

令和 5 年 6 月 7 日現在

機関番号：14501

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20H04307

研究課題名(和文) 北極モスツンドラ湿原の凍土融解・流出過程における有機炭素の分子種別変動機構の解明

研究課題名(英文) Mechanisms of Variation in Molecular Species of Organic Carbon during Frost Thawing and Runoff in the Arctic Moss Tundra Marsh.

研究代表者

藤嶽 暢英 (Fujitake, Nobuhide)

神戸大学・農学研究科・教授

研究者番号：50243332

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,600,000円

研究成果の概要(和文)：COVID-19の影響で現地調査と試料採取が叶わなかったために、リスク対策であった冷凍保存試料の融解水中の溶存有機炭素(DOC)の太陽光分解実験を実施した。本研究で創案した装置で初めて実環境に近い水中光分解実験が可能となった。積算照度8000 klxhに至るまで活動層と凍土層の融解水DOC濃度の変化は認められず(無菌条件下)、光はDOCをCO<sub>2</sub>までは無機化しなかった。蛍光分析では、光によって蛍光性をもつ腐植成分から蛍光性を持たない成分に変性させることが、<sup>1</sup>H NMR分析からは、双方で炭水化物性成分が減少したものの、減少傾向はそれぞれ異なり、活動層と凍土層は異なる光感受性をもつことが示された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

気候変動に対して脆弱かつ敏感な高緯度北極地域において、高密度炭素生態系であるモス・ツンドラ 湿原は炭素隔離のホットスポットとして注目されているものの、知見情報は純生態系生産量などの基礎的データが存在するにとどまっている。本研究ではコケ生育部である活動層とその地下の泥炭凍土層からの融解水に含まれる溶存有機炭素の性質を分子種レベルで解析し、双方の光分解に対する感受性が異なることを明らかにした。すなわち、温暖化の進行によって下層凍土の融解によって系外流出する有機物の分解特性が大きく異なることが明らかになり、北極圏生態系の保全と対策を支える基盤情報が得られた。

研究成果の概要(英文)：Since the field survey and sample collection were not possible due to COVID-19, a solar photolysis experiment of dissolved organic carbon (DOC) in thawing water of cryopreserved samples was conducted, which was a risk measure. The equipment developed in this study made it possible for the first time to conduct a photolysis experiment in water that was close to the actual environment. No change in DOC concentration in thawing water in the active and frozen layers was observed up to an integrated irradiance of 8000 klxh, and light did not mineralize DOC to CO<sub>2</sub>. Fluorescence analysis showed that the light denatured the fluorescent humic components to non-fluorescent components, and <sup>1</sup>H NMR analysis showed that the carbohydrate components decreased in both layers, but with different decreasing trends, indicating that the active and frozen layers have different photosensitivities.

研究分野：土壌学

キーワード：溶存有機物 光分解 NMR 3D EEM

## 1. 研究開始当初の背景

北極の永久凍土には大気中炭素 (C) の2倍に相当する 1,700Pg もの C が含まれている<sup>1)</sup>。中でも特に C 密度の高い生態系 (High-Carbon Reservoirs Ecosystems<sup>2)</sup>) であるモス・ツンドラ湿原は、北極圏の陸地総面積の7%を占め<sup>3)</sup>、北極圏における C 隔離の重要なホットスポットであると指摘されている<sup>4)</sup>。近年の地球規模の温暖化現象によってこうした巨大な C 隔離プールである凍土層が融解し、そこに封じ込められていた CO<sub>2</sub> の大気放出と融解水に含まれる溶存有機 C (DOC) や粒子状有機 C (POC)、溶存無機 C (DIC) の系外流出による定量的な C 損失が危惧されている<sup>5)</sup>。しかしながらこうした湿原については、植物による炭素固定量と土壤呼吸量から算出した、いわゆる純生態系生産量 (NEP) といった定量的知見<sup>4), 6)</sup> 以外は未だない。凍土融解で派生し、系外に流出する DOC や POC の質的把握は、北極圏における C プールの現況と、気温上昇による凍土融解の影響予測をする上で必須の課題である。にもかかわらず、DOC や POC はそれらが化学的特性とサイズが大きく異なる有機分子の複雑な混合物の集合体である上に、総量は多くとも濃度は希薄であるため、分析上の課題が大きな障壁となり<sup>7)</sup>、知見の著しく乏しい状況であった。

## 2. 研究の目的

本研究の目的は、気候変動に対して脆弱かつ敏感で、全球規模の気候変動に多大な影響をもたらす高緯度北極域の高密度 C 生態系であるモス・ツンドラ湿原において、夏期の氷雪融解と気温上昇による将来的凍土融解によって流出する DOC や POC を分子種別解析し、現行と将来の流出 C の量的・質的変動の把握とその機構を解明することにある。

現場における採取試料による情報に加えて、インキュベーション試料による光および微生物分解に対する解析を実施することにより、高北極域で重要な C 生態系における C プールの現況と気温上昇による凍土融解の影響予測についての知見を輩出し、生態系の保全と対策を支える基盤情報の獲得を目指す。

## 3. 研究の方法

### (1) 現場試料の定量・定性分析による C 種別変動把握

ノルウェー国スバルバル諸島のモス・ツンドラ湿原であるステュファレット湿原(北緯 79 度)において、融雪期から降雪期にかけての湿原流出水の流量を計測し、DOC、POC、DIC の量的変動を把握する。加えて、現地での採取試料(水試料ならびにモス活動層・泥炭凍土層のコア試料)を持ち帰り、DOC のルーチン測定に最適化した特殊パルス-<sup>1</sup>H NMR 分析<sup>8)</sup>、ならびに、POC の解析ツールとして最適化した顕微赤外分光・主成分分析 (MsFTIR-PCA)<sup>9)</sup> に供して、DOC と POC の質的変動を解析する。さらに 3D-EEM-PARAFAC 解析、TMAH-PyGC-MS 分析、安定同位体比分析、GPS エリア解析などの各種分析法による補完を通じて、量的質的変動の機構解明のための信憑性の高い新規情報を得る。

### (2) インキュベーション試験による変動機構の解析

(1) で採取した試料(水試料ならびにモス活動層・泥炭凍土層のコア試料)の一部を用い、光分解試験と微生物分解試験を光源の有無を通じて設定し、インキュベーション試験を行う。経時的な量的・質的な変化を追跡する。追跡の手段としては(1)と同様の分析手法を用いる。

### (3) 凍結保有固体試料を用いたインキュベーション試験による DOC の自然太陽光分解変動機構の解析 (不測事態へのリスク対策)

北極圏は極地としての特性が顕著であり、気象の変化が激しい上に、ホッキョクグマの出現等によって現地調査や試料採取を断念せざるを得ない状況が頻発する。そこで、研究継続のためのリスク対策として、代表者が 2017 年に採取したモス活動層と泥炭凍土層のコア試料を用いて最低限の成果を確保できるようにこの項目を設けた。凍結固体試料を用いる場合は(2)で想定したような DOC や POC を得ることはできないために、融解水中の DOC のみを研究対象とした。すなわち、コア試料に加水後 5°C 下で静置し、得られたろ液 (<0.3 μm) を融解水とし、ろ過除菌を処した試験水を無菌的に石英管に分注した。石英管試料は 12°C の水中(水深 5 cm)に固定して自然太陽光に曝した(図 1)。対照区として暗条件下の試料を暗所 12°C のインキュベーター内に静置した。積算水中照度に応じて 4 つの異なる曝露期間を経たものを取り出し、DOC 濃度測定、吸光分析、蛍光分析や <sup>1</sup>H NMR 分析に供した。

## 4. 研究成果

### (1) 現場試料の定量・定性分析による C 種別変動把握

研究開始の 2020 年度は COVID-19 の影響により研究活動そのものの自粛(登校制限・自宅待機等)によって現地への渡航が叶わなかった。2021 年度についても同様の状況が続き、少なくとも夏期の渡航は不可能であった。最終年度の 2022 年度の夏期に渡航計画を履行したが、

COVID-19 の影響による航空機パイロットのストライキによって一部フライト区間の欠航、延期が生じた結果、渡航先での滞在時間が予定の 21 日間から 3 日間に短縮を余儀なくされた。その上、調査地のステュファレット湿原にホッキョクグマが出没し、緊急退避を余儀なくされたために調査地での滞在時間は 1 時間に満たず、試料採取も現地の状況観察さえも達成できなかった。したがって、現場試料の定量・定性分析はおこなえず、それによる C 種別変動の把握は達成できなかった。

### (2) インキュベーション試験による変動機構の解析

前述の (1) と同様にインキュベーション試験に用いる現地の水試料やモス活動層・泥炭凍土層のコア試料を持ち帰ることが叶わなかった。したがって、光分解と微生物分解による経時的な量的・質的な変化を追跡することは叶わなかった。

### (3) 凍結保有固体試料を用いたインキュベーション試験による DOC の自然太陽光分解変動機構の解析 (不測事態へのリスク対策)

図 1 に示した装置を創案することで、現場河水の状況に近い温度と水深環境における DOC 光分解実験が初めて可能となった。この実験装置を用いて積算照度 0~8000 klxh (天候によるがこの場合 72 日後) に至るまでの期間において、活動層と泥炭凍土層の双方で DOC 濃度の有意な変化は認められなかった (図 2)。無菌状態でのインキュベーション実験によって得られたこの結果

は、水中における太陽光のみの作用による光分解は DOC を CO<sub>2</sub> までの完全な無機化にまでは誘導し得ないことを示唆している。先行研究<sup>10)</sup>によれば、北極圏の淡水における DOC 分解の 70-95 % は光化学的プロセスによることが示唆されていたが、より現場に近い分解条件による本研究の結果からは、少なくともモス・ツンドラ湿原を起源とする DOC では光化学的プロセスによる分解の寄与は過大評価されてきた可能性があることが示された。

一方、質的変動については以下の成果が得られた。すなわち、図 3 に示したように、3 次元蛍光 (3D-EEM) 分析の結果からは、活動層と凍土層の双方においてインキュベーション初期 (積算照度 0~1200 klxh) の期間に陸域由来腐植に帰属されるピーク<sup>11)</sup>が激減し、その後はわずかな減少が認められた。腐植物質は光分解を受けやすいとされる報告<sup>12)</sup>を考え合わせると、この結果は光が蛍光性をもつ腐植成分を蛍光性をもたない成分に変性させたことを示していると考えられる。

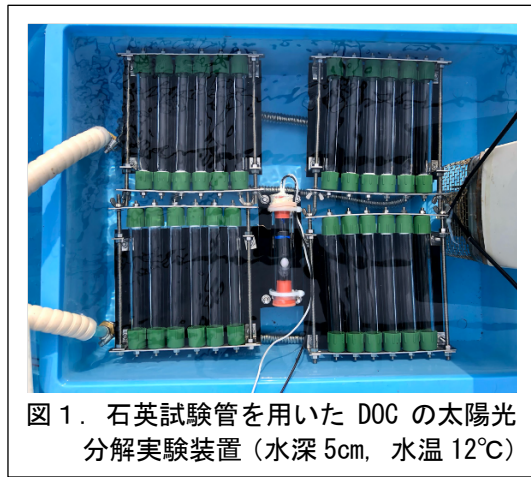


図 1. 石英試験管を用いた DOC の太陽光分解実験装置 (水深 5cm, 水温 12°C)

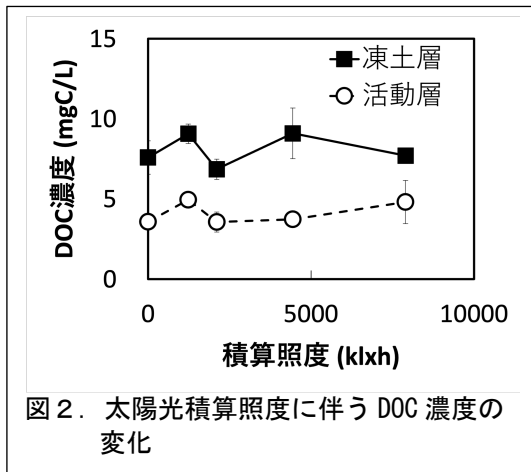


図 2. 太陽光積算照度に伴う DOC 濃度の変化

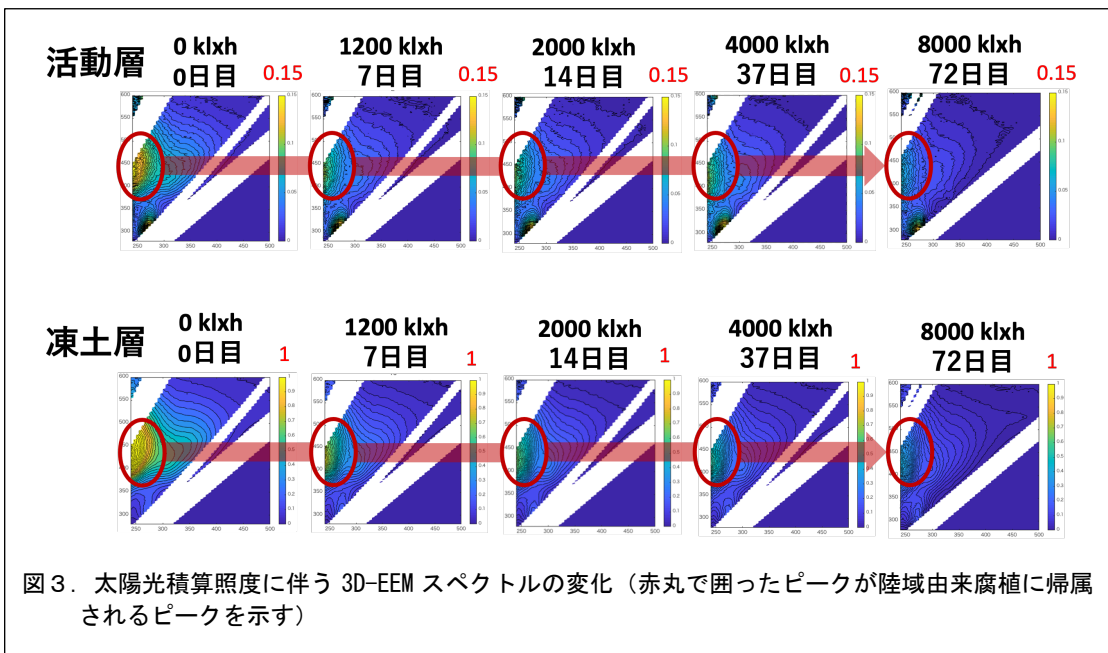
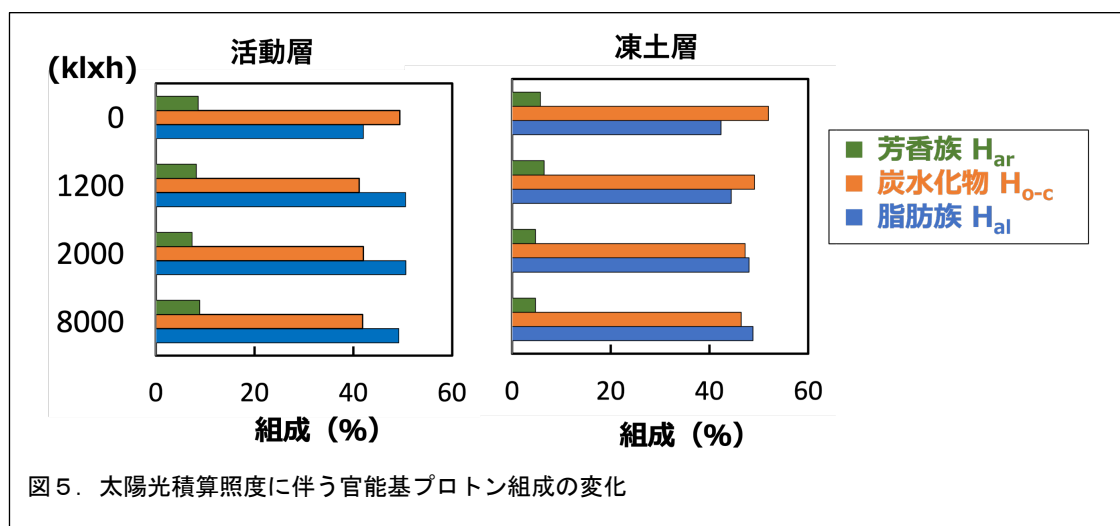
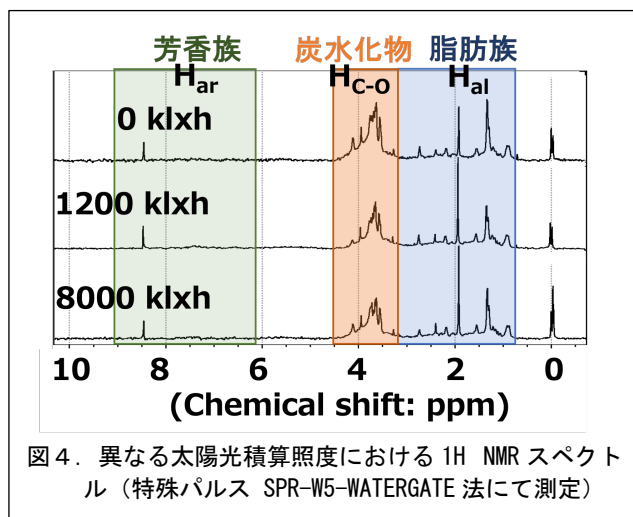


図 3. 太陽光積算照度に伴う 3D-EEM スペクトルの変化 (赤丸で囲ったピークが陸域由来腐植に帰属されるピークを示す)

さらに、 $^1\text{H}$ NMR 分析の結果を図 4～5 に示した。図 4 に示したように見かけのスペクトル形状には大きな変化は認められなかった。ただし、スペクトルを官能基プロトン種に応じて 3 つの領域に分けて積算した結果の棒グラフ (図 5) からは、活動層ではインキュベーション初期 (積算照度 0～1200 klxh) の期間において炭水化物性成分の減少が認められ、その後は大きな変化が認められなかった。一方、凍土層でも炭水化物性成分の減少が認められたが、インキュベーション期間全体にわたって徐々に減少する変化が認められた。活動層と凍土層の DOC において双方に異なる傾向が認められた結果は、流出する融解水中の DOC がそれぞれ異なる光感受性をもつことを示している。従来法の 3D-EEM 分析は希薄濃度の試料に対応できる優れた手法であるものの、蛍光発色団を持たない成分に関する情報が欠落している懸念があった。特殊パルス法を利用した  $^1\text{H}$ NMR 分析によって蛍光発色団を持たない炭水化物に関する情報が付加され、新たな質的情報を付加することができた。

以上の成果をまとめると、モス・ツンドラ湿原におけるコケ活動層と泥炭凍土層から生じる融解水中の DOC は異なる光感受性を持ち、いずれの融解水 DOC においても、蛍光分析の側面からは蛍光性腐植成分の非蛍光性成分への変性、および、 $^1\text{H}$ NMR 分析の側面からは炭水化物成分の変性が認められた。



#### 引用文献

- 1) Schuur et al. (2013) Expert assessment of vulnerability of permafrost carbon to climate change. *Climatic Change*, **119**, 359–374.
- 2) UNFCCC-SBSTA38 (2012) UNFCCC Workshop on technical and scientific aspects of ecosystems with high-carbon reservoirs not covered by other agenda items under the Convention. <https://unfccc.int/event/unfccc-workshop-technical-and-scientific-aspects-ecosystems-high-carbon-reservoirs-not>
- 3) Walker et al. (2005) The Circumpolar Arctic vegetation map. *J. Vegetation Sci.*, **16**, 267–282.
- 4) Nakatubo et al. (2015) Carbon Accumulation Rate of Peatland in the High Arctic, Svalbard: Implications for Carbon Sequestration. *Polar Sci.*, **9**, 267–275.
- 5) Schuur et al. (2015) Climate Change and the Permafrost Carbon Feedback. *Nature*, **520**, 171–179.
- 6) Vardy et al. (2000) Carbon accumulation in permafrost peatlands in the Northwest Territories and Nunavut, Canada. *Holocene*, **10**, 273–280.
- 7) Paulsen et al. (2019) Biological transformation of Arctic dissolved organic matter in

- a NE Greenland fjord. *Limnol. Oceanogr.*, **64**, 1014–1033.
- 8) Kida et al. (2019) Introduction of DEAE Sepharose for isolation of dissolved organic matter. *Limnology*, **20**, 153–162.
  - 9) Morishita & Kawahigashi (2018) Heterogeneity of peat decomposition under rice cultivation on the Pacific coast, Japan. *Geoderma Reg.*, **12**, 56–64.
  - 10) Cory et al. (2014) Sunlight controls water column processing of carbon in Arctic fresh waters. *Science*, **345**, 922–25.
  - 11) 眞家永光 (2009) 近年の腐植物質分析法の展開. *Jpn. J. Soil Sci. Plant Nutri.*, **80**, 419–26.
  - 12) Mopper et al. (1991) Photochemical degradation of dissolved organic carbon and its impact on the oceanic carbon cycle. *Nature*, **353**, 60–62.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 藤嶽暢英	4. 巻 74
2. 論文標題 土壌の炭素循環と気候変動	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 土と微生物	6. 最初と最後の頁 54 ~ 59
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.18946/jssm.74.2_54	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Kida Morimaru, Fujitake Nobuhide, Kojima Taichi, Tanabe Yukiko, Hayashi Kentaro, Kudoh Sakae, Dittmar Thorsten	4. 巻 55
2. 論文標題 Dissolved Organic Matter Processing in Pristine Antarctic Streams	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Environmental Science and Technology	6. 最初と最後の頁 10175 ~ 10185
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.est.1c03163	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計8件（うち招待講演 1件/うち国際学会 2件）

1. 発表者名 布施泰, 初 雪, 井上和樹
2. 発表標題 マルチショットパイロライザーGC/MS法による琵琶湖底質中有機物質の特性評価法の検討
3. 学会等名 日本腐植物質学会第36回大会（神戸大学）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 藤嶽暢英
2. 発表標題 土壌の炭素循環と気候変動
3. 学会等名 日本土壌微生物学会2020年度大会（大阪府立大学）（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 百合藤桃加, 山口保彦, 早川和秀, 木田森丸, 藤嶽暢英, 布施泰朗
2. 発表標題 Multi-Shot Pyrolyzer GC/MSを用いた琵琶湖由来フルボ酸の化学特性解析
3. 学会等名 日本陸水学会85回大会(東京農工大学)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 阪上詩織, 壺田紘花, 木田森丸, 鈴木武志, 藤嶽暢英
2. 発表標題 高緯度北極湿原における凍土融解水中の溶存有機物の光分解作用の解析
3. 学会等名 日本土壌肥料学会2022年度東京大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 阪上詩織・壺田紘花・近藤美由紀・内田雅己・木田森丸・鈴木武志・藤嶽暢英
2. 発表標題 高緯度北極湿原における凍土融解水の溶存有機物に光分解が及ぼす影響
3. 学会等名 日本腐植物質学会第38回講演会(東邦大学)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Fuse Y., Chu X., Takeda N., Fujitake N.
2. 発表標題 Chemical characterization of peat by EGA-MS and multi-step Py-GC/MS methods.
3. 学会等名 23rd International Conference on Analytical and Applied Pyrolysis(国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Chu X., Fuse Y., Fujitake N., Hayakawa K., Kudo Y., Aono A.
2. 発表標題 Direct evaluation of organic components in soil and lake sediments using a multi-shot pyrolyzer and thermal desorption GCMS.
3. 学会等名 23rd International Conference on Analytical and Applied Pyrolysis (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 武田 直也, 布施 泰朗, 藤嶽 暢英, 木田 森丸
2. 発表標題 発生ガス質量分析法及び多段階熱分解ガスクロマトグラフィー質量分析法を用いたスコットランドビートの化学特性解析
3. 学会等名 日本分析化学会第71年会(岡山)
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	近藤 美由紀  (Kondo Miyuki)  (30467211)	国立研究開発法人国立環境研究所・環境リスク・健康領域・主任研究員   (82101)	
研究分担者	川東 正幸  (Kawahigashi Masayuki)  (60297794)	東京都立大学・都市環境科学研究科・教授   (22604)	
研究分担者	内田 雅己  (Uchida Masaki)  (70370096)	国立極地研究所・国際北極環境研究センター・准教授   (62611)	



6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	大西 健夫  (Ohnishi Takeo)  (70391638)	岐阜大学・応用生物科学部・准教授    (13701)	
研究分担者	大塚 俊之  (Ohtsuka Toshiyuki)  (90272351)	岐阜大学・流域圏科学研究センター・教授    (13701)	
研究分担者	布施 泰朗  (Fuse Yasuro)  (90303932)	京都工芸繊維大学・分子化学系・准教授    (14303)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関