-1993 年に選んである。この期間は、そのデータソースの中では最も新しい年代である。1994 年以降は、この調査は行われていない)。Cu は、富化率が 100 を越える数元素 (Sb, Pb, Zn, Cu) の中の 1 つである。Cr の富化率は 3-30 であり、重金属としては小さいグループだが、外的供給がない場合の数値 1 を大きく越えている。地域的には、川崎・大阪という大都市で大きな数値を示している。また、「のの岳」(宮城県) は、大気汚染が小さなことから比較のための地点として選ばれた地点である。

(2) 名古屋市道路粉塵

名古屋市道路粉塵のデータ^{付 10)} (2001 年試料採取) を用いた推定においても、分析された 20 元素の中で Sb が最も高い富化率 39 となった。Sb に次いで Cr (富化率 20) が大きい。この報告では Cu は分析されていない。

(3) 東海村大気降下物

上野ら^{付 11)}は、小田川集水域が属する久慈川集水域の末端、茨城県東海村で、1993-1995 年の間、大気降下物を継続的に採取し、その元素組成を報告している。この降下物試料は、乾性沈着と湿性沈着の両者を含んでいる。元素分析は放射化分析によって行われている。Cu は分析の上で、妨害元素が存在し、検出されていない。富化率の大きな金属元素は Sb、Cr である。中でも Sb の富化率は 50-80 であり、顕著に高かった。Cr では 7-9 と、同表の元素の中では 2 番目に高い富化率を示した。

(4) 久慈川集水域土壌

久慈川集水域の上流域の森林土壌試料についての元素組成を半澤^{付 12)}が報告している。この報告値を用いて、規格化濃度・富化率を求めた。それらの試料において、Pb, Zn, Cu の富化率は高く、これらの元素には外的な供給があることを示している (Sb は分析されていない)。

(5) 対象試料における富化率のまとめ

大気浮遊物 (全国)^{付 9)}、道路脇粉塵 (名古屋市)^{付 10)}、大気降下物 (東海村)^{付 11)}、表土 (久慈川集水域)^{付 12)}における金属元素の富化率を付表 3.1 に示した。この解析結果から、明らかに外的な供給 (環境中での付加) があると認められる元素は、Cr、Cu、Sb、Zn、Pb である。

大気浮遊物への元素の付加には、火山からの発生^{付 6), 付 7)}、海塩の飛散等の自然起因のプロセスも含まれている。この点について、Nriagu ら^{付 4), 付 5)}は、自然起因による寄与の重要度を指摘しつつも、Mn を除く多くの微量元素について人為的な起因の放出量が自然起因を上回っていることを報告している。一方、国内での、金属消費量は、特定の元素 (Cd, Hg, Pb) を除いて、いまなお漸増している。特に、Sb の近年の使用量は急増している^{付 13-15)}。そして、i) 上記の参照試料における元素相関、ii) 環境中の金属汚染に

関する国内外の報告、ならびに iii) 国内における金属元素の利用データ^{付 13-15)}を考慮すると、金属元素として利用された後に大気環境に加わった量が、上述の付加には相当大きく寄与していると推察される。

- 付 4) J. O. Nriagu, J. M. Pacyna : “ Quantitative assessment of worldwide contamination of air, water and soils by trace metals” , Nature, 333 (12 May 1988), 134-139 (1988).
- 付 5) J. O. Nriagu : “A global assessment of natural sources of atmospheric trace metals” , Nature, 338 (2 March 1989), 47-49 (1989).
- 付 6) H. Sakamoto : “The distribution of mercury, arsenic, and antimony in sediments of Kagoshima Bay” , Bull. Chem. Soc. Jpn., 58, 580-587 (1985).
- 付 7) 坂本 隼雄 (研究代表者) : “火山発散物中のヒ素、アンチモンおよび水銀の化学形と挙動” , 平成 13 年度 - 平成 15 年度科学研究費補助金基盤研究 (C) (2) 研究成果報告書 (2004).
- 付 8) S. Togashi, N. Imai, Y. Okuyama-Kusunose, T. Tanaka, T. Okai, T. Koma, and Y. Murata : “Young upper crustal chemical composition of the orogenic Japan Arc” , Geochemistry Geophysics Geosystems, 1, Paper number 2000GC000083 (electronic journal) (2000).
- 付 9) 環境庁 : “国設大気汚染測定網 (NASN) 浮遊ふんじんおよび浮遊粒子状物質分析結果報告書” , 日本環境衛生センター (編) (1975-1997).
- 付 10) 杉谷 健一郎, 野村 晶子, 南 雅代, 加藤 博和 : “都市公共用水域に対するノンポイント汚染源としての道路脇粉塵 ($63\mu\text{m}$ 画分) の化学的特徴-名古屋市の事例-” , 水環境学会誌, 27, 547-552 (2004).
- 付 11) T. Ueno and H. Amano : “Deposition of Radionuclides and Stable Elements in Tokai-mura” , JAERI-Data/Code--2003-004 (2003).
- 付 12) Y. Hanzawa : “Migration behavior of elements from a soil system to a river” , In: Consideration for modeling studies in migration of accidentally released radionuclides in a river watershed, JAERI-Review 2003-039 (2003).
- 付 13) 金属鉱業事業団 (編) : “鉱物資源マテリアル・フロー” , 金属鉱業事業団 (2001).
- 付 14) 金属鉱業事業団 (編) : “The Mining Industry of Japan” , 金属鉱業事業団 (2001).
- 付 15) アルム出版社 (編) : “工業レアメタル Annual Review ” , No. 110 (1995)-No. 117 (2001), アルム出版社 (1995-2001).

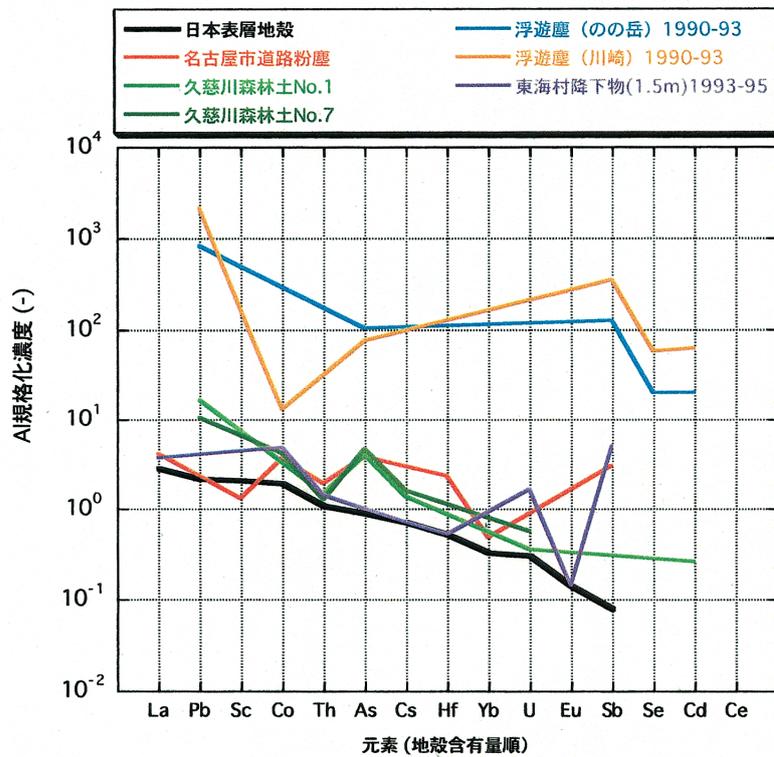
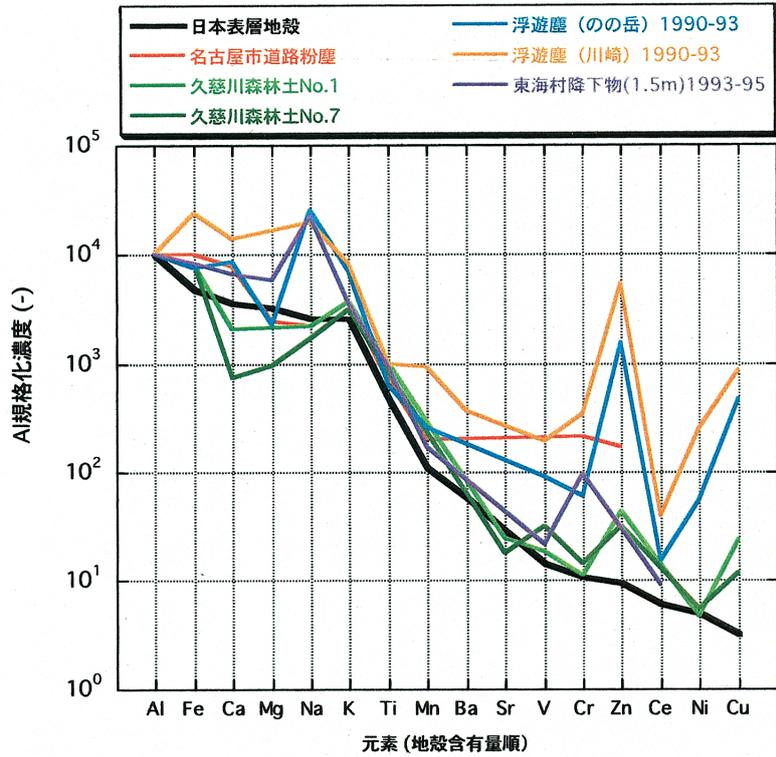
付表 3.1 大気降下物・浮遊塵・表層土壌における元素富化率

対象物質	出典	Fe	Mn	V	Cr	Zn
名古屋市道路粉塵	付 10	2	2		20	18
久慈川森林土 No.1	付 12	2	3	1	1	5
久慈川森林土 No.7	付 12	2	2	2	1	3
浮遊塵(のの岳)1990-93	付 9	2	2	7	6	167
浮遊塵(川崎)1990-93	付 9	5	9	14	32	568
東海村降下物(1.5m)1993-95	付 11	2	2	2	9	n.a.

	Ni	Cu	Pb	Co	As	Sb
名古屋市道路粉塵	n.a.	n.a.	n.a.	2	4	39
久慈川森林土 No.1	1	7	8	2	5	n.a.
久慈川森林土 No.7	1	4	5	2	5	n.a.
浮遊塵(のの岳)1990-93	11	150	381	n.a.	118	1587
浮遊塵(川崎)1990-93	52	273	998	7	88	4379
東海村降下物(1.5m)1993-95	n.a.	n.a.	n.a.	3	n.a.	62

富化率の基準物質には、日本国内表面地殻の平均元素組成(Togashi ら^{付 8)})を用いた。

n.a. : 当該出典で元素分析データが報告されていない。



付図3.1 大気降下物・浮遊塵・表層土壌における元素の相対含有量*
 (*AIを10000として規格化した重量濃度。各物質の説明・出典は本文参照)

This is a blank page.

This is a blank page.

付録4 実験記録

付表 A-1	河川水中の溶存元素濃度 (1)(第1回降水時実験)	83
付表 A-2	河川水中の溶存元素濃度 (2)(第1回降水時実験)	84
付表 A-3	河川水中の溶存元素濃度 (3)(第1回降水時実験)	85
付表 A-4	河川水中の溶存元素濃度 (4)(第1回降水時実験)	86
付表 A-5	河川水中の溶存元素濃度 (5)(第1回降水時実験)	87
付表 A-6	河川水中の溶存元素濃度 (6)(第1回降水時実験)	88
付表 A-7	河川水中の溶存元素濃度 (7)(第1回降水時実験)	89
付表 A-8	河川流量(第1回降水時実験)	90
付表 A-9	河川水の水質(第1回降水時実験)	90
付表 A-10	河川水中の懸濁物濃度(第1回降水時実験)	91
付表 A-11	河川水中の陰イオン濃度(第1回降水時実験)	92
付表 A-12	河川水の分光分析結果(紫外吸光分析)(第1回降水時実験)	93
付表 A-13	河川水の分光分析結果(三次元蛍光分析)(第1回降水時実験)	94
付表 A-14	河川水の水素同位体比(第1回降水時実験)	95
付表 A-15	雨水の水素・酸素同位体比(小田川定点)(第1回降水時実験)	96
付表 A-16	雨水の水素・酸素同位体比(久慈川集水域)(第1回降水時実験)	96
付表 B-1	河川水中の溶存元素濃度 (1)(第2回降水時実験)	97
付表 B-2	河川水中の溶存元素濃度 (2)(第2回降水時実験)	98
付表 B-3	河川水中の溶存元素濃度 (3)(第2回降水時実験)	99
付表 B-4	河川水中の溶存元素濃度 (4)(第2回降水時実験)	100
付表 B-5	河川水中の溶存元素濃度 (5)(第2回降水時実験)	101
付表 B-6	河川水中の溶存元素濃度 (6)(第2回降水時実験)	102
付表 B-7	河川流量(第2回降水時実験)	103
付表 B-8	河川水の懸濁物濃度(第2回降水時実験)	104
付表 B-9	河川水試料の陰イオン濃度(第2回降水時実験)	104
付表 B-10	河川水試料の分光分析結果(第2回降水時実験)	105
付表 B-11	土壌水試料の陰イオン濃度(第2回降水時実験)	106
付表 B-12	土壌水試料の分光分析結果(第2回降水時実験)	106
付表 B-13	河川水中の水素・酸素同位体比(第2回降水時実験)	107
付表 B-14	雨水の水素同位体比(第2回降水時実験)	108
付表 B-15	雨水の酸素同位体比(第2回降水時実験)	108
付表 B-16	土壌水の水素・酸素同位体比(第2回降水時実験)	109
付表 C-1	河川水中の溶存元素濃度 (1)(第3回降水時実験)	110
付表 C-2	河川水中の溶存元素濃度 (2)(第3回降水時実験)	111
付表 C-3	河川水中の溶存元素濃度 (3)(第3回降水時実験)	112
付表 C-4	河川水中の溶存元素濃度 (4)(第3回降水時実験)	113
付表 C-5	河川水中の溶存元素濃度 (5)(第3回降水時実験)	114
付表 C-6	河川水中の溶存元素濃度 (6)(第3回降水時実験)	115
付表 C-7	河川流量(第3回降水時実験)	116

付表 C-8	河川水試料の陰イオン濃度 (1)(自動採水試料)(第3回降水時実験)	116
付表 C-9	河川水試料の陰イオン濃度 (2) (手採水試料)(第3回降水時実験)	117
付表 C-10	土壌水試料の陰イオン濃度(第3回降水時実験)	117
付表 C-11	河川水試料の分光分析結果 (1) 自動採水試料(第3回降水時実験)	118
付表 C-12	河川水試料の分光分析結果 (2)手採水試料(第3回降水時実験)	119
付表 C-13	土壌水試料の分光分析結果(第3回降水時実験)	120
付表 C-14	河川水の水素・酸素同位体比(第3回降水時実験)	121
付表 C-15	雨水の水素同位体比(第3回降水時実験)	122
付表 C-16	雨水の酸素同位体比(第3回降水時実験)	122
付表 C-17	土壌水の水素・酸素同位体比(第3回降水時実験)	123
付表 D-1	河川水中の溶存元素濃度 (1)(第4回降水時実験)	124
付表 D-2	河川水中の溶存元素濃度 (2)(第4回降水時実験)	125
付表 D-3	河川水中の溶存元素濃度 (3)(第4回降水時実験)	126
付表 D-4	河川水中の溶存元素濃度 (4)(第4回降水時実験)	127
付表 D-5	河川水中の溶存元素濃度 (5)(第4回降水時実験)	128
付表 D-6	河川水中の溶存元素濃度 (6)(第4回降水時実験)	129
付表 D-7	河川流量(第4回降水時実験)	130
付表 D-8	河川水試料の陰イオン濃度(第4回降水時実験)	130
付表 D-9	河川水試料の分光分析結果(第4回降水時実験)	131
付表 D-10	土壌水試料の分光分析結果(第4回降水時実験)	132
付表 D-11	河川水の水素・酸素同位体比(第4回降水時実験)	133
付表 D-12	雨水の水素同位体比(第4回降水時実験)	134
付表 D-13	雨水の酸素同位体比(第4回降水時実験)	134
付表 D-14	土壌水の水素・酸素同位体比(第4回降水時実験)	135
付表 E-1	秋季平水時実験地点	136
付表 E-2	河川水の水素・酸素同位体比(秋季平水時実験)	137
付表 E-3	土壌水の水素・酸素同位体比(秋季平水時実験)	137
付表 F-1	冬季平水時実験地点	138
付表 F-2	河川水中の溶存元素濃度 (1) (冬季平水時実験)	139
付表 F-3	河川水中の溶存元素濃度 (2) (冬季平水時実験)	139
付表 F-4	河川水中の溶存元素濃度 (3) (冬季平水時実験)	140
付表 F-5	河川水中の溶存元素濃度 (4) (冬季平水時実験)	141
付表 F-6	河川水中の溶存元素濃度 (5) (冬季平水時実験)	141
付表 F-7	河川水質(冬季平水時実験)	142
付表 F-8	河川水・湧水の陰イオン濃度(冬季平水時実験)	142
付表 F-9	河川水・湧水の水素・酸素同位体比(冬季平水時実験)	143
付表 F-10	河川水・湧水の分光分析結果(冬季平水時実験)	143

付表 A-1 河川水中の溶存元素濃度 (1) (第1 回降水時実験)

採水月日	採水時刻	経過時間* (h)	Li (ppt)	Be (ppt)	Al (ppt)	Ti (ppt)	V (ppt)	Cr (ppt)	Mn (ppt)	誤差 (%)					
2003.7.7	12:00	12	272	1.5	3233	1.6	263	399	59	2.8	7.0	2.8	5	1674	1.8
2003.7.7	14:00	14	278	1.0	3398	2.8	254	429	73	2.8	5.3	2.8	19	1546	3.2
2003.7.7	16:00	16	307	2.6	3796	2.1	300	487	85	1.7	5.8	1.7	15	1526	1.5
2003.7.7	18:00	18	316	1.2	4641	1.0	376	506	79	1.0	9.0	1.0	15	1859	1.6
2003.7.7	20:00	20	307	5.7	5298	5.1	417	456	67	2.8	5.9	2.8	17	2772	2.9
2003.7.7	22:00	22	280	1.2	4937	1.6	382	407	69	2.3	8.3	2.3	19	3274	2.3
2003.7.8	0:00	24	268	6.7	4515	8.1	367	388	58	7.3	9.7	7.3	12	3170	5.1
2003.7.8	2:00	26	281	1.5	4729	2.5	356	398	66	2.9	5.8	2.9	11	3739	2.6
2003.7.8	4:00	28	283	1.8	4430	1.3	349	387	53	2.3	6.7	2.3	8	4273	1.4
2003.7.8	6:00	30	330	2.7	5133	2.5	386	477	90	2.5	4.9	2.5	8	5250	2.0
2003.7.8	8:00	32	333	2.4	5543	1.8	377	470	79	0.8	4.9	0.8	26	5511	1.3
2003.7.8	10:00	34	337	0.6	5626	1.7	359	463	81	3.0	4.9	3.0	16	4370	2.6
2003.7.8	12:00	36	304	3.8	5993	4.7	308	427	67	4.4	6.6	4.4	11	4307	2.9
2003.7.8	14:00	38	285	2.3	5696	1.6	260	417	62	3.0	6.6	3.0	17	3266	1.4
2003.7.8	16:00	40	305	4.8	6209	3.4	288	450	74	2.6	4.9	2.6	16	3775	2.0
2003.7.8	18:00	42	307	2.1	5409	1.4	309	455	79	3.2	7.7	3.2	23	4626	2.1
2003.7.8	20:00	44	298	5.9	4134	6.3	290	431	71	5.7	6.5	5.7	19	4764	5.2
2003.7.8	22:00	46	285	5.1	3341	8.3	262	386	64	4.8	9.5	4.8	24	5294	4.9
2003.7.9	0:00	48	297	5.0	3251	6.0	285	389	71	5.3	6.1	5.3	24	5308	3.8
2003.7.9	2:00	50	378	2.7	3842	2.8	979	474	n.d.	1.6	3.1	1.6		6045	1.6
2003.7.9	4:00	52	369	1.1	3606	2.0	984	460	96	2.6	1.8	2.6	12	5930	1.6
2003.7.9	6:00	54	364	1.6	3807	0.5	976	472	99	0.9	0.7	0.9	13	6363	1.2
2003.7.9	8:00	56	371	1.5	5026	0.6	1021	494	110	0.7	4.4	0.7	9	6328	0.6
2003.7.9	10:00	58	355	4.6	5152	5.4	995	504	104	3.0	3.3	3.0	11	6286	2.6
2003.7.9	12:00	60	369	3.0	6648	1.9	1024	540	121	1.4	5.5	1.4	9	6314	1.1

*基点 2003.7.7 午前0時. n.d. 検出限界以下(誤差40%以上).

付表 A-2 河川水中の溶解元素濃度 (2) (第 1 回降水時実験)

採水月日	採水時刻	経過時間*	Co (ppt)	Co 誤差 (%)	Ni (ppt)	Ni 誤差 (%)	Cu (ppt)	Cu 誤差 (%)	Zn (ppt)	Zn 誤差 (%)	Ga (ppt)	Ga 誤差 (%)	Ge (ppt)	Ge 誤差 (%)	As (ppt)	As 誤差 (%)
2003.7.7	12:00	12	19	6	88	9.2	839	2.2	956	3.7	220	2.7	n.d.	n.d.	251	9.6
2003.7.7	14:00	14	21	9	109	7.2	925	3.1	1117	3.0	224	3.6	n.d.	n.d.	287	5.3
2003.7.7	16:00	16	23	7	125	5.0	1027	1.2	1101	3.1	241	1.8	n.d.	n.d.	293	4.3
2003.7.7	18:00	18	21	6	112	7.0	1181	1.3	1139	1.6	233	2.6	n.d.	n.d.	287	7.5
2003.7.7	20:00	20	22	8	103	7.2	878	4.0	1120	4.0	210	6.3	n.d.	n.d.	266	9.1
2003.7.7	22:00	22	22	8	95	5.8	825	2.4	1013	3.3	190	3.8	n.d.	n.d.	249	6.9
2003.7.8	0:00	24	21	9	85	14.4	577	7.1	949	5.2	170	5.8	n.d.	n.d.	221	3.2
2003.7.8	2:00	26	25	9	96	4.4	564	3.6	1106	4.6	181	5.3	n.d.	n.d.	242	6.5
2003.7.8	4:00	28	25	3	94	4.2	494	2.8	1005	2.9	178	4.3	n.d.	n.d.	237	2.8
2003.7.8	6:00	30	32	7	119	6.2	555	1.0	1129	3.7	217	3.4	n.d.	n.d.	281	2.4
2003.7.8	8:00	32	31	1	119	2.5	585	3.7	1065	3.2	219	3.4	n.d.	n.d.	267	7.8
2003.7.8	10:00	34	37	5	119	10.1	597	2.3	871	2.1	226	4.7	n.d.	n.d.	273	4.7
2003.7.8	12:00	36	28	11	114	6.7	480	2.7	691	3.1	192	5.5	4	28	258	4.9
2003.7.8	14:00	38	26	7	93	10.6	482	2.7	708	4.8	186	3.3	n.d.	n.d.	240	7.0
2003.7.8	16:00	40	28	7	119	7.9	463	3.7	701	4.4	198	3.9	n.d.	n.d.	258	10.5
2003.7.8	18:00	42	26	5	98	9.3	445	2.8	840	3.4	203	4.0	3	35	257	4.5
2003.7.8	20:00	44	25	9	93	7.0	445	6.0	925	7.0	212	6.6	n.d.	n.d.	249	5.1
2003.7.8	22:00	46	25	5	79	11.4	415	6.2	974	5.0	205	5.8	5	28	257	8.4
2003.7.9	0:00	48	27	9	89	8.4	418	4.5	1034	5.9	211	5.8	n.d.	n.d.	236	2.1
2003.7.9	2:00	50	44	1	205	5.5	528	3.3	1230	2.0	786	2.5	16	30	286	4.1
2003.7.9	4:00	52	41	4	197	4.3	580	2.0	1385	2.7	746	2.3	21	13	275	6.5
2003.7.9	6:00	54	43	4	198	2.6	474	1.2	1093	1.1	751	1.5	21	23	288	5.4
2003.7.9	8:00	56	46	2	222	2.8	797	1.5	1076	1.4	758	1.3	21	16	296	6.7
2003.7.9	10:00	58	44	5	213	5.0	531	3.8	1101	2.5	723	3.3	19	18	282	2.5
2003.7.9	12:00	60	48	4	222	4.8	537	2.0	991	3.3	737	1.2	22	13	287	2.9

*基点 2003.7.7 午前0時。 n.d. 検出限界以下(誤差40%以上)。

付表 A-3 河川水中の溶存元素濃度 (3) (第1回降水時実験)

採水月日	採水時刻	経過時間* (h)	Rb (ppt)	Y (ppt)	Zr (ppt)	Mo (ppt)	Pd (ppt)	Cd (ppt)	In (ppt)							
			誤差(%)	誤差(%)	誤差(%)	誤差(%)	誤差(%)	誤差(%)	誤差(%)							
2003.7.7	12:00	12	1917	2.1	13	6	11	22	227	6.8	18	16	39	7	16	8
2003.7.7	14:00	14	2118	3.2	17	7	11	10	259	2.4	22	13	9	26	16	5
2003.7.7	16:00	16	2258	1.4	19	7	12	15	278	2.5	24	18	8	42	31	4
2003.7.7	18:00	18	2057	1.3	26	4	17	9	244	2.6	19	35	6	48	16	7
2003.7.7	20:00	20	1911	3.3	26	4	21	6	200	3.7	18	26	10	29	25	2
2003.7.7	22:00	22	1723	1.6	28	5	19	7	200	3.0	19	45	4	53	13	10
2003.7.8	0:00	24	1599	5.1	26	6	18	13	177	7.2	21	33	6	59	19	5
2003.7.8	2:00	26	1657	3.1	25	3	17	11	180	3.7	20	19	5	43	14	13
2003.7.8	4:00	28	1725	0.9	24	3	17	9	174	7.4	14	24	6	23	16	4
2003.7.8	6:00	30	1931	1.1	24	5	18	6	206	5.3	29	23	6	28	14	4
2003.7.8	8:00	32	1984	2.0	24	4	18	9	193	2.7	29	25	5	26	18	6
2003.7.8	10:00	34	2267	0.7	23	2	16	9	208	5.9	23	23	7	29	17	9
2003.7.8	12:00	36	2156	2.6	18	6	12	11	192	5.0	20	30	5	57	7	12
2003.7.8	14:00	38	2139	1.1	18	5	12	13	184	6.4	27	26	6	36	10	7
2003.7.8	16:00	40	2234	1.1	17	6	12	12	190	4.1	19	54	9	24	17	6
2003.7.8	18:00	42	2122	1.2	20	24	13	4	190	9.4	25	27	9	31	18	4
2003.7.8	20:00	44	2026	3.9	18	7	13	9	183	5.6	23	26	6	32	11	8
2003.7.8	22:00	46	1962	4.0	18	10	13	16	173	6.5	21	55	8	16	29	6
2003.7.9	0:00	48	1956	3.6	19	5	13	21	188	9.1	23	39	6	50	11	7
2003.7.9	2:00	50	2253	0.8	22	3	15	6	229	3.8	229	7	8	21	24	6
2003.7.9	4:00	52	2192	2.2	20	6	15	12	232	5.6	207	5	6	35	12	5
2003.7.9	6:00	54	2253	1.6	20	3	12	9	226	5.5	227	6	8	27	21	5
2003.7.9	8:00	56	2482	0.9	19	3	13	10	244	4.9	213	10	8	28	12	9
2003.7.9	10:00	58	2471	2.6	19	4	13	7	235	5.4	209	5	8	26	16	10
2003.7.9	12:00	60	2643	1.0	19	2	12	12	236	3.8	234	8	10	28	17	6

*基点 2003.7.7 午前0時。 n.d. 検出限界以下(誤差40%以上)。 Se, Ru, Rh, Ag は全試料で検出限界以下。

付表 A-4 河川水中の溶存元素濃度(4) (第1回降水時実験)

採水月日	採水時刻	経過時間*	Sn (ppt)	誤差(%)	Sb (ppt)	誤差(%)	Cs (ppt)	誤差(%)	Ba (ppt)	誤差(%)	W (ppt)	誤差(%)	Tl (ppt)	誤差(%)
2003.7.7	12:00	12	4665	1.8	40	6	6	14	7245	2.2	9	10	3	13
2003.7.7	14:00	14	4473	2.0	47	4	6	17	7273	2.9	10	11	3	19
2003.7.7	16:00	16	8730	1.1	48	12	6	9	7453	1.6	12	7	3	15
2003.7.7	18:00	18	4497	0.9	46	6	5	5	7144	1.9	12	5	3	13
2003.7.7	20:00	20	6620	2.5	41	9	5	13	6606	2.5	10	14	3	24
2003.7.7	22:00	22	3625	1.4	36	6	5	12	6297	2.2	8	4	3	6
2003.7.8	0:00	24	5094	4.6	31	9	5	10	5829	3.3	6	21	3	6
2003.7.8	2:00	26	3776	2.5	35	6	5	24	6272	3.3	8	15	4	34
2003.7.8	4:00	28	4631	0.7	32	8	6	11	6382	1.9	7	15	3	11
2003.7.8	6:00	30	3937	1.2	34	6	6	14	6984	2.4	8	16	3	14
2003.7.8	8:00	32	5178	1.0	34	10	6	10	6986	1.7	8	23	3	16
2003.7.8	10:00	34	4648	2.4	34	7	8	4	7421	1.9	8	18	4	11
2003.7.8	12:00	36	2144	3.1	31	8	7	14	6966	1.7	9	13	3	16
2003.7.8	14:00	38	2786	0.9	31	2	8	8	6895	1.8	8	10	4	15
2003.7.8	16:00	40	4890	1.2	30	5	8	11	7116	1.3	9	14	4	14
2003.7.8	18:00	42	5069	1.3	31	2	8	9	7331	2.2	9	15	3	12
2003.7.8	20:00	44	3124	3.9	30	7	8	11	7787	2.8	8	18	4	8
2003.7.8	22:00	46	7904	4.0	31	5	8	6	7805	3.1	8	13	3	19
2003.7.9	0:00	48	2904	2.0	30	8	8	8	8082	3.7	9	11	4	25
2003.7.9	2:00	50	6912	0.6	31	12	8	11	9165	1.9	7	24	4	40
2003.7.9	4:00	52	3463	2.3	30	9	7	13	9013	3.9	8	13	3	15
2003.7.9	6:00	54	6158	2.0	31	9	7	4	9143	3.5	8	19	3	16
2003.7.9	8:00	56	4008	1.5	30	15	8	10	9144	2.7	7	27	4	13
2003.7.9	10:00	58	4916	2.2	28	7	8	10	8743	2.9	6	37	3	13
2003.7.9	12:00	60	5030	1.1	31	11	9	6	8922	1.7	8	24	4	6

*基点 2003.7.7 午前0時。 n.d. 検出限界以下(誤差40%以上)。 Te, Hf, Re, Pt, Au, Hgは全試料で検出限界以下。

付表 A-5 河川水中の溶存元素濃度 (5) (第1回降水時実験)

採水月日	採水時刻	経過時間* (h)	Pb (ppt)	Pb 誤差(%)	Bi (ppt)	Bi 誤差(%)	Th (ppt)	Th 誤差(%)	U (ppt)	U 誤差(%)
2003.7.7	12:00	12	45	4	0.9	22	2	16	9	8
2003.7.7	14:00	14	39	3	1.2	35	2	11	10	2
2003.7.7	16:00	16	37	2	1.2	21	3	8	10	7
2003.7.7	18:00	18	37	7	1.0	16	3	7	10	4
2003.7.7	20:00	20	36	7	1.4	23	4	13	10	4
2003.7.7	22:00	22	31	5	1.1	10	4	13	10	5
2003.7.8	0:00	24	33	8	0.9	26	4	8	10	5
2003.7.8	2:00	26	34	5	n.d.		5	22	11	13
2003.7.8	4:00	28	36	9	0.7	32	4	12	10	6
2003.7.8	6:00	30	37	4	0.7	29	3	6	9	4
2003.7.8	8:00	32	42	1	0.8	36	3	12	10	6
2003.7.8	10:00	34	26	10	n.d.		3	9	10	7
2003.7.8	12:00	36	28	5	0.5	32	2	12	10	9
2003.7.8	14:00	38	24	4	0.5	30	2	19	11	5
2003.7.8	16:00	40	29	5	0.5	20	2	17	11	5
2003.7.8	18:00	42	28	3	n.d.		2	14	10	10
2003.7.8	20:00	44	30	4	n.d.		2	7	9	8
2003.7.8	22:00	46	26	5	0.4	39	2	11	9	6
2003.7.9	0:00	48	22	11	n.d.		2	14	9	6
2003.7.9	2:00	50	24	13	n.d.		3	20	9	9
2003.7.9	4:00	52	31	7	n.d.		2	18	8	10
2003.7.9	6:00	54	20	4	n.d.		2	10	9	5
2003.7.9	8:00	56	28	2	n.d.		2	10	11	4
2003.7.9	10:00	58	33	5	n.d.		2	23	10	5
2003.7.9	12:00	60	39	3	n.d.		2	23	11	5

*基点 2003.7.7 午前0時. n.d. 検出限界以下(誤差40%以上).

付表 A-6 河川水中の溶存元素濃度 (6) (第1回降水時実験)

採水月日	採水時刻	経過時間* (h)	La (ppt) 誤差(%)	Ce (ppt) 誤差(%)	Pr (ppt) 誤差(%)	Nd (ppt) 誤差(%)	Sm (ppt) 誤差(%)	Eu (ppt) 誤差(%)	Gd (ppt) 誤差(%)		
2003.7.7	12:00	12	17	10	4	7	15	2	39	2	15
2003.7.7	14:00	14	20	7	25	7	8	21	16	3	31
2003.7.7	16:00	16	24	2	26	3	6	23	13	n.d.	
2003.7.7	18:00	18	33	3	37	7	8	9	31	4	23
2003.7.7	20:00	20	39	4	43	3	8	35	8	6	30
2003.7.7	22:00	22	39	4	44	6	9	37	8	6	20
2003.7.8	0:00	24	36	6	40	5	8	35	11	5	20
2003.7.8	2:00	26	35	2	39	5	8	33	7	6	12
2003.7.8	4:00	28	31	3	36	6	8	33	5	5	28
2003.7.8	6:00	30	33	5	36	3	7	31	8	7	14
2003.7.8	8:00	32	33	5	35	2	7	32	13	6	10
2003.7.8	10:00	34	32	5	32	5	6	27	9	5	26
2003.7.8	12:00	36	27	3	27	2	5	11	7	5	21
2003.7.8	14:00	38	26	2	26	3	5	11	17	4	42
2003.7.8	16:00	40	24	6	25	5	5	14	4	5	19
2003.7.8	18:00	42	26	7	28	4	5	11	24	9	6
2003.7.8	20:00	44	27	3	26	3	5	9	24	8	27
2003.7.8	22:00	46	25	2	25	4	5	12	23	17	13
2003.7.9	0:00	48	25	4	25	3	5	7	25	5	16
2003.7.9	2:00	50	25	2	23	4	2	23	21	9	n.d.
2003.7.9	4:00	52	23	8	23	8	1	27	18	14	n.d.
2003.7.9	6:00	54	23	3	22	10	1	58	17	7	n.d.
2003.7.9	8:00	56	23	3	23	3	1	22	17	5	n.d.
2003.7.9	10:00	58	24	4	21	2	1	53	17	18	n.d.
2003.7.9	12:00	60	25	5	22	8	1	34	19	7	n.d.

*基点 2003.7.7 午前0時。 n.d. 検出限界以下(誤差40%以上)。

付表 A-7 河川水中の溶存元素濃度(7)(第1回降水時実験)

採水月日	採水時刻	経過時間*	Tb (ppt) 誤差(%)	Dy (ppt) 誤差(%)	Ho (ppt) 誤差(%)	Er (ppt) 誤差(%)	Yb (ppt) 誤差(%)
2003.7.7	12:00	12	n.d.	3	n.d.	n.d.	2
2003.7.7	14:00	14	n.d.	3	n.d.	n.d.	2
2003.7.7	16:00	16	n.d.	4	n.d.	n.d.	2
2003.7.7	18:00	18	n.d.	4	n.d.	n.d.	2
2003.7.7	20:00	20	n.d.	5	n.d.	n.d.	3
2003.7.7	22:00	22	n.d.	6	n.d.	n.d.	3
2003.7.8	0:00	24	n.d.	5	n.d.	2	2
2003.7.8	2:00	26	n.d.	5	n.d.	n.d.	3
2003.7.8	4:00	28	n.d.	5	n.d.	2	3
2003.7.8	6:00	30	n.d.	3	n.d.	2	2
2003.7.8	8:00	32	n.d.	4	n.d.	2	3
2003.7.8	10:00	34	n.d.	4	0.4	2	3
2003.7.8	12:00	36	n.d.	3	n.d.	2	2
2003.7.8	14:00	38	n.d.	3	n.d.	2	3
2003.7.8	16:00	40	n.d.	3	n.d.	1	2
2003.7.8	18:00	42	n.d.	3	n.d.	2	2
2003.7.8	20:00	44	n.d.	3	n.d.	n.d.	2
2003.7.8	22:00	46	n.d.	3	n.d.	2	2
2003.7.9	0:00	48	n.d.	3	n.d.	2	2
2003.7.9	2:00	50	25	2	1.7	21	n.d.
2003.7.9	4:00	52	23	8	1.3	18	n.d.
2003.7.9	6:00	54	23	3	n.d.	17	n.d.
2003.7.9	8:00	56	23	3	1.1	17	n.d.
2003.7.9	10:00	58	24	4	n.d.	17	n.d.
2003.7.9	12:00	60	25	5	1.3	19	n.d.

*基点 2003.7.7 午前0時.

n.d. 検出限界以下(誤差40%以上).

Luは全試料で検出限界以下.

付表 A-8 河川流量 (第1回降水時実験)

月日	時刻	経過時間* (h)	実測流量 ($\text{m}^3 \text{s}^{-1}$)	再構築流量** ($\text{m}^3 \text{s}^{-1}$)
2003.7.7	12:00	12	0.752	0.70
	12:30	12.5		0.80
	13:00	13		0.89
	14:00	14	0.889	1.10
	15:00	15		1.17
	16:00	16	1.173	1.30
	17:00	17		1.44
	18:00	18	1.438	1.60
	19:00	19		1.60
	20:00	20		1.50
	21:00	21		1.40
	22:00	22		1.30
	23:00	23		1.20
2003.7.8	0:00	24		1.05
	1:00	25		0.95
	2:00	26		0.90
	3:00	27		0.85
	4:00	28		0.80
	5:00	29		0.77
	6:00	30		0.75
	7:00	31		0.73
	8:00	32	0.729	
	10:00	34		
	12:00	36		
	14:00	38	0.749	
	16:00	40		
18:00	42	0.711		
20:00	44			
22:00	46			
2003.7.9	0:00	48		
	2:00	50		
	4:00	52		
	6:00	54		
	8:00	56	0.622	
	10:00	58		
	12:00	60	0.598	

*基点 2003.7.7 午前0時.

** 懸濁物濃度と流量との相関から推定した.

付表 A-9 河川水の水質 (第1回降水時実験)

月日	時刻	水温 ($^{\circ}\text{C}$)	pH	電気伝導度 (mS/m)	濁度 (mg/l)
2007.7.8	13:00	18.4	7.1	8.1	12
	17:55	17.9	7.2	7.1	15
	23:55	17.2	7.1	7.3	11
2007.7.9	8:15	17.1	7.0	7.8	11
	16:00	19.3	7.1	7.5	11
	18:00	18.6	7.0	7.3	14
2007.7.10	8:00	17.3	7.1	7.9	11
	12:00	18.6	7.2	7.9	11

付表 A-10 河川水中の懸濁物濃度 (第1回降水時実験)

採水月日	採水時刻	経過時間* (h)	自動採水器試料 懸濁物濃度 (mg/l)	手採水試料 懸濁物濃度 (mg/l)
2003.7.7	12:00	12	6.04	
2003.7.7	14:00	14	15.86	
2003.7.7	16:00	16	11.54	18.34
	17:00	17		19.14
2003.7.7	18:00	18	16.42	
2003.7.7	20:00	20	12.92	
2003.7.7	22:00	22	15.1	
2003.7.8	0:00	24	9.62	
2003.7.8	2:00	26	8.84	
2003.7.8	4:00	28	7.34	
2003.7.8	6:00	30	7.4	
2003.7.8	8:00	32	4.9	
	8:30	33		7.11
2003.7.8	10:00	34	4.38	
2003.7.8	12:00	36	5.4	
2003.7.8	14:00	38	5.98	
2003.7.8	16:00	40	4.7	6.32
2003.7.8	18:00	42	3.96	5.68
2003.7.8	20:00	44	4.24	
2003.7.8	22:00	46	2.46	
2003.7.9	0:00	48	2.7	
2003.7.9	2:00	50	1.57	
2003.7.9	4:00	52	2.54	
2003.7.9	6:00	54	1.56	
2003.7.9	8:00	56	1.14	4.41
2003.7.9	10:00	58	3.34	
2003.7.9	12:00	60	2.06	4.3

*基点 2003.7.7 午前0時.

付表 A-11 河川水中の陰イオン濃度 (第1回降水時実験)

採水月日	採水時刻	経過時間* (h)	陰イオン濃度 (mg/l)			
			F ⁻	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻
2003.7.7	12:00	12	0.36	4.9	2.4	7.0
2003.7.7	14:00	14	0.34	4.8	2.3	6.8
2003.7.7	16:00	16	0.35	4.8	2.2	6.5
2003.7.7	18:00	18	0.35	4.1	2.2	5.7
2003.7.7	20:00	20	0.35	4.0	2.2	5.4
2003.7.7	22:00	22	0.34	4.0	2.3	5.3
2003.7.8	0:00	24	0.35	3.9	2.3	5.5
2003.7.8	2:00	26	0.35	4.1	2.4	6.0
2003.7.8	4:00	28	0.36	4.2	2.4	6.1
2003.7.8	6:00	30	0.35	4.3	2.4	6.4
2003.7.8	8:00	32	0.35	4.5	2.3	6.6
2003.7.8	10:00	34	0.33	4.7	2.3	6.9
2003.7.8	12:00	36	0.33	4.8	2.2	7.1
2003.7.8	14:00	38	0.33	4.9	2.1	7.2
2003.7.8	16:00	40	0.33	4.9	1.8	7.1
2003.7.8	18:00	42	0.33	4.6	2.2	6.6
2003.7.8	20:00	44	0.33	4.5	2.3	6.5
2003.7.8	22:00	46	0.33	4.5	2.4	6.4
2003.7.9	0:00	48	0.33	4.5	2.5	6.4
2003.7.9	2:00	50	0.33	4.4	2.5	6.4
2003.7.9	4:00	52	0.33	4.3	2.4	6.1
2003.7.9	6:00	54	0.33	4.6	2.4	6.6
2003.7.9	8:00	56	0.33	4.8	2.1	6.8
2003.7.9	10:00	58	0.33	5.0	2.3	7.2
2003.7.9	12:00	60	0.33	5.1	2.2	7.2

*基点 2003.7.7 午前0時.

付表 A-12 河川水の分光分析結果（紫外吸光分析）（第1回降水時実験）

採水月日	採水時刻	経過時間* (h)	吸光度	
			280 nm	254 nm
2003.7.7	12:00	12	0.0312	0.0423
	14:00	14	0.0368	0.0501
	16:00	16	0.0427	0.0575
	18:00	18	0.0461	0.0582
	20:00	20	n.m.	n.m.
	22:00	22	0.0505	0.0661
2003.7.8	0:00	24	n.m.	n.m.
	2:00	26	n.m.	n.m.
	4:00	28	0.0451	0.0592
	6:00	30	0.0434	0.0567
	8:00	32	n.m.	n.m.
	10:00	34	0.0387	0.0522
	12:00	36	0.0318	0.0523
	14:00	38	0.0367	0.0490
	16:00	40	0.0337	0.0453
	18:00	42	0.0322	0.0431
2003.7.9	20:00	44	0.0307	0.0406
	22:00	46	0.0304	0.0419
	0:00	48	0.0283	0.0386
	2:00	50	n.m.	n.m.
	4:00	52	0.0281	0.0379
	6:00	54	0.0272	0.0371
	8:00	56	0.0264	0.0362
	10:00	58	0.0305	0.0406
	12:00	60	0.0288	0.0389

*基点 2003.7.7 午前0時. n.m. 欠測.

付表 A-13 河川水の分光分析結果 (三次元蛍光分析) (第1回降水時実験)

採水日	採水時刻	経過時間*	ピークA		ピークA近傍の極大ピーク		ピークB		ピークB近傍の極大ピーク	
			波長 (nm)	蛍光強度 (QSU)	波長 (nm)	蛍光強度 (QSU)	波長 (nm)	蛍光強度 (QSU)	波長 (nm)	蛍光強度 (QSU)
2003.7.7	12:00	12	305/430	10.16	300/425	10.47	330/430	10.49	335/430	10.75
	14:00	14	305/430	12.53	310/425	13.06	330/430	12.03	325/425	12.17
	16:00	16	305/430	13.08	300/425	13.63	330/430	12.30	325/425	12.68
	18:00	18	305/430	13.47	#		330/430	12.60	#	
	20:00	20	305/430	13.33	300/425	14.41	330/430	12.62	330/435	12.90
	22:00	22	305/430	12.35	#		330/430	11.91	325/425	12.40
	0:00	24	305/430	12.96	#		330/430	11.73	330/435	12.66
	2:00	26	305/430	n.m.	#		330/430	n.m.	#	
	4:00	28	305/430	9.98	310/425	11.04	330/430	10.37	325/435	10.69
	6:00	30	305/430	10.09	305/425	11.03	330/430	10.32	325/425	10.52
2003.7.8	8:00	32	305/430	n.m.	#		330/430	n.m.	#	
	10:00	34	305/430	10.17	310/425	10.87	330/430	10.74	#	
	12:00	36	305/430	n.m.	#		330/430	n.m.	#	
	14:00	38	305/430	9.66	#		330/430	9.74	#	
	16:00	40	305/430	9.37	305/425	10.24	330/430	9.51	335/430	9.78
	18:00	42	305/430	9.26	310/435	9.65	330/430	9.15	335/435	9.61
	20:00	44	305/430	8.69	310/430	9.35	330/430	9.01	335/425	9.17
	22:00	46	305/430	8.49	310/430	9.26	330/430	9.02	335/435	9.48
	0:00	48	305/430	8.00	310/425	9.32	330/430	8.55	335/430	9.08
	2:00	50	305/430	n.m.	#		330/430	n.m.	#	
2003.7.9	4:00	52	305/430	7.82	310/430	8.57	330/430	8.19	335/430	8.71
	6:00	54	305/430	8.06	310/430	8.89	330/430	8.22	325/425	8.72
	8:00	56	305/430	9.30	310/425	9.47	330/430	9.40	330/425	9.51
	10:00	58	305/430	8.81	310/430	9.50	330/430	9.29	330/435	9.33
	12:00	60	305/430	8.47	310/425	9.17	330/430	9.21	330/435	9.30

*基点 2003.7.7 午前0時。波長の表記: 励起光(nm)/蛍光(nm)。 QSU: 標準キノン溶液相対強度 (本文参照)。 #近傍極大波長はピークA (ピークB) に一致。

付表 A-14 河川水の水素同位体比(第1回降水時実験)

採水月日	採水時刻	経過時間* (h)	自動採水器試料		手採水試料	
			δD (‰)	誤差(‰)	δD (‰)	誤差(‰)
2003.7.7	12:00	12	-47.5	1.0		
2003.7.7	14:00	14	-47.4	0.1		
2003.7.7	16:00	16	-47.6	0.3	-48.8	0.01
2003.7.7	18:00	18	-47.5	0.2	-48.8	0.1
2003.7.7	20:00	20	-48.0	0.4		
2003.7.7	22:00	22	-48.1	0.1		
2003.7.8	0:00	24	-48.5	0.2		
2003.7.8	2:00	26	-48.5	0.1		
2003.7.8	4:00	28	-48.8	0.6		
2003.7.8	6:00	30	-49.0	0.1		
2003.7.8	8:00	32	-49.0	0.6	-49.9	1.2
2003.7.8	10:00	34	-49.2	0.1		
2003.7.8	12:00	36				
2003.7.8	14:00	38	-48.7	0.8		
2003.7.8	16:00	40	-48.8	0.4	-50.0	0.2
2003.7.8	18:00	42	-49.4	0.2	-50.5	0.02
2003.7.8	20:00	44	-49.5	0.2		
2003.7.8	22:00	46	-49.4	1.1		
2003.7.9	0:00	48	-49.2	0.1		
2003.7.9	2:00	50	-49.8	0.04		
2003.7.9	4:00	52	-50.2	0.2		
2003.7.9	6:00	54	-50.0	0.4		
2003.7.9	8:00	56	-50.2	0.1	-50.6	0.1
2003.7.9	10:00	58	-49.6	0.5		
2003.7.9	12:00	60	-50.4	0.02	-50.0	1.4

*基点 2003.7.7 午前0時.

付表 A-15 雨水の水素・酸素同位体比(小田川定点)(第1回降水時実験)

地点:小田川定点						
採水月日	採取開始	採取終了	δD		$\delta^{18}O$	
			(‰)	誤差(‰)	(‰)	誤差(‰)
2003.7.7	13:20	14:00	-41.9	0.5	-7.1	0.1
2003.7.7	14:00	16:00	-41.1	0.2	-6.7	0.1
2003.7.7	16:00	17:00	-40.7	0.1	-6.8	0.2
2003.7.7	17:00	18:30	-40.1	0.1>	-7.1	0.3
2003.7.7	19:00	23:00	-40.4	0.6	-6.8	0.2
雨水平均			-40.8		-6.9	

付表 A-16 雨水の水素・酸素同位体比(久慈川集水域)(第1回降水時実験)

地点:久慈川集水域						
地点	採水開始日時	採水終了日時	δD		$\delta^{18}O$	
			(‰)	誤差(‰)	(‰)	誤差(‰)
八溝山	2003.7.7 12:40	2003.7.8 11:00	-47.4	0.1	-8.3	0.1
上野宮	2003.7.7 13:12	2003.7.8 12:30	-41.8	0.8	-7.4	0.3
下藤	2003.7.7 14:40	2003.7.8 12:30	-42.1	0.1	-7.0	0.2
棚倉	2003.7.7 15:20	2003.7.8 10:00	-45.7	0.2	-7.8	0.2
下関河内	2003.7.7 11:00	2003.7.8 12:00	-44.5	0.1	-6.9	0.3
大子	2003.7.7 11:45	2003.7.8 10:00	-40.1	0.3	-6.9	0.1
小中	2003.7.7 10:15	2003.7.9 14:00	-41.4	1.1	-6.7	0.2

付表 B-1 河川水中の溶存元素濃度(1) (第2回降水時実験)

採水月日	採水時刻	経過時間* (h)	Li (ppt)	Li 誤差(%)	B (ppt)	B 誤差(%)	Na (ppt)	Na 誤差(%)	Mg (ppt)	Mg 誤差(%)	Al (ppt)	Al 誤差(%)	Si (ppt)	Si 誤差(%)
2003.10.21	14:00	14	395	1.2	3594	3.1	5.40E+06	1.3	1.27E+06	2.8	11150	2.8	5.00E+06	3.1
2003.10.21	16:00	16	406	1.4	3837	4.7	5.40E+06	2.7	1.27E+06	1.7	10790	1.3	5.09E+06	1.0
2003.10.21	18:00	18	394	2.5	3751	6.0	5.34E+06	2.6	1.26E+06	2.0	11590	3.9	4.97E+06	2.5
2003.10.21	20:00	20	393	1.1	3786	6.7	5.25E+06	2.3	1.27E+06	2.0	9053	1.9	5.15E+06	1.1
2003.10.21	22:00	22	397	1.1	3804	5.8	4.72E+06	2.9	1.23E+06	3.6	7999	3.1	4.83E+06	3.7
2003.10.22	0:00	24	404	1.2	3881	5.2	4.80E+06	3.0	1.18E+06	2.0	7904	3.2	4.92E+06	1.9
2003.10.22	2:00	26	411	1.3	3401	4.6	5.18E+06	3.4	1.26E+06	4.7	7165	3.6	5.34E+06	3.6
2003.10.22	4:00	28	348	1.0	3542	4.6	5.02E+06	2.5	1.23E+06	2.1	7657	2.8	5.37E+06	3.7
2003.10.22	6:00	30	399	2.9	3589	4.3	4.76E+06	1.4	1.17E+06	2.1	7813	2.7	4.96E+06	2.7
2003.10.22	8:00	32	414	1.9	3391	4.2	4.80E+06	2.0	1.23E+06	1.6	7473	2.0	5.17E+06	2.9
2003.10.22	10:00	34	390	1.1	3938	5.6	4.80E+06	3.0	1.23E+06	1.9	8310	1.8	4.95E+06	2.3
2003.10.22	12:00	36	402	1.2	3972	7.1	4.70E+06	0.8	1.17E+06	1.6	9791	2.6	4.50E+06	2.4
2003.10.22	14:00	38	392	2.0	4294	4.9	4.58E+06	2.4	1.17E+06	2.5	12480	3.1	4.46E+06	4.1
2003.10.22	16:00	40	394	1.7	3915	3.7	4.09E+06	1.3	1.04E+06	1.0	12760	2.1	3.96E+06	4.0
2003.10.22	18:00	42	372	1.0	3307	3.5	4.33E+06	1.7	1.06E+06	1.6	19100	3.7	4.52E+06	4.2
2003.10.22	20:00	44	397	1.8	3537	3.0	4.35E+06	3.2	1.10E+06	2.7	16920	2.1	4.54E+06	4.8
2003.10.22	22:00	46	389	2.0	3417	2.4	4.27E+06	2.0	1.09E+06	2.4	16300	1.8	4.32E+06	3.6
2003.10.23	0:00	48	394	1.4	3633	4.4	4.56E+06	1.5	1.15E+06	2.6	16680	1.5	4.74E+06	3.9
2003.10.23	2:00	50	385	2.0	3549	2.8	4.68E+06	4.4	1.19E+06	2.7	17560	1.6	4.76E+06	1.4
2003.10.23	4:00	52	385	2.1	3634	3.8	4.71E+06	3.0	1.19E+06	3.5	14470	2.6	4.96E+06	1.6
2003.10.23	6:00	54	384	0.7	3719	3.3	4.78E+06	1.2	1.23E+06	2.8	14380	2.2	5.12E+06	2.9
2003.10.23	8:00	56	388	1.9	3858	4.3	4.79E+06	0.8	1.23E+06	2.0	14260	0.9	4.99E+06	2.7
2003.10.23	10:00	58	430	2.3	3666	1.1	4.74E+06	1.8	1.21E+06	2.4	13720	1.8	4.79E+06	2.9
2003.10.23	12:00	60	422	1.8	4139	3.4	4.91E+06	2.9	1.21E+06	1.9	14200	2.0	4.80E+06	2.4
2003.10.23	16:00	64	393	0.9	3866	3.5	4.67E+06	2.5	1.19E+06	3.3	12380	1.3	4.73E+06	4.2
2003.10.23	20:00	68	380	0.5	3507	4.1	4.49E+06	1.1	1.14E+06	2.18	12670	0.7	4.60E+06	1.1
2003.10.24	0:00	72	374	1.0	3365	3.8	4.53E+06	3.0	1.16E+06	3.11	10460	1.8	4.72E+06	2.7
2003.10.24	4:00	76	373	1.1	3014	2.0	4.43E+06	1.6	1.12E+06	1.66	11430	2.1	4.70E+06	2.1
2003.10.24	8:00	80	376	1.1	3265	1.9	4.50E+06	3.6	1.15E+06	1.95	11080	1.2	4.61E+06	1.6
2003.10.24	12:00	84	384	1.7	3311	3.4	4.72E+06	3.7	1.19E+06	2.73	12090	1.5	4.88E+06	1.7

*基点 2003.10.21 午前0時。 n.d. 検出限界以下(誤差40%以上)。

Beは全試料で検出限界以下。

付表 B-2 河川水中の溶存元素濃度 (2) (第2回降水時実験)

採水月日	採水時刻	経過時間* (h)	K (ppt)	Ca (ppt)	Ti (ppt)	V (ppt)	Cr (ppt)	Mn (ppt)					
			誤差(%)	誤差(%)	誤差(%)	誤差(%)	誤差(%)	誤差(%)					
2003.10.21	14:00	14	2.57E+06	2.5	4.67E+06	2.3	n.d.	365	1.5	59	18	2958	2.5
2003.10.21	16:00	16	2.60E+06	0.9	4.56E+06	1.3	n.d.	406	2.4	68	5	3937	1.5
2003.10.21	18:00	18	2.65E+06	1.6	4.62E+06	1.8	n.d.	376	1.9	67	6	4037	1.5
2003.10.21	20:00	20	2.52E+06	1.5	4.76E+06	1.6	119	368	1.0	60	11	4351	1.7
2003.10.21	22:00	22	2.08E+06	2.8	4.48E+06	2.2	n.d.	381	1.1	60	2	4588	2.3
2003.10.22	0:00	24	1.88E+06	2.2	4.48E+06	1.9	n.d.	374	0.4	66	9	4526	1.6
2003.10.22	2:00	26	1.86E+06	3.2	4.75E+06	3.1	n.d.	373	2.1	67	13	4405	0.9
2003.10.22	4:00	28	1.72E+06	2.8	4.62E+06	1.4	n.d.	320	1.5	62	9	4435	2.2
2003.10.22	6:00	30	1.63E+06	4.4	4.44E+06	1.1	n.d.	370	1.6	61	16	4269	2.3
2003.10.22	8:00	32	1.71E+06	2.7	4.62E+06	2.0	n.d.	371	1.0	68	13	4156	3.0
2003.10.22	10:00	34	2.01E+06	3.2	4.71E+06	2.8	63	360	0.9	72	7	4123	2.1
2003.10.22	12:00	36	2.27E+06	2.3	4.59E+06	1.2	n.d.	378	0.8	82	8	3655	2.4
2003.10.22	14:00	38	2.68E+06	1.5	4.63E+06	2.5	123	410	1.2	83	8	3099	1.4
2003.10.22	16:00	40	2.52E+06	2.2	4.04E+06	1.3	110	451	1.5	87	9	1728	1.8
2003.10.22	18:00	42	2.39E+06	1.8	4.06E+06	2.1	305	440	1.3	68	6	1955	0.6
2003.10.22	20:00	44	2.16E+06	2.8	4.15E+06	2.0	n.d.	414	1.3	73	11	2287	2.8
2003.10.22	22:00	46	1.94E+06	1.5	4.12E+06	1.3	198	417	1.2	75	6	2771	1.8
2003.10.23	0:00	48	1.99E+06	2.1	4.40E+06	1.0	199	404	1.7	78	6	3767	2.1
2003.10.23	2:00	50	1.86E+06	3.1	4.53E+06	1.9	256	396	3.0	66	13	3973	2.9
2003.10.23	4:00	52	1.85E+06	1.8	4.62E+06	1.6	185	390	1.5	72	10	4172	2.3
2003.10.23	6:00	54	2.09E+06	1.5	4.76E+06	0.8	153	378	1.4	73	11	4601	1.8
2003.10.23	8:00	56	2.18E+06	1.4	4.76E+06	1.4	210	386	1.6	72	13	4644	1.6
2003.10.23	10:00	58	2.35E+06	1.9	4.70E+06	2.1	155	424	1.4	82	9	4313	2.7
2003.10.23	12:00	60	2.74E+06	1.8	4.68E+06	2.1	n.d.	408	1.4	77	7	4660	2.3
2003.10.23	16:00	64	2.26E+06	3.5	4.55E+06	1.8	n.d.	386	2.0	68	7	293	2.8
2003.10.23	20:00	68	2.01E+06	1.5	4.47E+06	1.4	139	358	2.7	64	11	870	4.0
2003.10.24	0:00	72	1.95E+06	3.0	4.57E+06	2.9	n.d.	342	0.2	64	12	977	3.2
2003.10.24	4:00	76	1.76E+06	1.4	4.50E+06	1.8	n.d.	333	1.4	65	8	1033	3.4
2003.10.24	8:00	80	1.77E+06	2.0	4.51E+06	1.6	n.d.	322	1.6	66	6	1175	3.9
2003.10.24	12:00	84	1.95E+06	2.4	4.65E+06	2.4	142	333	2.3	69	13	1656	1.5

*基点 2003.10.21 午前0時. n.d. 検出限界以下(誤差40%以上).

付表 B-3 河川水中の溶存元素濃度 (3) (第2回降水時実験)

採水月日	採水時刻	経過時間* (h)	Fe (ppt)	Co (ppt)	Ni (ppt)	Cu (ppt)	Zn (ppt)	As (ppt)	誤差 (%)
2003.10.21	14:00	14	3.06E+04	2.4	29	341	428	208	6.7
2003.10.21	16:00	16	3.09E+04	4.0	37	380	576	216	6.8
2003.10.21	18:00	18	2.98E+04	4.2	34	339	589	213	5.9
2003.10.21	20:00	20	2.88E+04	4.2	31	284	549	211	3.4
2003.10.21	22:00	22	2.85E+04	4.1	28	286	516	215	3.4
2003.10.22	0:00	24	2.89E+04	2.6	28	286	567	210	3.9
2003.10.22	2:00	26	2.83E+04	0.9	26	292	585	214	7.0
2003.10.22	4:00	28	2.99E+04	3.9	22	241	501	194	4.6
2003.10.22	6:00	30	2.91E+04	1.8	25	262	504	218	3.7
2003.10.22	8:00	32	2.82E+04	2.3	26	300	506	234	5.1
2003.10.22	10:00	34	2.79E+04	2.9	27	485	660	209	4.5
2003.10.22	12:00	36	2.55E+04	3.5	30	855	938	244	3.6
2003.10.22	14:00	38	2.87E+04	2.8	29	1037	961	288	2.8
2003.10.22	16:00	40	2.52E+04	3.7	26	932	816	296	7.5
2003.10.22	18:00	42	3.61E+04	3.0	25	667	614	263	4.1
2003.10.22	20:00	44	3.30E+04	3.5	24	593	820	250	4.5
2003.10.22	22:00	46	3.50E+04	3.0	26	530	650	234	5.2
2003.10.23	0:00	48	3.79E+04	3.9	28	485	591	231	2.0
2003.10.23	2:00	50	4.42E+04	3.7	27	461	655	239	4.9
2003.10.23	4:00	52	3.77E+04	3.0	27	456	643	232	6.5
2003.10.23	6:00	54	4.21E+04	1.7	27	543	646	254	5.3
2003.10.23	8:00	56	4.04E+04	2.4	28	579	739	248	4.3
2003.10.23	10:00	58	3.75E+04	2.2	32	582	623	285	4.7
2003.10.23	12:00	60	3.14E+04	2.8	33	484	667	267	4.3
2003.10.23	16:00	64	3.05E+04	2.9	21	440	598	255	1.5
2003.10.23	20:00	68	3.41E+04	3.26	18	390	652	246	4.95
2003.10.24	0:00	72	3.04E+04	2.32	19	464	708	253	7.26
2003.10.24	4:00	76	3.20E+04	2.84	19	413	556	236	6.65
2003.10.24	8:00	80	2.95E+04	2.37	20	359	568	234	9.45
2003.10.24	12:00	84	2.91E+04	2.54	23	338	521	226	6.04

*基点 2003.10.21 午前0時。 n.d. 検出限界以下(誤差40%以上)。

付表 B-4 河川水中の溶存元素濃度 (4) (第 2 回降水時実験)

採水月日	採水時刻	経過時間* (h)	Rb (ppt)	Sr (ppt)	Y (ppt)	Sb (ppt)	Cs (ppt)	Ba (ppt)	誤差 (%)					
2003.10.21	14:00	14	2102	50950	14	26	5	6172	2.72	1.07	21.2	9.0	1.9	
2003.10.21	16:00	16	2145	52390	15	27	5	6384	1.44	1.66	8.2	13.6	2.6	
2003.10.21	18:00	18	2273	53160	15	29	5	6692	2.02	1.34	17.2	18.8	1.9	
2003.10.21	20:00	20	2209	53970	14	28	5	6884	1.86	1.59	7.6	7.4	2.1	
2003.10.21	22:00	22	2067	53750	14	26	5	7000	2.6	1.77	9.4	8.6	2.8	
2003.10.22	0:00	24	1956	53500	15	23	5	6788	1.32	0.82	11.0	9.7	1.4	
2003.10.22	2:00	26	1791	52620	15	22	5	6593	2.72	1.39	10.0	16.5	1.7	
2003.10.22	4:00	28	1630	52610	13	18	4	6676	2.96	1.52	7.6	7.9	3.5	
2003.10.22	6:00	30	1689	52830	15	21	4	6448	1.87	1.91	4.5	13.6	1.9	
2003.10.22	8:00	32	1681	51850	15	24	4	6572	3.12	0.88	7.6	12.1	1.5	
2003.10.22	10:00	34	2008	54290	16	28	5	6879	1.76	1.6	11.9	8.7	2.3	
2003.10.22	12:00	36	2229	52040	18	44	6	6608	1.14	1.26	7.0	6.8	1.9	
2003.10.22	14:00	38	2493	49700	24	51	6	6401	1.62	0.88	8.3	11.3	2.7	
2003.10.22	16:00	40	2482	45730	30	50	6	6091	1.53	1.32	6.8	7.1	1.7	
2003.10.22	18:00	42	1987	41760	35	38	4	5254	2.56	2.13	11.4	10.5	2.3	
2003.10.22	20:00	44	1927	44810	37	35	5	5683	2.11	0.99	14.1	8.1	2.1	
2003.10.22	22:00	46	1840	46340	37	33	4	5462	1.15	0.24	13.1	11.0	2.7	
2003.10.23	0:00	48	1797	47420	35	28	4	5485	1.67	1.28	6.8	14.9	3.9	
2003.10.23	2:00	50	1716	49250	35	29	3	5626	2.95	2.04	10.0	9.1	2.1	
2003.10.23	4:00	52	1706	49470	31	28	4	5775	2.17	1.13	7.4	19.2	1.9	
2003.10.23	6:00	54	1889	50480	29	30	3	6202	2.52	1.14	13.8	14.9	1.3	
2003.10.23	8:00	56	1958	52680	27	33	5	6237	2.54	1.05	11.5	8.7	1.5	
2003.10.23	10:00	58	2025	49350	28	35	5	6128	2.2	1.02	12.3	13.8	2.7	
2003.10.23	12:00	60	2754	52490	26	31	7	7136	1.16	1.49	6.6	8.9	2.0	
2003.10.23	16:00	64	2363	50720	25	30	6	6385	4.24	1.42	11.4	8.5	2.7	
2003.10.23	20:00	68	2190	50690	24	30	5	6281	1.41	1.53	5.0	8.8	3.18	
2003.10.24	0:00	72	2117	50140	25	37	5	6310	3.94	1.45	10.1	16.5	1.28	
2003.10.24	4:00	76	1851	47590	26	32	4	5913	2.88	1.59	3.9	9.4	3.76	
2003.10.24	8:00	80	1878	50250	26	31	5	6263	1.95	0.53	5.6	10.2	1.88	
2003.10.24	12:00	84	1997	51450	23	26	6	6338	2.27	1.47	14.8	10.6	2.64	

*基点 2003.10.21 午前0時。 n.d. 検出限界以下(誤差40%以上)。 Zr,Nb,Mo,Ru,Rh,Pd,Ag,Cd,In,Srは全試料で検出限界以下。

付表 B-5 河川水中の溶存元素濃度 (5) (第 2 回降水時実験)

採水月日	採水時刻	経過時間* Pb (h)	Th		U			
			(ppt)	誤差(%)	(ppt)	誤差(%)		
2003.10.21	14:00	14	15	6	1.9	15	5.1	11
2003.10.21	16:00	16	13	5	2.3	15	4.8	9
2003.10.21	18:00	18	17	6	2.1	12	4.6	5
2003.10.21	20:00	20	12	12	1.9	29	4.2	8
2003.10.21	22:00	22	16	5	2.0	22	4.2	6
2003.10.22	0:00	24	19	1	1.5	13	3.9	7
2003.10.22	2:00	26	18	3	1.9	23	3.6	4
2003.10.22	4:00	28	14	4	1.3	23	3.3	1
2003.10.22	6:00	30	14	6	1.5	10	3.5	7
2003.10.22	8:00	32	15	7	1.3	27	4.0	5
2003.10.22	10:00	34	17	5	1.6	10	3.9	12
2003.10.22	12:00	36	23	7	1.6	23	5.0	10
2003.10.22	14:00	38	26	4	2.3	12	5.9	13
2003.10.22	16:00	40	20	4	3.2	8	6.3	7
2003.10.22	18:00	42	22	5	4.8	12	6.1	9
2003.10.22	20:00	44	17	6	4.3	13	6.0	6
2003.10.22	22:00	46	16	2	4.0	13	6.0	4
2003.10.23	0:00	48	19	5	4.0	8	5.9	11
2003.10.23	2:00	50	37	12	3.6	12	6.0	4
2003.10.23	4:00	52	19	3	2.9	14	5.7	4
2003.10.23	6:00	54	22	5	2.5	15	5.7	7
2003.10.23	8:00	56	22	8	3.0	11	5.7	6
2003.10.23	10:00	58	22	3	3.0	16	6.4	2
2003.10.23	12:00	60	20	4	2.6	7	6.2	7
2003.10.23	16:00	64	26	7	2.9	15	6.3	6
2003.10.23	20:00	68	32	3	2.6	25	5.3	3
2003.10.24	0:00	72	27	3	3.0	15	5.7	9
2003.10.24	4:00	76	23	5	2.8	9	5.9	8
2003.10.24	8:00	80	15	7	3.3	11	5.3	5
2003.10.24	12:00	84	17	2	2.9	13	5.4	8

*基点 2003.10.21 午前0時.

付表 B-6 河川水中の溶存元素濃度 (6) (第 2 回降水時実験)

採水月日	採水時刻	経過時間*	La (ppt)	Ce (ppt)	Nd (ppt)	Eu (ppt)	Sm (ppt)	Gd (ppt)	Dy (ppt)
		(h)	誤差 (%)						
2003.10.21	14:00	14	16	18	16	2.0	2.3	2.0	1.9
2003.10.21	16:00	16	15	17	15	1.9	2.2	1.7	2.1
2003.10.21	18:00	18	16	17	15	2.0	1.7	1.8	1.9
2003.10.21	20:00	20	15	16	15	2.1	2.1	1.9	2.0
2003.10.21	22:00	22	16	17	17	2.1	2.5	2.1	2.1
2003.10.22	0:00	24	16	18	15	1.9	2.4	1.9	2.0
2003.10.22	2:00	26	15	16	14	2.0	2.3	1.9	2.0
2003.10.22	4:00	28	16	17	15	1.9	2.6	2.1	2.3
2003.10.22	6:00	30	14	17	14	1.8	2.1	2.1	2.2
2003.10.22	8:00	32	15	17	15	1.9	1.8	2.1	2.0
2003.10.22	10:00	34	16	18	16	1.9	1.9	1.9	2.0
2003.10.22	12:00	36	19	21	18	2.0	3.0	2.8	2.5
2003.10.22	14:00	38	28	35	27	2.5	4.9	4.1	3.4
2003.10.22	16:00	40	38	43	35	2.7	6.2	5.3	4.1
2003.10.22	18:00	42	51	62	46	3.3	8.1	6.8	5.3
2003.10.22	20:00	44	51	56	46	3.4	7.6	7.4	6.0
2003.10.22	22:00	46	47	55	44	3.0	7.8	7.2	5.6
2003.10.23	0:00	48	47	53	43	3.0	6.9	5.8	4.9
2003.10.23	2:00	50	44	53	40	3.0	6.8	6.2	5.4
2003.10.23	4:00	52	37	43	36	2.9	5.7	5.0	4.4
2003.10.23	6:00	54	36	43	34	2.5	5.7	5.5	4.6
2003.10.23	8:00	56	34	39	32	2.8	5.2	4.2	4.0
2003.10.23	10:00	58	33	38	31	2.6	4.7	4.3	3.8
2003.10.23	12:00	60	33	33	29	2.7	4.4	3.8	3.7
2003.10.23	16:00	64	32	31	29	2.7	4.0	4.3	3.2
2003.10.23	20:00	68	30	34	29	2.5	4.2	3.9	3.4
2003.10.24	0:00	72	30	32	30	2.5	4.3	4.1	3.4
2003.10.24	4:00	76	32	34	30	2.6	4.4	4.1	3.3
2003.10.24	8:00	80	28	30	28	2.5	3.7	3.8	3.2
2003.10.24	12:00	84	25	28	26	2.5	3.2	3.3	3.0

*基点 2003.10.21 午前0時.

付表 B-7 河川流量 (第2回降水時実験)

採水月日	採水時刻	経過時間*	実測流量 ($\text{m}^3 \text{s}^{-1}$)	推定した成分流量		
				地下水成分 ($\text{m}^3 \text{s}^{-1}$)	降水成分 ($\text{m}^3 \text{s}^{-1}$)	降水成分寄与 (-)
2003.10.21	14:00	14	0.54	0.54	0	0
	16:00	16	0.49	0.49	0	0
	18:00	18	0.46	0.46	0	0
	20:00	20	0.48	0.48	0	0
	22:00	22	0.48	0.48	0	0
2003.10.22	0:00	24	0.51	0.51	0	0
	2:00	26	0.52	0.52	0	0
	4:00	28	0.54	0.54	0	0
	6:00	30	0.62	0.62	0	0
	8:00	32	0.78	0.78	0	0
	10:00	34	1.21	1.20	0.01	0.01
	12:00	36	1.88	1.77	0.11	0.06
	14:00	38	2.16	1.86	0.30	0.14
	16:00	40	1.94	1.53	0.41	0.21
	18:00	42	1.66	1.34	0.32	0.19
2003.10.23	20:00	44	1.45	1.23	0.22	0.15
	22:00	46	1.34	1.14	0.20	0.15
	0:00	48	1.23	1.12	0.11	0.09
	2:00	50	1.27	1.22	0.05	0.04
	4:00	52	1.24	1.22	0.02	0.02
	6:00	54	1.44	1.44	0	0
	8:00	56	1.46	1.46	0	0
	10:00	58	1.49	1.49	0	0
	12:00	60	1.35	1.35	0	0
	16:00	64	1.25	1.25	0	0
2003.10.24	20:00	68	1.41	1.41	0	0
	0:00	72	1.29	1.29	0	0
	4:00	76	1.2	1.20	0	0
	8:00	80	1.14	1.14	0	0
	12:00	84	1.06	1.06	0	0

*基点 2003.10.21 午前0時.

付表 B-8 河川水の懸濁物濃度 (第2回降水時実験)

採水月日	採水時刻	経過時間* (h)	自動採水器試料懸濁物濃度 (mg/l)	手採水試料懸濁物濃度 (mg/l)
2003.10.21	14:00	14	2.6	
	16:00	16	1.0	
	16:40	16.8		2.1
2003.10.22	18:00	18	1.1	
	20:00	20	1.6	
	22:00	22	1.4	
	0:00	24	1.0	
	2:00	26	0.3	
	4:00	28	n.d.	
	6:00	30	1.4	
2003.10.23	8:00	32	n.d.	
	10:00	34	1.9	
	12:00	36	7.4	
	14:00	38	16.4	
	16:00	40	27.1	
	18:00	42	18.9	
	20:00	44	23.7	
2003.10.24	22:00	46	n.d.	
	0:00	48	n.d.	
	2:00	50	3.7	
	4:00	52	3.0	
	6:00	54	2.5	
	8:00	56	3.6	
	10:00	58	1.7	
2003.10.24	12:00	60	1.7	
	13:00	61		5.5
	16:00	64	11.4	
	20:00	68	1.2	
	0:00	72	1.9	
	4:00	76	n.d.	
	8:00	80	3.0	
	12:00	84	4.3	

*基点 2003.10.21 午前0時。

n.d. 検出限界以下。

付表 B-9 河川水試料の陰イオン濃度 (第2回降水時実験)

採水月日	採水時刻	経過時間* (h)	陰イオン濃度 (mg/l)			
			F ⁻	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻
2003.10.21	14:00	14	0.1	5.1	2.2	6.6
	16:00	16	0.1	5.1	2.3	6.5
	18:00	18	0.1	5.0	2.4	6.6
	20:00	20	0.0	4.7	2.4	6.0
	22:00	22	0.1	4.3	2.5	5.4
	0:00	24	0.1	4.1	2.7	5.0
2003.10.22	2:00	26	0.1	4.0	2.7	5.0
	4:00	28	0.1	3.9	2.6	4.9
	6:00	30	0.1	3.1	2.1	3.9
	8:00	32	0.1	4.1	2.7	5.1
	10:00	34	0.1	4.7	2.7	5.4
	12:00	36	0.1	4.5	3.0	5.6
	14:00	38	0.0	4.2	2.6	5.5
	16:00	40	0.2	3.9	2.3	4.8
	18:00	42	0.2	3.7	2.0	4.2
	20:00	44	0.2	3.7	2.6	4.1
2003.10.23	22:00	46	0.1	3.7	2.6	4.2
	0:00	48	0.2	3.7	2.3	4.3
	2:00	50	0.2	3.6	2.3	4.4
	4:00	52	0.2	3.7	2.3	4.5
	6:00	54	0.0	3.8	2.2	4.8
	8:00	56	0.2	3.9	2.2	5.1
	10:00	58	0.2	4.1	2.1	5.2
	12:00	60	0.1	3.9	1.7	5.1
	16:00	64	0.1	4.0	2.0	5.1
	20:00	68	0.1	3.9	1.7	4.9
2003.10.24	0:00	72	0.1	3.8	1.6	4.8
	4:00	76	0.1	3.7	1.8	4.7
	8:00	80	0.1	3.8	1.8	4.9
	12:00	84	0.1	4.1	1.6	5.4

*基点 2003.10.21 午前0時。

付表 B-10 河川水試料の分光分析結果 (第2回降水時実験)

採水月日	採水時刻	ピーク1		ピーク2		ピーク2近傍の極大ピーク			A/B F.Index		
		波長 (nm)	蛍光強度 (QSU)	波長 (nm)	蛍光強度 (QSU)	波長 (nm)	蛍光強度 (QSU)	A 370/450		B 370/500	
自動採水試料 2003.10.21	14:00	14	305/430	9.53	330/430	10.41		6.23	5.34	1.17	
	16:00	16	305/430	10.65	330/430	10.85		6.83	5.52	1.24	
	18:00	18	305/430	9.22	330/430	10.10		6.96	5.73	1.22	
	20:00	20	305/430	9.33	330/430	9.92		6.71	5.81	1.15	
	22:00	22	305/430	8.47	330/430	8.85	330/435	9.01	6.30	5.25	1.20
	0:00	24	305/430	8.63	330/430	9.00		6.56	5.27	1.25	
	2:00	26	305/430	8.02	330/430	8.32	330/435	8.32	6.10	5.04	1.21
	4:00	28	305/430	5.98	330/430	5.93	330/425	6.04	4.10	3.68	1.11
	6:00	30	305/430	8.05	330/430	7.64	335/430	7.90	5.77	4.79	1.20
	8:00	32	305/430	7.65	330/430	7.33		4.66	4.79	3.78	1.23
	10:00	34	305/430	8.67	330/430	9.44		6.75	5.22	5.22	1.29
	12:00	36	305/430	10.72	330/430	11.38	325/425	11.59	8.43	6.45	1.31
14:00	38	305/430	13.14	330/430	13.30		8.35	8.35	6.89	1.21	
16:00	40	305/430	15.47	330/430	14.63		9.70	9.70	8.44	1.15	
18:00	42	305/430	14.47	330/430	14.68		10.43	10.43	9.17	1.14	
20:00	44	305/430	14.90	330/430	14.53		11.28	11.28	10.01	1.13	
22:00	46	305/430	13.22	330/430	13.40	330/435	13.68	10.82	9.97	1.09	
自動採水試料 2003.10.23	0:00	48	305/430	12.76	330/430	12.80		8.99	7.93	1.13	
	2:00	50	305/430		330/430						
	4:00	52	305/430	11.30	330/430	11.61		8.32	7.17	1.16	
	6:00	54	305/430	10.71	330/430	11.19	330/435	11.43	8.00	7.02	1.14
	8:00	56	305/430	10.85	330/430	11.41		7.82	6.77	6.77	1.15
	10:00	58	305/430	11.85	330/430	11.61	330/425	11.98	8.41	7.29	1.15
	12:00	60	305/430	13.17	330/430	13.90		8.80	7.33	7.33	1.20
	16:00	64	305/430	11.22	330/430	11.33	330/435	11.52	7.94	6.57	1.21
	20:00	68	305/430	11.04	330/430	11.09		7.47	7.47	6.34	1.18
	0:00	72	305/430	10.48	330/430	11.42		8.42	8.42	7.24	1.16
	4:00	76	305/430	9.77	330/430	9.72	325/430	10.02	7.15	5.99	1.19
	8:00	80	305/430	9.80	330/430	10.28		7.67	7.67	6.27	1.22
12:00	84	305/430	10.07	330/430	10.73		7.19	7.19	6.15	1.17	
手採水試料 2003.10.21	16:40	2.7	305/430	9.109	330/430	9.537	330/425	9.664	6.359	5.171	1.23
	13:00	4.7	305/430	8.972	330/430	9.273	330/435	9.561	6.091	5.085	1.20

付表 B-11 土壌水試料の陰イオン濃度 (第2回降水時実験)

採水器設置期間	採水地点	採水器 I.D.	設置地点の状況	設置深さ(cm)	陰イオン濃度 (mg/l)			
					F ⁻	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻
2003.10.21-23	b	A	湿地。平坦で流れなし。停滞性。	約30cm	n.d.	18.3	0.0	0.2
2003.10.21-23	b	B	同上。	約5cm	n.d.	30.1	0.0	0.4
2003.10.21-23	b	C	同上。	約5cm	n.d.	3.3	0.1	1.5
2003.10.21-23	e	A	河岸から1m。水面から1mの高さ。	約30cm	n.d.	5.3	1.3	4.4
2003.10.21-23	e	B	木の下。下生え、落葉あり。	約30cm	n.d.	3.2	0.2	13.2
2003.10.21-23	e	C	河岸すれすれ。	約5cm	n.d.	2.5	2.8	3.4

付表 B-12 土壌水試料の分光分析結果 (第2回降水時実験)

採水器設置期間	採水地点	採水器 I.D.	蛍光分光				紫外吸光	
			ピークA		ピークB			
			波長 (nm)	蛍光強度 (QSU)	波長 (nm)	蛍光強度 (QSU)	260nm	280nm
2003.10.21-23	b	A	305/430	15.33	330/430	14.76	0.094	0.079
2003.10.21-23	b	B	305/430	3.46	330/430	4.41	0.057	0.050
2003.10.21-23	b	C	305/430	24.02	330/430	22.83	0.135	0.107
2003.10.21-23	e	A	305/430	36.95	330/430	23.89	0.079	0.062
2003.10.21-23	e	B						
2003.10.21-23	e	C	305/430	13.26	330/430	13.43	0.054	0.042

これらの試料では、ピークA (ピークB)近傍の極大はピークA (ピークB)に一致した。

付表 B-13 河川水中の水素・酸素同位体比 (第2回降水時実験)

採水月日	採水時刻	経過時間* (h)	自動採水器試料			
			δD (‰)	誤差 (‰)	$\delta^{18}O$ (‰)	誤差 (‰)
2003.10.21	14:00	14	-45.9	0.31	-7.0	0.3
	16:00	16	-46.3	0.1	-7.4	0.3
	18:00	18	-46.4	0.1	-7.5	0.3
	20:00	20	-46.7	0.3	-7.6	0.4
	22:00	22	-46.8	0.5	-7.4	0.3
2003.10.22	0:00	24	-47.2	0.6	-7.7	0.4
	2:00	26	-47.3	0.6	-7.2	0.3
	4:00	28	-47.6	0.6	-7.4	0.3
	6:00	30	-47.9	0.6	-7.6	0.6
	8:00	32	-48.2	1.0	-7.9	0.4
	10:00	34	-47.8	0.9	-7.8	0.4
	12:00	36	-46.8	0.9	-7.5	0.5
	14:00	38	-45.2	0.5	-7.7	0.3
	16:00	40	-44.1	0.8	-7.5	0.3
	18:00	42	-44.6	0.6	-7.7	0.3
	20:00	44	-45.1	0.8	-7.6	0.3
2003.10.23	22:00	46	-44.6	0.9	-7.7	0.3
	0:00	48	-46.3	0.8	-8.0	0.4
	2:00	50	-47.5	0.7	-8.0	0.3
	4:00	52	-48.2	0.2	-8.0	0.3
	6:00	54	-48.3	0.5	-7.4	0.3
	8:00	56	-48.4	0.1>	-7.6	0.3
	10:00	58	-48.4	0.1>	-7.5	0.3
	12:00	60	-49.0	0.1>	-7.3	0.3
2003.10.24	16:00	64	-49.2	0.1	-7.7	0.3
	20:00	68	-49.6	0.1	-7.8	0.3
	0:00	72	-50.0	0.3	-7.6	0.3
	4:00	76	-50.2	0.2	-7.5	0.3
	8:00	80	-49.6	0.4	-7.6	0.4
	12:00	84	-50.1	0.2	-7.4	0.3

*基点 2003.10.21 午前0時.

付表 B-14 雨水の水素同位体比 (第2回降水時実験)

集水カップ番号	集水期間	地点 a		地点 b		地点 c	
		δD (%)	誤差 (%)	δD (%)	誤差 (%)	δD (%)	誤差 (%)
1	2003.10.22 6:00-7:00	-17.2	0.9	-17.8	0.4	-16.8	0.2
2	2003.10.22 7:00-8:00	-20.2	0.1	-19.1	0.1	-18.9	0.2
3	2003.10.22 8:00-9:00	-20.4	0.1	-24.1	7.0	-22.6	0.1
4	2003.10.22 8:00-9:00	-36.4	0.1	-28.2	0.2	-31.0	0.1
5	2003.10.22 9:00-10:00	-28.6	0.3	-31.2	0.6	-28.8	0.1
6	2003.10.22 9:00-10:00	-38.3	0.1	-42.1	0.1	-32.7	0.4
7	2003.10.22 10:00-11:00	-35.3	0.1	-40.2	0.5	-41.3	0.1
8	2003.10.22 10:00-14:00	-34.1	0.1	-34.0	0.2	-34.0	0.1
bk	2003.10.22 10:00-14:00	-27.6	0.1	-26.3	0.1	-35.9	0.1
平均*		-28.0	0.1	-27.4	0.3	-33.2	0.1

*集水雨量で重みづけた平均値

付表 B-15 雨水の酸素同位体比 (第2回降水時実験)

集水カップ番号	集水期間	地点 a		地点 b		地点 c	
		$\delta^{18}O$ (%)	誤差 (%)	$\delta^{18}O$ (%)	誤差 (%)	$\delta^{18}O$ (%)	誤差 (%)
1	2003.10.22 6:00-7:00	-4.3	0.4	-4.2	0.3	-4.4	0.3
2	2003.10.22 7:00-8:00	-4.8	0.3	-4.5	0.4	-4.6	0.5
3	2003.10.22 8:00-9:00	-4.9	0.3	-6.4	0.3	-5.2	0.3
4	2003.10.22 8:00-9:00	-6.9	0.4	-6.1	0.4	-5.9	0.4
5	2003.10.22 9:00-10:00	-6.2	0.6	-6.6	0.4	-6.1	0.4
6	2003.10.22 9:00-10:00	-7.6	0.3	-7.6	0.3	-7.5	0.4
7	2003.10.22 10:00-11:00	-6.6	0.3	-7.0	0.4	-7.6	0.6
8	2003.10.22 10:00-14:00	-6.4	0.3	-5.8	0.4	-7.4	0.8
bk	2003.10.22 10:00-14:00	-6.1	0.4	-5.4	0.3	-6.8	0.6
平均*		-6.0	0.2	-5.6	0.2	-6.5	0.4

*集水雨量で重みづけた平均値

付表 B-16 土壌水の水素・酸素同位体比 (第2回降水時実験)

採水器設置期間	採水地点	採水器 I.D.	設置地点の状況	設置深さ (cm)	δD		δ ¹⁸ O	
					(‰)	誤差(‰)	(‰)	誤差(‰)
2003.10.21-23	b	A	湿地。平坦で流れなし。停滞性。	約30cm	-51.3	0.5	-7.4	0.3
2003.10.21-23	b	B	同上。	約5cm	-52.6	0.0	-7.4	0.5
2003.10.21-23	b	C	同上。	約5cm	-46.4	0.2	-7.2	0.3
2003.10.21-23	e	A	河岸から1m。水面から1mの高さ。	約30cm	-62.8	1.5	-8.8	0.5
2003.10.21-23	e	B	木の下。下生え、落葉あり。	約30cm	-51.6	0.0	-8.0	0.3
2003.10.21-23	e	C	河岸すれすれ。	約5cm	-48.4	0.3	-7.1	0.3

付表 C-1 河川水中の溶存元素濃度 (1) (第3回降水時実験)

採水日	採水時刻	経過時間*	B	Na	Mg	Si	K	Ca	Al							
		(h)	(ppt) 誤差(%)													
2003.11.20	6:00	6	3158	19	5.65E+06	3	1.35E+06	3	5.38E+06	3	1.15E+06	2	4.85E+06	2	6422	6
2003.11.20	8:00	8	5021	11	8.72E+06	2	1.48E+06	5	5.96E+06	3	1.32E+06	3	5.36E+06	2	6513	3
2003.11.20	10:00	10	4244	11	5.34E+06	3	1.30E+06	3	5.19E+06	3	1.32E+06	2	4.78E+06	3	6949	2
2003.11.20	12:00	12	4524	8	5.18E+06	5	1.22E+06	5	4.64E+06	1	1.43E+06	2	4.51E+06	3	7171	3
2003.11.20	14:00	14	5927	7	6.27E+06	4	1.53E+06	4	5.97E+06	3	2.01E+06	4	5.42E+06	3	8250	5
2003.11.20	16:00	16	7208	5	6.70E+06	4	1.65E+06	4	6.32E+06	5	2.41E+06	6	6.24E+06	4	7502	2
2003.11.20	18:00	18	5286	6	8.58E+06	3	1.42E+06	4	5.44E+06	5	2.02E+06	2	5.15E+06	3	6806	2
2003.11.20	20:00	20	5671	12	9.26E+06	6	1.50E+06	9	6.66E+06	14	1.81E+06	9	5.26E+06	6	6295	4
2003.11.20	22:00	22	5561	9	6.09E+06	4	1.50E+06	4	6.29E+06	3	1.64E+06	3	5.45E+06	5	6949	2
2003.11.21	0:00	24	5883	6	9.05E+06	4	1.56E+06	4	6.39E+06	2	1.65E+06	2	5.49E+06	4	6678	2
2003.11.21	2:00	26	6295	12	6.58E+06	6	1.65E+06	3	7.10E+06	6	1.82E+06	5	6.13E+06	2	7064	2
2003.11.21	4:00	28	6436	6	6.13E+06	3	1.61E+06	2	6.69E+06	5	1.93E+06	3	5.96E+06	2	8079	4
2003.11.21	6:00	30	6496	8	6.10E+06	3	1.59E+06	3	6.39E+06	4	1.99E+06	3	5.89E+06	2	9743	5
2003.11.21	8:00	32	6663	9	5.98E+06	3	1.49E+06	3	5.86E+06	6	2.19E+06	2	5.33E+06	2	11060	4
2003.11.21	10:00	34	5399	8	7.82E+06	3	1.30E+06	4	4.61E+06	3	2.35E+06	4	4.68E+06	1	12100	2
2003.11.21	12:00	36	6773	10	6.30E+06	5	1.52E+06	6	5.99E+06	4	2.57E+06	4	5.45E+06	5	12900	2
2003.11.21	14:00	38	6517	6	9.09E+06	4	1.56E+06	4	6.20E+06	6	2.12E+06	2	5.44E+06	3	13300	4
2003.11.21	16:00	40	5387	10	5.94E+06	6	1.54E+06	6	6.27E+06	6	1.79E+06	5	5.47E+06	6	8886	3
2003.11.21	20:00	44	6017	3	5.68E+06	4	1.42E+06	5	5.85E+06	4	1.65E+06	3	5.22E+06	3	8664	3
2003.11.22	0:00	48	5176	3	5.72E+06	6	1.47E+06	2	6.13E+06	5	1.62E+06	3	5.27E+06	4	8455	3
2003.11.22	4:00	52	5121	4	8.60E+06	3	1.45E+06	5	6.32E+06	5	1.46E+06	1	5.51E+06	1	9983	4
2003.11.22	8:00	56	4714	11	5.67E+06	1	1.40E+06	2	5.76E+06	4	1.47E+06	3	5.09E+06	3	9048	3
2003.11.22	12:00	60	5606	3	6.30E+06	5	1.57E+06	4	6.30E+06	5	1.73E+06	3	5.63E+06	2	7705	3
2003.11.22	20:00	68	5065	9	6.05E+06	1	1.53E+06	4	6.35E+06	3	1.66E+06	3	5.39E+06	2	7648	4
2003.11.23	8:00	80	4728	5	5.94E+06	6	1.52E+06	6	6.22E+06	7	1.45E+06	4	5.48E+06	2	6370	3
2003.11.23	20:00	92	3961	2	5.85E+06	3	1.46E+06	4	6.01E+06	3	1.69E+06	3	5.38E+06	2	6660	2
2003.11.24	12:00	108	3626	4	5.00E+06	4	1.26E+06	3	5.04E+06	1	1.39E+06	3	4.77E+06	1	6478	2
2003.11.25	4:00	124	3684	8	5.30E+06	6	1.35E+06	4	5.52E+06	7	1.22E+06	4	5.01E+06	5	5348	3

*基点 2003.11.20 午前0時. n.d. 検出限界以下(誤差40%以上).

付表 C-2 河川水中の溶存元素濃度 (2) (第3回降水時実験)

採水日	採水時刻	経過時間* (h)	V (ppt) 誤差(%)	Mn (ppt) 誤差(%)	Fe (ppt) 誤差(%)	Cu (ppt) 誤差(%)	Zn (ppt) 誤差(%)	Sr (ppt) 誤差(%)	Sn (ppt) 誤差(%)							
2003.11.20	6:00	6	224	3	2.64E+03	2	2.10E+04	6	194	5	455	6	4.42E+04	1	8.07E+03	2.4
2003.11.20	8:00	8	242	4	2.77E+03	2	2.05E+04	3	191	6	564	5	4.62E+04	2	7.83E+03	0.8
2003.11.20	10:00	10	257	3	2.73E+03	3	1.98E+04	6	220	4	413	10	4.71E+04	1	7.98E+03	1.6
2003.11.20	12:00	12	244	3	2.47E+03	1	1.98E+04	4	222	3	446	8	4.54E+04	1	7.99E+03	1.3
2003.11.20	14:00	14	227	21	2.55E+03	1	2.04E+04	3	257	20	442	12	4.69E+04	1	8.42E+03	1.6
2003.11.20	16:00	16	280	3	2.91E+03	3	1.93E+04	4	545	2	682	5	4.54E+04	2	6.71E+03	2.3
2003.11.20	18:00	18	263	2	2.71E+03	3	1.70E+04	4	524	3	637	3	4.40E+04	1	6.88E+03	1.4
2003.11.20	20:00	20	258	6	2.68E+03	1	1.68E+04	6	440	1	550	6	4.19E+04	2	6.01E+03	1.4
2003.11.20	22:00	22	256	6	2.54E+03	3	1.87E+04	4	419	5	620	7	4.14E+04	1	7.70E+03	1.1
2003.11.21	0:00	24	251	4	2.67E+03	4	1.90E+04	6	408	5	695	4	4.17E+04	2	6.38E+03	2.3
2003.11.21	2:00	26	256	4	2.95E+03	2	1.98E+04	4	501	3	722	4	4.25E+04	1	7.81E+03	1
2003.11.21	4:00	28	287	2	3.14E+03	3	1.84E+04	5	798	4	n.d.		4.21E+04	2	7.67E+03	1.1
2003.11.21	6:00	30	308	2	2.16E+03	3	2.13E+04	5	839	4	1037	4	3.98E+04	2	1.08E+04	1.7
2003.11.21	8:00	32	272	5	1.69E+03	3	2.38E+04	3	588	4	777	4	3.74E+04	2	8.24E+03	2.6
2003.11.21	10:00	34	289	4	2.14E+03	3	2.49E+04	2	627	4	849	3	4.04E+04	2	1.89E+04	1.9
2003.11.21	12:00	36	266	3	2.41E+03	2	2.53E+04	4	511	5	624	4	3.70E+04	2	1.88E+04	1.2
2003.11.21	14:00	38	304	4	2.87E+03	4	2.66E+04	2	464	3	680	3	3.92E+04	2	2.84E+04	1.3
2003.11.21	16:00	40	238	2	1.57E+02	7	1.56E+04	4	338	4	443	6	3.69E+04	1	1.27E+04	1.6
2003.11.21	20:00	44	264	4	4.30E+02	2	1.61E+04	5	338	5	569	6	3.85E+04	1	2.04E+04	1.8
2003.11.22	0:00	48	263	5	6.47E+02	2	1.91E+04	3	446	5	641	3	3.85E+04	1	1.33E+04	1.1
2003.11.22	4:00	52	245	4	6.14E+02	1	1.91E+04	4	554	3	1223	6	3.89E+04	2	1.63E+04	0.9
2003.11.22	8:00	56	245	2	9.92E+02	1	2.08E+04	4	283	4	576	6	3.98E+04	2	1.22E+04	1.2
2003.11.22	12:00	60	220	4	7.09E+02	5	1.45E+04	5	244	4	442	6	3.72E+04	1	2.40E+04	0.9
2003.11.22	20:00	68	223	3	1.44E+03	3	1.83E+04	3	246	5	771	2	3.92E+04	1	1.30E+04	0.8
2003.11.23	8:00	80	186	6	2.02E+03	1	1.66E+04	6	201	3	467	7	3.96E+04	1	6.19E+03	1.7
2003.11.23	20:00	92	203	5	1.83E+03	2	1.63E+04	4	226	3	420	4	3.92E+04	1	8.83E+03	1.8
2003.11.24	12:00	108	202	7	1.94E+03	2	1.45E+04	6	185	6	475	7	3.99E+04	1	6.40E+03	1.9
2003.11.25	4:00	124	193	4	1.90E+03	4	1.65E+04	3	1642	2	426	4	3.74E+04	1	6.39E+03	1.7

*基点 2003.11.20 午前0時. n.d. 検出限界以下(誤差40%以上).

付表 C-3 河川水中の溶存元素濃度 (3) (第3回降水時実験)

採水日	採水時刻	経過時間*	Ba	Ti	V	Cr	Ni	Cu	Zn
		(h)	(ppt) 誤差(%)						
2003.11.20	6:00	6	5155 2	178 13	292 2	34 27	68 10	225 4	444 5
2003.11.20	8:00	8	5425 2	170 11	274 3	54 25	66 8	210 2	563 5
2003.11.20	10:00	10	5548 2	170 12	272 3	63 11	71 2	218 3	415 2
2003.11.20	12:00	12	5362 1	184 3	280 4	44 18	89 8	257 4	474 7
2003.11.20	14:00	14	5562 2	226 13	305 2	67 23	94 11	314 3	505 6
2003.11.20	16:00	16	5678 1	323 8	355 1	67 14	135 7	662 2	848 3
2003.11.20	18:00	18	5376 1	318 4	321 2	66 14	126 5	646 1	739 4
2003.11.20	20:00	20	5104 2	237 6	307 1	53 18	80 12	492 3	617 4
2003.11.20	22:00	22	5009 1	226 4	314 3	58 17	77 9	464 3	693 2
2003.11.21	0:00	24	4894 2	234 7	314 2	63 19	76 9	478 1	691 3
2003.11.21	2:00	26	5053 2	259 6	341 2	70 22	90 7	612 1	861 2
2003.11.21	4:00	28	5001 2	274 10	400 3	85 19	107 10	1018 2	1078 3
2003.11.21	6:00	30	4942 1	342 7	415 1	93 11	103 6	1070 1	1224 2
2003.11.21	8:00	32	4681 2	381 5	405 1	94 15	124 6	832 3	1034 2
2003.11.21	10:00	34	5247 2	508 5	527 2	126 10	216 3	1112 2	1327 1
2003.11.21	12:00	36	4764 2	427 6	430 2	95 11	149 3	783 2	922 3
2003.11.21	14:00	38	4610 2	407 5	441 2	91 14	141 4	629 3	975 2
2003.11.21	16:00	40	4352 3	347 6	411 2	87 19	114 5	550 2	662 2
2003.11.21	20:00	44	4563 1	299 7	407 2	73 17	113 3	525 2	705 4
2003.11.22	0:00	48	4597 3	285 5	395 1	73 12	121 5	589 1	849 3
2003.11.22	4:00	52	4484 2	265 15	382 2	74 21	104 5	464 2	697 2
2003.11.22	8:00	56	4734 1	328 7	389 1	73 8	106 4	427 2	768 2
2003.11.22	12:00	60	4514 2	334 16	425 12	96 27	142 22	465 14	965 10
2003.11.22	20:00	68	4465 3	425 5	436 3	87 19	133 3	469 3	1027 3
2003.11.23	8:00	80	4526 1	326 7	374 2	92 18	126 9	365 2	784 3
2003.11.23	20:00	92	4571 2	340 4	405 3	92 19	124 8	433 2	717 6
2003.11.24	12:00	108	4722 4	332 7	392 2	92 14	140 5	358 3	805 2
2003.11.25	4:00	124	4372 2	335 7	396 1	97 14	117 7	3476 1	741 2

*基点 2003.11.20 午前0時。

付表 C-4 河川水中の溶存元素濃度 (4) (第3回降水時実験)

採水日	採水時刻	経過時間*	As (ppt)	As 誤差(%)	Mo (ppt)	Mo 誤差(%)	Cd (ppt)	Cd 誤差(%)	Sb (ppt)	Sb 誤差(%)	Pb (ppt)	Pb 誤差(%)	Th (ppt)	Th 誤差(%)	U (ppt)	U 誤差(%)
2003.11.20	6:00	6	163	10	129	3	17	13	12	22	79	3	1.9	11	4.2	3
2003.11.20	8:00	8	154	8	120	5	10	11	10	16	10	11	1.8	17	4.0	5
2003.11.20	10:00	10	145	7	121	3	10	31	9	25	8	12	1.8	9	4.3	5
2003.11.20	12:00	12	151	8	120	5	11	23	10	15	26	4	1.7	14	4.5	9
2003.11.20	14:00	14	171	8	133	7	12	13	14	12	12	11	1.7	13	5.0	11
2003.11.20	16:00	16	173	13	149	7	10	8	23	9	43	4	1.7	11	5.2	3
2003.11.20	18:00	18	182	6	151	5	13	29	22	8	23	7	1.9	12	4.9	9
2003.11.20	20:00	20	159	11	139	3	9	17	22	16	12	7	2.0	15	4.8	11
2003.11.20	22:00	22	159	7	129	7	11	13	23	8	23	52	1.8	16	4.8	13
2003.11.21	0:00	24	165	5	138	5	8	29	21	7	10	23	2.0	9	5.1	7
2003.11.21	2:00	26	183	6	151	6	11	13	25	10	11	6	2.4	10	5.4	2
2003.11.21	4:00	28	224	9	186	4	9	22	32	3	11	10	2.8	17	6.3	4
2003.11.21	6:00	30	249	7	188	3	12	13	38	6	17	8	2.9	11	7.2	6
2003.11.21	8:00	32	254	3	162	3	10	19	32	6	18	6	3.6	10	6.9	3
2003.11.21	10:00	34	276	4	188	5	21	16	29	7	44	5	3.9	11	6.5	3
2003.11.21	12:00	36	228	10	172	3	16	21	29	10	17	7	4.3	9	7.4	2
2003.11.21	14:00	38	235	4	175	9	23	9	27	8	24	5	4.5	7	7.3	9
2003.11.21	16:00	40	204	7	163	5	9	12	27	6	14	7	4.2	12	6.7	6
2003.11.21	20:00	44	225	4	159	6	20	17	25	7	n.d.		3.6	13	7.1	4
2003.11.22	0:00	48	222	4	172	4	17	21	28	7	14	14	4.3	10	7.0	6
2003.11.22	4:00	52	217	10	163	3	17	27	25	9	7	17	4.2	14	6.6	9
2003.11.22	8:00	56	198	5	164	2	22	11	26	8	14	10	3.3	9	6.8	4
2003.11.22	12:00	60	211	18	174	13	27	12	23	8	14	15	3.7	11	6.8	10
2003.11.22	20:00	68	240	6	173	5	25	18	22	10	88	2	2.4	12	6.0	4
2003.11.23	8:00	80	207	5	160	4	16	20	18	12	13	7	2.3	17	5.7	9
2003.11.23	20:00	92	215	4	164	4	20	11	19	10	10	9	2.0	16	5.8	9
2003.11.24	12:00	108	213	7	163	4	16	17	16	9	30	4	1.8	15	5.8	6
2003.11.25	4:00	124	214	5	163	3	19	10	15	11	9	17	1.6	10	5.0	10

*基点 2003.11.20 午前0時. n.d. 検出限界以下(誤差40%以上).

付表 C-5 河川水中の溶存元素濃度 (5) (第3回降水時実験)

採水日	採水時刻	経過時間*	La	Ce	Pr	Nd	Sm	Eu	Gd				
		(h)	(ppt) 誤差(%)										
2003.11.20	6:00	6	18	4	3.7	6	3	2.8	9	0.9	11	2.6	35
2003.11.20	8:00	8	18	4	3.6	8	9	2.7	31	1.0	18	2.5	24
2003.11.20	10:00	10	18	1	3.4	7	5	3.4	14	0.8	20	2.5	30
2003.11.20	12:00	12	19	6	3.7	9	4	2.6	31	1.2	8	2.6	12
2003.11.20	14:00	14	17	3	3.3	3	15	2.6	16	0.8	26	2.8	32
2003.11.20	16:00	16	17	3	3.3	11	14	2.2	8	0.9	17	1.8	22
2003.11.20	18:00	18	16	4	3.4	7	14	2.5	7	0.9	13	1.9	17
2003.11.20	20:00	20	18	5	3.6	7	15	2.1	29	0.8	13	2.4	34
2003.11.20	22:00	22	19	4	3.8	4	17	2.7	20	0.9	20	2.3	19
2003.11.21	0:00	24	20	2	4.4	7	17	3.3	19	0.9	22	2.6	21
2003.11.21	2:00	26	20	4	4.2	7	18	3.0	17	0.9	16	2.8	24
2003.11.21	4:00	28	24	6	5.1	5	22	3.1	17	1.1	14	3.1	17
2003.11.21	6:00	30	34	1	7.3	5	32	5.5	8	1.4	9	4.9	23
2003.11.21	8:00	32	44	1	9.6	3	39	7.5	15	1.9	12	5.9	8
2003.11.21	10:00	34	49	3	10.7	6	43	7.9	17	2.1	8	6.9	17
2003.11.21	12:00	36	51	3	11.2	6	44	8.6	10	2.0	8	7.0	12
2003.11.21	14:00	38	47	2	10.3	3	41	7.8	7	1.9	23	6.3	15
2003.11.21	16:00	40	40	2	8.7	3	36	6.4	17	1.7	10	6.1	11
2003.11.21	20:00	44	39	4	8.8	3	36	6.8	10	1.7	13	5.7	13
2003.11.22	0:00	48	36	2	8.2	4	33	5.9	14	1.9	5	5.5	8
2003.11.22	4:00	52	33	3	7.3	7	31	6.7	4	1.4	5	5.4	15
2003.11.22	8:00	56	33	2	7.2	4	30	6.1	10	1.5	13	4.3	12
2003.11.22	12:00	60	27	4	6.0	3	27	4.7	9	1.2	18	3.8	10
2003.11.22	20:00	68	26	3	5.4	2	23	3.8	16	1.8	13	2.9	12
2003.11.23	8:00	80	21	3	4.5	5	20	3.2	20	1.0	11	2.5	7
2003.11.23	20:00	92	18	3	3.7	2	17	3.1	13	0.8	22	2.5	34
2003.11.24	12:00	108	18	1	3.9	7	17	2.8	19	1.0	26	2.1	23
2003.11.25	4:00	124	18	6	3.7	10	16	2.7	27	0.8	16	1.8	33

*基点 2003.11.20 午前0時. n.d. 検出限界以下(誤差40%以上).

付表 C-6 河川水中の溶存元素濃度 (6) (第3回降水時実験)

採水日	採水時刻	経過時間* (h)	Dy (ppt)	Er (ppt)	誤差(%)
2003.11.20	6:00	6	2.1	17	1.8
2003.11.20	8:00	8	1.8	21	1.7
2003.11.20	10:00	10	1.6	11	1.5
2003.11.20	12:00	12	1.6	16	1.5
2003.11.20	14:00	14	1.5	25	1.4
2003.11.20	16:00	16	1.5	22	1.6
2003.11.20	18:00	18	1.5	25	1.6
2003.11.20	20:00	20	1.9	18	1.8
2003.11.20	22:00	22	1.9	11	1.7
2003.11.21	0:00	24	2.1	27	1.8
2003.11.21	2:00	26	2.0	15	1.8
2003.11.21	4:00	28	2.8	17	2.0
2003.11.21	6:00	30	3.9	7	2.6
2003.11.21	8:00	32	4.4	9	2.8
2003.11.21	10:00	34	5.0	13	3.3
2003.11.21	12:00	36	5.3	12	3.3
2003.11.21	14:00	38	4.9	7	3.4
2003.11.21	16:00	40	4.6	11	2.8
2003.11.21	20:00	44	4.4	10	2.9
2003.11.22	0:00	48	4.3	7	2.8
2003.11.22	4:00	52	3.7	12	2.8
2003.11.22	8:00	56	3.6	7	2.9
2003.11.22	12:00	60	3.3	8	2.4
2003.11.22	20:00	68	2.8	17	2.1
2003.11.23	8:00	80	2.5	10	1.9
2003.11.23	20:00	92	2.0	13	1.7
2003.11.24	12:00	108	1.9	24	1.7
2003.11.25	4:00	124	2.0	28	1.7

*基点 2003.11.20 午前0時.

付表 C-8 河川水試料の陰イオン濃度(1)(自動採水試料)(第3回降水時実験)
地点:小田川定点

採水月日	採水時刻	経過時間*	陰イオン濃度(mg/l)				
			(h)	F ⁻	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻
2003.11.20	6:00	6	0.3	4.0	2.8	5.0	
2003.11.20	8:00	8	0.3	4.1	2.9	5.2	
2003.11.20	10:00	10	0.3	4.3	2.9	5.8	
2003.11.20	12:00	12	0.3	4.7	4.3	6.1	
2003.11.20	14:00	14	0.3	5.1	2.8	6.8	
2003.11.20	16:00	16	0.3	5.0	3.0	6.6	
2003.11.20	18:00	18	0.3	4.9	3.7	6.4	
2003.11.20	20:00	20	0.3	4.4	2.8	5.6	
2003.11.20	22:00	22	0.3	4.2	2.8	5.3	
2003.11.21	0:00	24	0.3	4.2	2.7	5.1	
2003.11.21	2:00	26	0.3	4.2	2.7	5.1	
2003.11.21	4:00	28	0.3	4.0	2.7	4.9	
2003.11.21	6:00	30	0.31	3.8	2.2	4.6	
2003.11.21	8:00	32	0.3	4.2	2.4	5.1	
2003.11.21	10:00	34	0.32	4.8	2.6	6.0	
2003.11.21	12:00	36	0.32	4.5	2.6	5.6	
2003.11.21	14:00	38	0.32	4.1	2.4	5.0	
2003.11.21	16:00	40	0.32	3.9	2.7	4.8	
2003.11.21	20:00	44	0.32	3.9	2.1	4.8	
2003.11.22	0:00	48	0.32	3.8	2.3	4.8	
2003.11.22	4:00	52	0.32	3.8	2.3	4.7	
2003.11.22	8:00	56	0.32	4.0	2.8	5.2	
2003.11.22	12:00	60	0.32	4.3	2.3	5.7	
2003.11.22	20:00	68	0.32	4.2	5.9	5.4	
2003.11.23	8:00	80	0.32	4.2	3.2	5.5	
2003.11.23	20:00	92	0.32	4.3	2.8	5.8	
2003.11.24	12:00	108	0.32	4.4	4.6	5.8	
2003.11.25	4:00	124	0.32	4.0	2.9	5.1	

*基点 2003.11.20 午前0時。

付表 C-7 河川流量(第3回降水時実験)

採水月日	採水時刻	経過時間*	推定した成分流量		
			地下水成分 (m ³ s ⁻¹)	降水成分 (m ³ s ⁻¹)	降水成分寄与 (-)
2003.11.20	6:00	6	0.95		
2003.11.20	8:00	8	0.97		
2003.11.20	10:00	10	0.94		
2003.11.20	12:00	12	0.99		
2003.11.20	14:00	14	1.08		
2003.11.20	16:00	16	1.13		
2003.11.20	18:00	18	1.17	1.13	0.04
2003.11.20	20:00	20	1.18	1.13	0.04
2003.11.20	22:00	22	1.15	1.09	0.05
2003.11.21	0:00	24	1.31	1.26	0.04
2003.11.21	2:00	26	1.53	1.47	0.04
2003.11.21	4:00	28	1.95	1.85	0.05
2003.11.21	6:00	30	2.07	1.74	0.16
2003.11.21	8:00	32	1.95	1.29	0.34
2003.11.21	10:00	34	1.85	1.43	0.23
2003.11.21	12:00	36	1.73		
2003.11.21	14:00	38	1.60		
2003.11.21	16:00	40	1.55		
2003.11.21	20:00	44	1.64		
2003.11.22	0:00	48	1.55		
2003.11.22	4:00	52	1.44		
2003.11.22	8:00	56	1.39		
2003.11.22	12:00	60	1.32		
2003.11.22	20:00	68	1.25		
2003.11.23	8:00	80	1.23		
2003.11.23	20:00	92	1.16		
2003.11.24	12:00	108	1.14		
2003.11.25	4:00	124	1.11		

*基点 2003.11.20 午前0時。

付表 C-9 河川水試料の陰イオン濃度 (2) (手採水試料) (第3回降水時実験)

地点: 小田川定点

採水地点	採水月日	採水時刻	陰イオン濃度 (mg/l)			
			F ⁻	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻
小田川定点	2003.11.19	16:30	0.07	4.17	2.57	5.49
	2003.11.20	14:00	0.07	4.99	2.72	6.57
	2003.11.21	14:00	0.07	3.76	2.50	4.65
地点 b	2003.11.19	15:00	0.05	2.67	1.11	1.65
	2003.11.20	10:50	0.05	2.70	1.13	1.65
	2003.11.21	12:00	0.05	2.75	1.04	1.95
地点 e	2003.11.19	15:30	0.05	2.70	1.04	1.80
	2003.11.20	11:20	0.03	2.44	0.95	1.63
	2003.11.21	14:00	0.05	2.77	1.01	2.07

付表 C-10 土壌水試料の陰イオン濃度 (第3回降水時実験)

地点: 小田川定点

採水地点	採水器設置期間		陰イオン濃度 (mg/l)			
	開始	終了	F ⁻	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻
地点e, A (河岸から1m上部)	2003.11.15	2003.11.16	n.d.	2.59	1.33	3.10
	2003.11.19	2003.11.19	0.06	2.35	0.74	3.85
	2003.11.19	2003.11.20	0.04	2.30	0.88	3.00
	2003.11.20	2003.11.21	0.05	2.21	0.66	2.98
地点e, C (河岸)	2003.11.15	2003.11.16	n.d.	2.75	0.19	11.18
	2003.11.19	2003.11.19	0.05	2.70	0.10	10.46
	2003.11.19	2003.11.20	0.05	2.70	0.13	11.28
	2003.11.20	2003.11.21	0.05	2.66	0.09	11.14
地点b, A	2003.11.15	2003.11.16	0.09	3.80	n.d.	0.65
	2003.11.19	2003.11.19	0.07	3.61	n.d.	0.45
	2003.11.19	2003.11.20	0.08	3.72	n.d.	0.59
	2003.11.20	2003.11.21	0.08	3.61	0.06	0.86

n.d.: 測定限界以下

付表 C-11 河川水試料の分光分析結果 (1) 自動採水試料 (第3回降水時実験)

採水月日	採水時刻	経過時間*	蛍光強度					紫外吸光度		
			ピーク波長(励起光(nm)/蛍光(nm))					260nm	280nm	
			330/430	335/470	360/460	360/460	360/460			
2003.11.20	6:00	6	5.83	5.17	4.37	0.026	0.020			
2003.11.20	8:00	8	6.06	5.83	4.74	0.026	0.021			
2003.11.20	10:00	10	6.85	6.46	5.39	0.028	0.022			
2003.11.20	12:00	12	7.08	6.42	5.40	0.028	0.022			
2003.11.20	14:00	14	7.17	6.48	5.43	0.029	0.023			
2003.11.20	16:00	16	8.28	6.87	6.32	0.028	0.022			
2003.11.20	18:00	18	8.42	7.77	7.21	0.031	0.023			
2003.11.20	20:00	20	7.65	7.21	6.13	0.033	0.026			
2003.11.20	22:00	22	7.48	7.05	6.05	0.032	0.025			
2003.11.21	0:00	24	7.57	7.27	5.99	0.035	0.027			
2003.11.21	2:00	26	8.12	7.29	6.12	0.035	0.028			
2003.11.21	4:00	28	9.63	8.64	7.57	0.043	0.033			
2003.11.21	6:00	30	10.6	9.83	8.60	0.050	0.039			
2003.11.21	8:00	32	11.58	11.41	9.68	0.065	0.053			
2003.11.21	10:00	34	13.78	12.80	11.08	0.068	0.053			
2003.11.21	12:00	36	13.06	12.41	10.60	0.069	0.054			
2003.11.21	14:00	38	12.48	11.98	9.83	0.067	0.052			
2003.11.21	16:00	40	11.04	10.54	9.62	0.051	0.040			
2003.11.21	20:00	44	11.50	10.87	9.61	0.058	0.045			
2003.11.22	0:00	48	10.38	9.40	8.82	0.050	0.040			
2003.11.22	4:00	52	9.89	9.06	8.13	0.047	0.037			
2003.11.22	8:00	56	8.66	8.82	7.55	0.044	0.036			
2003.11.22	12:00	60	9.67	9.2	8.72	0.043	0.034			
2003.11.22	20:00	68	6.15	5.91	4.95	0.034	0.027			
2003.11.23	8:00	80	7.39	6.31	6.19	0.031	0.024			
2003.11.23	20:00	92	6.95	6.15	5.17	0.030	0.023			
2003.11.24	12:00	108	6.95	6.3	5.24	0.026	0.020			
2003.11.25	4:00	124	5.89	5.26	4.53	0.026	0.019			

*基点 2003.11.20 午前0時.

付表 C-12 河川水試料の分光分析結果 (2)手採水試料 (第3回降水時実験)

採水地点	採水月日	採水時刻	蛍光強度 (QSU)						紫外吸光度		DOC (mg/l)
			ピーク1		ピーク2		ピーク3		260nm	280nm	
			極大波長	強度	極大波長	強度	極大波長	強度			
小田川定点	2003.11.19	16:30	325/425	5.26	330/465	4.32	360/465	4.32	0.0190	0.0148	0.932
	2003.11.20	14:00	325/425	7.38	335/460	7.05	360/470	5.65	0.0251	0.0216	1.150
	2003.11.21	14:00	330/430	8.42	335/455	8.40	365/465	7.08	0.0492	0.0392	1.879
地点 a	2003.11.19	15:00	330/435	3.51	325/470	3.10	360/490	2.56	0.0247	0.0215	0.849
	2003.11.20	10:50	330/440	3.90	330/465	3.71	360/475	3.31	0.0187	0.0157	0.749
	2003.11.21	12:00	330/435	7.25	335/470	7.50	360/480	5.82	0.0474	0.0386	1.667
地点 e	2003.11.19	15:30	325/430	2.45	325/470	1.98	n.p.	n.p.	0.0119	0.0106	0.628
	2003.11.20	11:20	320/420	2.54	325/475	2.34	n.p.	n.p.	0.0204	0.0170	0.713
	2003.11.21	14:00	325/430	7.28	325/470	6.83	n.p.	n.p.	0.0504	0.0418	1.644

波長：励起光(nm)/蛍光(nm) n.p. : ピークなし DOC:溶解有機炭素濃度

付表 C-13 土壌水試料の分光分析結果 (第3回降水時実験)

採水地点	採水器設置期間		蛍光強度 (QSU)						紫外吸光度		DOC (mg/l)
	開始	終了	ピーク1			ピーク2			260nm	280nm	
			極大波長	強度	極大波長	強度	極大波長	強度			
地点e, A (河岸から1m上部)	2003.11.15	2003.11.16	330/430	16.10	330/455	14.51	360/460	11.02	0.0565	0.0445	n.d.
	2003.11.19	2003.11.20	330/430	22.86	330/455	20.58	360/460	17.64	0.0692	0.0521	3.30
	2003.11.20	2003.11.21	330/430	22.69	330/455	20.82	360/460	16.56	0.0673	0.0501	3.22
地点e, C (河岸)	2003.11.15	2003.11.16	330/430	2.19	335/460	2.08	360/460	1.40	0.0148	0.0126	0.91
	2003.11.19	2003.11.20	325/430	1.67	330/460	1.19	360/460	0.81	0.0126	0.0109	0.56
	2003.11.20	2003.11.21	335/430	1.59	335/455	1.45	360/455	1.11	0.0097	0.0075	0.44
地点b, A	2003.11.15	2003.11.16	330/430	34.56	330/460	35.29	360/460	26.46	0.1175	0.0901	3.47
	2003.11.19	2003.11.20	330/430	33.41	330/460	33.70	360/460	25.31	0.1287	0.1032	3.48
	2003.11.20	2003.11.21	330/430	30.25	330/460	30.07	360/460	22.26	0.131	0.1062	3.50

波長：励起光(nm)/蛍光(nm)

n.p. : ピークなし DOC:溶解有機炭素濃度 n.d. 欠測

付表 C-14 河川水の水素・酸素同位体比 (第3回降水時実験)

地点: 小田川定点

採水月日	採水時刻	経過時間*	実測流量 ($\text{m}^3 \text{s}^{-1}$)	自動採水器試料			
				δD (‰)	誤差 (‰)	$\delta^{18}\text{O}$ (‰)	誤差 (‰)
2003.11.20	6:00	6	0.95	-46.6	0.5	-8.1	0.0
2003.11.20	8:00	8	0.97	-47.0	0.1	-8.2	0.2
2003.11.20	10:00	10	0.94	-47.3	0.2	-8.3	0.2
2003.11.20	12:00	12	0.99	-47.3	0.1	-8.3	0.1
2003.11.20	14:00	14	1.08	-47.2	0.4	-8.0	0.1
2003.11.20	16:00	16	1.13	-45.5	0.3	-8.0	0.1
2003.11.20	18:00	18	1.17	-46.3	0.0	-8.0	0.1
2003.11.20	20:00	20	1.18	-46.2	0.0	-8.0	0.1
2003.11.20	22:00	22	1.15	-46.8	0.2	-8.0	0.1>
2003.11.21	0:00	24	1.31	-46.4	0.2	-7.9	0.2
2003.11.21	2:00	26	1.53	-46.1	0.1	-7.8	0.2
2003.11.21	4:00	28	1.95	-45.0	0.2	-7.9	0.1
2003.11.21	6:00	30	2.07	-45.0	0.2	-7.9	0.2
2003.11.21	8:00	32	1.95	-45.5	0.1>	-8.0	0.3
2003.11.21	10:00	34	1.85	-46.5	0.1	-8.0	0.1
2003.11.21	12:00	36	1.73	-46.7	0.2	-8.0	0.3
2003.11.21	14:00	38	1.60	-47.3	0.1	-7.7	0.3
2003.11.21	16:00	40	1.55	-50.5	0.4	-8.1	0.2
2003.11.21	20:00	44	1.64	-50.3	0.1>	-8.2	0.1
2003.11.22	0:00	48	1.55	-51.4	0.2	-8.2	0.2
2003.11.22	4:00	52	1.44	-52.3	0.2	-8.3	0.1
2003.11.22	8:00	56	1.39	-51.2	0.1>	-8.4	0.1
2003.11.22	12:00	60	1.32	-51.5	0.6	-8.2	0.1
2003.11.22	20:00	68	1.25	-50.6	0.5	-8.0	0.2
2003.11.23	8:00	80	1.23	-51.2	0.4	-8.1	0.1
2003.11.23	20:00	92	1.16	-49.5	0.8	-7.9	0.1
2003.11.24	12:00	108	1.14	-50.2	0.6	-7.9	0.2
2003.11.25	4:00	124	1.11	-51.7	0.8	-8.1	0.1

*基点 2003.11.20 午前0時.

付表 C-15 雨水の水素同位体比(第3回降水時実験)

集水カップ番号	対応降水の集水期間	地点 a		地点 b		地点 s	
		δD		δD		δD	
		(‰)	誤差(‰)	(‰)	誤差(‰)	(‰)	誤差(‰)
1*	2003.11.20 12:00-13:00					-11.8	0.05
2*	2003.11.20 13:00-14:00					-3.8	0.02
1**	2003.11.20 12:00-13:00	-3.6	0.2	-26.7	0.5	-8.8	0.4
2**	2003.11.20 13:00-14:00	-24.1	0.0	-30.5	0.2	-11.7	0.1
3**	2003.11.20 15:00-16:00	-25.1	0.2	-28.5	0.2	-16.5	0.0
4**	2003.11.20 20:00-21:00	-14.9	0.1	-15.3	0.3	-19.9	0.3
5**	2003.11.20 23:00-24:00	-8.5	0.3	-19.4	0.1	-20.5	0.2
6**	2003.11.20 23:00-24:00	-17.4	0.2	-28.1	0.2	-25.7	0.2
7**	2003.11.21 00:00-01:00	-21.3	0.1	-30.4	0.2	-19.3	0.6
8**	2003.11.21 00:00-09:00	-63.0	0.2	-66.6	0.3	-19.8	0.1
bk**	2003.11.21 00:00-09:00	-53.0	0.1	-57.2	0.1	-25.4	0.4
平均***		-42.3	0.1	-48.0	0.1	-21.6	0.2

* 第1回収(2003.11.20 16:30)

** 第2回収(2003.11.21 12:00)

***集水雨量で重みづけた平均値

付表 C-16 雨水の酸素同位体比(第3回降水時実験)

集水カップ番号	対応降水の集水期間	地点 a		地点 b		地点 s	
		δ ¹⁸ O		δ ¹⁸ O		δ ¹⁸ O	
		(‰)	誤差(‰)	(‰)	誤差(‰)	(‰)	誤差(‰)
1*	2003.11.20 12:00-13:00					-4.4	0.08
2*	2003.11.20 13:00-14:00						
1**	2003.11.20 12:00-13:00	-4.3	0.4	-4.7	0.1	-4.0	0.4
2**	2003.11.20 13:00-14:00	-4.8	0.3			-4.3	0.1
3**	2003.11.20 15:00-16:00	-4.9	0.3	-6.7	0.1	-4.7	0.2
4**	2003.11.20 20:00-21:00	-6.9	0.4	-6.1	0.7	-5.2	0.1
5**	2003.11.20 23:00-24:00	-6.2	0.6	-4.9	0.3	-5.1	0.2
6**	2003.11.20 23:00-24:00	-7.6	0.3			-5.5	0.1
7**	2003.11.21 00:00-01:00	-6.6	0.3	-3.7	0.8	-6.1	0.1
8**	2003.11.21 00:00-09:00	-6.4	0.3	-9.2	0.5	-8.8	0.7
bk**	2003.11.21 00:00-09:00	-6.1	0.4	-8.7	0.4	-8.1	0.1
平均***		-6.0		-7.9		-7.2	

* 第1回収(2003.11.20 16:30)

** 第2回収(2003.11.21 12:00)

***集水雨量で重みづけた平均値

付表 C-17 土壌水の水素・酸素同位体比 (第3回降水時実験)

採水地点	採水器設置期間	設置深さ(cm)	δD		δ ¹⁸ O	
			(‰)	誤差(‰)	(‰)	誤差(‰)
b	2003.11.15-16	約30cm	-52.60	1.06	-7.72	0.30
b	2003.11.19	約30cm	-49.60	0.11	-8.05	0.77
b	2003.11.20	約30cm	-49.50	0.00	-7.92	0.32
b	2003.11.21	約30cm	-51.00	0.80	-7.89	0.29
b	2003.11.15-16	約30cm	-54.80	0.29		
b	2003.11.20	約30cm	-51.00	0.14	-9.49	0.27
b	2003.11.21	約30cm	-48.50	0.14	-7.99	0.96
e	2003.11.15-16	約30cm	-60.80	0.20	-8.15	0.20
e	2003.11.19	約30cm	-58.20	0.07	-9.13	0.14
e	2003.11.20	約30cm	-57.80	0.15	-8.91	0.19
e	2003.11.21	約30cm	-58.60	0.36	-8.32	0.29
e	2003.11.15-16	約30cm	-53.00	0.35	-7.85	0.43
e	2003.11.20	約30cm	-50.30	0.06	-8.58	0.09
e	2003.11.19	約30cm	-51.40	0.18	-8.28	0.18
e	2003.11.21	約30cm	-51.40	0.16	-8.17	0.33
e	2003.11.15-16	約5cm	-35.10	0.35		
e	2003.11.20	約5cm	-32.20	0.18	-7.29	0.37
e	2003.11.21	約5cm	-32.10	1.63	-6.46	0.66

付表 D-1 河川水中の溶存元素濃度 (1)(第4回降水時実績)

採水月日	採水時刻	経過時間* (h)	Na (ppt)	Mg (ppt)	Si (ppt)	K (ppt)	Ca (ppt)	Al (ppt)	誤差(%)	誤差(%)	誤差(%)	誤差(%)	誤差(%)
2004.5.29	12:00	-	6.01E+03	1.26E+03	3.68E+03	1.50E+01	5.39E+03	1.50E+04	2	3	2	3	3
2004.5.30	0:00	-	5.69E+03	1.28E+03	3.63E+03	1.87E+03	5.51E+03	7.60E+03	1	2	1	1	3
2004.5.30	10:30	-	4.42E+03	1.22E+03	2.75E+03	1.87E+03	5.36E+03	1.81E+04	3	2	1	1	2
2004.5.31	10:00	10	4.34E+03	1.20E+03	2.70E+03	1.68E+03	5.23E+03	1.65E+04	1	2	1	1	5
2004.5.31	18:00	18	4.12E+03	1.12E+03	2.59E+03	1.97E+03	5.14E+03	9.30E+03	3	3	2	2	6
2004.5.31	22:00	22	4.52E+03	1.16E+03	3.12E+03	1.75E+03	5.31E+03	1.12E+04	2	3	1	1	24
2004.6.1	0:00	24	4.51E+03	1.12E+03	3.28E+03	1.88E+03	4.71E+03	1.11E+04	1	3	2	2	1
2004.6.1	10:00	34	4.79E+03	1.05E+03	2.66E+03	1.76E+03	4.70E+03	1.44E+04	30	3	2	2	3
2004.6.1	11:00	35	3.79E+03	1.04E+03	2.35E+03	1.75E+03	4.68E+03	2.16E+04	2	2	1	1	3
2004.6.1	12:00	36	4.95E+03	1.03E+03	5.09E+03	2.05E+03	4.62E+03	1.66E+04	3	3	2	2	5
2004.6.1	16:00	40	3.85E+03	9.86E+02	2.51E+03	1.57E+03	4.30E+03	1.78E+04	2	1	0.4	1	3
2004.6.1	19:00	43	4.03E+03	1.07E+03	2.60E+03	1.56E+03	4.72E+03	1.40E+04	3	1	1	1	5
2004.6.1	21:00	45	4.04E+03	1.06E+03	2.70E+03	1.35E+03	4.73E+03	1.27E+04	1	2	1	1	4
2004.6.1	2:00	50	4.28E+03	1.16E+03	3.16E+03	1.49E+03	5.00E+03	1.35E+04	2	3	1	1	3
2004.6.2	6:00	54	4.28E+03	1.18E+03	2.79E+03	1.74E+03	5.10E+03	1.39E+04	3	3	2	2	4
2004.6.2	10:00	58	4.01E+03	1.09E+03	2.32E+03	1.72E+03	4.83E+03	1.84E+04	2	2	1	1	3
2004.6.2	18:00	66	5.10E+03	1.27E+03	2.96E+03	2.30E+03	5.35E+03	1.44E+04	1	1	1	1	4
2004.6.3	6:00	78	4.46E+03	1.23E+03	3.38E+03	1.71E+03	5.30E+03	1.14E+04	6	6	2	2	1
2004.6.3	18:00	90	4.58E+03	1.31E+03	2.88E+03	2.24E+03	5.57E+03	1.66E+04	2	3	1	1	4
2004.6.4	6:00	102	4.08E+03	1.18E+03	2.33E+03	1.51E+03	5.15E+03	9.50E+03	1	2	1	1	1
2004.6.4	10:30	106.5	4.50E+03	1.24E+03	2.73E+03	1.96E+03	5.35E+03	1.96E+04	1	2	1	1	1
2004.6.4	12:00	108	4.46E+03	1.27E+03	2.81E+03	2.10E+03	5.37E+03	1.85E+04	5	2	2	2	2

*基点 2004.5.31 午前0時. n.d. 検出限界以下(誤差40%以上).

付表 D-2 河川水中の溶存元素濃度 (2) (第4回降水時実験)

採水月日	採水時刻	経過時間* (h)	V (ppt) 誤差 (%)	Mn (ppt) 誤差 (%)	Fe (ppt) 誤差 (%)	Zn (ppt) 誤差 (%)	Sr (ppt) 誤差 (%)	Ba (ppt) 誤差 (%)					
2004.5.29	12:00	-	370	5.70E+03	2	1.50E+04	3	600	7	5.42E+04	2	7520	2
2004.5.30	0:00	-	320	5.90E+03	2	1.73E+04	2	200	27	5.37E+04	1	8130	3
2004.5.30	10:30	-	460	2.80E+03	2	3.31E+04	2	700	5	6.03E+04	1	8100	1
2004.5.31	10:00	10	420	5.750E+03	3	2.82E+04	4	590	3	5.41E+04	2	7130	1
2004.5.31	18:00	18	460	3.50E+03	2	1.74E+04	4	2130	4	5.21E+04	1	7570	1
2004.5.31	22:00	22	510	44	5.80E+03	12	2.92E+04	14	24	5.26E+04	7	7730	5
2004.6.1	0:00	24	460	3.540E+03	3	2.41E+04	4	1530	6	5.50E+04	1	7810	1
2004.6.1	10:00	34	470	2.760E+03	2	2.67E+04	3	1210	7	5.34E+04	2	7090	2
2004.6.1	11:00	35	640	3.930E+03	2	2.79E+04	4	1130	2	4.90E+04	1	6540	3
2004.6.1	12:00	36	440	4.340E+03	1	3.01E+04	2	800	4	5.01E+04	1	6720	1
2004.6.1	16:00	40	410	4.380E+03	3	3.23E+04	3	570	8	4.65E+04	2	6010	1
2004.6.1	19:00	43	400	3.590E+03	2	2.77E+04	3	940	6	4.97E+04	1	6720	1
2004.6.1	21:00	45	380	5.680E+03	2	2.65E+04	4	900	6	4.97E+04	3	6800	2
2004.6.1	2:00	50	370	4.740E+03	2	3.30E+04	2	960	3	5.35E+04	1	7300	1
2004.6.2	6:00	54	370	5.780E+03	3	3.32E+04	5	850	7	5.50E+04	3	7440	2
2004.6.2	10:00	58	410	3.840E+03	1	3.89E+04	3	910	4	5.87E+04	1	7570	1
2004.6.2	18:00	66	430	3.310E+03	2	2.84E+04	4	1020	4	6.10E+04	1	8230	2
2004.6.3	6:00	78	340	2.570E+03	3	2.65E+04	4	1230	4	5.86E+04	1	8030	1
2004.6.3	18:00	90	450	5.720E+03	1	3.52E+04	1	910	5	6.44E+04	2	8870	1
2004.6.4	6:00	102	320	3.890E+03	1	2.76E+04	3	920	6	5.53E+04	1	7880	1
2004.6.4	10:30	106.5	470	2.910E+03	3	4.01E+04	2	690	3	6.27E+04	1	8370	3
2004.6.4	12:00	108	420	1.810E+03	1	3.67E+04	2	750	3	5.94E+04	1	8030	1

*基点 2004.5.31 午前0時。

Sn は分析中に汚染した可能性があるために除いた。

付表 D-3 河川水中の溶存元素濃度 (3) (第4回降水時実験)

採水月日	採水時刻	経過時間* (h)	Ti (ppt)	Ti 誤差(%)	V (ppt)	V 誤差(%)	Cr (ppt)	Cr 誤差(%)	Ni (ppt)	Ni 誤差(%)	Cu (ppt)	Cu 誤差(%)	Zn (ppt)	Zn 誤差(%)
2004.5.29	12:00	-	197	11	356	2	75	4	15	3	334	3	384	7.8
2004.5.30	0:00	-	157	10	314	2	69	7	77	10	365	4	3757	2
2004.5.30	10:30	-	154	24	322	5	59	16	70	13	330	4	405	6.7
2004.5.31	10:00	10	158	13	315	3	64	12	62	19	306	3	380	5
2004.5.31	18:00	18	124	9	358	4	78	12	80	12	820	5	1483	1.9
2004.5.31	22:00	22	164	9	322	3	77	12	68	10	749	2	3583	2.4
2004.6.1	0:00	24	187	6	387	1	67	21	83	13	1246	1	1425	2.8
2004.6.1	10:00	34	168	13	337	3	72	3	85	7	707	2	779	5.1
2004.6.1	11:00	35	170	15	442	2	85	5	77	36	707	3	701	4.7
2004.6.1	12:00	36	251	11	344	2	71	10	94	5	519	2	455	5.3
2004.6.1	16:00	40	290	9	332	3	63	8	117	3	424	3	683	50.7
2004.6.1	19:00	43	212	15	312	3	64	4	89	6	393	2	605	6.3
2004.6.1	21:00	45	165	6	287	3	77	8	63	10	377	2	519	4.1
2004.6.1	2:00	50	215	3	284	2	71	11	66	6	320	2	622	5.5
2004.6.2	6:00	54	218	6	297	5	68	9	89	14	334	3	576	5.1
2004.6.2	10:00	58	198	17	298	5	76	6	104	22	353	5	596	8
2004.6.2	18:00	66	150	13	303	5	78	9	87	7	308	3	526	2.5
2004.6.3	6:00	78	148	4	230	2	70	8	64	9	257	5	600	5.6
2004.6.3	18:00	90	149	6	312	1	71	8	93	11	375	2	524	4.1
2004.6.4	6:00	102	146	9	239	2	57	8	62	6	288	4	559	5.5
2004.6.4	10:30	106.5	138	15	275	3	56	4	73	9	308	4	296	4.6
2004.6.4	12:00	108	166	18	320	2	62	5	85	10	378	2	406	3.9

*基点 2004.5.31 午前0時.

付表 D-4 河川水中の溶存元素濃度 (4)(第4回降水時実験)

採水月日	採水時刻	経過時間* (h)	As (ppt) 誤差(%)	Mo (ppt) 誤差(%)	Cd (ppt) 誤差(%)	Sb (ppt) 誤差(%)	Pb (ppt) 誤差(%)	Th (ppt) 誤差(%)	U (ppt) 誤差(%)
2004.5.29	12:00	-	170	12	52	44	20	1.9	16
2004.5.30	0:00	-	151	8	n.d.	36	29	2.3	11
2004.5.30	10:30	-	172	7	n.d.	34	n.d.	1.6	23
2004.5.31	10:00	10	157	8	n.d.	34	n.d.	1.9	11
2004.5.31	18:00	18	195	7	n.d.	57	9	2.4	18
2004.5.31	22:00	22	199	13	n.d.	59	35	2.4	10
2004.6.1	0:00	24	217	6	n.d.	53	19	2.9	8
2004.6.1	10:00	34	204	8	n.d.	49	n.d.	4.4	5
2004.6.1	11:00	35	199	3	n.d.	55	8	3.6	36
2004.6.1	12:00	36	189	11	29	44	n.d.	3.9	11
2004.6.1	16:00	40	165	11	4	36	n.d.	4.1	7
2004.6.1	19:00	43	171	7	n.d.	36	n.d.	4.3	10
2004.6.1	21:00	45	162	11	n.d.	42	n.d.	3.7	10
2004.6.1	2:00	50	153	8	n.d.	33	n.d.	3.4	14
2004.6.2	6:00	54	159	10	n.d.	31	n.d.	3.1	9
2004.6.2	10:00	58	173	15	n.d.	32	12	3.0	12
2004.6.2	18:00	66	156	9	n.d.	33	n.d.	2.6	12
2004.6.3	6:00	78	137	13	n.d.	30	n.d.	2.1	10
2004.6.3	18:00	90	162	14	n.d.	34	n.d.	2.2	12
2004.6.4	6:00	102	133	15	n.d.	31	n.d.	2.2	20
2004.6.4	10:30	106.5	157	10	n.d.	32	n.d.	1.7	16
2004.6.4	12:00	108	152	10	n.d.	32	n.d.	2.0	9

*基点 2004.5.31 午前0時. n.d. 検出限界以下(誤差40%以上).

付表 D-5 河川水中の溶存元素濃度 (5) (第4回降水時実験)

採水月日	採水時刻	経過時間* (h)	La (ppt) 誤差 (%)	Ce (ppt) 誤差 (%)	Pr (ppt) 誤差 (%)	Nd (ppt) 誤差 (%)	Sm (ppt) 誤差 (%)	Eu (ppt) 誤差 (%)	Gd (ppt) 誤差 (%)							
2004.5.29	12:00	-	23	4	22	6	4.7	9	15	3	4	20	1.2	21	3.8	16
2004.5.30	0:00	-	19	5	18	4	4.0	9	17	4	3	25	1.0	14	3.4	13
2004.5.30	10:30	-	21	3	19	2	4.4	6	19	7	4	15	1.1	7	2.9	18
2004.5.31	10:00	10	21	4	19	5	4.5	5	18	4	3	15	0.9	17	3.0	20
2004.5.31	18:00	18	18	3	19	4	3.9	4	17	6	4	11	1.3	25	3.6	20
2004.5.31	22:00	22	27	3	29	1	6.0	3	24	5	5	12	1.4	12	4.8	11
2004.6.1	0:00	24	27	1	26	5	5.9	7	24	3	5	22	1.6	9	4.4	16
2004.6.1	10:00	34	35	3	33	4	7.5	4	34	8	6	4	1.8	11	6.1	20
2004.6.1	11:00	35	37	3	40	3	8.6	7	34	5	6	11	2.0	19	6.1	12
2004.6.1	12:00	36	37	2	39	2	8.7	3	34	6	7	9	2.0	11	5.7	6
2004.6.1	16:00	40	39	1	41	2	8.6	4	35	7	7	15	1.9	9	5.6	21
2004.6.1	19:00	43	37	3	37	5	8.3	5	32	5	7	17	1.7	11	6.1	13
2004.6.1	21:00	45	34	2	33	1	7.7	6	31	5	7	7	1.6	17	6.3	13
2004.6.1	2:00	50	32	3	31	3	6.9	3	29	5	5	18	1.6	8	5.2	17
2004.6.2	6:00	54	28	2	28	3	6.0	1	25	5	5	10	1.4	11	4.7	9
2004.6.2	10:00	58	25	3	25	2	5.7	4	23	5	4	11	1.5	7	4.2	17
2004.6.2	18:00	66	16	5	16	3	3.9	7	17	7	4	19	1.0	9	3.1	25
2004.6.3	6:00	78	18	2	18	3	3.9	7	17	7	4	10	1.3	8	3.2	26
2004.6.3	18:00	90	18	3	19	4	3.8	6	17	10	3	14	1.2	11	2.8	9
2004.6.4	6:00	102	18	3	18	4	3.9	3	18	7	3	26	1.1	16	3.7	12
2004.6.4	10:30	106.5	22	4	20	2	4.5	6	20	6	5	18	2.6	6	7.0	12
2004.6.4	12:00	108	19	1	18	4	3.9	6	17	9	3	21	1.1	16	3.1	17

*基点 2004.5.31 午前0時.

付表 D-6 河川水中の溶存元素濃度 (6) (第4回降水時実験)

採水月日	採水時刻	経過時間*		Dy	Er	Yb
		(h)	(ppt) 誤差(%)			
2004.5.29	12:00	-	2.2	9	2.0	16
2004.5.30	0:00	-	2.3	7	2.1	12
2004.5.30	10:30	-	2.1	5	1.9	7
2004.5.31	10:00	10	1.8	29	1.9	10
2004.5.31	18:00	18	2.5	15	2.2	5
2004.5.31	22:00	22	2.9	17	2.4	10
2004.6.1	0:00	24	3.4	11	2.5	9
2004.6.1	10:00	34	4.4	10	3.0	6
2004.6.1	11:00	35	4.8	17	3.2	6
2004.6.1	12:00	36	4.1	7	2.9	7
2004.6.1	16:00	40	4.4	18	3.1	11
2004.6.1	19:00	43	4.4	7	3.1	14
2004.6.1	21:00	45	4.1	8	3.0	9
2004.6.1	2:00	50	3.3	4	2.7	10
2004.6.2	6:00	54	3.5	17	2.9	4
2004.6.2	10:00	58	2.3	20	2.3	10
2004.6.2	18:00	66	2.2	11	1.7	11
2004.6.3	6:00	78	2.1	14	2.1	10
2004.6.3	18:00	90	1.9	17	1.9	13
2004.6.4	6:00	102	2.4	12	2.0	11
2004.6.4	10:30	106.5	14.4	2	6.7	7
2004.6.4	12:00	108	2.2	20	1.8	6

*基点 2004.5.31 午前0時.

付表 D-7 河川流量(第4回降水時実験)

採水月日	採水時刻	経過時間* (h)	地点:小田川定点			
			推定した成分流量		降水成分寄与	
			実測流量 ($m^3 s^{-1}$)	地下水成分 ($m^3 s^{-1}$)	降水成分 ($m^3 s^{-1}$)	(-)
2004.5.30	0:00	-	0.90			
2004.5.31	18:00	18	1.06			
2004.5.31	22:00	22	1.34			
2004.6.1	0:00	24	1.65	1.42	0.23	0.14
2004.6.1	10:00	34	2.05	1.74	0.32	0.15
2004.6.1	11:00	35	2.16	1.82	0.33	0.15
2004.6.1	12:00	36	2.15	1.87	0.29	0.13
2004.6.1	16:00	40	1.63	1.54	0.09	0.06
2004.6.1	19:00	43	1.43			
2004.6.1	22:00	46	1.23			
2004.6.1	2:00	50	1.17			
2004.6.2	6:00	54	1.10			
2004.6.2	10:00	58	1.10			
2004.6.2	18:00	66	0.97			
2004.6.3	6:00	78	0.84			
2004.6.3	18:00	90	0.77			
2004.6.4	6:00	102	0.70			
2004.6.2	12:00	108	0.76			

*基点 2004.5.31 午前0時.

付表 D-8 河川水試料の陰イオン濃度(第4回降水時実験)

採水月日	採水時刻	経過時間* (h)	地点:小田川定点			
			陰イオン濃度 (mg/l)			
			Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	
2004.5.29	12:00	-	4.49	3.57	8.86	
2004.5.30	0:00	-	4.07	3.69	7.60	
2004.5.31	18:00	18	4.03	3.72	7.61	
2004.5.31	22:00	22	3.74	3.48	6.83	
2004.6.1	0:00	24	3.73	3.36	6.77	
2004.6.1	10:00	34	3.52	2.91	6.59	
2004.6.1	12:00	36	3.66	2.81	6.94	
2004.6.1	16:00	40	3.54	2.82	6.40	
2004.6.1	19:00	43	3.53	3.20	6.69	
2004.6.1	21:00	46	3.45	3.04	6.38	
2004.6.1	2:00	50	3.71	3.21	6.92	
2004.6.2	6:00	54	3.95	3.28	7.47	
2004.6.2	10:00	58	4.22	3.27	8.09	
2004.6.2	18:00	66	4.43	3.23	8.48	
2004.6.3	6:00	78	4.30	3.22	8.04	
2004.6.3	18:00	90	4.71	3.49	8.91	
2004.6.4	6:00	102	4.24	3.39	7.69	
2004.6.2	12:00	108	4.68	3.39	8.75	

*基点 2004.5.31 午前0時.

付表 D-9 河川水試料の分光分析結果(第4回降水時実験)

採水月日	採水時刻	経過時間*	蛍光強度 (QSU)						紫外吸光度		DOC (mg/l)
			ピークB		ピークC		ピークD		260nm	280nm	
			極大波長	強度	極大波長	強度	極大波長	強度			
自動採水試料											
2004.5.31	18:00	18	325/430	12.82	330/465	11.53	360/460	9.38	0.045	0.035	2.07
2004.5.31	22:00	22	325/425	12.88	335/465	11.48	360/465	9.58	0.044	0.035	2.11
2004.6.1	0:00	24	330/430	13.34	330/465	12.21	360/465	10.37	0.044	0.035	2.31
2004.6.1	10:00	34	330/425	13.83	330/465	13.36	355/465	11.06	0.056	0.044	2.53
2004.6.1	12:00	36	325/430	14.52	325/460	13.59	360/470	11.28	0.059	0.046	2.70
2004.6.1	16:00	40	330/430	13.15	330/465	12.39	360/470	10.57	0.054	0.042	2.49
2004.6.1	19:00	43	325/430	12.64	330/465	11.93	355/460	9.92	0.049	0.038	2.09
2004.6.1	21:00	46	330/435	11.33	330/460	10.45	360/470	9.11	0.043	0.034	1.82
2004.6.1	2:00	50	325/430	10.32	335/465	9.76	360/460	8.69	0.037	0.029	1.80
2004.6.2	6:00	54	335/430	10.08	335/465	9.05	355/470	8.05	0.033	0.026	1.65
2004.6.2	10:00	58	330/425	10.44	330/455	9.71	355/460	8.02	0.032	0.024	1.66
2004.6.2	18:00	66	325/430	9.05	330/460	8.17	360/455	6.88	0.036	0.029	1.51
2004.6.3	6:00	78	325/425	8.52	335/465	7.91	350/465	6.85	0.032	0.026	1.43
2004.6.3	18:00	90	325/430	9.90	330/455	8.86	355/475	7.10	0.032	0.024	1.40
2004.6.4	6:00	102	335/430	8.34	330/470	7.30	365/470	6.38	0.032	0.024	1.40
2004.6.4	12:00	108	320/430	8.94	325/470	7.46	355/465	6.52			
手採水試料											
2004.6.1	11:00		325/430	15.46	330/460	14.74	360/475	11.86			
2004.6.2	10:00		325/425	11.16	330/460	10.15	360/470	8.75			
2004.6.2	11:30		335/430	9.89	335/455	9.14	355/460	7.75			

*基点 2004.5.31 午前0時. 波長:励起光(nm)/蛍光(nm). QSU:キニーネ標準溶液における350nm/455nmの発光強度を10とした相 DOC:溶解有機炭素.

付表 D-10 土壌水試料の分光分析結果(第4回降水時実験)

地点	採水器設置期間				蛍光強度 (QSU)				紫外吸光度		DOC (mg/l)
	開始	終了	ピークB		ピークC		ピークD		260nm	280nm	
			極大波長	強度	極大波長	強度	極大波長	強度			
地点e, A (河岸から1m上部)	2004.5.29 13:00	2004.5.30 10:00	325/430	48.04	325/460	40.34	360/460	32.66	0.130	0.094	7.75
	2004.5.30 10:00	2004.5.31 10:00	330/430	49.57	335/460	44.68	360/460	37.31	0.151	0.111	7.29
	2004.5.31 10:00	2004.6.1 18:00	325/430	48.98	335/455	44.87	365/460	38.39	0.149	0.109	7.17
	2004.6.1 18:00	2004.6.2 10:00	335/430	35.71	330/460	28.75	360/460	26.92	0.095	0.070	10.78
	2004.6.2 10:00	2004.6.4 11:30	330/430	48.26	335/455	43.86	355/465	37.13	0.139	0.099	6.82
地点e, A' (河岸から1m上部) (Aから20cm離れた 同様状況地点)	2004.5.29 13:00	2004.5.30 10:00	330/430	39.96	330/460	32.01	360/460	21.35	0.115	0.087	8.36
	2004.5.30 10:00	2004.5.31 10:00	330/430	34.43	330/460	27.99	360/460	21.75	0.097	0.075	6.34
	2004.5.31 10:00	2004.6.1 18:00	330/430	32.81	330/460	26.69	360/460	22.13	0.091	0.070	8.40
	2004.6.1 18:00	2004.6.2 10:00	330/430	48.49	335/455	44.44	360/460	36.82	0.148	0.107	6.96
	2004.6.2 10:00	2004.6.4 11:30	325/430	30.64	330/455	25.79	360/460	19.43	0.088	0.063	6.46

波長:励起光(nm)/蛍光(nm). QSU:キ一ネ標準溶液における350nm/455nmの発光強度を1とした相対強度. DOC:溶存有機炭素.

付表 D-11 河川水の水素・酸素同位体比(第4回降水時実験)

採水月日	採水時刻	経過時間*	自動採水器試料			地点:小田川定点		
			δD (%)	error (%)	δ ¹⁸ O (%)	error (%)		
2004.5.31	11:30		-48.80					
2004.5.31	18:00	18	-45.80	0.25	-7.67	0.19		
2004.5.31	22:00	22	-45.80	0.15	-8.02	0.07		
2004.6.1	0:00	24	-48.20	0.07	-7.67	0.13		
2004.6.1	10:00	34	-50.80	0.16	-7.87	0.06		
2004.6.1	11:00	35			-7.92	0.07		
2004.6.1	12:00	36	-51.00	0.2	-7.99	0.12		
2004.6.1	16:00	40	-51.00	0.14	-7.77	0.12		
2004.6.1	19:00	43	-50.70	0.15	-8.05	0.03		
2004.6.1	21:00	45	-49.60	0.04	-8.1	0.06		
2004.6.1	2:00	50	-49.90	0.26	-8.04	0.24		
2004.6.2	6:00	56	-48.60	0.37	-7.98	0.27		
2004.6.2	10:00	60	-49.10	0.17	-7.97	0.18		
2004.6.2	18:00	68	-49.50	0.3	-8.01	0.15		
2004.6.3	6:00	78	-48.80	0.19	-7.8	0.22		
2004.6.3	18:00	90	-48.50	0.14	-7.9	0.1		
2004.6.4	6:00	102	-48.20	0.15	-7.84	0.04		
2004.6.4	12:00	108	-49.10	0.31	-7.59	0.13		

*基点 2004.5.31 午前0時.

付表 D-12 雨水の水素同位体比(第4回降水時実験)

集水カップ番号	対応降水の集水期間	地点 a		地点 b		地点 c	
		δD (%)	error (%)	δD (%)	error (%)	δD (%)	error (%)
1	2004.5.31 17:00-18:00	-35.7	0.1	-38.7	0.2	-36.3	0.2
2	2004.5.31 17:00-18:00	-36.4	0.1	-38.5	0.1	-36.0	0.2
3	2004.5.31 18:00-19:00	-36.2	0.0	-37.3	0.1	-39.8	0.2
4	2004.5.31 18:00-19:00	-35.7	0.1	-37.4	0.1	-40.4	0.2
5	2004.5.31 18:00-19:00	-35.8	0.1	-38.0	0.5	-39.6	0.2
6	2004.5.31 18:00-19:00	-36.3	0.1	-40.0	0.2	-39.9	0.2
7	2004.5.31 18:00-19:00	-37.7	0.3	-41.3	0.1	-40.9	0.1
8	2004.5.31 20:00-21:00	-103.4	0.4	-105.5	0.1	-94.4	0.2
bk	2004.5.31 20:00-10:00#	-62.1	0.7	-64.0	0.6	-60.4	0.3
	# 2004.6.1						
平均*		-56.0		-58.1		-55.4	
全量試料**		-59.52		-58.995		-54.788	

*集水雨量で重みづけた平均値 **雨の降り始めから終わりまでを1個の容器で採取した試料。

付表 D-13 雨水の酸素同位体比(第4回降水時実験)

集水カップ番号	対応降水の集水期間	地点 a		地点 b		地点 c	
		$\delta^{18}O$ (%)	error (%)	$\delta^{18}O$ (%)	error (%)	$\delta^{18}O$ (%)	error (%)
1	2004.5.31 17:00-18:00	-6.1	0.1	-6.2	0.6	-5.5	0.1
2	2004.5.31 17:00-18:00	-6.0	0.4	-6.1	0.2	-5.3	0.4
3	2004.5.31 18:00-19:00	-6.2	0.2	-6.7	0.6	-5.9	0.2
4	2004.5.31 18:00-19:00	-6.2	0.2	-5.8	0.8	-5.9	0.2
5	2004.5.31 18:00-19:00	-6.2	0.2	-5.9	0.2	-5.8	0.2
6	2004.5.31 18:00-19:00	-6.1	0.2	-7.3	0.4	-8.2	0.0
7	2004.5.31 18:00-19:00	-6.5	0.2	-6.7	0.7	-6.0	0.7
8	2004.5.31 20:00-21:00	-13.5	0.2	-13.5	0.3	-12.0	0.4
bk	2004.5.31 20:00-10:00#	-9.5	0.2	-10.5	0.4	-8.6	0.1
	# 2004.6.1						
平均*		-8.6		-9.4		-8.0	
全量試料**		-9.18		-9.99		-7.87	

*集水雨量で重みづけた平均値 **雨の降り始めから終わりまでを1個の容器で採取した試料。

付表 D-14 土壌水の水素・酸素同位体比(第4回降水時実験)

地点	採水器設置期間				δD		δ ¹⁸ O	
	開始	終了	(%)	error (%)	(%)	error (%)		
地点e, A (河岸から1m上部)	2004.5.29 13:00	2004.5.30 10:00	-40.9	0.1	-7.1	0.2		
	2004.5.30 10:00	2004.5.31 10:00	-40.3	0.3	-7.3	0.2		
	2004.5.31 10:00	2004.6.1 18:00	-41.6	0.2	-7.8	0.3		
	2004.6.1 18:00	2004.6.2 10:00	-43.2	0.1	-6.9	0.1		
	2004.6.2 10:00	2004.6.4 11:30	-45.2	0.2	-7.6	0.2		
地点e, A' (河岸から1m上部) (Aから20cm離れた 同様状況地点)	2004.5.29 13:00	2004.5.30 10:00	-42.9	0.1	-7.6	0.2		
	2004.5.30 10:00	2004.5.31 10:00	-43.3	0.2	-7.9	0.0		
	2004.5.31 10:00	2004.6.1 18:00	-43.7	0.1	-7.9	0.2		
	2004.6.1 18:00	2004.6.2 10:00	-44.5	0.3	-7.9	0.1		
	2004.6.2 10:00	2004.6.4 11:30	-43.8	0.1	-7.5	0.1		
地点e, C (河岸)	2004.5.29 13:00	2004.5.30 10:00	-48.4	0.2	n.m.			
	2004.5.30 10:00	2004.5.31 10:00	-49.0	0.1	n.m.			
	2004.5.31 10:00	2004.6.1 18:00	-49.0	0.1	n.m.			
	2004.6.1 18:00	2004.6.2 10:00	-49.5	0.3	n.m.			

n.m. 欠測.

付表 E-1 秋季平水時実験地点

河川水	地点	通称	採水時刻	pH	電気伝導度
	a	追分	2003.9.17 10:50	6.9	43 μ S/cm
	c	二ツ橋	2003.9.17 14:20	7.4	61 μ S/cm
	d	滝川6丁目	2003.9.17 14:30	7.2	36 μ S/cm
土壌水	地点I.D.	通称	土壌水採水器設置深さ	周辺状況	
	a	追分	約30 cm	川に面する急勾配斜面。 林地であり、比較的乾いた土壌。(林地として一般的な程度。)	
	b	銚子滝上	1) 約30 cm 2) 約5 cm	1),2)ともに、湿地。平坦で流れなし。停滞性。 ぬかるみ激しい。崖に沿っている。日当たり不良。	
	c	二ツ橋	1) 約5 cm 2) 約5 cm	滝が連続する本流へ面する小さな沢。 沢の中央部には、わずかだが表面流水あり。 沢の流水部分や碎屑をできるだけ避けたが、土壌層は薄く、下層は砂っぽい。 位置：N 36° 49' 12.6" E 140° 29' 22.4"	
	e	馬渡戸	1) 約30 cm 2) 約5 cm	1)河岸から1 m離れた、水面から1 m高の場所。 木の下。下生え、落葉あり。 2)河岸すれすれ。 位置：N 36° 49' 33.0" E 140° 29' 54.8"	
	f	滝川3丁目	約10 cm	崩壊沢内。厚い落葉層の下の土壌発達部分。 沢の流水部分や碎屑を選けた。 沢の中央部には、わずかだが表面流水あり。	

付表 E-2 河川水の水素・酸素同位体比(秋季平水時実験)

地点	採水月日	採水時刻	手採水試料			
			δD (‰) 誤差(‰)		$\delta^{18}O$ (‰) 誤差(‰)	
定点	2003.9.24	12:00	-51.4	0.7	-7.8	0.7
a	2003.9.17	10:50	-53.5		-7.3	0.5
c	2003.9.17	14:20	-50.6		-7.8	0.4
d	2003.9.17	14:30	-52.7		-7.3	0.4
c	2003.9.24	16:50	-51.4	0.8	-7.6	0.7
h	2003.9.24	12:15	-51.4	0.6	-7.9	0.1

付表 E-3 土壌水の水素・酸素同位体比(秋季平水時実験)

採水地点	採水器設置期間		δD		$\delta^{18}O$	
			(‰)	誤差(‰)	(‰)	誤差(‰)
b	2003.9.24	15:30	-53.50	0.51	-7.80	0.47
c	2003.9.24	16:40	-48.20	0.20	-7.10	0.19
e(上部)	2003.9.24	14:00	-62.30	0.37	-8.85	0.32
e(下部)	2003.9.24	14:00	-52.40	0.11	-7.42	0.74
b	2003.9.25	13:00	-55.20	0.69	-8.08	0.23
c	2003.9.25	13:30	-71.20	0.23	-9.37	0.42
e(上部)	2003.9.25	11:00	-62.60	0.06	-8.33	0.69
e(下部)	2003.9.25	14:30	-85.10	0.01>	-10.99	0.64
f	2003.9.25	16:00	-52.20	0.12	-7.69	0.43

付表 F-1 冬季平水時実験地点

地点記号	緯度	経度	高度 m	地点の状況	対象試料	備考
w	N 36°49'52.2"	E 140°31'08.9"	713	滝川上部	河川水	
a	N 36°50'14.0"	E 140°30'19.2"	644	滝川上部		雨量計設置地点
	N 36°49'52.2"	E 140°30'17.1"	622		河川水	河川水採取地点
e	N 36°49'33.7"	E 140°29'55.4"	596	上部中間点	河川水	
u	N 36°49'05.0"	E 140°29'17.7"	556	滝川溪谷上部	河川水, 湧水	
c	N 36°49'02.6"	E 140°28'54.4"	482	通称「六丁目」沢		
f	*	*	*	通称「三丁目」沢		地点cとgの間
g	N 36°48'46.1"	E 140°27'57.4"	259	滝川橋		
h	N 36°48'53.8"	E 140°27'43.1"	247	里美方面からの支流	河川水	
s	N 36°50'06.7"	E 140°27'08.2"	232	下関河内雨量観測所下	湧水	
No.15	N 36°50'13.8"	E 140°25'47.1"	178	河川水採取地点	河川水	

* 谷地形のためにGPS測量不能

付表 F-2 河川水中の溶存元素濃度 (1) (冬季平水時実験)

地点記号	地点	試料	Na (ppt) 誤差(%)	Mg (ppt) 誤差(%)	Al (ppt) 誤差(%)	K (ppt) 誤差(%)	Ca (ppt) 誤差(%)	Ti (ppt) 誤差(%)	V (ppt) 誤差(%)
w	滝川上部	河川水	5.17E+06 7.1	2.44E+06 4	4737 2.5	7.40E+06 3.8	1.15E+07 4.7	216 12	1304 1
a	滝川上部	河川水	3.98E+06 5.7	1.82E+06 5	4806 2.7	6.75E+06 5.3	9.98E+06 5.7	254 22	391 4
e	上部中間点	河川水	4.10E+06 7.0	1.45E+06 11	7304 1.7	4.87E+06 3.7	7.61E+06 5.7	280 14	374 4
u	滝川深谷上部	湧水	4.86E+06 6.7	2.53E+06 6	5598 3.3	1.03E+07 5.4	1.18E+07 3.5	240 6	290 5
u	滝川深谷上部	河川水	8.88E+06 5.3	2.92E+06 4	5259 4.4	1.31E+07 2.9	1.51E+07 4.1	238 9	275 3
c	六丁目沢	河川水	1.27E+07 8.6	2.57E+06 4	502 6.8	9.80E+06 4.3	1.68E+07 2.4	156 16	224 4
f	三丁目	河川水	5.39E+06 7.8	2.61E+06 7	5755 2.4	1.30E+07 3.0	1.30E+07 4.4	237 9	265 2
g	滝川橋	河川水	5.06E+06 9.1	2.64E+06 5	4974 2.1	1.03E+07 2.8	1.26E+07 5.2	203 8	240 3
h	里美方面支流	河川水	5.02E+06 6.5	2.35E+06 10	4670 1.8	8.61E+06 6.3	1.18E+07 3.8	193 9	315 4
s	下関雨量観測所下	湧水	4.39E+06 2.8	1.91E+06 4	840 4.6	7.66E+06 4.5	1.11E+07 3.0	120 6	87 5
No.15	小田川定点	河川水	5.71E+06 4.6	2.34E+06 7	6863 4.7	8.76E+06 5.5	1.22E+07 2.9	183 9	249 3

付表 F-3 河川水中の溶存元素濃度 (2) (冬季平水時実験)

地点記号	地点	試料	Cr (ppt) 誤差(%)	Mn (ppt) 誤差(%)	Fe (ppt) 誤差(%)	Ni (ppt) 誤差(%)	Cu (ppt) 誤差(%)	Zn (ppt) 誤差(%)	As (ppt) 誤差(%)
w	滝川上部	河川水	349 7	4.72E+02 3	2.82E+03 12	28 9	60 3	267 7	72 15
a	滝川上部	河川水	67 6	5.03E+03 3	1.66E+04 5	20 25	85 5	199 5	53 17
e	上部中間点	河川水	46 23	6.26E+03 2	2.65E+04 4	32 13	72 6	169 9	46 20
u	滝川深谷上部	湧水	63 46	4.19E+04 2	3.58E+04 3	138 5	149 3	570 2	54 22
u	滝川深谷上部	河川水	74 24	3.02E+04 2	3.05E+04 2	137 6	141 4	441 5	56 6
c	六丁目沢	河川水	35 42	2.00E+01 14	n.d.	4	21 6	29 34	40 31
f	三丁目	河川水	69 17	1.58E+04 4	2.57E+04 3	144 7	162 3	350 4	65 9
g	滝川橋	河川水	62 13	5.28E+03 2	1.31E+04 4	105 6	133 8	251 6	69 20
h	里美方面支流	河川水	78 12	3.78E+03 2	1.27E+04 2	89 10	179 4	221 7	159 8
s	下関雨量観測所下	湧水	36 38	5.00E+01 11	n.d.	7	n.d.	n.d.	n.d.
No.15	小田川定点	河川水	28 28	3.21E+03 3	1.13E+04 3	79 1	298 1	512 5	154 8

付表 F-4 河川水中の溶解元素濃度 (3) (冬季平水時実験)

地点記号	地点	試料	Sr (ppt)	誤差 (%)	Mo (ppt)	誤差 (%)	Sb (ppt)	誤差 (%)	Ba (ppt)	誤差 (%)	Th (ppt)	誤差 (%)	U (ppt)	誤差 (%)
w	滝川上部	河川水	3.54E+04	1.1	71	9	2	32	4034	1	n.d.		6.1	6
a	滝川上部	河川水	2.55E+04	1.3	19	13	4	19	2608	1	1.3	23	1.4	8
e	上部中間点	河川水	2.87E+04	2.5	20	9	4	22	2621	2	1.6	26	1.2	7
u	滝川溪谷上部	湧水	4.46E+04	0.9	31	6	7	20	3808	2	1.7	11	2.7	12
u	滝川溪谷上部	河川水	4.75E+04	1.5	31	7	7	10	4019	3	1.4	18	2.3	7
c	六丁目沢	河川水	4.48E+04	1.7	n.d.		2	68	1239	3	n.d.		n.d.	
f	三丁目	河川水	4.99E+04	0.5	35	13	6	13	4147	2	1.5	14	2.0	9
g	滝川橋	河川水	4.59E+04	1.1	35	11	7	15	3858	2	1.0	15	2.3	14
h	里美方面支流	河川水	3.88E+04	0.5	66	5	12	6	3329	2	1.4	24	5.7	6
s	下関雨量観測所下	湧水	3.17E+04	2.1	336	3	6	17	2601	2	n.d.	61	12.5	3
No.15	小田川定点	河川水	3.61E+04	2.4	163	5	18	10	3716	2	1.5	13	7.7	6

n.d. 検出限界以下(誤差40%以上).

付表 F-5 河川水中の溶解元素濃度 (4) (冬季平水時実験)

地点記号	地点	試料	La (ppt)	La 誤差(%)	Ce (ppt)	Ce 誤差(%)	Pr (ppt)	Pr 誤差(%)	Nd (ppt)	Nd 誤差(%)	Sm (ppt)	Sm 誤差(%)	Eu (ppt)	Eu 誤差(%)	Gd (ppt)	Gd 誤差(%)
w	滝川上部	河川水	7.1	5	4.4	6	1.6	5	6.9	12	n.d.	n.d.	0.5	25	1.2	39
a	滝川上部	河川水	15.0	3	19.6	3	3.4	4	14.5	11	2.0	24	0.7	17	2.6	23
e	上部中間点	河川水	15.7	2	21.1	3	3.5	7	14.6	7	1.8	25	0.6	15	2.6	15
u	滝川深谷上部	湧水	18.3	4	24.9	3	4.0	9	15.8	5	2.1	30	0.8	20	3.0	20
u	滝川深谷上部	河川水	15.4	6	20.5	6	3.4	11	14.4	5	2.1	17	n.d.	n.d.	2.4	33
c	六丁目沢	河川水	7.5	6	0.3	43	1.2	6	4.6	15	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	0.9	28
f	三丁目	河川水	15.6	6	18.5	2	3.2	6	13.7	5	1.5	23	0.6	32	2.7	26
g	滝川橋	河川水	12.4	8	13.5	3	2.9	9	12.0	14	1.5	16	0.9	28	2.2	18
h	里美方面支流	河川水	13.9	7	11.9	5	3.1	7	12.1	7	1.8	41	n.d.	n.d.	1.8	28
s	下関雨量観測所下	湧水	13.7	4			2.4	5	9.6	6	1.3	27	0.5	6	2.6	7
No.15	小田川定点	河川水	21.8	4	18.4	4	4.4	6	18.3	5	2.7	37	1.0	16	3.6	18

n.d. 検出限界以下(誤差40%以上).

付表 F-6 河川水中の溶解元素濃度 (5) (冬季平水時実験)

地点記号	地点	試料	Dy (ppt)	Dy 誤差(%)	Er (ppt)	Er 誤差(%)	Yb (ppt)	Yb 誤差(%)
w	滝川上部	河川水	1.2	22	0.4	45	n.d.	n.d.
a	滝川上部	河川水	2.0	14	1.1	19	1.2	38
e	上部中間点	河川水	2.2	5	1.1	33	0.9	37
u	滝川深谷上部	湧水	2.3	10	1.1	17	1.1	32
u	滝川深谷上部	河川水	2.1	17	1.0	28	n.d.	n.d.
c	六丁目沢	河川水	0.6	36	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.
f	三丁目	河川水	2.2	18	0.8	39	1.0	33
g	滝川橋	河川水	1.7	14	1.0	9	1.0	22
h	里美方面支流	河川水	1.9	13	0.7	27	0.9	11
s	下関雨量観測所下	湧水	1.9	10	0.9	17	0.8	39
No.15	小田川定点	河川水	2.8	12	1.3	15	1.3	21

n.d. 検出限界以下(誤差40%以上).

付表 F-7 河川水質(冬季平水時実験)

地点記号	地点説明	試料	測定月日	測定時刻	水温 (°C)	pH 現地	pH 実験室	電気伝導度 (mS/m)	溶存酸素 (mg/l)	酸化還元電位 (mV)
w	滝川上部	河川水	2004.2.9	9:10	0.8	7.9	6.9	6.5	n.m.	240
a	滝川上部	河川水		9:15	0.8	7.2	7	3.4	14.3	n.m.
e	上部中間点	河川水		10:00	1.3	*	6.9	5.8	n.m.	175
u	滝川溪谷上部	湧水		11:35	n.m.	6.8	6.8	6.2	n.m.	265
u	滝川溪谷上部	河川水		11:45	n.m.	8.3	7.1	9.4	n.m.	240
c	六丁目沢	河川水		12:25	n.m.	7.3	7.1	8.6	n.m.	280
f	三丁目	河川水		13:30	n.m.	7.2	7.3	8.6	n.m.	280
g	滝川橋	河川水		12:45	1.7	6.7	7.0	5.0	12.8	n.m.
h	里美方面支流	河川水		14:10	n.m.	7.2	7.4	8.4	n.m.	275
s	下関雨量観測所下	湧水		11:30	11.9	5.7	6.6	4.0	6.8	n.m.
No.15	小田川定点	河川水		11:50	3.1	6.6	7.2	4.7	12.6	n.m.

n.m. 欠測

付表 F-8 河川水・湧水の陰イオン濃度(冬季平水時実験)

地点記号	地点説明	試料	濃度 (mg/l)			
			F ⁻	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻
w	滝川上部	河川水	0.3	2.5	4.5	1.0
a	滝川上部	河川水	0.3	2.6	1.4	1.7
e	上部中間点	河川水	0.3	2.7	1.3	1.8
u	滝川溪谷上部	湧水	0.2	4.1	1.5	4.6
u	滝川溪谷上部	河川水	0.2	5.6	0.6	2.1
c	六丁目沢	河川水	0.2	6.0	2.1	6.5
f	三丁目	河川水	0.2	6.0	2.2	6.6
g	滝川橋	河川水	0.5	5.4	2.1	5.5
h	里美方面支流	河川水	0.1	4.9	2.2	5.6
s	下関雨量観測所下	湧水	0.2	2.3	0.3	2.1
No.15	小田川定点	河川水	0.1	4.4	2.5	5.4

試料の採水日、採水時刻は付表 F-7の通り。

付表 F-9 河川水・湧水の水素・酸素同位体比 (冬季平水時実験)

地点記号	地点	試料	δD (%)	誤差(%)	$\delta^{18}O$ (%)	誤差(%)
w	滝川上部	河川水	-52.0	0.3	-8.3	0.3
a	滝川上部	河川水	-53.6	0.1>	-8.6	0.3
e	上部中間点	河川水	-51.9	0.1	-8.3	0.3
u	滝川渓谷上部	湧水	-50.6	0.2	-8.0	0.3
u	滝川渓谷上部	河川水	-52.0	0.1>	-8.2	0.3
c	六丁目沢	河川水	-51.7	0.3	-8.4	0.3
f	三丁目沢	河川水	-51.4	0.1>	-7.9	0.3
g	滝川橋	河川水	-51.1	0.4	-8.4	0.3
h	里美方面支流	河川水	-50.5	0.2	-8.3	0.3
s	下関雨量観測所下	湧水	-49.8	0.1	-7.8	0.3
No.15	小田川定点	河川水	-50.0	0.2	-8.3	0.3

試料の採水日、採水時刻は 付表 F-7の通り。

付表 F-10 河川水・湧水の分光分析結果 (冬季平水時実験)

地点記号	地点	試料	蛍光強度 (QSU)						紫外吸光度		DOC (mg/l)
			ピーク1			ピーク2			ピーク3		
			極大波長	強度	極大波長	強度	極大波長	強度	260nm	280nm	
w	滝川上部	河川水	325/420	1.35	335/460	1.24	360/460	1.04	0.008	0.006	0.41
a	滝川上部	河川水	325/430	2.69	335/455	2.44	360/460	2.10	0.012	0.010	0.67
e	上部中間点	河川水	325/430	2.55	335/460	2.56	360/460	1.93	0.013	0.011	0.80
u	滝川渓谷上部	湧水	325/430	0.66	335/465	0.38	360/465	0.34	0.019	0.016	0.93
u	滝川渓谷上部	河川水	325/430	6.00	335/465	5.11	360/460	4.45	0.010	0.010	0.30
c	六丁目沢	河川水	n.m.		n.m.		n.m.		0.015	0.012	1.02
f	三丁目沢	河川水	325/430	6.18	335/460	6.09	360/460	4.61	0.019	0.015	1.01
g	滝川橋	河川水	325/420	5.29	335/460	4.89	360/465	3.92	0.021	0.018	0.95
h	里美方面支流	河川水	325/430	5.23	335/460	4.52	360/460	3.90	0.016	0.014	1.01
s	下関雨量観測所下	湧水	325/420	0.75	335/460	0.49	360/460	0.52	0.019	0.018	0.42
No.15	小田川定点	河川水	325/430	5.90	335/460	5.47	360/460	4.69	0.020	0.016	1.11

試料の採水日、採水時刻は 付表 F-7の通り。

波長: 励起光(nm)/蛍光(nm).

n.m. 欠測.

DOC: 溶存有機炭素濃度.

国際単位系 (SI)

表1. SI 基本単位

基本量	SI 基本単位	
	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質の量	モル	mol
光度	カンデラ	cd

表2. 基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

組立量	SI 基本単位	
	名称	記号
面積	平方メートル	m ²
体積	立方メートル	m ³
速度	メートル毎秒	m/s
加速度	メートル毎秒毎秒	m/s ²
波数	毎メートル	m ⁻¹
密度 (質量密度)	キログラム毎立方メートル	kg/m ³
質量体積 (比体積)	立法メートル毎キログラム	m ³ /kg
電流密度	アンペア毎平方メートル	A/m ²
磁界の強さ	アンペア毎メートル	A/m
(物質量の)濃度	モル毎立方メートル	mol/m ³
輝度	カンデラ毎平方メートル	cd/m ²
屈折率	(数の) 1	1

表5. SI 接頭語

乗数	接頭語	記号	乗数	接頭語	記号
10 ²⁴	ヨタ	Y	10 ⁻¹	デシ	d
10 ²¹	ゼタ	Z	10 ⁻²	センチ	c
10 ¹⁸	エクサ	E	10 ⁻³	ミリ	m
10 ¹⁵	ペタ	P	10 ⁻⁶	マイクロ	μ
10 ¹²	テラ	T	10 ⁻⁹	ナノ	n
10 ⁹	ギガ	G	10 ⁻¹²	ピコ	p
10 ⁶	メガ	M	10 ⁻¹⁵	フェムト	f
10 ³	キロ	k	10 ⁻¹⁸	アト	a
10 ²	ヘクト	h	10 ⁻²¹	ゼプト	z
10 ¹	デカ	da	10 ⁻²⁴	ヨクト	y

表3. 固有の名称とその独自の記号で表されるSI組立単位

組立量	SI 組立単位			
	名称	記号	他のSI単位による表し方	SI基本単位による表し方
平面角	ラジアン ^(a)	rad		m ⁰ ・m ⁻¹ =1 ^(b)
立体角	ステラジアン ^(a)	sr ^(c)		m ² ・m ⁻² =1 ^(b)
周波数	ヘルツ	Hz		s ⁻¹
力	ニュートン	N		m ⁰ ・kg ¹ ・s ⁻²
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m ²	m ⁻¹ ・kg ¹ ・s ⁻²
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N・m	m ² ・kg ¹ ・s ⁻²
工率, 放射束	ワット	W	J/s	m ² ・kg ¹ ・s ⁻³
電荷, 電気量	クーロン	C		s ¹ ・A
電位差 (電圧), 起電力	ボルト	V	W/A	m ² ・kg ¹ ・s ⁻³ ・A ⁻¹
静電容量	ファラド	F	C/V	m ⁻² ・kg ⁻¹ ・s ⁴ ・A ²
電気抵抗	オーム	Ω	V/A	m ² ・kg ¹ ・s ⁻³ ・A ⁻²
コンダクタンス	ジーメン	S	A/V	m ⁻² ・kg ⁻¹ ・s ³ ・A ²
磁束密度	ウェーバ	Wb	V・s	m ² ・kg ¹ ・s ⁻² ・A ⁻¹
磁束	テスラ	T	Wb/m ²	kg ¹ ・s ⁻² ・A ⁻¹
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A	m ² ・kg ¹ ・s ⁻² ・A ⁻²
セルシウス温度	セルシウス度 ^(d)	°C		K
光照射	ルーメン	lm	cd・sr ^(e)	m ² ・m ⁻² ・cd=cd
(放射性核種の)放射能	ルクス	Lx	lm/m ²	m ² ・m ⁻² ・cd=m ⁰ ・cd
吸収線量, 質量エネルギー一分与, カーマ線量当量, 周辺線量当量, 方向性線量当量, 個人線量当量, 組織線量当量	グレイ	Gy	J/kg	s ⁻¹
	シーベルト	Sv	J/kg	m ² ・s ⁻²

- (a) ラジアン及びステラジアンの使用は、同じ次元であっても異なった性質をもった量を区別するときの組立単位の表し方として利点がある。組立単位を形成するときのいくつかの用例は表4に示されている。
- (b) 実際には、使用する時は記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号“1”は明示されない。
- (c) 測光学では、ステラジアンの名称と記号srを単位の表し方の中にそのまま維持している。
- (d) この単位は、例としてミリセルシウス度m°CのようにSI接頭語を伴って用いても良い。

表4. 単位の中に固有の名称とその独自の記号を含むSI組立単位の例

組立量	SI 組立単位		
	名称	記号	SI 基本単位による表し方
粘力のモーメント	パスカル秒	Pa・s	m ⁻¹ ・kg ¹ ・s ⁻¹
表面張力	ニュートンメートル	N・m	m ² ・kg ¹ ・s ⁻²
角速度	ニュートン毎メートル	N/m	kg ¹ ・s ⁻²
角加速度	ラジアン毎秒	rad/s	m ⁰ ・m ⁻¹ ・s ⁻¹ =s ⁻¹
熱流密度, 放射照度	ラジアン毎平方秒	rad/s ²	m ⁰ ・m ⁻¹ ・s ⁻² =s ⁻²
熱容量, エントロピー	ワット毎平方メートル	W/m ²	kg ¹ ・s ⁻³
質量熱容量 (比熱容量), 質量エントロピー	ジュール毎キログラム	J/kg	m ² ・kg ¹ ・s ⁻² ・K ⁻¹
質量エネルギー (比エネルギー)	ジュール毎キログラム	J/kg	m ² ・s ⁻² ・K ⁻¹
熱伝導率	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m・K)	m ⁰ ・kg ¹ ・s ⁻³ ・K ⁻¹
体積エネルギー	ジュール毎立方メートル	J/m ³	m ⁻¹ ・kg ¹ ・s ⁻²
電界の強さ	ボルト毎メートル	V/m	m ⁰ ・kg ¹ ・s ⁻³ ・A ⁻¹
体積電荷	クーロン毎立方メートル	C/m ³	m ⁻³ ・s ¹ ・A
電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ⁻² ・s ¹ ・A
誘電率	ファラド毎メートル	F/m	m ⁻³ ・kg ⁻¹ ・s ⁴ ・A ²
透磁率	ヘンリー毎メートル	H/m	m ⁰ ・kg ¹ ・s ⁻² ・A ⁻²
モルエネルギー	ジュール毎モル	J/mol	m ² ・kg ¹ ・s ⁻² ・mol ⁻¹
モルエントロピー	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol・K)	m ² ・kg ¹ ・s ⁻² ・K ⁻¹ ・mol ⁻¹
照射線量 (X線及びγ線)	クーロン毎キログラム	C/kg	kg ⁻¹ ・s ¹ ・A
吸収線量	グレイ	Gy	m ² ・s ⁻²
放射線強度	ワット毎ステラジアン	W/sr	m ⁴ ・m ⁻² ・kg ¹ ・s ⁻³ =m ² ・kg ¹ ・s ⁻³
放射輝度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	W/(m ² ・sr)	m ² ・m ⁻² ・kg ¹ ・s ⁻³ =kg ¹ ・s ⁻³

表6. 国際単位系と併用されるが国際単位系に属さない単位

名称	記号	SI 単位による値
分	min	1 min=60s
時	h	1h=60 min=3600 s
日	d	1 d=24 h=86400 s
度	°	1°=(π/180) rad
分	'	1'=(1/60)°=(π/10800) rad
秒	"	1"=(1/60)'=(π/648000) rad
リットル	l, L	1l=1 dm ³ =10 ⁻³ m ³
トン	t	1t=10 ³ kg
ネーパ	Np	1Np=1
ベル	B	1B=(1/2)ln10(Np)

表7. 国際単位系と併用されこれに属さない単位でSI単位で表される数値が実験的に得られるもの

名称	記号	SI 単位であらわされる数値
電子ボルト	eV	1eV=1.60217733(49)×10 ⁻¹⁹ J
統一原子質量単位	u	1u=1.6605402(10)×10 ⁻²⁷ kg
天文単位	ua	1ua=1.49597870691(30)×10 ¹¹ m

表8. 国際単位系に属さないが国際単位系と併用されるその他の単位

名称	記号	SI 単位であらわされる数値
海里	海里	1海里=1852m
ノット	ノット	1ノット=1海里毎時=(1852/3600)m/s
アール	a	1a=1 dam ² =10 ² m ²
ヘクタール	ha	1ha=1 hm ² =10 ⁴ m ²
バール	bar	1bar=0.1MPa=100kPa=1000hPa=10 ⁵ Pa
オングストローム	Å	1Å=0.1nm=10 ⁻¹⁰ m
バール	b	1b=100fm ² =10 ⁻²⁸ m ²

表9. 固有の名称を含むCGS組立単位

名称	記号	SI 単位であらわされる数値
エルグ	erg	1 erg=10 ⁻⁷ J
ダイン	dyn	1 dyn=10 ⁻⁵ N
ポアズ	P	1 P=1 dyn・s/cm ² =0.1Pa・s
ストークス	St	1 St=1cm ² /s=10 ⁻⁴ m ² /s
ガウス	G	1 G=10 ⁴ T
エルステッド	Oe	1 Oe=(1000/4π)A/m
マクスウェル	Mx	1 Mx=10 ³ Wb
スチルブ	sb	1 sb=1cd/cm ² =10 ⁴ cd/m ²
ホバ	ph	1 ph=10 ⁴ lx
ガル	Gal	1 Gal=1cm/s ² =10 ⁻² m/s ²

表10. 国際単位に属さないその他の単位の例

名称	記号	SI 単位であらわされる数値
キュリー	Ci	1 Ci=3.7×10 ¹⁰ Bq
レントゲン	R	1 R=2.58×10 ⁻⁴ C/kg
ラド	rad	1 rad=1cGy=10 ⁻² Gy
レム	rem	1 rem=1 cSv=10 ⁻² Sv
X線単位	X unit	1X unit=1.002×10 ⁻⁴ hm
ジャンマ	y	1 y=1 nT=10 ⁻⁹ T
ジャンスキー	Jy	1 Jy=10 ⁻²⁶ W・m ⁻² ・Hz ⁻¹
フェルミ	fm	1 fermi=1 fm=10 ⁻¹⁵ m
メートル系カラット	metric carat	1 metric carat = 200 mg = 2×10 ⁻⁴ kg
トル	Torr	1 Torr = (101 325/760) Pa
標準大気圧	atm	1 atm = 101 325 Pa
カロリ	cal	
マイクロン	μ	1 μ=1μm=10 ⁻⁶ m

