

機関番号：13301

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2008～2010

課題番号：20340144

研究課題名（和文） 深層水ソースの変換は気候変動を増幅するか抑制するか：硫黄同位体比の海洋事変層序

研究課題名（英文） Did change of deep water source amplify or diminish the climate fluctuation?: oceanic event stratigraphy of sulfur isotopes

研究代表者

長谷川 卓 (HASEGAWA TAKASHI)

金沢大学・自然システム学系・教授

研究者番号：50272943

研究成果の概要（和文）： 海洋深層水の急激な変動をとらえ、それに対し如何に気候が反応するか、を理解することが目的であった。手法として硫黄同位体比の利用を目指し、平成20年度末に質量分析装置を導入しその立ち上げを行うと同時に、試料の準備方法および分析手法の確立を行った。硫黄同位体データでは目的の議論ができないことが判り、炭素同位体比を用いた地層の高解像度解析を中心とした議論と理論を中心とした議論に切り替え、白亜紀中期の深層水循環速度の推定までを行なった。また CO<sub>2</sub> 増加に伴う海洋環境変化評価のためのモデルを構築した。

研究成果の概要（英文）： Initial purpose of this project is to capture a rapid switch of oceanic deep water sources and to understand how the climate responds to it. After introduction of a mass spectrometer, preparation and analytical techniques for sulfur isotope analysis of carbonate associated sulfate were developed. However, we found that sulfur isotope data do not provide good data for the discussion of our purpose. We abandoned sulfur isotope method and switched our methods to that based on high resolution carbon isotope stratigraphy and theoretical analyses. Then we could estimated time scale of deep water circulation during mid-Cretaceous. A model for evaluating sensitivity of the oceanic environment against CO<sub>2</sub> increase in the atmosphere was constructed.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	9,800,000	2,940,000	12,740,000
2009年度	1,700,000	510,000	2,210,000
2010年度	2,400,000	720,000	3,120,000
年度			
年度			
総計	13,900,000	4,170,000	18,070,000

研究分野：地質学・古環境学

科研費の分科・細目：地球惑星科学・層位・古生物学

キーワード：古環境, 海洋深層水, 白亜紀, 炭素同位体比

## 1. 研究開始当初の背景

白亜紀の温室地球から氷室地球に向かう変換期付近について、海洋深層水の急激な入れ替わりをとらえ、それに対し如何に気候が

反応するか、を理解することが、本研究の目的であった。海洋には大量の硫酸イオンが存在し、その硫黄同位体比は海底の酸化還元状態を反映している。従来研究は蒸発岩を用いて長期的変動を明らかにしてきたが、質量分

析装置の発達により、微量で分析が可能な現在では、炭酸塩にトラップされた硫酸態硫黄（CAS）の硫黄同位体比を測定することが可能である。そして CAS を用いれば、海洋コアなどを利用して数万年規模の硫黄同位体比変動が理解できる。

始新世から漸新世にかけて大規模な寒冷深層水の発達があったことはよく知られた地質学的事実だが、これに先立って、白亜紀後期から間欠的に寒冷で酸化的な深層水が沈み込んでいたのではないだろうか、と考えた。

白亜紀中期に温暖化の極大を迎えた地球は、白亜紀の後期には寒冷化に向かっていった。特に、白亜紀海洋無酸素事変(OAE)の期間には有機炭素が急速に埋没することから、大気中の CO<sub>2</sub> 濃度が減少し、地球は一時的に寒冷化することが予期され、実際に化石の酸素同位体比を用いた議論が進んでいる。OAE 期は寒冷深層水ができた時代の候補となる。

## 2. 研究の目的

そこで本研究では白亜紀から古第三紀を中心ターゲットとして、深層水の循環が大きく変わる層準を突き止め、その層準で気候がどのように反応したのかを明らかにすることを最終的な目標にすえた。

## 3. 研究の方法

研究開始当初の予定では、手法として CAS の硫黄同位体比データを議論の中心にする予定であった。平成 20 年度に質量分析装置を導入したが、予算の都合で中古品を購入したため、メーカーによるオーバーホールなどで時間がかかり、20 年度末の導入となった。その後 21 年度までの時間をかけて、立ち上げを行った。同時に、試料の準備方法および分析手法の確立を行った。機器の分析精度として±0.3‰以下を常に確保することができるようになった。

ODP Leg208, Site 1262, 1263 の長尺の海洋コア（石灰質軟泥で構成）を用いて、古第三紀から新第三紀の CAS の硫黄同位体比を測定した。

研究の過程で、CAS の硫黄同位体比を用いても、目的の議論ができないことが判ってきたので、議論の方法を切り替えた。炭素同位体比を用いた地層の高解像度解析を中心とした手法（分析は高知大学コアセンターで行なった）、および理論モデルを用いた手法を用いて、最終的な議論を展開した。

## 4. 研究成果

### (1) CAS の抽出、分析について。

微量な硫酸態硫黄を、硫化物由来の硫黄が

混入しないように回収するための技術開発を行なった。有機物の除去に次亜塩素酸ナトリウムを使用し、0.5M の希塩酸で炭酸カルシウム（石灰質ウーズ）を溶解させる。これは硫化物由来物質の混入を避けるためである。塩酸中に溶解した硫酸イオンは、硝酸バリウム水溶液を加えて硫酸バリウムとして沈殿させるが、このとき大きな結晶を作成しないと遠心分離やフィルターリングで確保しにくくなってしまうので、約 48~72 時間、60 度で保温しつつ攪拌することで十分なサイズの結晶を得た。回収方法はフィルターと遠心分離を試したが、フィルターによる方法では、測定装置にフィルターごと導入する必要があり、ピークの半値幅の増大、不完全燃焼などの障害があることがあったため、遠心分離法を最終的に採用した。ただし、器具などへの付着によるロスを最小限にするための工夫が必要であり、小さなバイアルに溶液を何度も入れる手法を採用した。この手法を用いることで、炭酸塩中の CAS の含有量まで求めることができた。このような手法が確立したことは一定の成果であった。

実際の硫黄同位体データは極めて安定しており、ほぼ文献値どおりの値を得ることができた。しかし、逆に、同位体比の急変（装置の測定誤差を大きく超える必要がある）で代表されるような「イベント」を捉えることができなかった。

(2) 炭素同位体比を用いた地層の高解像度解析による議論展開。

北海道中軸部に分布する白亜系蝦夷層群は、約 400m/myr 程度の堆積速度を持っていることが、これまでの生層序で判っていた。一方、大気・表層海洋中の二酸化炭素は長期的に炭素同位体比を変動させており、堆積岩に記録されたその変動パターンが、層序対比に用いられている。その堆積物中に含まれる陸上高等植物由来の有機物について、非常に高解像度（500 年/試料）で炭素同位体比を測定することで、大気海洋系の中の二酸化炭素の長期変動によらない炭素同位体比の明瞭な変動を捉えることに成功した。

対象とした層準は、海洋無酸素事変、OAE2 の前半に当たる時期であり、この同位体変動があった時期には大規模な火成活動があったことが示唆されているため、火成活動由来の CO<sub>2</sub> が大気中に付加されたことにより、温暖化が生じたい。この温暖化に対する植物の生理学的な反応により、炭酸塩には見られない負の炭素同位体比エクスカッション（NSP）が、陸上高等植物由来有機物のみ見られると考えた。炭素同位体比変動曲線の国際対比ポイントを用いて堆積速度推定をおこなったところ、NSP は全体で 1.6~1.9 万年のイベントであることが判った（図 1、



- Palaeogeography Palaeoclimatology Palaeoecology (2011) vol. 309, 271-280. (査読有)
- ③ Ozaki, K., Tajima, S. and Tajika, E. Conditions required for oceanic anoxia/euxinia: Constraints from one-dimensional ocean biogeochemical cycle model, Earth and Planetary Science Letters (2011), vol. 304, 270-279. (査読有)
- ④ Kashiya, Y., Ozaki, K., and Tajika, E., Impact of the evolution of carbonate ballasts on marine biogeochemistry in the Mesozoic and associated changes in energy delivery to subsurface waters, Paleontological Research (2011), vol. 15, 89-99. (査読有)
- ⑤ Hasegawa, T., and Hibino, T., Polycyclic aromatic hydrocarbons in the Jurassic-Cretaceous Tetori Group, central Japan. The Island Arc (2011), vol. 20, 23-34. (査読有)
- ⑥ Ozaki, K. and Tajika, E., Modeling oceanic anoxia/euxinia induced by massive CO<sub>2</sub> injection, Mineralogical Magazine (2011), vol. 75(3), 1581. (査読無)
- ⑦ Hasegawa, T., Hibino, T. and Hori, S., An indicator of paleosalinity: sedimentary sulfur and organic carbon in the Jurassic-Cretaceous Tetori Group, central Japan. The Island Arc (2010), vol. 19, 509-604. (査読有)
- ⑧ Yamamoto, S. Hasegawa, T., 他 8 名 (掲載順 2 位), Environmental and vegetational changes recorded in sedimentary leaf wax n-alkanes across the Cretaceous-Paleogene boundary at Loma Capiro, Central Cuba. Palaeogeography Palaeoclimatology Palaeoecology (2010), vol. 295, 31-41. (査読有)
- ⑨ Hasegawa, T., Seo, S., Moriya, K., Tominaga, Y., Nemoto, T., Naruse, T., High resolution carbon isotope stratigraphy across the Cenomanian/Turonian boundary in the Tappu area, Hokkaido, Japan: correlation with world reference sections. The Science Report of Kanazawa University (2010), vol. 54, 49-62. (学内査読有)
- ⑩ Misumi, K., Yamanaka, Y., and Tajika, E., Numerical simulation of atmospheric and oceanic biogeochemical cycles to an episodic CO<sub>2</sub> release event: implications for the cause of mid-Cretaceous Ocean Anoxic Event-1a, Earth and Planetary Science Letters, (2009), vol. 286, 316-323. (査読有)
- ⑪ McCarren, H., Thomas, E., Hasegawa, T., Röhl, U., and Zachos, J.C. Depth Dependency of the Paleocene-Eocene Carbon Isotope Excursion: paired benthic and terrestrial biomarker records (ODP Leg 208, Walvis Ridge) Geochemistry, Geophysics, Geosystems (2008), doi:10.1029/2008GC002116. (査読有)
- ⑫ 守屋和佳, 長谷川 卓, 成瀬貴洋, 瀬尾草平, 根本俊文, 鈴木崇章, 森本このみ. 白亜紀中期・セノマニアン/チューロニアン境界の絶滅事変時における有孔虫化石群組成の超高解像度解析. 地学雑誌, 117, 878-888 (2008). (査読有)
- ⑬ 長谷川 卓, 暁新世-始新世温暖化極大事件 (PETM) 研究の最前線: 炭素同位体比層序学の貢献. 長谷川卓・沢田健編 特集: 顕生代の環境擾乱イベントとその解析. Researches in Organic Geochemistry (2008), 23/24, 43-52. (査読有)
- ⑭ 山本真也・長谷川 卓, 白亜紀/第三紀境界における炭素循環擾乱イベント. 長谷川卓・沢田健編 特集: 顕生代の環境擾乱イベントとその解析. Researches in Organic Geochemistry (2008), 23/24, 33-41. (査読有)
- ⑮ 長谷川 卓, 棚部一成, 西 弘嗣, 温室地球期の海洋鉛直循環の解説: OAE 堆積物を利用する新視点. 特集: 温室地球における生命と環境の共進化-月刊地球 (2008), Vol. 30, 372-377. (査読無)
- [学会発表] (計 25 件)
- ① 尾崎和海, 田近英一, 大気への CO<sub>2</sub> 流入現象に伴う海洋酸性化・貧酸素化のモデリング. 2011 年度日本地球化学会年会, 2011 年 9 月 14 日, 北海道大学 (北海道)
- ② Hasegawa, T., Crampton, J., Field, B., Poul Shioler, Unique paleoenvironmental change in southern high latitude across the Cretaceous Cenomanian/Turonian boundary, 6<sup>th</sup> International Symposium of IGCP507, 15 August, 2011, China University of Geosciences, Beijing, China.
- ③ 長谷川 卓, 特別講演 (学術賞受賞講演) 白亜系層序と国際対比: 温室地球子環境の理解に向けて. 日本古生物学会 2011 年会, 2011 年 7 月 2 日, 金沢大学 (石川県)
- ④ 沖野遼, 長谷川 卓, James Crampton, 南半球高緯度地域から得られた上部白亜系の有機炭素同位体比変動. 日本古生物学会 2011 年会, 2011 年 7 月 2 日, 金沢大学 (石川県)
- ⑤ 尾崎和海, 田近英一, 大気-海洋物質循環

モデルを用いた海洋無酸素イベントのモデリング. 日本地球惑星科学連合 2011 年大会, 2011 年 5 月 26 日, 幕張メッセ (千葉県)

- ⑥長谷川 卓, 根本俊文, 柿崎喜宏, 富永嘉人, 化学層序による白亜系国際対比と古環境評価. 日本古生物学会第 160 回例会, 2011 年 1 月 28 日, 高知大学 (高知県)
- ⑦富永嘉人, 長谷川 卓, 利光誠一, 上部白亜系のイノセラムス帯年代の検証: 国際指標種と炭素同位体比層序の統合的応用. 日本古生物学会第 160 回例会, 2011 年 1 月 29 日, 高知大学 (高知県)
- ⑧富永嘉人, 長谷川 卓, 利光誠一, 蝦夷層群における千年規模の解像度で求めた炭素同位体比変動とその意義. 日本地質学会第 117 年学術大会, 2010 年 9 月 18 日, 富山大学 (富山県)
- ⑨尾崎和海, 田近英一, 海洋無酸素事変の発生条件: 栄養塩の流入率増大と浅海域の無酸素化の重要性. 2010 年度日本地球化学会年会, 2010 年 9 月 7 日, 立正大学 (埼玉県)
- ⑩尾崎和海, 田近英一, 数値モデルを用いた海洋無酸素事変における表層環境の変動復元. 日本地質学会第 117 年学術大会, 2010 年 9 月 19 日, 富山大学 (富山県)
- ⑪長谷川 卓, 福士圭介, Crampton, J., Field, B., 独特な古環境変化を示す南半球高緯度域における白亜紀 Cenomanian/Turonian 境界, 日本古生物学会 2010 年会, 2010 年 6 月 12 日, 筑波大学 (茨城県)
- ⑫長谷川 卓, 根本俊文, 成瀬貴洋, 超解像度炭素同位体比層序と詳細国際対比がもたらす新展開: 白亜紀海洋無酸素事変 OAE2 研究. 日本地球惑星科学連合 2010 年大会, 2010 年 5 月 25 日, 幕張メッセ (千葉県)
- ⑬富永嘉人, 長谷川 卓, 千年規模の解像度で求めた蝦夷層群の炭素同位体比変動とその意義. 日本古生物学会第 159 回例会, 2010 年 1 月 30 日, 滋賀県立琵琶湖博物館 (滋賀県)
- ⑭根本俊文, 長谷川 卓, 白亜系蝦夷層群 OAE2 相当層における超高解像度炭素同位体比層序の重要性. 日本古生物学会第 159 回例会, 2010 年 1 月 30 日, 滋賀県立琵琶湖博物館 (滋賀県)
- ⑮森本このみ, 長谷川 卓, 守屋和佳, 炭素同位体比層序による白亜系蝦夷層群の国際対比. 日本古生物学会 2009 年会, 2009 年 6 月 27 日, 千葉大学 (千葉県)
- ⑯尾崎和海, 田近英一, 鉛直一次元海洋生物化学循環モデルを用いた海洋無酸素イベントの発生条件の解明. 日本地球惑星科学連合 2009 年大会, 2009 年 5 月 20 日,

幕張メッセ (千葉県)

- ⑰尾崎和海, 田近英一, 鉛直一次元海洋生物化学循環モデルを用いた海洋無酸素イベントの発生条件に関する研究. 日本地質学会第 115 年学術大会, 2008 年 9 月 15 日, 秋田大学 (秋田県).
- ⑱成瀬貴洋, 長谷川 卓, 守屋和佳, 瀬尾草平, 白亜紀中期の海洋無酸素事変 (OAE2) と北太平洋域の浮遊性有孔虫イベント. 日本古生物学会 2009 年会, 2008 年 7 月 6 日, 東北大学 (宮城県)

[その他]

ホームページ等

[http://earth.s.kanazawa-u.ac.jp/Paleo\\_Lab/index.html](http://earth.s.kanazawa-u.ac.jp/Paleo_Lab/index.html)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

長谷川 卓 (HASEGAWA TAKASHI)  
金沢大学・自然システム学系・教授  
研究者番号: 50272943

### (2) 研究分担者

田近 英一 (TAJIKI EIICHI)  
東京大学・新領域創成科学研究科・教授  
研究者番号: 70251401

### (3) 連携研究者

なし