

縁辺海域における陸起源有機物の供給と堆積過程

長尾 誠也*

1. はじめに

東シナ海、日本海、オホーツク海等の縁辺海は、河川からの栄養塩等の供給量が多く、海洋表層での生物生産が高い海域である。そのため、縁辺海の大陸棚は、炭素循環における炭素の貯蔵域として重要な役割を担っている^{1, 2)}。また、持続可能な社会構築のためには、沿岸域での生物生産を維持することが重要である。しかしながら、流域の土地利用形態の変化、人口増加、降雨量や集中豪雨の発生頻度の増加等により、河川からの栄養塩、懸濁粒子、および、有機物の供給量変動³⁾、沿岸域の生物生産に影響を及ぼす可能性が指摘されている⁴⁾。そのため、河川流域環境と沿岸域を1つのシステムとして捉え、河川から輸送される栄養塩と有機物の移行挙動、沿岸域での生物生産と有機物の堆積過程に関する評価が重要となる。

これまで、表層堆積物の有機物の $\delta^{13}\text{C}$ 、有機炭素含有量/全窒素含有量比 (C/N 比) を用い、縁辺海域での陸起源有機物の堆積過程、ならびに、亜外洋域への輸送過程に関する検討が行われてきた⁵⁻⁷⁾。また、陸起源有機物の寄与をより詳細に解析するために、陸上の高等植物起源のリグニンフェノールの含有量とその組成に着目した研究が報告されている⁸⁻¹⁰⁾。最近では、加速器質量分析計により測定された放射性炭素 ($\Delta^{14}\text{C}$) と $\delta^{13}\text{C}$ とを組み合わせることで、バルクの有機物の挙動から、陸起源有機物の特徴を検討する手法が報告されている¹¹⁻¹³⁾。しか

しながら、河川水懸濁粒子と沿岸域堆積物の有機物との関係、水平分布を基にした堆積過程についての報告例は多くはなく、未解明な部分が残っている。

本研究では、温帯～寒帯の3つの地域 (アラスカ、南カリフォルニア、北海道) において、有機物の $\delta^{13}\text{C}$ 、C/N 比、および、 $\Delta^{14}\text{C}$ をトレーサーとして用い、河川水懸濁粒子、河床堆積物、沿岸域堆積物のデータから陸域と沿岸域における陸起源有機物の動態を検討した結果を報告する。

2. 対象海域と河川流域

本研究で対象とする河川水系と沿岸海域は図1に、各河川の流量や流域環境の特徴を表1¹⁴⁻²²⁾にまとめた。

2.1 対象海域

北極海は世界の20%の大陸棚を有しているため、環境変動を反映した流域環境の変化が粒子態有機物の供給量やその特性の変化として観測される可能性がある。そのため、アメリカ、カナダ、ドイツ等の研究機関でモニタリング調査研究が進められている。また、東シナ海、日本海、親潮沿岸域等の太平洋北西部も生物生産性の高い海域であり、微弱な環境変化が観測される可能性が考えられる。本研究では、北極海に面するロシア側とアメリカ～カナダ側の流域と沿岸域との関係とともに、降水量や植生が異な

*金沢大学環日本海域環境研究センター低レベル放射能実験施設教授

第30回石橋雅義先生記念講演会 (平成22年4月28日) 講演

る太平洋西部温帯域の北海道十勝川流域とその沿岸域，太平洋東部の南カリフォルニアの Santa Clara 川とその沿岸域の Santa Barbara Channel とを比較検討した。各流域と沿岸域の特徴は以下の通りである。

2.1.1 シベリア河川沖（カラ海，ラプテフ海・東シベリア海）

カラ海に流れ込む Ob 川は，ほぼ永久凍土帯が存在しない流域である。Yenisey 川は上・中流域に永久凍土帯が点在している。一方，ラプ

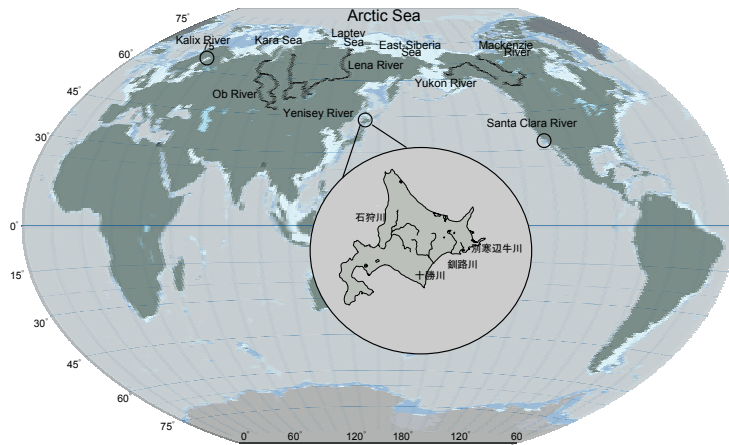


図1 研究対象河川流域と沿岸域

表1 研究対象河川の流域環境，流量，および，懸濁粒子供給量

河川名	流域面積 (10^3km^2)	幹線流路長 (km)	流量 (m^3/yr)	懸濁粒子供給量 ($10^6\text{t}/\text{yr}$)
十勝川	0.901×10^{-1}	156	6.9	n.m.
石狩川	0.143	268	117	n.m.
釧路川	0.251×10^{-1}	154	1.5	n.m.
別寒辺牛川	8.32×10^{-4}	43	n.m.	n.m.
Mackenzie	18.1	4241	306	124 ± 42
Yukon	8.39–8.55	3185	200	~60
Kalix	2.36×10^{-2}	450	10	20.4×10^{-3}
Ob	2.54–2.99	2962	493–433	13.4–16.5
Yenisey	2.44–2.59	5539	555–620	13.2–14.5
Khatanga	0.275–0.364	227	70–85.3	1.7
Lena	2.46–2.48	4472	505–525	11.7–17.6
Indigirka	0.358–0.362	1726	47.5–61	3.1–3.57
Santa Clara	0.421×10^{-1}	134	0.16	5.89~11.8

n.m. = 未公表

十勝川・石狩川・釧路川の流量は国土交通省¹⁴⁾，Mackenzie 川の流量と懸濁粒子供給量は Carson et al.¹⁵⁾，Yukon 川では Milliman and Meade¹⁶⁾，Brabets et al.¹⁷⁾，シベリアの河川については Gordev et al.¹⁸⁾，Telang et al.¹⁹⁾，Holmes et al.²⁰⁾ より，Santa Clara 川の流量は U.S. Geol. Survey²¹⁾，懸濁粒子供給量は Warrick et al.²²⁾ より引用した。

テブ海・東シベリア海に流れ込む Khatanga 川, Lena 川, Indigirka 川, Kolyma 川は永久凍土地域に位置している²³⁾。表 1 に示しているように, Khatanga 川, Lena 川, Indigirka 川, Kolyma 川は, 他の河川に比べて懸濁粒子供給量が低いことが特徴の 1 つである。これらの流域の年間降水量は 500mm 未満である。周辺部にはツンドラ, 内陸部にはタイガが分布している。表層堆積物は塩分 7.5~21.9 の地点で採取した²³⁾。採取地点から沖合の海域では, 西から東へシベリア大陸棚循環流が流れている²⁴⁾。なお, Kalix 川は, 同じ緯度帯のスウェーデン北東部に位置し, ボスニア湾に流れ込んでいる。流域の~20%は湿地, それ以外は針葉樹林帯が卓越している²⁵⁾。

2.1.2 Mackenzie 川沖 (Beaufort 海)

Mackenzie 川は, Great Slave 湖, Liard 川, Peel 川と合流して Beaufort 海へ流れ込む。北極海に流入する河川の中で懸濁粒子供給量が最も高く, 懸濁粒子の大部分は春から夏にかけての流出に伴い供給される¹⁵⁾。年間の平均降水量は 500mm 未満である²⁶⁾。Mackenzie 川からのプルームは, 沖合の大陸棚全域に拡がる²⁷⁾。沿岸域の生物生産量は, 春の終わりから夏にかけての限られた期間に植物プランクトンのブルームにより生じる²⁸⁾。大陸棚の堆積速度は 10~300cm/kyr^{28, 29)} と地点により大きな動幅が存在する。

2.1.3 十勝川沖 (十勝沖海域)

大雪山系の十勝岳に源を発する十勝川は, 中流から下流域で十勝平野を通過し太平洋へ流れ込む。河川流域面積のうち山林が約 47%, 畑や牧草地等の農地は約 27% である³⁰⁾。年間の平均降水量は, 下流の浦幌観測所で 947mm (1979-

2000年の平均値)³¹⁾。下流の茂岩における河川流量は, 春先の雪解けと秋季の降雨の時期に極大値を示す¹⁴⁾。十勝川の沖合では, 親潮から分岐した沿岸親潮が北西に向けて流れている³²⁾。

2.1.4 Santa Clara 川沖 (Santa Barbara Channel)

Santa Clara 川は, 年間降水量 400mm の半乾燥地帯を流れ, 流域の 88% は低木からなる自然林により構成され, 残りの 12% は外来の草原, 農地, 都市域, 荒地が占めている^{33, 34)}。冬季に発生する突発的な嵐は, 河川流量や懸濁粒子の輸送に大きな影響を及ぼしている。Santa Barbara Channel には, 沿岸よりに極狭な大陸棚が広がっている。沿岸域表層堆積物は, Santa Clara 川河口から約 14.8km 離れた水深 90m の地点でボックスコーラーにより採取された¹¹⁾。Santa Barbara Channel の Santa Clara 川に近い海域では, 南カリフォルニア反流が卓越しているが, 季節により海流は複雑に変動している²²⁾。

2.2 対象河川水系

沿岸域に流入する河川水中の懸濁態有機物の特徴を把握するために, 上記の海域に流入する河川以外に, 表 1 に示した河川の報告値も検討に用いた。石狩川は北海道の北西部に位置し, 日本で 3 番目に長い幹線流路長である。流域の約 50% が森林, 31% を水田等の農地が占めている³⁵⁾。石狩川流域の年間降水量は平均で約 1,320mm である³¹⁾。釧路川と別寒辺牛川は北海道の道東部に位置している。釧路川は摩周湖を水源とし, 上流に森林域, 中流から下流にかけて釧路湿原が広がる。釧路川流域の年間平均降水量は 1,045mm (1971~2000年), 別寒辺牛川流域では 1,142mm (1978~2007年) であっ

た³¹⁾。別寒辺牛川は釧路湿原の隣に存在する別寒辺牛湿原を流れる河川であり、源流から河口まで、人口構造物のない河川として、環境省のモニタリングサイトの1つに指定されている。アラスカと北西カナダを流れる Yukon 川はベーリング海へ注ぎ、年間の流量は世界第23位、土砂の排出量は世界第19位と比較的大きな河川である。Yukon 川流域の年間降水量は250~560 mm³⁶⁾と日本の年間平均降水量の1/3以下である。

3. 試料と分析方法

沿岸域堆積物試料はそれぞれの河川の沖合で、水深5~210mの地点でグラブ採泥器により採取し、表層2cmを分析用試料とした^{9, 11, 12, 23)}。十勝川、石狩川、別寒辺牛川の河川水懸濁粒子は連続遠心法³⁷⁾により採取した。それ以外の河川では、GF/F ガラス繊維濾紙により採取した。塩酸処理で炭酸塩を除去した後に元素分析、同位体分析、放射性炭素分析を行った。炭素安定同位体比は以下のように δ 値として、PDB標準試料(VPDB)に対して表した。

$$\delta^{13}\text{C} = \left\{ \left(\frac{^{13}\text{C}/^{12}\text{C}}{^{13}\text{C}/^{12}\text{C}} \right)_{\text{sample}} / \left(\frac{^{13}\text{C}/^{12}\text{C}}{^{13}\text{C}/^{12}\text{C}} \right)_{\text{standard}} - 1 \right\} \times 1000 \text{ (‰)}$$

放射性炭素は $\Delta^{14}\text{C}$ として表記した³⁸⁾。

$$\Delta^{14}\text{C} = \delta^{14}\text{C} - (2\delta^{13}\text{C} + 50)(1 + \delta^{14}\text{C}/1000)$$

また、全有機炭素含有量/全窒素含有量のモル比をC/N比として表した。

4. 結果と議論

4.1 沿岸域堆積物中の有機物の炭素同位体比($\Delta^{14}\text{C}$, $\delta^{13}\text{C}$)とC/N比

表層堆積物有機物の $\Delta^{14}\text{C}$, $\delta^{13}\text{C}$ とC/N比との関係を図2に示した。図2(a)を見て明らかのように、有機物の $\Delta^{14}\text{C}$ と $\delta^{13}\text{C}$ は対象とする沿岸域で大きく異なる。高緯度地域の表層堆積物の $\Delta^{14}\text{C}$ 値は、Kalix 川が流入するボスニア湾堆積物で高く、Ob 川・Yenisey 川が流入するカラ海堆積物、Lena 川・Indigirka 川・Kolyma 川が注ぐラプテブ海・東シベリア海沿岸域堆積物の順に低くなった。ラプテブ海・東シベリア海沿岸域堆積物の値は、Mackenzie 川沖の Beaufort 大陸棚堆積物の範囲とほぼ一致する。Mackenzie 川流域と Lena 川・Indigirka 川・Kolyma 川流域は永久凍土帯が広がっている。一方、温帯域の北海道十勝川沖の堆積物は、シベリアとアラスカの沿岸域堆積物に比べて、 $\Delta^{14}\text{C}$ 値と $\delta^{13}\text{C}$ 値がともに高い位

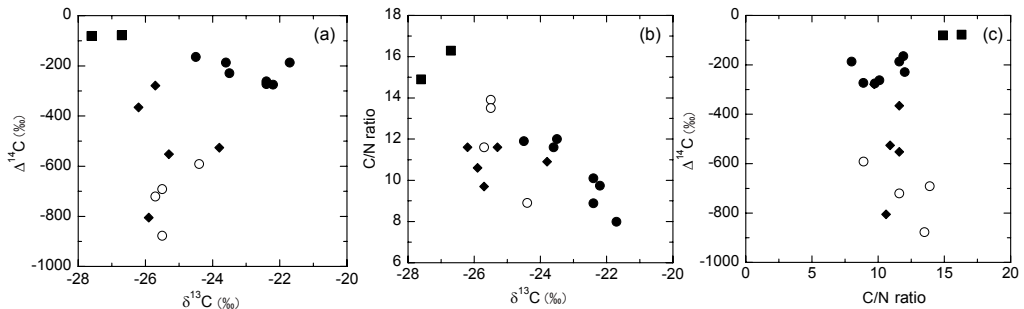


図2 沿岸域堆積物中の有機物の $\Delta^{14}\text{C}$, $\delta^{13}\text{C}$ 値、および、C/N比
シンボルは次の通りである：■, Kalix 川沖 (ボスニア湾)²³⁾；◆, シベリア沖²³⁾；●, 十勝沖¹²⁾；○, Beaufort海⁹⁾。

置にプロットされている。

十勝川沖堆積物の C/N 比と $\delta^{13}\text{C}$ との関係は、バラツキはあるものの、陸起源有機物と植物プランクトン等の海洋起源の有機物との二成分系の混合、あるいは流域での有機物の分解による可能性が考えられる (図 2 (b))。シベリア、アラスカ、ボスニア湾の表層堆積物では、C/N 比と $\delta^{13}\text{C}$ とに明瞭な相関性は認められない。また、図 2 (c) に示された様に、C/N 比によらず有機物の $\Delta^{14}\text{C}$ 値が大きく変動している。Kalix 川沖の堆積物有機物の $\Delta^{14}\text{C}$ 値と C/N 比が高く、 $\delta^{13}\text{C}$ 値が低い。この特徴は、流域の湿地からの供給が反映している可能性が考えられる^{13, 39)}。

以上の結果より、沿岸域堆積物の有機物の特徴は、1) Kalix 川、2) 十勝川、3) Ob 川、Yenisey 川、4) Mackenzie 川・Lena 川・Indigirka 川・Kolyma 川沖堆積物に分類される。これに対応するように表 1 に示した各河川の流域環境は異なる。つまり、河川流域環境の違いにより、河川へ供給・輸送される粒子態の陸起源有機物の特徴が異なると考えられる。この点を明らかにするために、河川水懸濁粒子の

特徴を次にまとめた。

4.2 河川水粒子態有機物の特徴

図 3 には、5 つの河川水中の粒子態有機物の測定結果を示した。湿原域を流れる釧路川、別寒辺牛川の河川水の粒子態有機物は、他の試料に比べてより高い $\Delta^{14}\text{C}$ 値とより低い $\delta^{13}\text{C}$ 値を示した。一方、石狩川、十勝川、および Yukon 川の場合には、同じ $\delta^{13}\text{C}$ 値の範囲ながら、 $\Delta^{14}\text{C}$ 値は Yukon 川の方が低い値であった。湿原域を流れる Yukon 川で低い $\Delta^{14}\text{C}$ 値を示す結果は、流域の古い堆積岩有機物の寄与による⁴⁰⁾。C/N 比は、別寒辺牛川 > Yukon 川 > 釧路川 = 石狩川 = 十勝川の順に低くなる。釧路川を除いて湿原域の別寒辺牛川と Yukon 川で高い値であった。これらの結果より、湿原域の河川では、湿原表層付近の有機物が河川へ供給されるが、釧路川の場合には、湿原の開発の影響を受けている可能性が考えられる³⁹⁾。石狩川と十勝川の粒子態有機物は、ある程度、分解を受けた有機物が移行していることを示している。

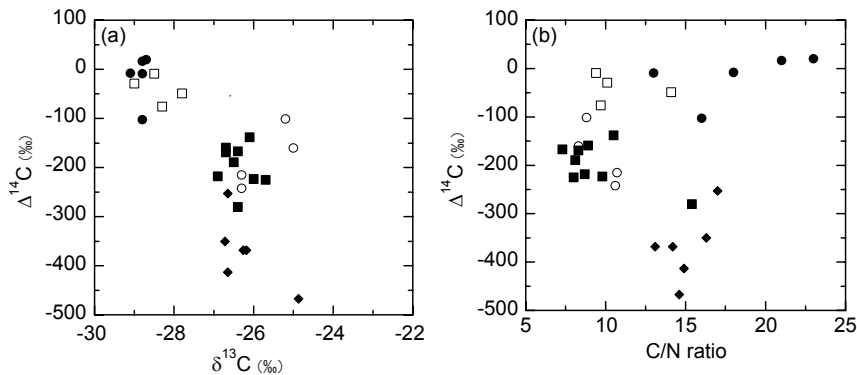


図 3 河川水懸濁粒子中の有機物の $\Delta^{14}\text{C}$ 、 $\delta^{13}\text{C}$ 値、および、C/N 比
シンボルは次の通りである：■，石狩川 (長尾, 未発表)；◆，Yukon 川⁴⁰⁾；●，別寒辺牛川¹³⁾；
○，十勝川¹²⁾；□，釧路川³⁹⁾。

4.3 河川水懸濁粒子 — 河床堆積物 — 沿岸域堆積物中の有機物の関係

図4には、北海道十勝川—沿岸域、アラスカ Mackenzie 川—Beaufort 沿岸域、南カリフォルニア Santa Clara 川—Santa Barbara Channel における粒子態有機物の $\Delta^{14}\text{C}$ と $\delta^{13}\text{C}$ 値を示した。十勝川の場合、河川水粒子態有機物の $\Delta^{14}\text{C}$ 値の範囲は、水深38~55mの沿岸域表層堆積物の値とほぼ一致し、 $\delta^{13}\text{C}$ 値のみが海洋起源有機物の混合により、プラス方向へシフトしている。Mackenzie 川沖の水深5~61mの表層堆積物の場合には、河川水中の粒子態有機物に比べて100~200%低く、水深が210mの地点の表層堆積物は、さらに150%程度低い $\Delta^{14}\text{C}$ 値を示した。一方、Santa Clara 川—Santa Barbara Channel の場合には、水深90mの地点ではあるが、表層堆積物の $\Delta^{14}\text{C}$ 値は、300%程度高く、 $\delta^{13}\text{C}$ 値は最大で1.3%高い値であった。この結果は、海洋プランクトン起源の新しい有機物の供給によることが考えられる。

沿岸域表層堆積物の有機物は、河川流域の陸起源有機物の特徴を反映することが明らかとなった。しかし、海洋表層の生物生産量とその堆積

過程も、大陸棚表層堆積物の有機物の特徴に影響を及ぼしている。これらの結果は、河川流域と沿岸域を総合的に検討することの重要性を示している。また、流域の土地利用形態・植生等の流域環境の変化により、輸送される粒子態有機物の特性が変化する可能性が示唆される。

4.4 沿岸域 — 大陸棚 — 大陸斜面での堆積状況

図5には、Mackenzie 川沖の Beaufort 大陸棚 — 大陸斜面堆積物と十勝川沖の大陸棚 — 大陸斜面堆積物中の有機物の $\Delta^{14}\text{C}$ 値と $\delta^{13}\text{C}$ 値を、堆積物が存在する水深に対してプロットした。Beaufort 大陸棚 — 大陸斜面堆積物では、有機物の $\Delta^{14}\text{C}$ 値は-738~-619‰、 $\delta^{13}\text{C}$ 値では-26.0~-23.8‰と陸起源有機物の寄与が高いことを示している。Macdonald et al.²⁸⁾と Rachold et al.⁴²⁾による河川から供給される陸起源有機物の約60%がMackenzie 川河口域デルタと大陸棚に堆積する報告と、堆積物有機物の $\Delta^{14}\text{C}$ 値と $\delta^{13}\text{C}$ 値の結果は調和的である。なお、河川水粒子態有機物の $\Delta^{14}\text{C}$ 値は、Mackenzie 川だけでなく、Yukon 川、Sag 川

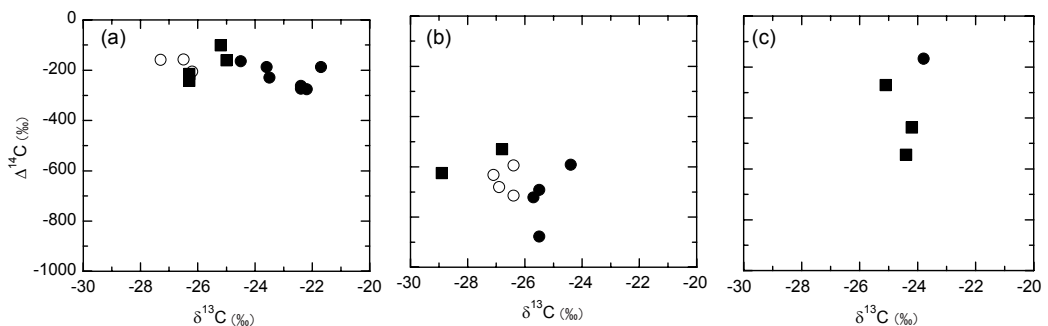


図4 河川水懸濁粒子、河床堆積物、および、沿岸域堆積物中の有機物の $\Delta^{14}\text{C}$ 、 $\delta^{13}\text{C}$ 値、および、C/N比
シンボルは次の通りである：■，河川水懸濁粒子；○，河床堆積物；●，沿岸域堆積物。十勝川—十勝沖データは Nagao et al. (2005)¹²⁾，Mackenzie 川—Beaufort 海は Goñi et al. (2005)⁹⁾と Guo et al. (2007)⁴³⁾，Santa Clara 川と Santa Barbara Channel のデータは Kodama et al. (2005)¹¹⁾ より引用。

でも $-558\sim-253\%$ と低い値である⁴¹⁾。これは、脂肪酸の $\Delta^{14}\text{C}$ 値と $\delta^{13}\text{C}$ 値の測定結果により、流域の古い堆積岩有機物の寄与が $40\sim50\%$ と見積もられている¹⁰⁾。

一方、十勝川沖の場合には、水深100m以深の $\Delta^{14}\text{C}$ 値は $-167\sim-124\%$ 、 $\delta^{13}\text{C}$ 値では $-21.0\sim-20.8\%$ とほぼ海洋起源の有機物の存在を示している。Wang et al.⁴⁴⁾は、北東太平洋の水深4,100 mの地点での外洋域の表層堆積物（深さ0.2~1.5cm）を測定した結果、有機物の $\Delta^{14}\text{C}$ 値は $-254\pm 12\%$ 、 $\delta^{13}\text{C}$ 値では $-21.7\pm 0.1\%$ 、表層海水のプランクトンの $\Delta^{14}\text{C}$ 値を $+70\pm 11\%$ と報告している。Nakatsuka et al.⁴⁴⁾は、表層50~200mまでの懸濁態有機物の $\Delta^{14}\text{C}$ 値を $-12\pm 32\%$ と報告している。また、日本海と沖縄トラフの水深1,000m付近でのセジメントトラップ実験の結果、沈降粒子の有機物の $\Delta^{14}\text{C}$ 値は、それぞれ、 $-14\pm 21\%$ 、 $-7\pm 38\%$ と比較的新しい有機物の寄与が大きいことを示している^{45, 46)}。

以上の結果より、十勝川沖の大陸棚—大陸斜面では、陸起源有機物の寄与は大陸棚沿岸域

付近に限定され、それ以深の海域では海洋起源の有機物が卓越することが明らかとなった。これは、十勝川沖を西へ流れる親潮沿岸流の存在と、Mackenzie川に比べると2桁小さな河川流量、土砂供給量、とともに供給機構の違いが反映されている。

5. まとめ

温帯~寒帯における大陸棚表層堆積物と河川水懸濁粒子の有機態 $\Delta^{14}\text{C}$ 、 $\delta^{13}\text{C}$ 値、およびC/N比の測定結果を基に、河川流域の特徴と沿岸域堆積物への堆積状況を比較検討した。その結果、河川によって供給される陸起源有機物は、河川流域の地質、土壌特性、供給機構により大きく変動することが明らかとなった。また、河川由来の陸起源有機物は、沿岸域の海流、河川流量と土砂供給量に依存し、大陸棚から大陸斜面にかけて輸送され堆積する場合と、大陸棚内縁に堆積するとともに、海流により遠方に運ばれ堆積する可能性が考えられる。つまり、気候変動や流域の環境変動の評価は、流域と沿岸海域を1つのシステム、流域環境圏として捉え、

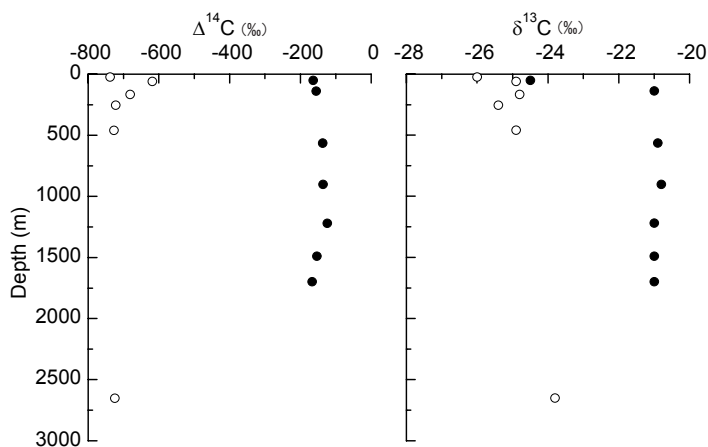


図5 大陸棚—大陸斜面の表層堆積物における有機物の $\Delta^{14}\text{C}$ と $\delta^{13}\text{C}$ 値
十勝川沖堆積物のデータ(●)はNagao et al. (2005)¹²⁾より、Beaufort海(○)はDrenzek et al. (2007)¹⁰⁾より引用。深さは堆積物表層が存在する水深を表している。

両者の関係を総合的に検討することが重要である。

謝 辞

本研究の一部は、日本学術振興会の科学研究費基盤研究B（1531002, 1831002）により行われた。ここに記して感謝する。

文 献

- 1) Berner, R.A.: *Am. J. Sci.*, **282**, 451 (1982).
- 2) Walsh, J.J., Fisher, K., Murray, D. and Dymond, J.: *Deep-Sea Res.*, **38**, 805 (1991).
- 3) Meybeck, M., Dürr, H.H. and Vörösmarty, C.J.: *Global Biogeochem. Cycles*, **20**, GB0A08, doi: 10.1029/2005GB002540 (2006).
- 4) Ittekkot, V.: *Nature*, **332**, 436 (1988).
- 5) Ruttenberg, K.C. and Goñi M.A.: *Mar. Geol.*, **139**, 123 (1997).
- 6) Naidu A.S., Cooper, L.W., Finney, B.P., Macdonald, R.W., Alexander, C. and Semiletov, I.P.: *Int. J. Earth Sci.*, **89**, 522 (2000).
- 7) Usui, T., Nagao, S., Yamamoto, M., Suzuki, K., Kudo, I., Montani, S., Noda, A. and Minagawa, M.: *Mar. Chem.*, **98**, 241 (2006).
- 8) Goñi, M.A., Ruttenberg, K.C. and Eglinton, T.I.: *Geochim. Cosmochim. Acta*, **62**, 3055 (1998).
- 9) Goñi, M.A., Yunker, M.B., Macdonald, R.W. and Eglinton, T.I.: *Mar. Chem.*, **93**, 53 (2005).
- 10) Drenzek, N.J., Montlucon, D.B., Yunker, M.B., Macdonald, R.W. and Eglinton, T.I.: *Mar. Chem.*, **103**, 146 (2007).
- 11) Kodama, T., Druffel, E.R.M. and Hwang, J.: *Global Biogeochem. Cycles*, **19**, GB2017, doi: 10.1029/2004GB002347 (2005).
- 12) Nagao, S., Usui, T., Yamamoto, M., Minagawa, M., Iwatsuki, T. and Noda, A.: *Chem. Geol.*, **218**, 63 (2005).
- 13) Nagao, S., Aramaki, T., Seki, O., Uchida, M. and Shibata, Y.: *Nucl. Instr. Meth. B*, **268**, 1098 (2010).
- 14) 国土交通省：水文水質データベース。
<http://www1.river.go.jp/>.
- 15) Carson, M.A., Jasper, J.N. and Conly, F.M.: *Arctic*, **51**, 116 (2000).
- 16) Milliman, J.D. and Meade, R.H.: *J. Geol.*, **91**, 1 (1983).
- 17) Brabet, T.P., Wang, B. and Meade, R.H.: *Water Resour. Invest. Rep.* 99-4204, 106pp (2000).
- 18) Gordeev, V.V., Martin, J.M., Sidorov, I.S. and Sidorova, M.V.: *Am. J. Sci.*, **296**, 664 (1996).
- 19) Telang S.A., Pocklington, R., Naidu, A.S., Romankevich, E.A., Gitelspn I.I. and Gladyshev, M.I.: *Biogeochemistry of Major World Rivers* (eds. Degens, E.T., Kempe, S. and Richy, J.E.), Wiley, New York, pp. 75-104 (1991).
- 20) Holmes, R.M., McClelland, J.W., Peterson, B.J., Shiklomanov, I.A., Shiklomanov, A.I., Zhulidov, A.V., Gordeev, V.V. and Borovitskaya, N.N.: *Global Biogeochem. Cycles*, **16**, GB1098, doi: 10.1029/2001GB001849 (2002).

- 21) U.S. Geol. Sur.: National Water Information Systems. <http://waterdata.usgs.gov/mwis>
- 22) Warrick, J.A., Washburn, L., Brzezinski, M. and Siegel, B.A.: *Estuarine Coastal Shelf Sci.*, **62**, 559 (2005).
- 23) Guo, L., Semiletov, I., Gustafsson, Ö., Ingri, J., Andersson, P., Dudarev, O. and White, D.: *Global Biogeochem. Cycles*, **18**, GB1036, doi: 10.1029/2003GB002087 (2004).
- 24) Viscosi-Shirley, C., Pisiias, N. and Mammone, K.: *Continental Shelf Res.*, **23**, 1201 (2003).
- 25) Porcelli, D., Andersson, P.S., Wasserburg, G.J., Ingri, J. and Baskaran, M.: *Geochim. Cosmochim. Acta*, **61**, 4095 (1997).
- 26) Mackay, M.D., Seglenieks, F., Verseghy, D., Soulis, E.D., Snelgrove, K.R., Walker, A. and Szeto, K.: *J. Hydrometeor.*, **4**, 748 (2003).
- 27) Carmack, E.D. and Macdonald, R.W.: *Arctic*, **55**, 29 (2002).
- 28) Macdonald, R.W., Solomon, S.M., Cranston, R.E., Welch, H.E., Yunker, M.B. and Gobeil, C.: *Mar. Geol.*, **144**, 255 (1998).
- 29) Harper, J.R. and Penland, P.S.: Contract Report to Atlantic Geosci. Centre, Geol. Sur. Canada (1982).
- 30) 北海道開発局：十勝川水系河川整備計画, 100pp (2010).
- 31) 気象庁：気象統計情報, <http://www.jma.go.jp/jma/menu/report.html>
- 32) Rosa, A.L., Isoda, Y., Uehara, K. and Aiki, T.: *J. Oceanogr.*, **63**, 573 (2007).
- 33) Scott, K.M. and Williams, R. P.: U.S. Geol. Sur. Prof. Pap., 1030, 38pp, (1978).
- 34) Davis, F.W., Stoms, D.M., Hollander, A.D., Thomas, K.A., Stine, P.A., Odion, D., Borchert, M.I., Thorne, J.H., Gray, M.V., Walker, R.E., Warner, J. and Grace, J.: The California Gap Analysis Project: Final Report, Univ. of California, Santa Barbara (1998).
- 35) 北海道開発局：石狩川水系石狩川（下流）河川整備計画. 91pp (2007).
- 36) Brabets, T.P. and Walvoord, M.A.: *J. Hydrol.*, **371**, 108 (2009).
- 37) Nagano, T., Yanase, N., Tsuduki, T. and Nagao, S.: *Environ. Int.*, **28**, 649 (2003).
- 38) Stuiver, M. and Polach, H.A.: *Radiocarbon*, **19**, 355 (1977).
- 39) Nagao, S., Suzuki, T., Aramaki, T., Seki, O., Uchida, M. and Shibata, Y.: In: *Low-level Measurement of Radionuclides and its Application to Earth and Environmental Sciences* (eds. M. Yamamoto, S. Nagao, Y. Hamajima, M. Inoue, K. Komura), Kanazawa Univ., Ishikawa, pp. 68-74 (2010).
- 40) Guo, L. and Macdonald, R. W.: *Global Biogeochem. Cycles*, **20**, GB2011, doi: 10.1029/2005GB002593 (2006).
- 41) Guo, L., Ping, C.-L. and Macdonald, R.W.: *Geophys. Res. Lett.*, **34**, L13603, doi: 10.1029/2007GL030689 (2007).
- 42) Rachold, V., Eicken, H., Gordeev, V.V., Grigoriev, M.N., Hubberten, H.-W., Lisitzin, A.P., Shevchenko, V.P. and

- Schirmeister, L.: The Organic Carbon Cycle in the Arctic Ocean (eds. R. Sten and R.W. Macdonald), Springer, Berlin, pp. 33–55 (2004).
- 43) Wang, X.-C., Druffl, E.R.M., Griffin, S., Lee, C. and Kashgarian, M.: *Geochim. Cosmochim. Acta*, **62**, 1365 (1998).
- 44) Nakatsuka, T., Handa, N., Harada, N., Sugimoto, T. and Imaizumi, S.: *Deep-Sea Res. I*, **44**, 1957 (1997).
- 45) Honda, M., Kusakabe, M., Nakabayashi, S. and Jatagiri, M.: *Mar. Chem.*, **68**, 231 (2000).
- 46) Otosaka, S., Tanaka, T., Togawa, O., Amano, H., Katasev, E.V., Minakawa, M. and Noriki, S.: *J. Oceanogr.*, **64**, 911 (2009).