

令和 3 年 6 月 16 日現在

機関番号：13901

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2017～2020

課題番号：17H01857

研究課題名(和文)鉄とネオジウム同位体を指標とした海洋生態系物質循環の解明

研究課題名(英文)Geochemical cycling in marine ecosystem using iron and neodymium isotope tracers

研究代表者

浅原 良浩 (Asahara, Yoshihiro)

名古屋大学・環境学研究科・准教授

研究者番号：10281065

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,400,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、鉄(Fe)、ストロンチウム(Sr)、ネオジウム(Nd)の同位体を指標とし、海洋一次生産者である植物プランクトンが摂取する鉄の起源・形態の特定を試みた。微量の沈降粒子試料の分析法の確立を行った後、西部北太平洋亜寒帯域の沈降粒子の同位体組成および化学組成の年変化・季節変化の分析に取り組み、詳細なデータを取得した。これらの結果から、周辺陸域から西部北太平洋亜寒帯域への鉄を含む物質の供給量の定量的評価を行った。具体的には、西部北太平洋亜寒帯域に供給される鉄は、一年を通して火山性物質の寄与が比較的大きいものの、春秋にはアジア大陸からの風成塵の寄与が大きいことが示された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

海洋一次生産者である植物プランクトンが摂取する鉄の起源が明らかになれば、西部北太平洋亜寒帯域をはじめ様々な海域において、生物生産と陸域からの鉄供給との関係をより定量的に評価できるようになることが期待される。特に、溶存態鉄だけでなく、可溶性の粒子態鉄(鉄水酸化物)や難溶性の粒子態鉄(アルミノ珪酸塩)の関与が明らかになれば、海洋表層から深層に鉛直輸送される珪藻の生物ポンプの機能(海洋の元素分布の規定要因)の見直しや、氷期-間氷期サイクルにおける生物生産と海洋への鉄フラックスの関係の再検討など、海洋学、古環境学への波及効果が大きく、この点に本研究の重要な意義がある。

研究成果の概要(英文)：In this study, we attempted to identify the origin and form of iron ingested by phytoplankton which is a primary producer in the ocean, using iron (Fe), strontium (Sr), and neodymium (Nd) isotopes as indicators. After establishing the analytical method for a small amount of settling particle sample, we investigated the annual and seasonal changes in the isotopic and chemical compositions of settling particles in the western subarctic North Pacific region, and obtained detailed data. Based on these results, we conducted a quantitative evaluation of the supply of iron-containing materials from the surrounding terrestrial regions to the western subarctic North Pacific region. The contribution of volcanic material was relatively large throughout the year, but the contribution of eolian dust from the Asian continent was also large in spring and autumn.

研究分野：同位体地球化学

キーワード：同位体 鉄 ネオジウム 海洋

1. 研究開始当初の背景

現在の大陸-海洋間の物質循環やその要因を解明することは、過去の地球表層環境の復元や将来の地球表層環境の予測のための重要な手掛かりとなる。特に、大陸から海洋に供給される鉄 (Fe) は、リン、珪素などの栄養塩とともに海洋の生態系をコントロールする重要な要因の 1 つである。西部北太平洋亜寒帯域の高い生物生産には、陸から供給される鉄が大きな役割を果たしていることが指摘されている (e.g. Tsuda et al., 2003)。アジア大陸から風成塵として供給された鉄 (e.g. Duce and Tindale, 1991)、シベリア・アムール川からオホーツク海を經由し供給された鉄 (e.g. Nishioka et al., 2007)、千島・アリューシャン列島からの火山灰 (e.g. Hamme et al., 2010)、などがこの海域の鉄の供給源候補として考えられているが、決定的な証拠はまだない (Nishioka et al., 2011)。海洋において生物が摂取可能な鉄の主要な化学形態は溶存態であるが、これらに加え、鉄水酸化物などの可溶性粒子態も重要である (Sugie et al., 2013)。また、ベーリング海沈降粒子の希土類元素 (REE) 存在度と REE の 1 つであるネオジム (Nd) の同位体比の結果からは、珪藻が難溶性のアルミノ珪酸塩を取り込んでいる可能性も指摘されている (Akagi et al., 2014)。さらに、ベーリング海の堆積物や北極海カナダ海盆の沈降粒子から陸源アルミノ珪酸塩を化学的に抽出する方法を検討した際 (基盤研究(C) H23~H25)、分離・除去した炭酸塩や鉄水酸化物成分中のストロンチウム (Sr)、Nd、Fe は海水の同位体的特徴をもつが、珪藻成分中の Sr、Nd、Fe は海水の特徴とは明らかに異なり、アルミノ珪酸塩砕屑粒子の取り込みの可能性を示唆する予察的な結果が得られていた (e.g. Asahara et al., 2012; Yasuda et al., 2014)。珪藻などの植物プランクトンは、溶存態の鉄だけでなく、可溶性の鉄水酸化物や難溶性のアルミノ珪酸塩などの粒子態の鉄を“丸ごと取り込んでいる”可能性がある。このような背景のもと、西部北太平洋亜寒帯域の生物生産を支える鉄の供給源を同位体トレーサで探ることを考えた。

2. 研究の目的

鉄は海洋の生態系をコントロールする重要な要因の 1 つであるが、海洋一次生産者である植物プランクトンが摂取している鉄の起源や化学形態に関する知見は少なく、そのため大陸などからの鉄の供給と生物生産の関係を定量的に評価することが困難である。本研究では、鉄 (Fe)、ストロンチウム (Sr)、ネオジム (Nd) などの安定同位体や放射壊変起源同位体を利用し、植物プランクトンが利用する鉄の起源を特定することが第一の目的である。さらに、この結果に基づき、北太平洋亜寒帯域や北極海に供給される鉄の起源・量の季節変化・年変化を同位体データおよび化学データから推定し、生物生産量・生物群集の変化のデータと対比しながら、これらの海域の生物生産と陸域からの鉄供給との関係を定量的に評価することが第二の目的である。

3. 研究の方法

1 年目~2 年目には、(I) 珪藻などに含まれる鉄の起源を特定する指標として同位体の有用性を検証するため、海洋の沈降粒子中の様々な成分に含まれる Fe、Sr、Nd の同位体的特徴の把握を行った。セディメントトラップで採取した沈降粒子の試料の量は数 mg~数 10 mg と少なく、微量の沈降粒子試料の同位体分析技術の確立は、本研究において重要な課題であった。沈降粒子中の各成分を分離するための逐次溶解法の条件の確立、微量ネオジムの同位体比測定法の高感度化、高精度化を重点的に実施した。3~4 年目には、(II) 西部北太平洋亜寒帯域を対象として、沈降粒子の同位体比および化学組成の時系列変化と生物群集・生物生産量の変化との対比、を行った。本研究計画を遂行するための当初の研究体制は、研究代表者 1 名、研究協力者 1 名の計 2 名であったが、沈降粒子試料 (セディメントトラップ試料) の生物学的、鉱物学的側面も含めた総合的な解析を進めるため、2 年目以降は、新たに 2 名の研究分担者を加

えた。

4. 研究成果

本研究成果として、2017年度の研究開始以降これまでに国際誌9編、国内誌2編を公表し、学会発表を11件行った。また、現在1編を投稿準備中である。研究実施年度毎の研究成果を以下に示す。

初年度(2017年度)は、第一の目的である、沈降粒子中の様々な成分の同位体的特徴を把握するために、分析技術の確立を目指した。具体的には次の2点である。(i) 逐次溶解法による沈降粒子試料からの各種構成成分の分離・抽出条件の最適化を進めた。北極海の沈降粒子試料を用い、逐次溶解法の最適化条件の決定、Fe、Sr、Ndの単離などの試料の化学処理を進め、分析手法はほぼ確立した。Sr、Nd、Feの同位体比測定には、研究代表者の研究室の表面電離磁場型質量分析(TIMS)、韓国地質資源研究院(KIGAM)の多重検出器型ICP-MS(MC-ICP-MS)をそれぞれ用いた。Feの同位体比測定については、2017年8~9月に韓国地質資源研究院(KIGAM)のMC-ICP-MSでのFe同位体比測定の立ち上げを行い、Fe同位体比測定を実施できる態勢を整えた。(ii) 珪藻画分などの極微量ネオジムの同位体比測定の高感度化、高精度化を目指した。当初、通常のNdメタル(Nd⁺)ビームではなくNd酸化物イオン(NdO⁺)ビームによる高感度化で十分な精度を達成していたが、酸素同位体補正に手間がかかるなどの課題もあった。そこで、同位体比測定直前の試料フィラメントの加熱方法の改良などにより、Ndメタルビームでも10~20ngのNd量で十分な同位体比精度を確保することに成功した(Kozaka et al., 2018; Khim et al., 2020)。この方法では、Nd同位体比測定の時間短縮も期待でき、実試料で多試料の分析をする際にも有効である。また、数ngのNd量でも起源解析に必要な同位体比の精度が得られることを確認した。これらの研究成果の一部は国内学会で発表した。

2年目(2018年度)は、初年度に確立した逐次溶解法を活用し、沈降粒子の実試料の分析・解析を本格的に開始した。具体的には、北太平洋亜寒帯域の沈降粒子に逐次溶解法を適用し、各段階の溶出成分について主成分・微量成分の定量分析、Sr、Nd同位体分析を進めた。その結果、中層水と深層水の沈降粒子の組成が、可溶性成分(鉄マンガン酸化物成分など)において異なるだけでなく、不溶性の珪酸塩砕屑性粒子についても異なることが新たに確認された。同位体組成にも明瞭な差が見られた。これは、粒子の沈降過程での凝集・分散過程での変化を反映しており、海水中で可溶性・不溶性の様々な化学形態を持つ鉄の挙動の探る重要な手掛かりとなる成果である。

一方、逐次溶解法による分離・抽出条件に一部問題点も確認された。逐次溶解の第一段階で炭酸塩の溶出、第二段階で鉄マンガン酸化物の溶出を行っていたが、一部の試料では、炭酸塩成分と鉄マンガン酸化物成分の分離が不完全であった。3年目(2019年度)は、溶出する酸試薬の見直しを行って逐次溶解法の問題点を解決した上で、沈降粒子の年変化・季節変化に本格的に取り組んだ。その結果、同位体組成および化学組成の季節変化を見出すとともに、その変動の主要因を絞り込むことができた。

最終年度の4年目(2020年度)には、詳細な季節変化のデータを取得した。これらの結果から、同位体組成および化学組成の季節変化の要因を詳細に特定するとともに、周辺陸域から北太平洋亜寒帯域への鉄を含む物質の供給量の定量的評価を行った。具体的には、北太平洋亜寒帯域に供給される鉄は、一年を通して火山性物質の寄与が比較的大きいものの、春秋にはアジア大陸からの風成塵の寄与が大きいことが示された。北太平洋亜寒帯域の沈降粒子の化学組成、同位体組成の季節変化に関する研究成果は、2019年度と2020年度の国内学会で発表し、現在、国際誌への論文投稿を準備中である。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計11件（うち査読付論文 9件/うち国際共著 6件/うちオープンアクセス 5件）

1. 著者名 Matsui, H., Horikawa, K., Chiyonobu, S., Itaki, T., Ikehara, M., Kawagata, S., Wakaki-Uchimura, H., Asahara, Y., Seki, O., Okazaki, Y.	4. 巻 53
2. 論文標題 Integrated Neogene biochemostratigraphy at DSDP Site 296 on the Kyushu-Palau Ridge in the western North Pacific	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Newsletters on Stratigraphy	6. 最初と最後の頁 313-331
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1127/nos/2019/0549	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 -
1. 著者名 Khim, B.K., Horikawa, K., Asahara, Y., Kim, J.E., Ikehara, M. Detrital Sr-Nd isotopes, sediment provenance, and depositional processes in the Laxmi Basin of the Arabian Sea during the last 800 kyrs	4. 巻 157
2. 論文標題 Detrital Sr-Nd isotopes, sediment provenance, and depositional processes in the Laxmi Basin of the Arabian Sea during the last 800 kyrs	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Geological Magazine	6. 最初と最後の頁 895-907
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1017/S0016756818000596	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 該当する
1. 著者名 Nara, F.W., Yokoyama, T., Yamazaki, S., Minami, M., Asahara, Y., Watanabe, T., Yamada, K., Tsuchiya, N., Yasuda, Y.	4. 巻 55
2. 論文標題 Characteristics in trace elements compositions of tephra (B-Tm and To-a) for identification tools	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Geochemical Journal	6. 最初と最後の頁 in press
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.2343/geochemj.2.0619	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 Aftabuzzaman, Md., Yomogida, K., Suzuki, S., Takayanagi, H., Ishigaki, A., Machida, S., Asahara, Y., Yamamoto, K., Hirano, N., Sano, S., Chiyonobu, S., Bassi, D., Iryu, Y.	4. 巻 30
2. 論文標題 Multi-approach characterization of shallow-water carbonates off Minamitorishima and their depositional settings/history	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Island Arc	6. 最初と最後の頁 e12400
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1111/iar.1240	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 該当する

1. 著者名 Thuy Thi Nhu Ha, Takayanagi, H., Ueno, K., Asahara, Y., Yamamoto, K., Iryu, Y.	4. 巻 6
2. 論文標題 Litho-, bio-, and chemostratigraphy of the Middle Triassic carbonate succession in the North-Central Coast Region of Vietnam	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Progress in Earth and Planetary Science	6. 最初と最後の頁 47
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1186/s40645-019-0293-y	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 該当する

1. 著者名 吉田英一, 浅原良浩	4. 巻 765
2. 論文標題 球状コンクリーションのSr同位体比による地質年代決定とその意義	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Isotope News	6. 最初と最後の頁 6-9
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
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 Kozaka, Y., Horikawa, K., Asahara, Y., Amakawa, H., Okazaki, Y.	4. 巻 46
2. 論文標題 Late Miocene-mid Pliocene tectonically-induced formation of the semi-closed Japan Sea, inferred from seawater Nd isotopes	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Geology	6. 最初と最後の頁 903-906
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1130/G45033.1	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 -

1. 著者名 Yoshida, H., Hasegawa, H., Katsuta, N., Maruyama, I., Sirono, S., Minami, M., Asahara, Y., Nishimoto, S., Yamaguchi, Y., Ichinnorov, N., Metcalfe, R.	4. 巻 4
2. 論文標題 Fe-oxide concretions formed by interacting carbonate and acidic waters on Earth and Mars	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Science Advances	6. 最初と最後の頁 eaau0872
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1126/sciadv.aau0872	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 該当する

1. 著者名 Yoshida, H., Asahara, Y., Yamamoto, K., Katsuta, N., Minami, M., Metcalfe, R.	4. 巻 9
2. 論文標題 87Sr/86Sr age determination by rapidly formed spherical carbonate concretion	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 1003
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-019-38593-9	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 該当する

1. 著者名 赤崎広志, 落合文登, 吉田英一, 浅原良浩	4. 巻 3
2. 論文標題 清武・田野に分布する宮崎層群コンクリーション	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 宮崎の自然と環境	6. 最初と最後の頁 60-64
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
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 -

1. 著者名 Lee, S.G., Tanaka, T., Asahara, Y., Minami, M.	4. 巻 26
2. 論文標題 A distinctive chemical composition of the tektites from Thailand and Vietnam, and its geochemical significance	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 The Journal of the Petrological Society of Korea	6. 最初と最後の頁 281 - 295
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7854/JPSK.2017.26.3.281	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 該当する

〔学会発表〕 計11件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件)

1. 発表者名 宇佐見直也, 浅原良浩, 長島佳菜, 藤木徹一
2. 発表標題 Sr, Nd同位体比と微量元素組成を指標とした西部北太平洋亜寒帯の沈降粒子中の陸源碎屑物の供給源解析
3. 学会等名 日本地球化学会第67回年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 伊藤健太, 浅原良浩, 山本鋼志
2. 発表標題 鉛同位体比を用いた大阪湾堆積物中の鉛の起源解明
3. 学会等名 日本地球化学会第67回年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 浅原良浩, 吉田英一, 山本鋼志, 勝田長貴, 南雅代, メトカルフェ リチャード
2. 発表標題 Age determination of spherical carbonate concretions by Sr isotope stratigraphy
3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2019年大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 宇佐見直也, 浅原良浩, 長島佳菜, 藤木徹一
2. 発表標題 Sr, Nd同位体を用いた西部北太平洋亜寒帯の沈降粒子の起源解析
3. 学会等名 日本地球化学会第66回年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 八木正彦, 島津崇, 一丸裕二, 松丸国照, 浅原良浩
2. 発表標題 インドネシア共和国東ジャワRMKインバージョン帯における広域テクトニクスと炭酸塩ビルドアップ&ショールの発達について
3. 学会等名 日本地質学会第126年学術大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 高柳栄子, 矢野元康, 石田圭四郎, 浅原良浩, 山本鋼志, 佐藤時幸, 井龍康文
2. 発表標題 アラビア湾南岸に分布する下部白亜系炭酸塩岩の堆積環境および年代
3. 学会等名 石油技術協会 平成29年度春季講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 矢野元康, 高柳栄子, 石田圭四郎, 山本鋼志, 浅原良浩, 佐藤時幸, 井龍康文
2. 発表標題 アラビア湾南岸に分布する上部ジュラ系下部白亜系炭酸塩岩の統合化学層序
3. 学会等名 石油技術協会 平成29年度春季講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 浅原良浩, 竹内晟也, 原田尚美, 小野寺丈尚太郎, 長島佳菜
2. 発表標題 北極海カナダ海盆を沈降する陸源碎屑粒子のSr-Nd 同位体組成: 表層と深層の粒子の類似性と相違性
3. 学会等名 2017年度日本地球化学会 第64回年会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 小坂由紀子, 堀川恵司, 浅原良浩
2. 発表標題 魚歯/骨片化石のネオジム同位体比から推察した日本海の閉閉史: 北海道・東北本州弧のテクトニクスとの関連性
3. 学会等名 日本地質学会第124年学術大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Boo-Keun Khim, Keiji Horikawa, Yoshihiro Asahara, Ji-Eun Kim, Minoru Ikehara, Jongmin Lee
2. 発表標題 Sediment provenance in the Laxmi Basin of the Arabian Sea during the last 800 kyrs
3. 学会等名 2017 AGU Fall Meeting
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 八木正彦, 松丸国照, 浅原良浩
2. 発表標題 伊豆半島の石灰岩の岩相と年代
3. 学会等名 日本堆積学会 炭酸塩コロキウム2018 in 天草
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 Khim, B.K., Kim, J.E., Horikawa, K., Ikehara, M., Asahara, Y., Lee, J.M.	4. 発行年 2019年
2. 出版社 Springer, Cham	5. 総ページ数 188
3. 書名 Orbital-Scale Paleoclimatographic Response to the Indian Monsoon in the Laxmi Basin of the Eastern Arabian Sea	

〔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	長島 佳菜 (Nagashima Kana) (90426289)	国立研究開発法人海洋研究開発機構・地球環境部門(地球表層システム研究センター)・技術研究員 (82706)	

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	藤木 徹一 (Fujiki Tetsuichi) (30598248)	国立研究開発法人海洋研究開発機構・地球環境部門(地球表層システム研究センター)・主任技術研究員 (82706)	

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			
韓国	韓国地質資源研究院			