

機関番号：12601  
 研究種目：基盤研究（A）  
 研究期間：2007～2010  
 課題番号：19253006  
 研究課題名（和文） 微量元素と同位体に主眼をおくインド洋と日本海の縦断観測（GEOTRACES 計画）  
 研究課題名（英文） Geochemical ocean sections study focusing on trace elements and isotopes in the Indian Ocean and the Japan Sea (GEOTRACES Program)  
 研究代表者  
 蒲生 俊敬 (GAMO TOSHITAKA)  
 東京大学・大気海洋研究所・教授  
 研究者番号：70143550

研究成果の概要（和文）：国際共同 GEOTRACES（全海洋の微量元素・同位体による生物地球化学的研究）計画の一環として、学術研究船白鳳丸を用い、インド洋アラビア海から南極海に至る南北縦断観測研究および日本海縦断観測を成功裡に完遂した。チタン製アーマードケーブルとニスキンX採水器によるクリーン採水法によって、GEOTRACES キーパラメーター（Fe, Al, Zn, Mn, Cd, Cu,  $\delta^{15}\text{N}$ ,  $\delta^{13}\text{C}$ ,  $^{230}\text{Th}$ ,  $^{231}\text{Pa}$ , Pb 同位体, Nd 同位体）分析のための海水試料（約 300 試料）を保存し、分析作業に着手した。

研究成果の概要（英文）：As part of the international GEOTRACES (Global marine biogeochemical cycles of trace elements and their isotopes) program, we successfully conducted meridional research cruises in the Indian Ocean (from Arabian Sea to the Antarctic Ocean) and in the Japan Sea using the research vessel Hakuho Maru. We took clean seawater samples (total ~300 samples) for the measurement of GEOTRACES key parameters (Fe, Al, Zn, Mn, Cd, Cu,  $\delta^{15}\text{N}$ ,  $\delta^{13}\text{C}$ ,  $^{230}\text{Th}$ ,  $^{231}\text{Pa}$ , Pb isotopes, Nd isotopes), and their analyses are now ongoing in shorebased laboratories.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2007 年度	6,400,000	1,920,000	8,320,000
2008 年度	11,900,000	3,570,000	15,470,000
2009 年度	5,300,000	1,590,000	6,890,000
2010 年度	7,100,000	2,130,000	9,230,000
年度			
総計	24,940,000	9,210,000	39,910,000

研究分野：海洋地球化学

科研費の分科・細目：地球惑星科学・宇宙地球化学

キーワード：海洋の微量元素，同位体，GEOTRACES，生物地球化学，インド洋の化学観測，日本海の化学観測，国際共同調査，研究船白鳳丸

#### 1. 研究開始当初の背景

(1) 国際的背景：海水中にごくわずかしが含まれていない微量元素とそれらの同位体比分布を，全世界の海洋について正確に明ら

かにしようとする気運が 21 世紀に入った頃より急激に高まり，SCOR（海洋研究科学委員会）の大型研究の 1 つとして GEOTRACES（全海洋の微量元素・同位体による生物地球

化学的研究)計画が、欧米を中心とする 14 カ国の参加を得て、2005 年秋に正式に発足した。我が国も本計画の重要性を強く認識し、計画当初より参画して、太平洋西部海域とインド洋において大きな役割を果たすことを表明し、そのための海外経費等を獲得するため、本研究を申請した。

(2) 国内的背景：我が国は海水中の微量元素分析には長い歴史を持ち、豊富なノウハウが蓄積されていた。また学術研究船白鳳丸はチタン製アーマードケーブルや船上クリーンルームを装備することから、海水中の微量元素研究に最適の研究船である。国際 GEOTRACES 計画の勃興期は、白鳳丸が十分に使いこまれた円熟期と重なっている。GEOTRACES 計画に対応できる国内唯一の大型観測船として大きな役割を果たすことが期待された。そのことによって、我が国の微量元素海洋学分野に飛躍的発展が見込まれた。

## 2. 研究の目的

本研究は、SCOR (海洋科学研究委員会) の大型海洋研究 GEOTRACES (ジオトレイシス：海洋の微量元素・同位体による生物地球化学的研究) 計画と強く連携し、アジアの海洋先進国として、インド洋西部および日本海全域の詳細な微量元素マッピングを行なうことを目的としている。これらの海域では、海水中の微量元素・同位体に関する知見がとりわけ少なく、グローバルな海洋の動態を総合的に理解する上で大きな障壁となっている。折しも、近年のクリーン分析技術の革新的進歩によって、海洋の微量元素・同位体の正確な測定が可能となってきた。本研究はこのような時機を的確に捉え、世界最高水準の装備を持つ学術研究船白鳳丸 (海洋研究開発機構) を最大限に活用することによって、海水中の遷移金属元素、白金族元素、ランタノイド、アクチノイド、希ガス等について濃度と安定同位体比、さらに天然及び人工放射性核種を分析し、これらの分布と挙動を、初めて詳細にマッピングする。また、他の海域 (太平洋・大西洋) にて並行して実施される他国主権の GEOTRACES 航海データとの比較研究を推進することも目的の 1 つとしている。

## 3. 研究の方法

(1) 本研究における重要なフィールド調査研究として、2009 年度には白鳳丸によるインド洋縦断航海 (KH-09-5 次研究航海, 主席研究員：蒲生俊敬) を、2009 年 11 月 6 日 (東京出港) より 2010 年 1 月 10 日 (ケープタウン入港) にかけて実施した。また、2010 年度には 6 月 11 日より 7 月 23 日にかけて日本海および北西太平洋における KH-10-2 次研究航海

(主席研究員：張勁) を実施した。それぞれの航跡図を図 1 および図 2 に示す。

KH-09-5 Leg1-3 (Tokyo-Cape Town)

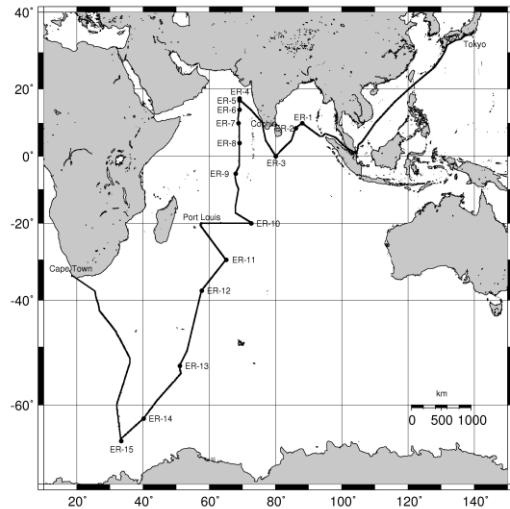


図 1：白鳳丸 KH-09-5 次航海レグ 1～3。

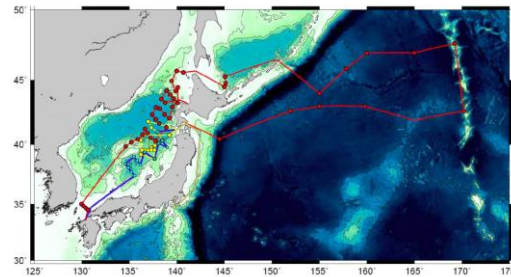


図 2：白鳳丸 KH-10-2 次航海。

前者では、ベンガル湾、アラビア海、インド洋中央部、南極海にわたって 15 の大観測点を、また後者では大小 77 点に及ぶ観測点を設定し、CTD-クリーン採水、大量採水、マルチプルコア採取、ピストンコア採取、プランクトン採取、アルゴフロート放流などの観測を実施した。CTD 採水には、内面にバネを通さないタイプのニスキン X 採水器を使用し、事前に界面活性剤、塩酸、及び純水 (ミリ Q 水) で十分に洗浄した。また、採水器から容器に小分けする作業は、白鳳丸ウェットラボ (第 7 研究室) 内に特別に設営したクリーンテント (通称 BUBBLE) 内で行い、海水試料が大気中の微粒子による汚染を受けないようにした。不安定のため船上ですぐに分析する必要のある鉄 (II)、その他 PH、溶存酸素、栄養塩などルーチン分析項目を船上で分析し、その他の GEOTRACES キーパラメータ群 (Fe, Al, Zn, Mn, Cd, Cu,  $\delta^{15}\text{N}$ ,  $\delta^{13}\text{C}$ ,  $^{230}\text{Th}$ ,  $^{231}\text{Pa}$ , Pb 同位体, Nd 同位体) を後日陸上で分析するため保存した。一部の試料には白鳳丸クリーン実験室 (第 4 研究室) 内で濾過、あるいは

は超高純度の酸を添加するなどの前処理を加えて保存した。船上研究の詳細と今後の研究計画をクルーズレポートにまとめ、乗船研究者に配布した。

(2) 国際 GEOTRACES 計画との連携を強化するため、例年開催される SSC (科学推進委員会), DM (データ処理) 会議, インターキャリブレーション (分析法相互検定) 会議等に代表者を派遣した。十分な意見交換を継続することによって, GEOTRACES 計画における我が国の重要な役割と貢献を維持している。

#### 4. 研究成果

(1) 「3. 研究の方法 (1)」に記したように, 白鳳丸を用いてインド洋における南北縦断航海および日本海・北西太平洋航海を成功裡に実施し, 国際 GEOTRACES 計画のプロトコルに準拠したクリーン試料採取に成功した。船上でのルーチン観測データと合わせて, 船上レポート” Preliminary Report of the Hakuho Maru Cruise KH-09-5 Leg 1, 2, 3 (The Indian Ocean and the Antarctic Sea) -ERIDANUS Expedition- “, および” Preliminary Report of the Hakuho Maru KH-10-2 Cruise: CARINA Expedition-ASIAN GEOTRACES “として取り纏めた。

(2) 海底熱水活動に関する GEOTRACES 研究を継続し, インド洋中央海嶺および沖縄トラフにおける海底熱水活動に由来する熱水ブルームの化学的性質に関する研究を完成させた。ひとつは, 沖縄トラフ南部の第四与那国海丘付近の熱水ブルーム中に含まれるメタンガスの炭素同位体比に関するもので, ブルーム内の活発な微生物活動により, メタンの炭素同位体分別が進行して, 時間と共にブルーム中メタンの炭素同位体比 ( $\delta^{13}\text{C}$  値) が増加することを見だし, 同位体分別係数を算出した。もう一方は, 中部沖縄トラフ伊是名海穴に関するもので, 海穴内の 2 箇所の高温熱水噴出域に由来する熱水ブルームの化学的・同位体的性質の違いを詳細に検討し, 特に水素, メタン, ヘリウム等のガス成分の濃度と同位体比を用いて, 各熱水活動の特徴を明らかにした。また, 島弧系熱水活動域水曜海山についても, 熱水及び熱水ブルーム中の希土類元素の挙動について新たな知見を得た。

(3) 太平洋における希土類元素が特徴的な濃度分布を示す要因を明らかにするために, 海洋大循環モデルを希土類元素濃度分布に適用し, 分布パターンを再現することに成功した。国際 GEOTRACES 計画でモデル解析は重要テーマの 1 つに掲げられており, 本研究はその先駆け研究と位置づけられる。

(4) 海洋の生物生産と海洋の微量元素との

関連についてデータの解釈と考察を進めた。北西太平洋定点における鉄の散布とその後の時系列観測によって得られた表層海水中の希土類元素,  $^{210}\text{Po}$  および  $^{210}\text{Pb}$  の濃度変化に基づき, プラクトンブルームに伴う沈降粒子による除去過程の詳細を明らかにした。

(5) 外洋域における  $^{230}\text{Th}$  鉛直分布のモデル解析を進め, 海底直上において  $^{230}\text{Th}$  の除去が活発であることを明らかにすると共に, そのメカニズムについて考察を進めた。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 17 件)

- ① Gamo, T.: Dissolved oxygen of the Japan Sea bottom water: a sensitive alarm for the global climatic change. *Trends Anal. Chem.*, in press. (査読有)
- ② Tazoe, H., Obata, H., Gamo, T. (2011): Coupled isotopic systematics of surface cerium and neodymium in the Pacific Ocean. *Geochem. Geophys. Geosys.*, 12, Q04004, doi: 10.1029/2010GC003342. (査読有)
- ③ Gamo, T., Tsunogai, U., Ichibayashi, S., Chiba, H., Obata, H., Oomori, T., Noguchi, T., Baker, E.T., Doi, T., Maruo, M., & Sano, Y. (2010): Microbial carbon isotope fractionation to produce extraordinarily heavy methane in aging hydrothermal plumes over the southwestern Okinawa Trough. *Geochem. J.*, 44, 477-487. (査読有)
- ④ Nakayama, N., Ashi, J., Tsunogai, U., Gamo, T., Tanahashi, M. (2010): Sources of pore water in a Tanegashima mud volcano inferred from chemical and stable isotope studies. *Geochem. J.*, 44, 561-569. (査読有)
- ⑤ Kawagucci, S., Shirai, K., Lan, T-F., Takahata, N., Tsunogai, U., Sano, Y. and Gamo, T. (2010): Gas geochemical characteristics of hydrothermal plumes at the HAKUREI and JADE vent sites, the Izena Cauldron, Okinawa Trough. *Geochem. J.*, 44, 507-518. (査読有)
- ⑥ Kawagucci, S., Toki, T., Ishibashi, J., Takai, K., Ito, M., Oomori, T. and T. Gamo (2010): Isotopic variation of molecular hydrogen in 20°-375°C hydrothermal fluids as detected by a new analytical method. *J. Geophys. Res.*, 115, G03021, doi: 10.1029/2009JG001203. (査読有)
- ⑦ Oka, A., Hasumi, H., Obata, H., Gamo, T. & Yamanaka, Y. (2009): Study on vertical profiles of rare earth elements by using an

- ocean general circulation model. *Global Biogeochem. Cycles*, 23, GB4025, doi:10.1029/2008GB003353. (査読有)
- ⑧ Hara, Y., Obata, H., Doi, T., Hongo, Y., Gamo, T., Takeda, S. and Tsuda, A. (2009): Rare earth elements in seawater during an iron-induced phytoplankton bloom of the western subarctic Pacific (SEEDS-II). *Deep-Sea Res. II.*, 56, 2839-2851. (査読有)
- ⑨ Ozaki, H., Obata, H., Naganobu, M. & Gamo, T. (2009): Long-term bottom water warming in the north Ross Sea. *J. Oceanogr.*, 65, 235-244. (査読有)
- ⑩ Maruo M., Tate K., Ohta K., Hayakawa K. and Obata H. (2009): Vertical distribution of iron(II) and its relation to organic substances in Lake Biwa. Japan. *Verhandlungen Internationale Vereinigung theoretische und angewandte Limnologie*, 30, 1379-1383. (査読有)
- ⑪ Amakawa H., Sasaki K. and Ebihara M. (2009): Nd isotopic composition in the central North Pacific. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 73, 4705-4716. (査読有)
- ⑫ Okubo, A., Obata, H., Luo, S., Gamo, T., Yamamoto, Y., Minami, H., and Yamada, M. (2007): Particle flux in the twilight zone of the eastern Indian Ocean: A constraint from  $^{234}\text{U}$ - $^{230}\text{Th}$  and  $^{228}\text{Ra}$ - $^{228}\text{Th}$  disequilibria. *Deep-Sea Res. I*, 54, 1758-1772. (査読有)
- ⑬ Takahata, N., Sano, Y., Horiguchi, K., Shirai, K. & Gamo, T. (2008): Helium isotopes of seawater in the Japan Sea. *J. Oceanogr.*, 64, 293-301. (査読有)
- ⑭ Zhang, Y., Obata, H. & Gamo, T. (2008): Silver in the Tokyo Bay estuarine waters and Japanese rivers. *J. Oceanogr.*, 64, 259-265. (査読有)
- ⑮ Doi, T., Takano, M., Okamura, K., Ura, T., and Gamo, T. (2008): In-situ survey of nanomolar manganese in seawater around a volcanic crater at Teishi Knoll using an autonomous underwater vehicle. *J. Oceanogr.* 64, 471-477. (査読有)
- ⑯ Nakayama, N., Yamanaka, Y. & Gamo, T. (2008):  $\text{O}_2$  consumption rate and its isotopic fractionation factor in the deep water of the Philippine Sea. *J. Oceanogr.*, 64, 451-457. (査読有)
- ⑰ Kawagucci, S., Okamura, K., Kiyota, K., Tsunogai, U., Sano, Y., Tamaki, K., & Gamo, T. (2008): Methane, manganese, and helium-3 in newly discovered hydrothermal plumes over the Central Indian Ridge,  $18^\circ$ – $20^\circ$  S, *Geochem. Geophys. Geosyst.*, 9, Q10002, doi:10.1029/2008GC002082. (査読有)
- [学会発表] (計 24 件)
- ① Gamo, T., Okamura, K., Hatanaka, H., Hasumoto, H., Hirota, A., Tsunogai, U., & Tamaki, K., Hydrothermal plumes in the Gulf of Aden: Characterization from Mn, Fe,  $\text{CH}_4$ , and its  $\delta^{13}\text{C}$ . IUPAC International Congress on Analytical Sciences 2011 (ICAS 2011), 2011.6.26, Kyoto.
- ② Obata, H., Mase, A., Wakiyama, S., Gamo, T., Maruo, M., Okamura, K., Automated in-situ flow analytical method of Fe(II) in seawater using luminal chemiluminescence detection. IUPAC International Congress on Analytical Sciences 2011 (ICAS 2011), 2011.6.26, Kyoto.
- ③ Tazoe, H., Sato, H., Nagai, H., Obata, H., Gamo, T., Surface Nd isotopic distribution in the South Pacific Ocean and the Pacific sector of the Southern Ocean. Liège Colloquium, 2011.5.6, Brussels (Belgium).
- ④ H. Obata, A. Mase, T. Gamo, J. Nishioka, S. Takeda, Determination of dissolved Fe(II) in seawater of the western North Pacific with luminal chemiluminescence method, 2010 American Geophysical Union Fall Meeting, 2010.12.15, San Francisco (USA).
- ⑤ Gamo, T., Geochemical studies on the Japan Sea over the last 30 years (招待講演), 2010 Asia GEOTRACES Planning Workshop, 2010.10.5, 台北 (台湾)。
- ⑥ T. Gamo, U. Tsunogai, A. Hirota, D-J. Kang, K-R. Kim, Dissolved methane and its carbon isotope ratio in the Japan Sea (East Sea), 5<sup>th</sup> PEACE Workshop, 2010.9.11, 江陵 (韓国)。
- ⑦ 中山典子, 小倉健, 蒲生俊敬, アラビア海酸素極小層における  $\text{N}_2/\text{Ar}/\text{O}_2$  同時測定からみた脱窒による窒素量, 日本海洋学会秋季大会, 2010.9.8, 東京農業大学網走キャンパス。
- ⑧ 小畑元, 馬瀬輝, 蒲生俊敬, 西岡純, 武田重信, 西部北太平洋における鉄(II)の分布およびその酸化過程, 日本海洋学会秋季大会, 2010.9.7, 東京農業大学網走キャンパス。
- ⑨ 蒲生俊敬, 小畑元, KH-09-5 次航海乗船研究者一同, インド洋の南北縦断 GEOTRACES 観測航海 (序報), 日本海洋学会秋季大会, 2010.9.7, 東京農業大学網走キャンパス。
- ⑩ N. Nakayama, T. Ogura, T. Gamo, Excess  $\text{N}_2$  formation by denitrification in the Indian Ocean oxygen deficient zone estimated by simultaneous  $\text{N}_2$ , Ar, and  $\text{O}_2$  measurements. Goldschmidt Conference 2010, 2010.6.14, Knoxville,

USA.

- ⑪ 蒲生俊敬・角皆潤・廣田明成・Kyun-Ryul Kim: 日本海における溶存メタン濃度および炭素同位体比, 日本海洋学会春季大会, 東京大学, 2009. 4. 7.
- ⑫ 大久保綾子・小畑元・蒲生俊敬・鄭建: 太平洋中緯度海域のTh同位体鉛直分布—海底直上における除去過程と混合過程の影響, 日本海洋学会春季大会, 東京大学, 2009. 4. 7.
- ⑬ 寺西源太, 小畑元, 蒲生俊敬, 田副博文, 石橋純一郎: 水曜海山熱水活動域における熱水及び海水中の希土類元素の挙動, 日本海洋学会秋季大会, 京都大学, 2009. 9. 26.
- ⑭ 小畑元・Antoni Ferrer I Santos, 田副博文, 堤眞, 蒲生俊敬: 東京湾周辺域における白金と銀の挙動, 日本地球化学会年会, 広島大学, 2009. 9. 17.
- ⑮ 大久保綾子・小畑元・蒲生俊敬: 太平洋中緯度海域における bottom scavenging の影響, 日本地球化学会年会, 広島大学, 2009. 9. 17.
- ⑯ Gamo, T. and Kim, K-R., Ten percent decrease of dissolved oxygen in the Japan Sea (East Sea) bottom water for the last 30 years. Goldschmidt Conference, 2009.6.25, Davos (Switzerland).
- ⑰ 寺西源太, 小畑元, 蒲生俊敬, 石橋純一郎, 木村浩之, 水曜海山熱水系における微量金属元素の地球化学的研究, 日本地球化学会年会, 2008.9.17, 東京大学(駒場)。
- ⑱ 岡 頭, 羽角博康, 小畑元, 蒲生俊敬, 山中康裕, 海洋大循環モデルによる希土類元素濃度分布の再現, 日本地球化学会年会, 2008.9.19, 東京大学(駒場)。
- ⑲ Okamura, K., Gamo, T., Kiyota, K., Kawagucci, S., Ura, T., Sakamaki, K., Nagahashi, K., Connelly, D., Boulart, C., Poonyth, A., Tamaki, K., Discovery of hydrothermal plumes at the Rodriguez segment, mid-Indian Ridge, AGU Fall Meeting, 2007.12., San Francisco (USA).
- ⑳ Okubo, A., Obata, H., Gamo, T., Zheng, J., Vertical distribution of  $^{230}\text{Th}$  in mid-latitude of the Pacific Ocean. AGU Fall Meeting, 2007.12., San Francisco (USA).
- ・川口慎介, 岡村慶, 清田馨, 角皆潤, 浦環, 玉木賢策, 佐野有司, 蒲生俊敬, 中央インド洋海嶺 (南緯 18-20 度) におけるメタンブーム: 新たな熱水活動の兆候, 日本地球化学会年会, 2007.9., 岡山大学。

[図書] (計 3 件)

- ① 蒲生俊敬 (2010), 海洋試料, 地球化学講座第 8 巻「地球化学実験法」, 培風館, 46-61

(分担執筆)。

- ② 蒲生俊敬 (2009), Britannica Japan Co., Ltd., 海底熱水活動, エンサイクロペディア・ブリタニカ・オンライン・ジャパン 大項目事典 (分担執筆)。
- ③ 蒲生俊敬 (2007), 地球化学講座第 7 巻「環境の地球化学」, 培風館, 235 pp. (編集)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

蒲生 俊敬 (GAMO TOSHITAKA)  
東京大学・大気海洋研究所・教授  
研究者番号: 70143550

### (2) 研究分担者

小畑 元 (OBATA HAJIME)  
東京大学・大気海洋研究所・准教授  
研究者番号: 90334309  
天川 裕史 (AMAKAWA HIROSHI)  
東京大学・大気海洋研究所・特任研究員  
研究者番号: 60260519

### (3) 連携研究者

宗林 由樹 (SOHRIN YOSHIKI)  
京都大学・化学研究所・教授  
研究者番号: 50197000  
羽角 博康 (HASUMI HIROYASU)  
東京大学・大気海洋研究所・准教授  
研究者番号: 40311641  
岡村 慶 (OKAMURA KEI)  
高知大学・海洋コア総合研究センター・准教授  
研究者番号: 70324697  
張 勁 (ZHANG JING)  
富山大学・大学院理工学研究部・教授  
研究者番号: 20301822  
中口 譲 (NAKAGUCHI YUZURU)  
近畿大学・理工学部・准教授  
研究者番号: 30188916  
山田 正俊 (YAMADA MASATOSHI)  
放射線医学総合研究所・環境放射能影響研究グループ・チームリーダー  
研究者番号: 10240037  
白岩 善博 (SHIRAIWA YOSHIHIRO)  
筑波大学・生命環境科学研究科・教授  
研究者番号: 40126420  
乗木 新一郎 (NORIKI SHINICHIRO)  
北海道大学・地球環境科学研究院・教授  
研究者番号: 80109511  
南 秀樹 (MINAMI HIDEKI)  
東海大学・生物理工学部・准教授  
研究者番号: 60254710  
西岡 純 (NISHIOKA JUN)  
北海道大学・低温科学研究所・准教授

研究者番号：90371533

下島 公紀 (SHITASHIMA KIMINORI)

電力中央研究所・環境科学研究所・上席研究員

研究者番号：70371490

加藤 義久 (KATO YOSHIHISA)

東海大学・海洋学部・教授

研究者番号：00152752

南川 雅男 (MINAGAWA MASAO)

北海道大学・地球環境科学研究所・教授

研究者番号：10250507

丸尾 雅啓 (MARUO MASAHIRO)

滋賀県立大学・環境科学部・准教授

研究者番号：80275156

乙坂 重嘉 (OTOSAKA SHIGEYOSHI)

日本原子力研究開発機構・原子力基礎工学研究部門・研究員

研究者番号：40370374

中山 典子 (NAKAYAMA NORIKO)

東京大学・大気海洋研究所・助教

研究者番号：60431772

永井 尚生 (NAGAI HISAO)

日本大学・文理学部・教授

研究者番号：10155905

村山 雅史 (MURAYAMA MASAFUMI)

高知大学・海洋コア総合研究センター・准教授

研究者番号：50261350