

湖山池柱状堆積物を用いた微量元素レベルから見る トレンド推定

黒田 眞由*・佐藤善輝**・中村幹雄***・小玉芳敬*
・馬場 芳****・寶來佐和子*****

Temporal trends of trace element levels in sediment cores
from Lake Koyama-ike in Tottori, Japan

KURODA Mayu*, SATO Yoshiteru**, NAKAMURA Mikio***,
KODAMA Yoshinori*, BAMBKA Kaori****, HORAI Sawako*****

キーワード：微量元素，湖底堆積物，汚染評価，マグネシウム，汚染史

Key Words: trace elements, lake sediment, pollution assessment, magnesium, pollution history

I. はじめに

微量元素は、極めて少量 (< 100 ppm) で存在する元素として定義される¹⁾。近年、微量元素に関する議題は、それらの毒物学および環境的影響に対する大きな懸念のため、科学者からますます関心を集めている¹⁾。環境中の微量元素レベルの動態を正しく把握し、人体への影響に対して適切な評価を行うことは極めて重要である。湖底堆積物は、湖の生態系と地域の両方における環境変化の記録を提供するため、自然環境変化や人間への影響を研究するために世界中で使用されてきた²⁾。また、堆積物コアは水圏の金属フラックスを記録し、汚染物質の履歴や環境運命を再構築するための効果的なツールとなり得るため、重要な記録試料となり得る³⁾ことが知られている。歴史的なトレンドを解明することは、自然由来・人為由来の両方向でアプローチが可能となるため、より多角的な汚染実態の把握が可能となると考えられる。

本研究は、鳥取県東部に位置する湖山池をフィールドにし、その湖底堆積物(表層堆積物および柱状堆積物)中の微量元素の濃度および変動を分析、解析した。湖山池は過去の水門建設などにより、その湖内環境は大きく変遷している。環境変化による影

響を正確に把握するためには、環境モニタリングの実施や過去の歴史的イベントとの関連性を理解する必要がある。しかし、柱状堆積物を用い、歴史的なイベントとの関連性を解析するためには、深度から年代に変換する必要がある。しかし年代への変換は、堆積速度の変化や試料採取時の損失などにより、容易ではない。年代推定の計算には様々な考慮が必要である。よって本研究は、湖山池柱状堆積物(堆積物コア)を用い、微量元素濃度の変動における視点から年代推定を実施した。そして、歴史的な時間軸における近年の汚染レベルを解析し、微量元素の人為的影響の程度を明らかにすることを目的とした。

II. 方法

1. 試料

本研究に用いた湖山池の柱状堆積物試料のサンプリング地点を Fig.1 に白星で示す。試料は 2010 年 7 月 10 日に湖山池西岸の福井川河口部から約 350 m 東方沖に位置する地点(北緯 35.30°27.62", 東経 134.8°4.62")で、マッケラス式採泥器を用いて掘削されたものを使用した⁴⁾。コア試料の掘削長は 150 cm である。今回の分析に用いた柱状堆積物試料は、表層 ~74 cm および 121 cm ~150 cm までのもので、4°C で

*鳥取大学農学部生命環境農学科

**産業技術総合研究所地質情報研究部門

***日本シジミ研究所

****鳥取大学大学院持続性社会創生科学研究科

*****国立水俣病総合研究センター

保存されたものを2015年に表層から1 cm ずつ切り取って化学分析に供試した。1 cm ずつ分けられた試料は乾燥処理まで - 30°C で保存した。

また、2011年、2012年、2014年、2015年、2017年の各年(9月)に一度、柱状堆積物試料と同様の地点からエクマンバージ底質採取器を用いて表層堆積物(3 cm)を採泥した。試料は乾燥処理まで - 30°C で保存した。

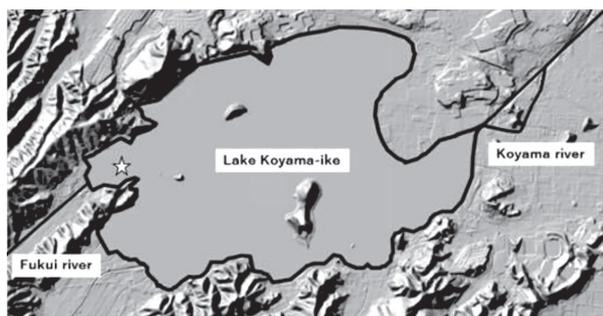


Fig. 1 湖山池における柱状堆積物試料の採取地点
(国土地理院 2020)

2. 乾燥処理

分析に供試する前に、試料の乾燥処理を実施した。自身の先行研究⁵⁾の結果から、堆積物試料の乾燥処理には凍結乾燥が最適であると示唆されたため、乾燥処理には凍結乾燥を選択した。テフロンシートを敷いたガラス製シャーレに、湿潤試料を乗せ冷凍させた後、凍結乾燥機(FDU-12AS型; ASONE)を用いて24時間乾燥を行った。乾燥処理の後、めのう乳鉢とめのう乳棒を用いて粉碎し、均質な粉末状にした。分析に供試するまで、デシケーター内で保存した。

3. 微量元素分析

柱状堆積物および近年(5年分)の堆積物中の微量元素濃度分析を実施した。乾燥試料をテフロン製バイアルに約0.15 g 秤量し、HF : HNO₃ = 1 : 6の混酸を3.5 mL 添加の後、一晩静置(約12 h)し酸分解を行った。その後、テフロン製試料分解容器(P-25, 三愛化学株式会社)に入れ、マイクロウェーブ分解(10分×2回, 120 W)を行った。放冷した後、ホットプレート上(約100°C)で蒸発乾固を行い、再度60% HNO₃を3 mL 添加の後、約1時間静置し酸分解を行った。その後、マイクロウェーブ分解(10分×2回, 120 W)を行い、放冷したものを超純水で約50 g に希釈し、ADVANTECろ紙5Cを用いて、ろ過したものを溶液試料とした。高濃度元素を考慮し、ろ過した溶液から、さらに100倍希釈したものを10 mL 作成し、希釈溶液試料とした。

この溶液試料中の15元素(Mg, Al, Cr, Mn, Fe, Co,

Ni, Cu, Zn, As, Se, Sr, Mo, Cd, Pb)を誘導結合プラズマ発光分光分析装置(ICP-AES: Inductively Coupled Plasma - Atomic Emission Spectrometry, Ciros CCD, Spectro, Germany)を用いて測定した。手技および分析機器の精度と確度の確認のため、認証標準物質(湖底質; NMIJ CRM 7303-a No.E-0172, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, Japan)を用いて回収率試験を実施した。結果は100 ± 14% (平均値 ± 標準偏差)であった。

4. 総水銀分析

柱状堆積物中の総水銀と有機水銀の分析はYoshimoto et al. (2016)⁶⁾の方法を一部改変して実施した。乾燥試料を15 mL 遠沈管に、表層堆積物0.3 g, 柱状堆積物0.2 g それぞれ秤量し、0.1% L-Cys溶液および5 M NaOH 水溶液を各1 mL 添加したものを、温浴内(80°C · 1 h)で加熱溶解した。水道水中で放冷の後、超純水で5 mL に希釈し、MIBK 6 mL を添加した後、振とう(10 min), 遠心分離(3000 rpm, 10 min)を行い、上層のMIBK層を除去した。残った液にn-hexane 5 mL を添加し、振とう(5 min), 遠心分離(3000 rpm, 5 min)を行い、上層のn-hexane層を除去した。残った溶液から50 mL メスフラスコに約3.0 mL 分取し、混酸(HNO₃ : H₂SO₄ : HClO₄ = 3 : 2 : 1) 6 mL を添加し、ホットプレート上で加熱分解を行った(230°C, 3 h)。放冷の後、超純水で50 g に希釈したものを総水銀(Total Hg; T-Hg)分析に供試した。

SnCl₂溶液1 mL と H₂SO₄溶液1 mL を分解溶液にオンラインで混合させ、溶液中のHgをHg⁰に還元し、冷炎気化原子吸光高度計(Cold Vapor - Atomic Absorption Spectrometer, CV-AAS) (Hg-400; Hiranuma, Ibaraki, Japan)でT-Hgを検出した。分析の精度と確度の確認のため、認証標準物質(微量元素分析で用いたものと同様)を用いて回収率試験を実施した。結果は102 ± 5.0% (平均値 ± 標準偏差)であった。

5. 有機水銀分析

総水銀分析におけるhexane層を除去した後の溶液から、2 mL を新しい15 mL 遠沈管に分取し、5 M NaBr; 2 mL, 1 N CuSO₄; 0.5 mL, toluene; 6 mL を添加した。その後、振とう(10 min), 遠心分離(3000 rpm, 10 min)を行い、上層のtoluene層から5 mL を新しい15 mL 遠沈管に分取した。分取した溶液にCys (0.2%)-NaOAc (2%) 1.5 mL を添加し、振とう(5 min), 遠心分離(3000 rpm, 5 min)を行い、上層のtoluene層を除去した。残った溶液から50 mL メス

フラスコに 約 1.3 mL 分取し、混酸 (HNO₃ : H₂SO₄ : HClO₄ = 3 : 2 : 1) 6 mL を添加し、ホットプレート上で加熱分解を行った (230°C, 3 h)。放冷の後、超純水で 50 g に希釈したものを有機水銀 (Organic Hg; O-Hg) 分析に供試した。総水銀分析と同様に CV-AAS を用いて測定した。分析の精度と確度を確かめるために、一部試料を日鉄テクノロジー株式会社に分析依頼し、本論の分析結果と比較した。結果は良好だった。

III. 結果および考察

1. 年代推定

1 cm ごとの柱状堆積物中および近年 (5 年分) の表層堆積物中の各微量元素濃度を Table 1 および Table 2 に示す (本論末尾に掲載)。本研究において年代推定を実施するにあたり、まず深度と年代において信頼のおける 2 点から一次式を複数作成した。そして歴史的なイベントとの関係から、最適なものを選択し、年代に用いることにした。

一点目は、佐藤ら⁴⁾によって放射性炭素 (¹⁴C) 年代測定によりすでに得られている深度 131 cm (970-1062 cal BP) (1950 年基準) の値を用いた。基準である 1950 年から 970 および 1062 をそれぞれ引いた値 (980 および 888) の平均値を用いて点 A (934, 131) とした。

二点目は Nomura et al.⁷⁾ の堆積曲線を用いた。その中で堆積速度が変わる特徴的な点 (90 BP, コア深度 40 cm), (60BP, コア深度 34 cm) (2006 年基準) から、2006 - 90 = 1916 年, 2006 - 60 = 1946 年を算出し、点 B (1916, 40) 点 C (1946, 34) を得た。また 0 cm の座標を点 D (2010, 0) とした。従って、算出された 3 つの一次式を以下に示す。この一次式を年代推定に用いた。

- (1) 点 A - 点 B : $y = -0.0927x + 217.55$
- (2) 点 B - 点 C : $y = -0.2x + 423.2$
- (3) 点 C - 点 D : $y = -0.5313x + 1067.8$

2. 欠損部の推定

先行研究^{7, 8)}では湖山池の別地点でコア表層の 20~57.5 cm が軟弱とされている。しかし、本試料では 15 cm とやや薄い。この差異が堆積物の欠如を示すと考えると、約 5~40 cm 程度の厚さが欠如していることになる。しかし、本地点の水深は平均値よりも浅く (2017 年時点)⁹⁾、また福井川の流入口であることから、軟弱層は他地点と比較し、浅いと考えられた。よって、欠如部分が 5 cm, 10 cm および 5~40 cm の中間である 17.5 cm の 3 つの場合に加え、欠如部分がない場合も考慮し年代推定を行った。また、

歴史的な出来事が詳細に記録されていると推察される、1900 年代以降に焦点を当て、年代推定を実施していった。

最適な欠如範囲を選択するために、歴史的なイベントと関連した動態を示す元素を選択し、年代推定に用いた。湖山池において 1900 年代以降大きく影響を受けた出来事として、2 度の水門建設が挙げられる (1936 年; 旧水門建設, 1963 年; 現水門建設)¹⁰⁾。よって、海水導入による影響を反映しやすいと示唆された元素を用いることにした。

Mg および Sr は海水中に高濃度に存在する元素 (Mg; 1.28×10^9 ng/kg, Sr; 7.8×10^6 ng/kg¹¹⁾) であることから、これらの元素に着目した。Fig. 2 に湖山池柱状堆積物における Mg と Sr の各深度の垂直変動を示す。海水導入の影響を反映しやすい元素であれば、2012 年 3 月に実施された塩分導入により、その後の湖山池表層堆積物中濃度は上昇すると推測された。実際、Mg 濃度が 2012 年から濃度上昇の傾向が見られた。Mg はこれ特に海水中濃度が高いため、濃度変動の幅が大きいことも推察された。よって本研究では、歴史的なイベントとの関係解析のための指標元素として Mg を選択した。

近代の湖山池における歴史的イベントをまとめたものを Table 3 に示す。解析の結果、5 cm の欠如と仮定した場合に、水質変化との関連性がみられた。5 cm 欠如の場合、1960 年付近で濃度の減少が見られ、1950 年代後半から急激な濃度上昇、1960 年代初期で急激な濃度減少が見られた。また 1970 年代中ごろから 1980 年代初期に濃度上昇がみられ、そこから急激な濃度減少がみられた。この Mg 濃度の変化パターンは、湖山池の水質変化と一致していると考えられた。1936 年頃の濃度減少は水門建設 (旧水門) による海水導入の制限によるものと示唆され、1950 年代後半の濃度上昇は、1959 年の伊勢湾台風による海水の逆流に起因すると示唆された。また 1960 年代初期の濃度減少は、現水門が建設された時期と一致するため、海水導入の制限があったと示唆された。1970 年代中ごろからの濃度上昇は 1974 年から 1983 年に行われた千代川の河口付け替え工事に起因すると示唆された。事実、1983 年の工事終了と同時に塩分濃度の急上昇が報告されており、それに伴う水門調節以降、塩分濃度の減少が報告されている¹⁰⁾。このことから、Mg は水質の変化をモニタリングする元素として有用であることが示唆された。

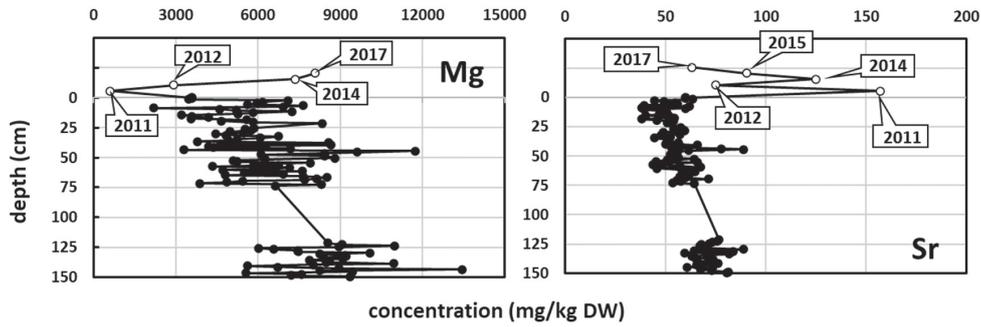


Fig. 2 湖山池における柱状堆積物中の Mg および Sr 濃度の垂直変動

Table. 3 湖山池における主な歴史的イベント

year	Historical event	Supplement
1936	Construction of sluice	to protect upward inflow of marine water
early 1950s	Sea level rise	Quoted from (Nomura et al. 2009)
1959	Isewan typhoon	Introduction of seawater due to backflow
1963	Improvement of sluice constructed in 1936	
early 1970s	Sea level rise	Quoted from (Nomura et al. 2009)
1974~ 1983	Improvement of river mouth of the River Sendai	Rapid rise in salinity after improvement
1983	Adjustment of salinity by operating the sluice	Decrease in salinity
1989	Start adjusting salinity by operating the sluice	2-3% of seawater
late 1980	Sea level rise	Quoted from (Nomura et al. 2009)
2005	Demonstration experiment of seawater introduction by operating sluice	2-3% of seawater
2008	Demonstration experiment of seawater introduction by operating sluice	2-4% of seawater (Second stage)
2012	Demonstration experiment of seawater introduction by operating sluice	10-40% of seawater

しかし、5 cm 欠如の場合、水門建設前に濃度の減少が見られる結果となった。このことは水門建設の影響を考慮すると矛盾していた。そこで、欠如が 3 cm の場合を作成し、5 cm の場合と重ね合わせた結

果、歴史的イベントとの一致が見られた (Fig. 3)。よって、欠如範囲は 3 cm として年代推定を行った。各元素の垂直変動を Fig. 4 に示す。

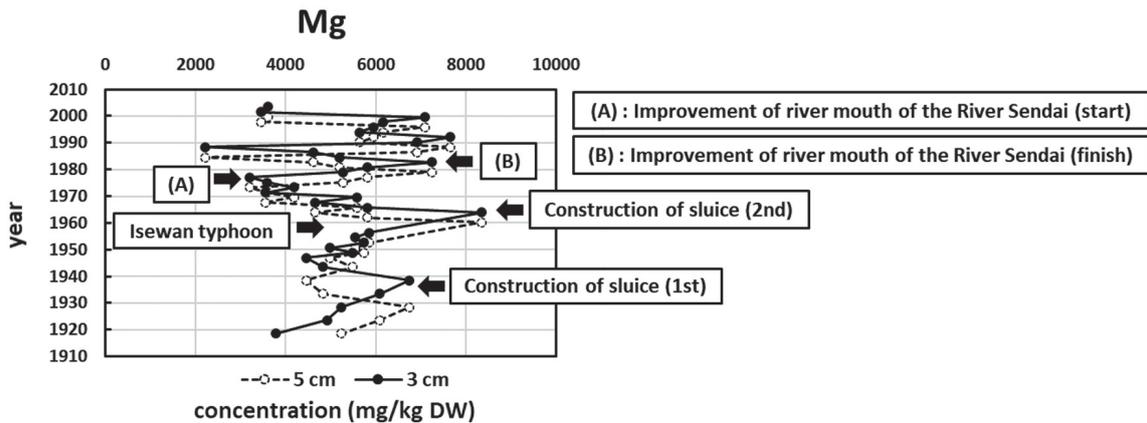


Fig. 3 湖山池における柱状堆積物中の Mg 濃度の垂直変動 (点線: 5 cm 欠如, 実線: 3 cm 欠如)

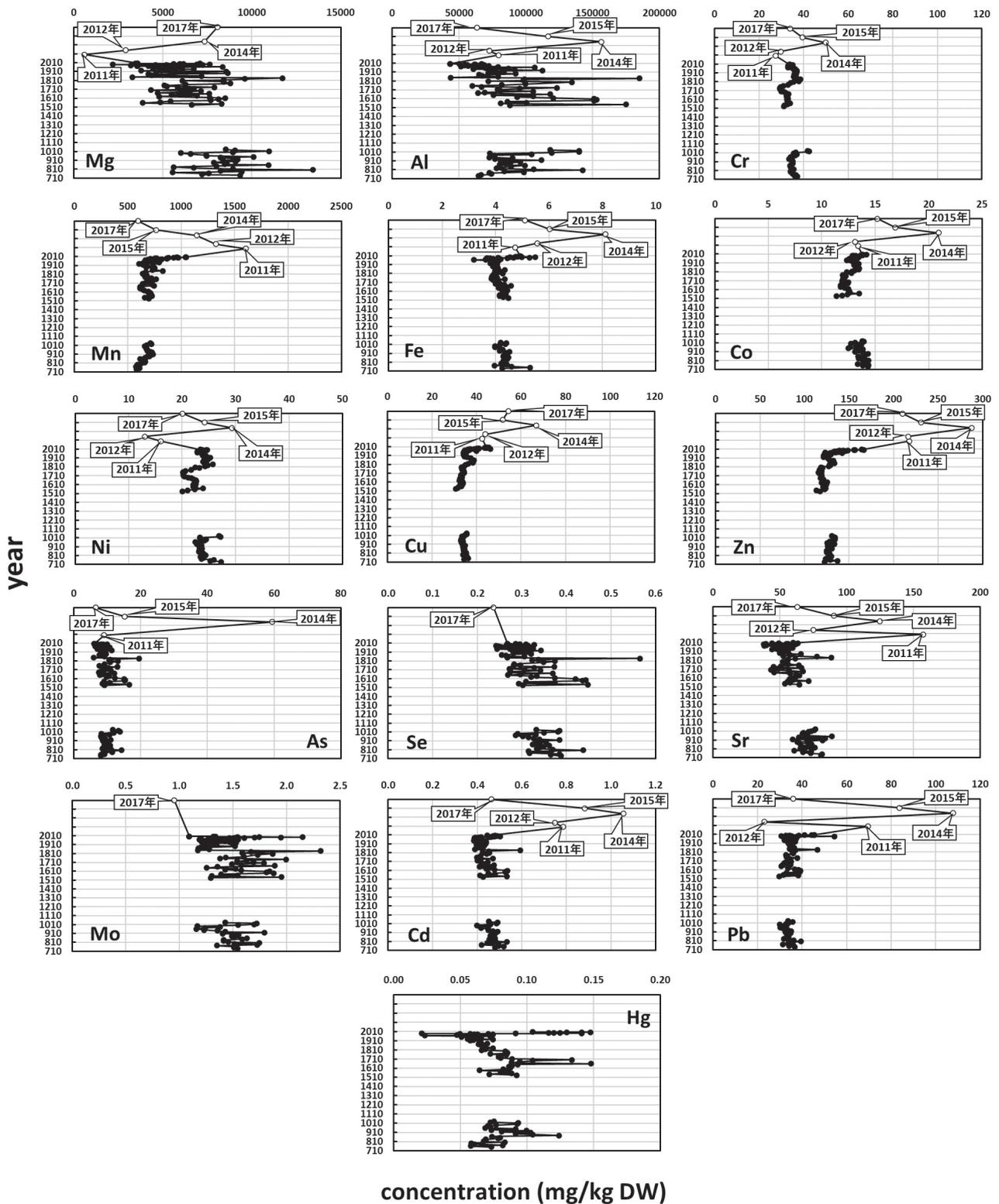


Fig. 4 湖山池柱状堆積物中の微量元素濃度の垂直変動

3. 濃縮係数および土壌蓄積指数

濃縮係数 (EF) および土壌蓄積指数 (I_{geo}) は重金属の人為起源と自然起源の間の識別を助けるため、堆積物中の重金属汚染を評価するために広く使用されている^{12, 13)}。Fig. 4 で示した各元素の垂直変動から、近年で濃度上昇が見られた元素は Cr, Mn, Fe, Co, Cu, Zn, As, Sr, Cd, Pb であった。これら元素における濃度上昇が、人為汚染によるものかを把握するため、濃縮係数^{13, 14)}および土壌蓄積指数^{15, 16)}を算出した (Fig. 5 および Fig. 6)。濃縮係数において、 $EF < 1$ は濃縮がないことを示し、 $EF < 3$ は軽度の濃縮、 $EF = 3-5$ は中程度の濃縮、 $EF = 5-10$ はやや重度の濃縮、 $EF = 10-25$ は重度の濃縮、 $EF = 25-50$ は非常に重度の濃縮、 $EF > 50$ は極めて重度の濃縮であることを示す。また、土壌蓄積指数において、 $I < 0$ は汚染がないことを示し、 $0 < I < 1$ は軽度の汚染、 $1 < I < 2$ は中程度の濃縮、 $2 < I < 3$ はやや重度の汚染、 $3 < I < 4$ は重度の汚染、 $4 < I < 5$ は非常に重度の汚染、 $5 < I$ は極めて重度の汚染であることを示す。結果、濃縮係数を求めた元素全てにおいて、柱状堆積物上層で下層より高い濃縮を

示した。

これは Mn を代表してみられる、上層の酸化層への濃集¹⁷⁾が原因として挙げられる。しかし、上層への濃集が報告されていない Cr¹⁸⁾などの元素においても同様の結果が得られた。これは、1900 年代半ば～後期の高度経済成長期に伴う産業廃棄などの人為由来によるものと考えられた。また、2014 年 As の濃縮係数は重度の濃縮を示しており、人為汚染が疑われた。

土壌蓄積指数の結果は、柱状堆積物全ての年代で汚染なし～軽度の汚染を示し、濃縮係数で示されたリスクよりも低い結果となった。これは、用いたバックグラウンド値の差によるものだと考えられた。近年の As, Cd, Pb は中程度の汚染を示した。濃縮係数および土壌蓄積指数の結果から、2014 年に As 汚染があった可能性が考えられた。また Cd, Pb においても人為汚染が示唆されたが、これは上述した表層の酸化層へ濃集する Mn への収着¹⁹⁾による可能性も示唆された。よって、これら元素の経年的なモニタリングを行うことが重要であると考えられた。

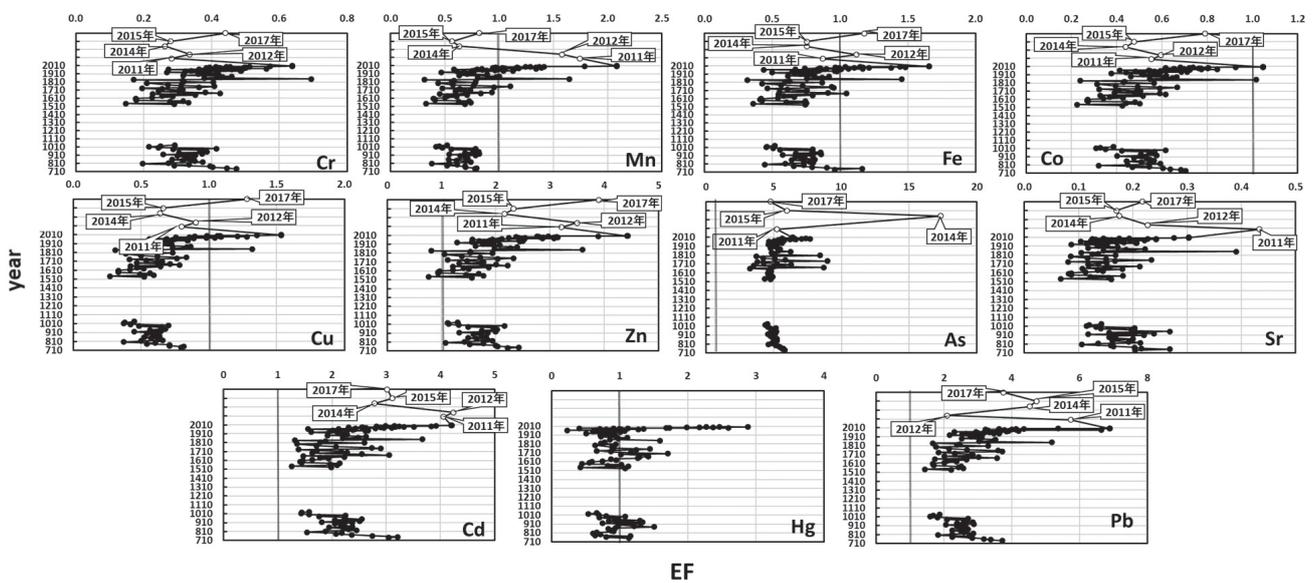


Fig. 5 湖山池柱状堆積物中における濃縮係数の垂直変動

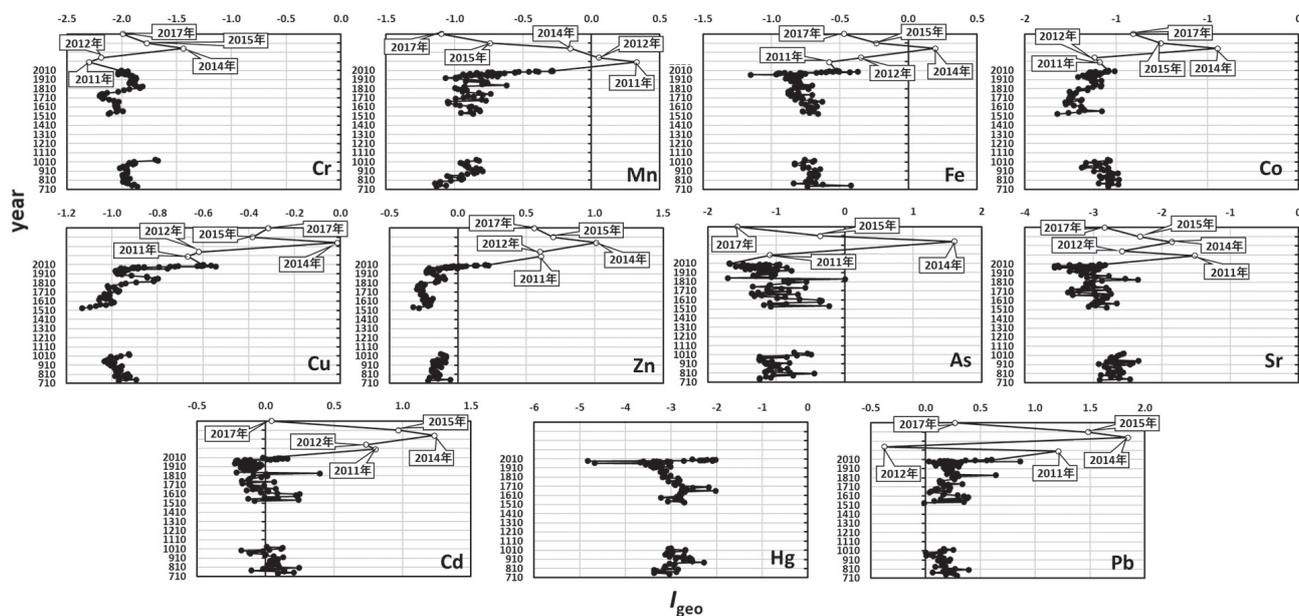


Fig. 6 湖山池柱状堆積物中における土壌蓄積指数の垂直変動

IV. 結論

本研究では、年代推定を実施するにあたり Mg に着目した。その結果、Mg は歴史的な水質の変化ときわめて類似した変動を示した。このことから Mg は、湖山池のような過去に塩分が大きく変化した湖沼における年代推定に、きわめて有用であることが示唆された。また、濃縮係数および土壌蓄積指数では近年に As の人為汚染があった可能性が考えられた。また、Cd と Pb においても軽度～中程度の濃縮・汚染を示しており、底棲生物への影響などを評価するため、継続的なモニタリングの実施が必要であろう。

謝辞

本研究で使用した湖山池堆積物試料は、日本シジミ研究所の中村幹雄所長と研究所職員の皆様、湖山池漁業組合の郵上和男代表理事組合長をはじめ組合員の皆様のご協力のもと、試料採取を実施いたしました。ここに感謝申し上げます。

文献

1) Xu, M., Yan, R., Zheng, C., Qiao, Y., Han, J. and Sheng, C.: Status of trace element emission in a coal combustion process: a review. *Fuel Processing Technology*, **85**, 215-237 (2003)
2) Yang, H and Rose, N.: Trace element pollution records in some UK lake sediments, their history, influence factors and regional differences. *Environment International*, **31**, 63-75 (2005)

3) Yeager, KM., Santschi, PH., Rifai, HS., Suarez, MP., Brinkmeyer, R., Hung, CC., Schindler, KJ., Andres, MJ., and Erin, A.: Weaver Dioxin chronology and fluxes in sediments of the Houston Ship Channel, Texas: influences of non-steady-state sediment transport and total organic carbon. *Environ Sci Technol.*, **41**, 5291-5298 (2007)
4) 佐藤善輝, 小玉芳敬, 鹿島薫: 珪藻化石群集および電気伝導度から推定される過去約 1300 年間における湖山池の環境変化, *LAGUNA*, **24**, 27-37 (2017)
5) 黒田眞由: 生物および堆積物試料における水銀分析のための乾燥条件の検討, 卒業論文, 鳥取大学 (2019)
6) Yoshimoto, K., Hoang, T., Yamamoto, A., Koriyama, C., Ishibashi, Y., Tabata, M., Nakano, A. and Yamamoto, M.: Simple analysis of total mercury and methylmercury in seafood using heating vaporization atomic absorption spectrometry. *Toxicol. Sci.*, **41**, 489-500 (2016)
7) Nomura, R., Kawano, S. and Yajima, H.: Brackish water thecamoebians as an indicator of sea-level changes in Lake Koyama-ike, Tottori Prefecture, southwest Japan, over the last 60 years. *The Quaternary Research.*, **48**, 305-320 (2009)
8) Sakuno, Y., Takayasu, K., Seto, Koji., Akagi, S., Nishida, R., Tanaka, Z., Murata, Y., Asamura, H. and Hamada, T.: Vertical change in grain-size, total organic carbon and C/N ratio of the core samples from Lake Koyama-ike, Tottori Prefecture, southwest Japan. *LAGUNA*, **2**, 11-20 (1995)
9) 黒田眞由: 湖山池柱状堆積物を用いた微量元素レベルから見るトレンド解明, 修士論文, 鳥取大学大学院 (2021)
10) 第 1 回鳥取県環境審議会: 湖山池の汽水化の取組みに

- 関する報告, 附属資料集 (2014)
- 11)野崎義行: 5. 最新の海水の元素組成表 (1996年版) とその解説, 日本海水学会誌, **51**, 5 (1997)
- 12)Zhang, H., Huo, S., Yeager, K.M., Xi, B., Zhang, J. and Wu, F.: A Historical Sedimentary Record of Mercury in a shallow Eutrophic Lake: Impacts of Human Activities and Climate Change. *Engineering.*, **5**, 296-304 (2019)
- 13)Chen, C.W., Kao, C.K., Chen, C.F. and Dong, C.D.: Distribution and accumulation of heavy metals in the sediments of Kaohsiung Harbor, Taiwan. *Chemosphere.*, **66**, 1431-1440 (2007)
- 14)Tayloe, S.R.: Abundance of chemical elements in the continental crust : a new table. *Geochimica et Cosmochimica Acta.*, **28**, 1273-1285 (1964)
- 15)Muller, G.: Schwermetalle in den sedimenten des rheins – veränderungen seit 1971. *Umschau.*, **79**, 778-783 (1979)
- 16)Turekian, K.K. and Wedepohl, K.H.: Distribution of the elements in some major units of the earth's crust. *Geol. Soc. America.*, **72**, 175-184 (1961)
- 17)Lynn, D.C. and Bonatti, E.: Mobility of manganese in diagenesis of deep-sea sediments. *Marine Geol.*, **3**, 457-474 (1965)
- 18)寺島滋, 池原研, 中嶋健, 片山肇, 井内美郎, 横田節哉, 今井登: 日本海東部の海底堆積物中の元素濃度の鉛直分布と堆積環境, 地質調査所月報, **49**, 201-235 (1998)
- 19)Tan, W., Liu, F., Feng, X., Huang, Q. and Li, X.: Adsorption and redox reactions of heavy metals on Fe–Mn nodules from Chinese soils. *Colloid and Interface Science.*, **284**, 600-605 (2005)

去に塩分が大きく変化した湖沼における年代推定には, **Mg** を指標とすることがきわめて有用であると示唆された。また近年の湖山池において, **As** を中心とする強毒性元素で人為的な汚染の可能性が考えられた。よって, 底棲生物への影響評価など, 継続したモニタリングが必要であると考えられた。

和文要約

環境中の微量元素レベルの動態を正しく把握し, 人体への影響に対して適切な評価を行うことは極めて重要である。本研究は鳥取県東部に位置する湖山池を調査地点とし, 湖底堆積物 (表層堆積物および柱状堆積物) 中の微量元素の濃度および変動を分析, 解析した。湖山池は過去の水門建設などにより, その湖内環境は大きく変遷している。環境変化による微量元素の影響を正確に把握するためには, 過去の歴史的イベントとの関連性を理解する必要がある。柱状堆積物を用いて, 歴史的なイベントとの関連性を解析するためには, 深度から年代に変換する必要があるが, 年代への変換は, 堆積速度の変化や試料採取時の損失などにより, 容易ではない。よって本研究では, 湖山池柱状堆積物 (堆積物コア) を用い, 年代推定を実施した。その結果, 湖山池のような過

Table 1 湖山池柱状堆積物中の微量元素濃度と深度の関係 (Mg, Al, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn) (0~49 cm)

Core depth (cm)	Mid-core depth (cm)	Concentration of each element (mg/kg DW)								
		Mg	Al	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn
0-1	0.5	3597	43482	33.73	1046.8	49318	13.84	23.46	44.56	164.0
1-2	1.5	3458	50379	35.04	1041.0	49718	14.17	24.70	45.58	166.6
2-3	2.5	7098	66835	33.55	961.0	47405	13.85	23.82	44.02	157.0
3-4	3.5	6153	61600	34.06	973.6	48296	13.80	24.51	44.55	155.4
4-5	4.5	5953	62386	33.67	927.7	49851	13.66	24.48	44.30	148.8
5-6	5.5	5629	53980	33.61	881.6	54774	13.19	24.03	43.72	143.3
6-7	6.5	7652	68946	33.08	769.8	45464	12.88	23.87	41.24	139.3
7-8	7.5	6917	55916	34.10	865.7	52649	12.98	23.68	40.28	146.4
8-9	8.5	2206	56112	33.84	754.5	46644	13.17	23.79	40.86	137.5
9-10	9.5	4611	54054	32.98	866.1	40864	13.17	23.51	46.29	144.7
10-11	10.5	5198	65467	33.41	713.4	44419	12.97	22.82	38.96	134.8
11-12	11.5	7245	65014	33.61	774.3	37782	12.97	23.69	37.20	133.6
12-13	12.5	5805	72339	33.82	819.8	36634	13.49	23.50	36.57	137.7
13-14	13.5	5267	63071	34.40	769.3	36875	13.39	24.12	36.17	136.4
14-15	14.5	3207	56779	34.20	773.3	41300	13.38	23.50	37.20	137.9
15-16	15.5	3588	63228	34.73	688.8	38919	13.30	23.49	35.99	133.6
16-17	16.5	4183	51365	35.03	794.4	41068	13.18	23.55	35.88	134.5
17-18	17.5	3552	60830	34.97	802.8	41950	13.35	23.93	36.09	131.1
18-19	18.5	5586	68504	32.95	665.9	38983	12.78	22.86	34.67	123.1
19-20	19.5	4654	61614	34.44	707.2	36237	13.17	24.07	35.03	128.6
20-21	20.5	5807	79263	34.98	728.6	36310	13.03	23.73	36.47	130.4
21-22	21.5	8353	106489	35.29	720.5	31884	13.37	23.81	39.95	142.1
25-26	25.5	5849	69641	35.70	680.5	40338	12.57	23.85	34.65	122.3
26-27	26.5	5541	77933	35.38	694.7	39724	12.99	24.05	35.48	125.4
27-28	27.5	5730	75495	35.82	771.5	41085	12.98	24.20	35.02	125.8
28-29	28.5	4986	71115	36.17	792.4	40770	12.89	23.81	34.60	122.3
29-30	29.5	5484	86966	35.93	752.5	40339	12.77	24.11	35.24	125.5
30-31	30.5	4450	60916	36.11	793.7	40106	13.17	23.85	34.41	129.7
31-32	31.5	4832	60558	35.71	725.9	40524	12.64	23.84	34.13	125.6
32-33	32.5	6743	91764	36.01	652.1	40599	12.33	24.26	34.10	121.6
33-34	33.5	6093	82378	36.91	641.6	39862	12.76	24.52	34.54	125.7
34-35	34.5	5233	112467	36.71	608.7	38498	12.86	24.45	35.00	122.8
35-36	35.5	4917	83228	36.97	641.6	38056	13.03	24.29	34.77	123.9
36-37	36.5	3776	72794	36.72	643.7	38755	13.03	24.14	34.21	121.5
37-38	37.5	8580	83328	36.57	679.0	40514	13.05	25.31	34.35	125.8
38-39	38.5	4630	71703	36.69	735.2	39755	13.47	25.02	34.75	126.6
39-40	39.5	8661	92525	35.66	674.3	39036	13.00	24.76	35.80	128.0
40-41	40.5	4183	64871	36.21	750.5	40759	13.12	24.10	37.50	132.3
41-42	41.5	4365	67221	35.40	753.4	39959	13.18	23.93	37.60	129.7
42-43	42.5	7173	79270	36.44	732.9	40970	13.15	24.09	38.78	133.0
43-44	43.5	3292	43640	36.79	830.7	43433	13.49	24.52	38.52	133.6
44-45	44.5	11727	184931	38.47	671.4	39774	13.46	25.75	38.30	128.3
45-46	45.5	9612	99067	37.98	668.8	42569	13.06	24.82	38.32	128.9
46-47	46.5	8435	97976	37.86	639.4	40053	12.82	24.28	36.32	127.2
47-48	47.5	6098	71934	35.44	648.7	42729	12.35	22.44	35.17	118.4
48-49	48.5	8426	134564	34.21	677.9	39104	12.80	23.24	34.73	120.5

Table 1 湖山池柱状堆積物中の微量元素濃度と深度の関係 (Mg, Al, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn) (50~74 cm, 121~150 cm)

Core depth (cm)	Mid-core depth (cm)	Concentration of each element (mg/kg DW)								
		Mg	Al	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn
50-51	50.5	8813	99767	32.94	664.3	38571	11.95	21.66	33.27	116.6
51-52	51.5	6267	81800	30.77	721.5	40578	12.25	20.62	33.93	119.3
52-53	52.5	5103	60068	29.79	765.8	38520	12.17	20.22	33.42	118.9
53-54	53.5	5252	66823	29.45	734.6	43538	11.99	20.15	34.19	115.8
54-55	54.5	7896	123279	29.35	682.1	39105	12.09	20.23	34.13	116.8
55-56	55.5	5846	95581	29.51	701.8	39846	11.96	20.21	34.52	119.4
56-57	56.5	6758	78752	30.20	668.0	40620	12.04	20.22	34.40	119.0
57-58	57.5	4338	80817	29.93	640.8	41464	11.93	20.42	33.50	119.1
58-59	58.5	7159	105550	31.20	730.8	39903	12.51	21.09	32.95	118.7
59-60	59.5	6499	69363	32.12	747.1	43185	12.45	21.71	33.05	118.2
60-61	60.5	4726	64022	33.10	615.7	45798	11.98	22.06	33.50	120.9
61-62	61.5	7615	118062	32.40	618.9	44059	11.75	22.54	33.39	121.2
62-63	62.5	5503	75636	32.34	616.8	41200	11.83	22.70	32.56	120.5
63-64	63.5	6910	105353	32.64	641.8	42001	11.78	22.38	33.14	125.4
64-65	64.5	4806	93519	32.37	655.0	42316	12.13	22.48	32.42	119.2
65-66	65.5	7632	120421	32.93	694.3	44496	12.47	22.59	33.62	124.2
66-67	66.5	8513	151022	32.48	687.7	43088	12.48	22.13	33.68	124.4
67-68	67.5	8125	152988	32.78	710.5	42660	12.53	22.49	33.96	122.6
68-69	68.5	7705	150922	32.65	712.9	43686	12.57	22.06	33.68	120.7
69-70	69.5	5454	86278	33.11	722.7	43835	12.64	22.28	32.54	123.4
70-71	70.5	4849	100473	33.97	726.2	41434	13.51	23.91	33.16	123.8
71-72	71.5	3867	81033	32.70	691.9	41592	12.37	22.40	32.15	122.4
72-73	72.5	8320	175054	31.37	658.6	42865	11.90	21.03	31.58	113.6
73-74	73.5	6637	88182	31.07	699.8	44767	11.39	20.07	30.81	117.2
121-122	121.5	8550	118135	41.76	711.6	41830	13.82	26.89	35.50	130.8
122-123	122.5	9066	139671	42.49	721.1	43951	13.92	27.19	35.57	132.4
123-124	123.5	10979	139801	36.50	679.4	43661	13.13	23.33	34.65	134.1
124-125	124.5	8957	119476	35.40	657.1	41529	12.71	23.38	33.60	133.5
125-126	125.5	6025	73133	36.77	662.3	39825	13.70	24.48	34.21	134.2
126-127	126.5	6574	104137	36.26	671.9	39794	13.39	24.18	33.60	132.0
127-128	127.5	7445	76588	34.87	673.2	41562	13.20	23.44	33.29	128.5
128-129	128.5	7475	76403	34.05	683.2	41635	12.63	22.49	33.11	127.5
129-130	129.5	10090	72794	34.15	682.4	42716	12.50	23.18	33.00	125.7
130-131	130.5	8241	89988	33.31	712.7	41497	13.84	22.73	34.03	133.8
131-132	131.5	9169	76910	34.83	727.3	45220	13.49	23.67	33.36	130.6
132-133	132.5	9213	111674	34.95	696.3	44057	13.62	23.53	33.64	126.0
133-134	133.5	8387	81290	34.81	735.6	44360	13.10	23.28	33.63	128.2
134-135	134.5	9083	95983	34.93	713.6	43900	13.91	23.49	34.79	129.4
135-136	135.5	7871	88637	34.97	705.0	43055	14.34	23.75	34.60	130.9
136-137	136.5	8608	84742	34.43	680.0	42872	14.09	23.22	34.00	126.0
137-138	137.5	8476	80510	33.92	659.9	44748	13.83	23.22	34.25	125.0
138-139	138.5	10939	99205	34.16	614.4	43654	13.40	23.12	34.68	125.8
139-140	139.5	8025	88967	33.99	624.5	44462	13.76	23.42	34.16	125.0
140-141	140.5	5620	81175	34.58	652.7	43189	13.47	23.87	34.34	127.8
141-142	141.5	6731	78132	35.48	666.1	42804	14.05	24.15	34.41	128.5
142-143	142.5	8937	105875	35.10	660.1	43190	14.40	24.37	35.41	128.5
143-144	143.5	13441	142354	34.11	625.5	43087	13.83	23.54	35.20	130.0
144-145	144.5	8258	83952	34.02	592.9	42123	13.89	23.40	34.04	126.4
145-146	145.5	9433	98345	34.74	589.2	44172	13.99	23.98	35.63	127.5
146-147	146.5	5544	72820	35.03	577.1	39635	13.35	23.67	34.54	123.6
147-148	147.5	7584	74311	36.47	591.8	45864	14.38	25.90	35.25	128.9
148-149	148.5	7196	66607	35.99	610.2	52962	13.85	25.22	36.31	137.1
149-150	149.5	9341	64728	37.20	582.5	42479	14.31	27.27	34.45	122.5

Table. 1 湖山池柱状堆積物中の微量元素濃度と深度の関係 (As, Se, Sr, Mo, Cd, Pb, Total-Hg, Organic-Hg) (0~49 cm)

Core depth (cm)	Mid-core depth (cm)	Concentration of each element (mg/kg DW)							
		As	Se	Sr	Mo	Cd	Pb	T-Hg	O-Hg
0-1	0.5	6.097	0.268	60.09	1.092	0.445	45.54	0.104	ND
1-2	1.5	7.000	0.286	63.41	1.335	0.480	41.06	0.141	ND
2-3	2.5	8.241	0.295	44.29	1.317	0.485	44.24	0.148	ND
3-4	3.5	8.776	0.295	49.10	1.542	0.471	38.63	0.130	ND
4-5	4.5	10.078	0.309	54.90	1.748	0.491	34.40	0.120	ND
5-6	5.5	9.077	0.292	55.97	2.151	0.503	32.81	0.125	ND
6-7	6.5	9.800	0.328	39.37	1.946	0.473	33.77	0.116	ND
7-8	7.5	8.651	0.291	61.88	1.704	0.477	30.67	0.141	ND
8-9	8.5	8.140	0.271	38.03	1.531	0.453	35.23	0.092	ND
9-10	9.5	7.344	0.266	59.72	1.507	0.417	54.54	0.021	ND
10-11	10.5	8.208	0.313	39.18	1.605	0.461	37.62	0.071	ND
11-12	11.5	8.157	0.275	47.39	1.468	0.406	35.46	0.058	ND
12-13	12.5	8.452	0.270	50.52	1.494	0.405	35.76	0.050	ND
13-14	13.5	7.664	0.243	50.75	1.277	0.390	31.57	0.061	ND
14-15	14.5	6.851	0.264	46.96	1.200	0.408	33.70	0.074	ND
15-16	15.5	7.441	0.281	39.97	1.191	0.403	34.37	0.063	ND
16-17	16.5	6.482	0.248	51.86	1.271	0.387	32.75	0.064	ND
17-18	17.5	7.261	0.265	54.28	1.380	0.415	35.59	0.047	ND
18-19	18.5	7.562	0.254	38.16	1.189	0.404	34.10	0.059	ND
19-20	19.5	7.263	0.265	45.54	1.299	0.391	34.27	0.058	ND
20-21	20.5	9.030	0.295	53.87	1.359	0.408	35.46	0.050	ND
21-22	21.5	10.844	0.321	50.69	1.551	0.403	37.29	0.024	ND
25-26	25.5	7.846	0.274	57.52	1.324	0.408	35.50	0.072	ND
26-27	26.5	8.834	0.297	53.88	1.365	0.402	35.68	0.061	ND
27-28	27.5	8.931	0.301	58.52	1.535	0.420	36.31	0.064	0.003
28-29	28.5	8.277	0.289	59.47	1.417	0.412	34.32	0.057	0.003
29-30	29.5	9.632	0.325	48.93	1.432	0.426	35.00	0.051	ND
30-31	30.5	7.476	0.273	57.05	1.251	0.394	33.51	NA	NA
31-32	31.5	7.150	0.244	57.19	1.206	0.385	31.97	0.059	ND
32-33	32.5	9.836	0.310	47.80	1.472	0.437	35.51	0.066	0.000
33-34	33.5	9.181	0.298	52.45	1.528	0.424	34.59	0.058	0.003
34-35	34.5	11.391	0.343	44.26	1.496	0.441	36.91	0.055	ND
35-36	35.5	9.345	0.293	50.76	1.282	0.425	35.50	0.075	0.003
36-37	36.5	8.238	0.281	50.74	1.230	0.401	33.70	0.060	0.001
37-38	37.5	9.166	0.314	52.04	1.345	0.437	35.32	0.058	0.004
38-39	38.5	8.165	0.281	56.21	1.252	0.397	34.02	0.065	ND
39-40	39.5	9.650	0.321	49.80	1.517	0.431	35.44	0.065	0.002
40-41	40.5	7.745	0.255	65.92	1.203	0.414	34.71	0.070	0.003
41-42	41.5	7.946	0.264	57.52	1.179	0.404	35.65	0.064	ND
42-43	42.5	9.289	0.305	52.73	1.279	0.423	36.54	0.066	0.002
43-44	43.5	5.968	0.268	77.61	1.174	0.388	34.38	0.068	0.006
44-45	44.5	19.560	0.565	88.70	2.321	0.592	46.77	NA	NA
45-46	45.5	10.971	0.337	61.52	1.670	0.451	36.95	0.074	0.007
46-47	46.5	10.586	0.323	56.14	1.587	0.423	35.51	0.069	0.006
47-48	47.5	13.245	0.374	54.96	1.871	0.454	36.07	0.066	ND
48-49	48.5	11.008	0.349	52.31	1.731	0.441	36.01	0.084	ND

ND : Not detected, NA : Not available

Table 1 湖山池柱状堆積物中の微量元素濃度と深度の関係 (As, Se, Sr, Mo, Cd, Pb, 総 Hg, 有機 Hg) (50~74 cm, 121~150 cm)

Core depth (cm)	Mid-core depth (cm)	Concentration of each element (mg/kg DW)							
		As	Se	Sr	Mo	Cd	Pb	T-Hg	O-Hg
50-51	50.5	9.194	0.283	53.08	1.603	0.415	32.72	0.085	ND
51-52	51.5	9.105	0.297	56.22	1.433	0.412	33.34	0.072	ND
52-53	52.5	7.708	0.282	64.22	1.382	0.399	32.86	0.084	ND
53-54	53.5	13.098	0.373	50.79	1.996	0.471	37.82	0.081	ND
54-55	54.5	10.266	0.327	45.25	1.624	0.415	34.54	0.079	ND
55-56	55.5	8.882	0.272	65.96	1.539	0.401	33.71	0.080	ND
56-57	56.5	9.021	0.305	48.74	1.693	0.414	33.66	0.089	ND
57-58	57.5	11.105	0.341	43.48	1.791	0.447	35.03	0.134	ND
58-59	58.5	8.105	0.275	57.04	1.491	0.420	32.35	0.104	ND
59-60	59.5	7.595	0.273	67.35	1.576	0.430	31.89	0.095	ND
60-61	60.5	12.171	0.370	45.72	1.891	0.475	34.75	0.088	ND
61-62	61.5	8.433	0.296	57.81	1.358	0.422	31.08	0.148	ND
62-63	62.5	7.830	0.269	62.46	1.256	0.409	30.70	0.093	ND
63-64	63.5	10.687	0.334	64.68	1.525	0.457	33.81	0.089	ND
64-65	64.5	9.858	0.321	61.82	1.426	0.440	33.55	0.086	ND
65-66	65.5	12.316	0.374	61.99	1.579	0.478	36.68	0.088	ND
66-67	66.5	15.117	0.420	59.25	1.843	0.536	38.27	0.087	ND
67-68	67.5	15.452	0.443	57.20	1.813	0.525	39.28	0.082	ND
68-69	68.5	15.247	0.436	59.58	1.879	0.527	38.94	0.065	0.002
69-70	69.5	9.116	0.309	71.52	1.390	0.448	32.98	0.086	0.000
70-71	70.5	10.790	0.374	55.53	1.542	0.479	37.15	0.080	0.009
71-72	71.5	8.590	0.293	57.50	1.301	0.412	31.64	0.089	0.002
72-73	72.5	16.666	0.448	53.69	1.955	0.533	38.27	0.072	0.010
73-74	73.5	9.228	0.302	64.41	1.293	0.426	29.72	0.092	0.008
121-122	121.5	11.701	0.333	76.64	1.426	0.453	33.68	0.075	0.007
122-123	122.5	13.399	0.385	75.82	1.719	0.490	35.74	0.072	0.009
123-124	123.5	13.889	0.382	73.30	1.700	0.487	33.82	0.094	0.009
124-125	124.5	12.007	0.349	71.73	1.548	0.459	32.83	0.093	0.011
125-126	125.5	8.269	0.291	67.69	1.169	0.399	30.05	0.077	0.008
126-127	126.5	10.831	0.331	67.11	1.378	0.445	32.95	0.070	0.007
127-128	127.5	8.546	0.286	68.89	1.241	0.415	30.91	0.072	0.012
128-129	128.5	8.225	0.302	70.75	1.156	0.416	30.11	0.069	0.010
129-130	129.5	8.270	0.315	88.96	1.232	0.451	31.49	0.091	0.012
130-131	130.5	9.354	0.327	64.36	1.356	0.449	32.62	0.073	ND
131-132	131.5	8.641	0.339	83.80	1.429	0.469	33.64	0.100	0.009
132-133	132.5	11.141	0.385	59.62	1.796	0.492	35.02	0.081	0.010
133-134	133.5	8.781	0.332	81.78	1.405	0.469	32.43	0.103	0.013
134-135	134.5	9.981	0.354	70.50	1.555	0.480	34.82	0.092	0.011
135-136	135.5	9.568	0.340	63.10	1.513	0.465	33.48	0.104	0.005
136-137	136.5	9.292	0.331	64.78	1.493	0.460	33.61	0.124	0.007
137-138	137.5	9.189	0.324	73.41	1.510	0.465	33.22	0.074	ND
138-139	138.5	10.880	0.361	73.86	1.632	0.469	33.88	0.080	ND
139-140	139.5	10.184	0.349	65.86	1.585	0.479	33.99	0.078	ND
140-141	140.5	8.948	0.341	71.30	1.413	0.455	31.86	0.069	ND
141-142	141.5	8.699	0.333	76.23	1.412	0.466	34.00	0.069	ND
142-143	142.5	11.205	0.370	65.56	1.457	0.482	36.10	0.068	ND
143-144	143.5	14.364	0.438	68.61	1.744	0.533	39.35	0.083	ND
144-145	144.5	9.487	0.315	60.88	1.514	0.445	34.90	0.058	ND
145-146	145.5	11.590	0.364	73.50	1.725	0.495	33.57	0.061	ND
146-147	146.5	8.790	0.317	67.28	1.350	0.419	31.40	0.082	ND
147-148	147.5	9.251	0.385	72.98	1.525	0.495	35.91	0.058	ND
148-149	148.5	8.240	0.365	81.46	1.509	0.519	34.16	0.073	ND
149-150	149.5	8.230	0.389	80.70	1.542	0.479	36.60	NA	NA

ND : Not detected, NA : Not available

Table. 2 湖山池表層堆積物における近年（5年）の微量元素濃度

Concentration of each element (mg/kg DW)									
year	Mg	Al	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn
2017	8071	63335	33.96	597.0	51042	15.21	20.07	54.28	210.0
2015	NA	116709	39.52	764.3	60250	16.88	24.25	51.72	231.1
2014	7366	156575	49.88	1146	81073	20.93	29.32	66.88	287.4
2012	2923	72651	29.63	1324	55703	13.13	12.99	43.95	216.3
2011	609.2	79630	27.38	1604	47383	13.39	15.98	42.50	217.3

Concentration of each element (mg/kg DW)								
year	As	Se	Sr	Mo	Cd	Pb	T-Hg	O-Hg
2017	6.589	0.237	62.952	0.9512	0.4644	36.08	NA	NA
2015	15.22	69.53	90.386	21.885	0.8824	83.80	NA	NA
2014	59.36	243.2	124.9	33.324	1.057	107.7	NA	NA
2012	NA	NA	75.161	NA	0.7475	23.08	NA	NA
2011	9.1397	NA	157.25	NA	0.7848	69.48	NA	NA

NA : Not available