

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 15 日現在

機関番号：82706

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2012～2014

課題番号：24310020

研究課題名(和文) 海洋化学トレーサの組み合わせによる南大洋における人為起源二酸化炭素吸収量の見積り

研究課題名(英文) Estimation of anthropogenic CO<sub>2</sub> in the Antarctic Ocean by means of combination of chemical tracers

研究代表者

熊本 雄一郎 (Kumamoto, Yuichiro)

独立行政法人海洋研究開発機構・地球環境観測研究開発センター・主任技術研究員

研究者番号：70359157

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,300,000円

研究成果の概要(和文)：南大洋における人為起源二酸化炭素(CO<sub>2</sub>)の吸収量を把握するために、2012年から2013年にかけて同海域で海洋観測を実施し、溶存無機CO<sub>2</sub>、溶存酸素、フロン、炭素14、セシウム137、人工フッ素化合物を測定した。得られた分析結果を1990年代データと比較した結果、南極底層水の形成量は年々変動していること、化学トレーサの時間変動から底層水形成メカニズムをより定量的に議論できることが示された。これらの結果は、今後の南大洋における人為起源CO<sub>2</sub>の吸収能力の推定に係る研究に貢献することが期待される。

研究成果の概要(英文)：In 2012/2013 we conducted a research cruise in the Antarctic Ocean in order to evaluate absorption of the anthropogenic carbon dioxide (CO<sub>2</sub>) in the ocean and measured simultaneously dissolved inorganic CO<sub>2</sub>, dissolved oxygen, chlorofluorocarbons, radiocarbon (14C), 137Cs, and perfluoroalkyl substances. Comparing these data in 2012/2013 to those obtained in the 1990s, it is suggested that formation rate of the Antarctic Bottom Water varied inter-annually. In addition, temporal changes in the chemical tracers could provide more quantitative discussion about the bottom water formation. These results will contribute to further studies on absorption of the anthropogenic CO<sub>2</sub> in the Antarctic Ocean.

研究分野：化学海洋学

キーワード：気候変動 海洋科学 地球化学 地球変動予測 環境分析

### 1. 研究開始当初の背景

人類の化石燃料の利用によって、大気中二酸化炭素 ( $\text{CO}_2$ ) 濃度は確実に上昇し続けている。大気中に放出された人為起源  $\text{CO}_2$  は、およそ半分しか大気中に残留しておらず、残りの約半分は海洋と陸上生態系によって吸収されている。従って、人為起源  $\text{CO}_2$  の大気への残留率は、それら2つのリザーバーの  $\text{CO}_2$  吸収量に大きく依存している。このことは、将来の大気中  $\text{CO}_2$  濃度上昇に伴う地球温暖化を予測するためには、海洋及び陸上生態系の  $\text{CO}_2$  吸収メカニズムに関する理解を深めることが必要不可欠であることを示唆している。これまでの研究により、陸上生態系による吸収は年々変化が大きいものに対して、海洋の吸収量は十数年規模で変動していることが明らかになりつつある (Quay et al., 2002)。後者は、南大洋における十数年規模海洋変動である南極振動との関連性が議論されている (Lovenduski et al., 2008)。

南大洋における人為起源  $\text{CO}_2$  吸収量が海洋全体の吸収量に大きく影響している可能性が指摘される一方で、主に観測データの不足により南大洋における人為起源  $\text{CO}_2$  存在量の見積値は大きな不確かさを含む。その存在量を見積もるための最も確実な方法は、産業革命以前の海洋  $\text{CO}_2$  濃度と現在のそれを直接比較することである。しかしながら、そのような比較可能データは存在しないため、人為起源  $\text{CO}_2$  存在量は、多くの仮定条件のもとで推定された産業革命以前の  $\text{CO}_2$  濃度と現代のそれとの比較によって見積もられている。その結果、特に南緯 50 度以南の南大洋底深層水において、その見積値に大きな差異が生じている (Lo Monaco et al., 2005)。

### 2. 研究の目的

本研究課題では、溶存無機  $\text{CO}_2$  濃度だけでなく、海洋化学トレーサと呼ばれる炭素 14、セシウム 137、フロンガス、人工フッ素化合物を同時に測定することで、南極大陸をとりまく南大洋の底深層水における人為 (化石燃料) 起源  $\text{CO}_2$  の吸収能力をより正確に評価することを目的とした。そのために、以下の2つのサブテーマを実施した。

(1) 過去約 17 年間の人為起源  $\text{CO}_2$  増加量の直接的な見積り：2012/2013 年に実施された南大洋における観測航海において、溶存無機  $\text{CO}_2$  濃度を測定した。それを 1995/1996 年にほぼ同じ観測点で得られたデータと比較し、1995/1996 年から 2012/2013 年の約 17 年間の南大洋底深層水における人為起源  $\text{CO}_2$  増加量を直接見積もった。また同時に、溶存酸素、核実験起源炭素 14、及びフロンガス濃度も比較し、それらの増加量も見積もった。

(2) 1960 年代以降の人為起源  $\text{CO}_2$  増加量の間接的な見積り：上記 (1) で得られた人為起源  $\text{CO}_2$ 、炭素 14、フロンの増加量の関係を 1960 年代まで遡って適用することで、1960 年代以降の南大洋の底深層水における人為起源  $\text{CO}_2$

増加量を間接的に推定することを試みた。さらに、核実験起源セシウム 137 と人工フッ素化合物濃度から推定される海洋循環規模と人為起源  $\text{CO}_2$  増加量との整合性を検討した。

### 3. 研究の方法

南大洋における海水試料は、独立行政法人海洋研究開発機構 (JAMSTEC) の海洋地球研究船「みらい」MR12-05 航海 (2012 年 11 月 ~ 2013 年 2 月) において、南緯 62 度を中心に東経 40 ~ 170 度に位置する観測点で採取された (図 1)。溶存無機  $\text{CO}_2$  濃度、フロンガス濃度は、その他の基本的な分析項目 (塩分、溶存酸素、栄養塩濃度など) と同じく、「みらい」船上において採水直後に分析された。それらすべての結果は、JAMSTEC の MR12-05 航海観測データ公開ホームページにて公開されている。炭素 14、セシウム 137、人工フッ素化合物分析用の海水試料は陸上の実験室に持ち帰り、前処理後に各分析に供された。1995/1996 年の観測データは、World Ocean Circulation Experiment (WOCE) プロジェクトで得られた結果である (Key et al., 2004)。

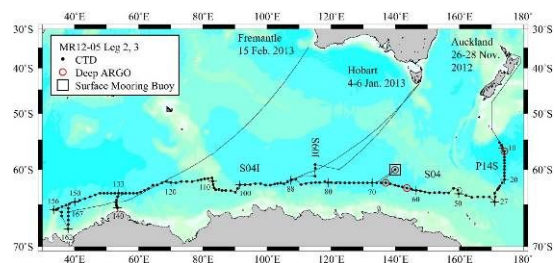


図1 「みらい」MR12-05 航海における観測点位置。

### 4. 研究成果

(1) 1995/1996 年と 2012/2013 年に観測された溶存無機  $\text{CO}_2$  濃度

図 2 に、1995/1996 年と 2012/2013 年にそれぞれ観測された溶存無機  $\text{CO}_2$  濃度の鉛直断面図を示す。2 回の観測結果とも、深度数百 m までの表層水では、植物プランクトンの

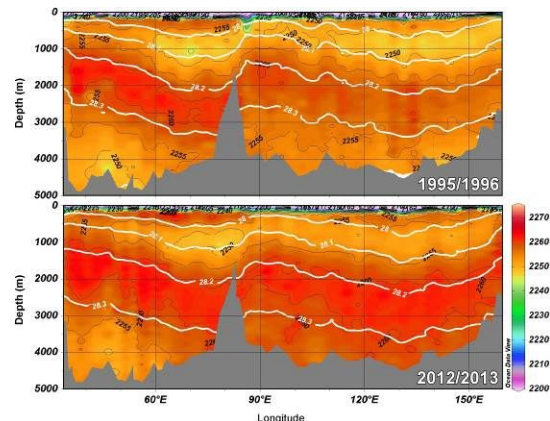


図2 約南緯 62 度に沿った東経 40 度から 160 度で観測された溶存無機  $\text{CO}_2$  濃度 ( $\mu\text{mol}/\text{kg}$ ) の鉛直断面図。上：1995/1996 年、下：2012/2013 年。図中の白線は、現場圧力を考慮した海水の密度 (中立密度、 $\text{kg}/\text{m}^3$ ) 面の 28.0、28.1、28.2、28.3 を示す。

光合成による消費と低塩分水の影響によって溶存無機  $\text{CO}_2$  濃度が低いこと、中立密度面  $28.3 \text{ kg/m}^3$  (およそ深度  $3000\text{m}$ ) 以深では、相対的にその濃度の低い周極底層水(南極底層水と北大西洋深層水の混合水)が存在すること、中立密度面  $28.2 \sim 28.3 \text{ kg/m}^3$  (およそ深度  $2000 \sim 3000\text{m}$ ) では、太平洋・インド洋深層水による濃度の極大が確認された。

## (2) 1995/1996 年～2012/2013 年の溶存無機 $\text{CO}_2$ 濃度の時間変化

1995/1996 年～2012/2013 年の溶存無機  $\text{CO}_2$  濃度の時間変化を確認するために、両者を等(中立)密度面で比較した(図 3 上)。等密度面で比較することによって、海上風による海面の変動の影響を除くことができる。それによると、およそ東経  $90$  度以東のオーストラリア南極海盆の底層水では、溶存無機  $\text{CO}_2$  濃度が  $\sim 5 \mu\text{mol/kg}$  増加していることが確認された。同海盆東部の底層水ではその増加が明瞭であり、同海盆西部においてもその傾向が観測された。一方、東経  $90$  度以西のアフリカ南極海盆は、顕著な増加は確認されなかったが、同海盆東経  $60 \sim 70$  度付近を除く海底直上底層水ではわずかに増加傾向が確認された。オーストラリア、アフリカの両南極海盆底層水で確認された濃度増加は、より新しい、すなわちより高濃度の人為起源  $\text{CO}_2$  を含む底層水が供給されたことによる可能性が高い。一方、オーストラリア南極海盆において、底・深層水のほぼ全水柱で確認された増加は、1995/1996 年と 2012/2013 年のデータセット間に、系統的な差異が存在することを暗示している。しかしながら、両航海ともに東経  $90$  度付近を境にして分析手法等が変更されたという記録はなく、現在その原因について検討を続けている。

## (3) 溶存酸素、フロンガス濃度の時間変動

溶存酸素とフロンガスの一種である CFC-11 濃度の 1995/1996 年から 2012/2013 年までの時間変化を、溶存無機  $\text{CO}_2$  濃度と同じく等密度面で比較した(それぞれ図 3 中と下)。溶存酸素濃度の比較からは、中立密度  $28.1 \sim 28.2 \text{ kg/m}^3$  (およそ深度  $500 \sim 2000\text{m}$ ) に地形(海底山脈)に起因すると考えられる擾乱の影響による濃度減少が確認されたが、 $28.3 \text{ kg/m}^3$  (およそ深度  $3000\text{m}$ ) 以浅では、それ以外の有意な変化は確認できなかった。一方、 $28.3 \text{ kg/m}^3$  以深の底層水では、オーストラリア南極海盆では  $\sim 4 \mu\text{mol/kg}$  の濃度増加が確認され、アフリカ南極海盆では東経  $60 \sim 70$  度付近で顕著に増加し、東経  $40$  度以西では逆に減少していた。CFC-11 は、オーストラリア南極海盆の底層水で顕著に増加していた ( $\sim 1.1 \text{ pmol/kg}$ )。アフリカ南極海盆では、溶存酸素濃度の顕著な増加が確認された東経  $60 \sim 70$  度付近を中心に CFC-11 濃度も増加していた。オーストラリア南極海盆底層水

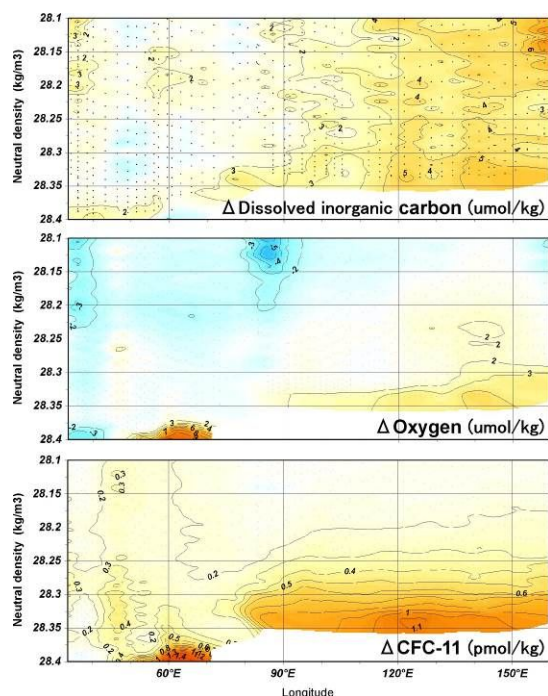


図 3 約南緯  $62$  度に沿った東経  $40$  度から  $160$  度で観測された溶存無機  $\text{CO}_2$  濃度 ( $\mu\text{mol/kg}$ 、上図)、溶存酸素濃度 ( $\mu\text{mol/kg}$ 、中図)、フロン 11 (CFC-11) 濃度 ( $\text{pmol/kg}$ 、下図) の 1995/1996 年から 2012/2013 年の間の変化 ( )

中の溶存酸素と CFC-11 濃度がともに増加しているという観測結果は、同海盆底層で見られた溶存無機  $\text{CO}_2$  濃度の増加が、新たな南極底層水形成(沈み込み)によって表層水中の人為起源  $\text{CO}_2$  が底層に輸送されたことを強く示唆している。もしも南極底層水の形成が定常状態であると仮定するならば、人為的な攪乱の影響をうけていないと考えられる溶存酸素濃度の時間変化は起こらない。1995/1996 年から 2012/2013 年の間の底層水中の溶存酸素が増加した原因については、観測海域から遠いロス海(日付変更線付近)起源の底層水の寄与が、より近いアデリー沖(東経  $145$  度付近)起源の底層水のそれに比べて低下したためではないかと推察されている (Katsumata et al., 2015)。一方で、アフリカ南極海盆底層水では、東経  $60 \sim 70$  度付近で観測された溶存酸素と CFC-11 濃度の顕著な増加は、溶存無機  $\text{CO}_2$  濃度の増加を伴っていない。逆に東経  $40$  度以西では、溶存酸素濃度は低下し ( $\sim 3 \mu\text{mol/kg}$ )、溶存無機  $\text{CO}_2$  濃度は増加している ( $\sim 2 \mu\text{mol/kg}$ )。これらの結果は、アフリカ南極海盆の底層における海水循環が変化した可能性を暗示している。

## (4) 核実験起源炭素 $^{14}\text{C}$ の時間変動

図 4 に、炭素  $^{14}\text{C}$  同位体比 ( $^{14}\text{C}$ ) の 1995/1996 年から 2012/2013 年までの時間変化を示す。西部のアフリカ南極海盆、及び東部のオーストラリア南極海盆の観測点においても  $^{14}\text{C}$  の鉛直分布に有意な時間変化は確認できなかった。アフリカ南極海盆の東経

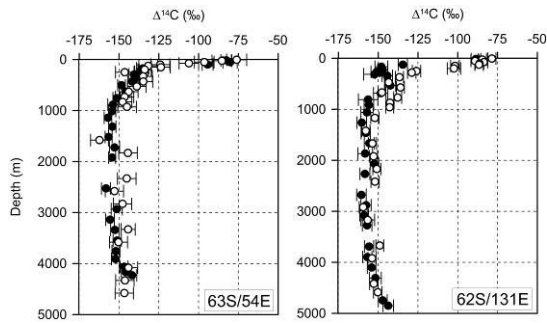


図4 アフリカ南極海盆(左)とオーストラリア南極海盆(右)において、1995/1996年(○)と2012/2013年(●)に観測された炭素14同位体比、 $\Delta^{14}\text{C}$  (‰)の鉛直分布。

54度付近の底層水では、溶存酸素濃度とCFC-11濃度の変動が小さかったこと(図3)と整合的である。一方、オーストラリア南極海盆の東経131度付近の底層水中では、溶存無機 $\text{CO}_2$ 、溶存酸素、CFC-11濃度の増加が確認されているのに対して、 $^{14}\text{C}$ は変化していない。このことは、新たに形成される底層水に含まれる炭素14濃度が相対的に少ないことを暗示している。この「新」底層水中の各項目を直接測定した観測例はないが、各項目のうち、大気中濃度と表面海水中濃度が平衡状態に達するために必要な時間が最も長いものが炭素14であることは、この仮説と矛盾しない。炭素14の測定は現在も継続中であり、新たなデータを加味してさらに考察を行う予定である。

(5) 2012年に観測された核実験起源セシウム137濃度

図5に、オーストラリア南極海盆の南緯62度/東経133度において、2012年12月に観測された放射性セシウム137( $\mu\text{Bq}/\text{kg}$ )を示す。主に1950年代と1960年代に北半球で実施された大気圏中核実験をその起源とするセシウム137濃度は、南半球中では相対的に低い。また、半減期約30年の放射壊変するため、その濃度は核実験時に比べて1/4以下に低下している。そのため、南大洋での測定例は極めて限られており、またその鉛直分布は明らかではなかった。本課題研究においては、1

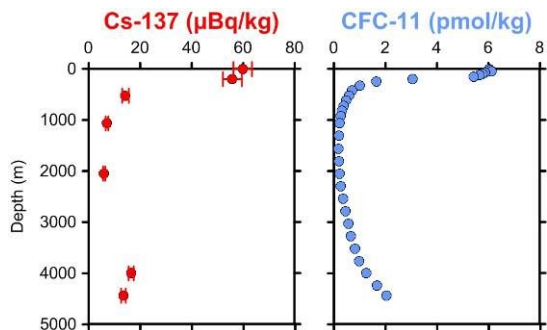


図5 オーストラリア南極海盆の南緯62度/東経133度において、2012年12月に観測された放射性セシウム137( $\mu\text{Bq}/\text{kg}$ )とCFC-11( $\text{pmol}/\text{kg}$ )の鉛直分布。

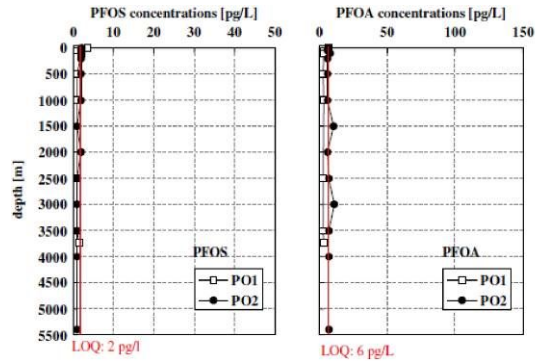


図6 2004年に南大洋の観測点(南緯67度/西経173度、南緯50度/西経170度)で観測された人工フッ素化合物(PFOS、PFOA、 $\text{pg}/\text{L}$ )の鉛直分布(Yamashita et al., 2008)

検体につき100リットル以上の海水を用い、さらに低バックグラウンドのガンマ線測定装置による測定を組み合わせることで、世界で初めて南大洋におけるセシウム137濃度の鉛直分布を明らかにした。セシウム137の鉛直分布は、同じく人為起源物質であるCFC-11とよく似ている(図5)。すなわち、大気からの供給によって表層水で濃度が高く(約 $55 \mu\text{Bq}/\text{kg}$ )、その表層水を起源とする底層水の形成(沈み込み)によって底層でも濃度が高くなっていった(約 $15 \mu\text{Bq}/\text{kg}$ )。

(6) 2012/2013年に観測された人工フッ素化合物濃度

人工フッ素化合物の分析については最終的な分析値が確定されていないが、その仮確定値は、南大洋においては表面水から海底直上の底層にいたる全水柱において検出下限値以下であった。2004年に同じく南大洋の太平洋セクションで観測された人工フッ素化合物(PFOS、PFOA)の鉛直分布図を図6に示す(Yamashita et al., 2008)。人工フッ素化合物は、その起源のほとんどが北半球の工業地帯にあること、また北大西洋深層水の活発な沈み込みによって同海域の底層水でも検出されている。南大洋底層水で人工フッ素化合物が検出されていないことは、南極大陸周辺で新たに形成される南極底層水には人工フッ素化合物が含まれていないこと、北大西洋深層水起源の人工フッ素化合物はまた南大洋底層まで到達していないことを示唆している。

(7) 考察とまとめ

オーストラリア南極海盆底層水中における1995/1996年から2012/2013年の約17年間の溶存無機 $\text{CO}_2$ 濃度の増加は、約 $3 \mu\text{mol}/\text{kg}$ であった。この値を17年で割ると、一年間あたりの増加速度は、約 $0.2 \mu\text{mol}/\text{kg}$ と計算される。海洋表面水中の溶存無機 $\text{CO}_2$ 濃度は、大気中二酸化炭素濃度の増加速度とほぼ同じ速さで増加している(約 $1.0 \sim 1.5 \mu\text{mol}/\text{kg}$ , Bates et al. 2014)。その値に比べると、南極海底層水において見積もられた

増加速度、約 0.2  $\mu\text{mol}/\text{kg}$  は相対的に大きい。この原因については、より新しく、より多くの人為起源  $\text{CO}_2$  を含むであろうと考えられるアデリー沖で形成された底層水の寄与度が増加したことが考えられる。しかしながら、前述したように、1995/1996 年と 2012/2013 年のデータセット間には、「オフセット」がある可能性があるため、さらに詳細な検討が必要である。

一方、1995/1996 年～2012/2013 年の CFC-11 濃度の増加量から、オーストラリア南極海盆における底層水の形成速度は、約  $2.7 \times 10^6 \text{ m}^3/\text{s}$  と見積もられた。この値を 1950 年以降一定と仮定して計算した場合、1950 年以降の底層水中フロン濃度の変化量はある程度範囲で説明可能であったのに対して、計算された底層水中の溶存無機  $\text{CO}_2$ 、炭素 14、及びセシウム 137 の各濃度は、2012/2013 年に観測された値よりも、数倍以上の高濃度になってしまうことがわかった。この原因については、南極底層水の形成速度は、過去 60 年間を通じて一定ではなく変動している可能性があること、計算に用いた各項目の南大洋表面水中濃度（すなわち底層水として沈み込む直前の濃度）の時空間的変動が大きい可能性などが考えられる。本研究課題から得られた結果のみでは、南大洋底層水中における人為起源  $\text{CO}_2$  量をより正確に定量するという目的を達成することは困難であった。一方、溶存無機  $\text{CO}_2$  だけでなく、化学トレーサである溶存酸素、炭素 14、セシウム 137、フロン、人工フッ素化合物を同時に測定し比較検討することによって、南極底層水の形成量は年々変動していること、底層水形成のメカニズムをより定量的に議論できる可能性があることが示された。これらの結果は、今後の南大洋における人為起源  $\text{CO}_2$  の吸収能力の推定に係る研究に貢献することが期待される。

#### <引用文献>

Bates, N.R., Y.M. Astor, M.J. Church, K. Currie, J.E. Dore, M. González-Dávila, L. Lorenzoni, F. Muller-Karger, J. Olafsson, J.M. Santana-Casiano, A time-series view of changing ocean chemistry due to ocean uptake of anthropogenic  $\text{CO}_2$  and ocean acidification, *Oceanography* 27, 2014, 126-141.

Key, R.M., A. Kozyr, C.L. Sabine, K. Lee, R. Wanninkhof, J.L. Bullister, R.A. Feely, F.J. Millero, C. Mordy, T.-H. Peng, A global ocean carbon climatology: Results from Global Data Analysis Project (GLODAP), *Global Biogeochem. Cycles* 18, 2004, GB4031, doi:10.1029/2004GB002247

Lo Monaco, C., C. Goyet, N. Metzl, A. Poisson, F. Touratier, Distribution and inventory of anthropogenic  $\text{CO}_2$  in the

Southern Ocean: Comparison of three data-based methods, *J. Geophys. Res.* 110, 2005, C09S02, doi:10.1029/2004JC002571.

Lovenduski, N.S., N. Gruber, S.C. Doney, Toward a mechanistic understanding of the decadal trends in the Southern Ocean carbon sink, *Global Biogeochem. Cycles* 22, 2008, GB3016, doi:10.1029/2007GB003139.

Quay, P., Ups and downs of  $\text{CO}_2$  uptake, *Science* 298, 2002, 2344.

Yamashita, N., S. Taniyasu, G. Petrick, S. Wei, T. Gamo, P.K.S., Lam, K. Kannan, Perfluorinated acids as novel chemical tracers of global circulation of ocean waters, *Chemosphere* 70, 2008, 1247-1255.

#### 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3件)

Katsumata, K., H. Nakano, Y. Kumamoto, Dissolved oxygen change and freshening of Antarctic Bottom water along  $62^\circ\text{S}$  in the Australian-Antarctic Basin between 1995/1996 and 2012/2013, *Deep-Sea Research II*, 査読有, 114, 2015, pp.27-38, <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0967064514001490>

山下 信義、宮澤 泰正、山崎 絵理子、谷保 佐知、東日本大震災巨大津波によるペルフルオロオクタンスルホン酸関連化合物の海洋汚染現象の解析、ぶんせき、査読無、478 巻、2014、pp.586-590、<http://www.jsac.or.jp/bunseki/201410.html>

山下 信義、谷保 佐知、山崎 絵理子、ペルフルオロオクタン酸関連物質の外洋汚染全球図の開発のための国際共同研究、号外月刊海洋、査読無、55 巻、2014、pp.94-105、<http://www.kaiyo-chikyu.com/>

[学会発表](計5件)

Yamashita, N. et al., Accidental input of PFOS and related chemicals from land to ocean by the disaster of Tsunami (the earthquake 3.11), Japan, The 11th International Symposium on Persistent Toxic Substance, 29 Oct. 2014, Hong Kong (Special Administrative Region of the People's Republic of China)

熊本 雄一郎 他、極低バックグラウンドガンマ線検出器を用いた南大洋における海水中放射性セシウム濃度の測定、日本分析化学

会第 63 年会、2014 年 9 月 18 日、広島大学( 広島県・東広島市 )

島村 紘大 他 ( 6 名中 6 番目 )、北極海を含む外洋環境における PFOS 関連物質挙動解析、第 55 回大気環境学会年会、2014 年 9 月 18 日、愛媛大学 ( 愛媛県・松山市 )

山下 信義、PFOS 関連物質の外洋汚染調査と UNEP 外洋モニタリングの貢献、日本海洋学会 2014 年度春季大会、2014 年 3 月 26 日、東京海洋大学品川キャンパス ( 東京都・港区 )

Yamashita, N. et al., Perfluoroalkyl substances in the Mediterranean Sea, 32nd International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (Dioxin 2012), 30 Aug. 2012, Cairns (Australia)

[ 図書 ] ( 計 1 件 )

Uchida, H. et al. edited, JAMSTEC, WHP P14S, S04I Revisit in 2012 Data Book, 2015, 187 (67-71)

[ その他 ]

MR12-05 航海観測データ公開ホームページ：  
[http://www.jamstec.go.jp/iorgc/ocorp/data/s04irev\\_2012/index.html](http://www.jamstec.go.jp/iorgc/ocorp/data/s04irev_2012/index.html)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

熊本 雄一郎 ( Kumamoto, Yuichiro )  
独立行政法人海洋研究開発機構・地球環境  
観測研究開発センター・主任技術研究員  
研究者番号：7 0 3 5 9 1 5 7

### (2) 研究分担者

村田 昌彦 ( Murata, Akihiko )  
独立行政法人海洋研究開発機構・地球環境  
観測研究開発センター・グループリーダー  
研究者番号：6 0 3 5 9 1 5 6

佐々木 建一 ( Sasaki, Kenichi )  
独立行政法人海洋研究開発機構・むつ研究  
所・グループリーダー代理  
研究者番号：1 0 4 4 3 3 3 4

山下 信義 ( Yamashita, Nobuyoshi )  
独立行政法人産業技術総合研究所・環境管  
理技術研究部門・主任研究員  
研究者番号：4 0 3 5 8 2 5 5

浜島 靖典 ( Hamajima, Yasunori )  
金沢大学・学内共同利用施設等・助教  
研究者番号：6 0 1 7 2 9 7 0