

平成 21 年 6 月 11 日現在

研究種目：若手研究 (B)

研究期間：2006～2008

課題番号：18710019

研究課題名 (和文) 放射性炭素を指標とした陸起源有機物の年齢の定量化

研究課題名 (英文) ACCURATE DATING OF RIVERINE PARTICULATE ORGANIC MATTER

研究代表者

乙坂 重嘉 (OTOSAKA SHIGEYOSHI)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・原子力基礎工学研究部門・研究職

研究者番号：40370374

研究成果の概要： 北西部北太平洋および北東部日本海沿岸域への陸起源物質の主な供給源として考えられる主要河川で、河川水中の懸濁物および河川底堆積物を採取し、陸起源粒子状有機物 (陸起源 POM) 中の放射性炭素同位体比の地理的な分布を明らかにした。本研究で得たデータは、海水中 POM の分析結果と比較することにより、当該海域における POM の「年齢」の変動因子を推定するとともに、POM 輸送の時間スケールを見積もった。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2006年度	900,000	0	900,000
2007年度	1,300,000	0	1,300,000
2008年度	400,000	120,000	520,000
総計	2,600,000	120,000	2,720,000

研究分野：化学海洋学

科研費の分科・細目：環境学・環境動態解析

キーワード：物質循環、沿岸域、粒子状有機物、放射性炭素、河川、日本海、北西部北太平洋

1. 研究開始当初の背景

海洋における粒子状有機物 (POM) には、海洋生物の活動の結果生産されるもの (海洋生物起源 POM) と、陸起源のもの (陸起源 POM) がある。海洋生物起源 POM は、大気-海洋間のガス交換で海水中に取り込まれた無機態炭素を海洋生物が有機化したもので、海洋生物起源 POM の深海への急速な沈降は、海洋生物起源 POM の深海への急速な沈降は、昨今急激に増加しつつある大気中の炭素を深海に効率良く輸送する「生物ポンプ」として有効に働くことが指摘されている。陸起源 POM には、陸上生物によって生産されるものと、産業活動によって人為的に生まれるものが含まれ、河川や大気を経由して海洋に供給される。これらは、海洋生物起源 POM に比

べて分解し難く、比較的長時間にわたって海水柱内を移行する。

海洋における POM は、海洋生物の餌として水産資源を支えているばかりでなく、医薬品の原料など工業資源としても注目されている。その一方で、赤潮をもたらす鞭毛藻類や、汚濁した河川から供給されるヘドロなど、POM そのものが汚染物質として振舞う場合もある。海洋における POM の輸送・蓄積過程を明らかにすることは、海洋にもたらされた汚染物質の行方や、グローバルな環境変動に対する海洋資源量の変化など、POM を取り巻く様々な課題の解決に重要な情報をもたらす。

海水中 POM の「古さ」の指標として、有機物の主成分である炭素の放射性同位体 (^{14}C :

半減期 5,730 年) が利用できる。海洋表層で生物起源 POM に取り込まれた ^{14}C 同位体比は、その生物の死亡時を起点として放射性壊変によって減少する。この ^{14}C 同位体比の減少率は時間の関数で表されるため、理論上、粒子中の ^{14}C 同位体比から POM の「平均年齢」を見積もることができる。しかしながら、陸起源 POM は、海洋に供給された時点で、陸上生物の死後から既にある程度の時間が経過したものであるため、海水中の陸起源 POM について平均年齢を見積もるためには、海洋への供給時の「年齢の初期値」を見積もらなければならない。

すなわち、海水中の POM の「平均年齢」を評価するには、(i) 海洋生物起源 POM の ^{14}C 同位体比、(ii) リザーバー内 POM の ^{14}C 同位体比、(iii) 海洋生物起源 POM と陸起源 POM の存在比、(iv) 陸起源 POM の ^{14}C 同位体比を理解する必要がある。上記の (i) は、大気中の ^{14}C 同位体比と同程度とみなすことができ、(ii) は海洋観測で得られた粒子の ^{14}C 同位体比の測定で、(iii) は (ii) と同時に得られる粒子中の安定炭素同位体比 ($^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$) の測定でデータが得られる。これらに対して、(iv) に関する情報はほとんど得られておらず、対象海域への POM の供給源についての情報を系統的に取得する必要がある。

2. 研究の目的

北西部北太平洋および北東部日本海は、高い生物生産性を持つことから、わが国における水産環境や、炭素をはじめとする物質の循環に大きな影響を与える。本研究では、これらの海域に流入する主要な河川において、水中懸濁物および河底堆積物を採取し、陸起源 POM 中の ^{14}C 同位体比の分布を明らかにすることを第一の目的とした。

本研究の対象海域では、研究代表者らによって海洋 POM の捕集実験が展開されてきた。これらの海洋性 POM の分析結果を、本研究によって新たに得る陸起源 POM の情報をあわせて解析することにより、当該海域における POM の循環の時間スケールを見積もることを第二の目的とした。

3. 研究の方法

(1) 試料採取

河川試料の採取は平成 18 年 11 月から平成 19 年 5 にかけて実施した。北緯 40 度から 43 度の範囲に河口を持つ主要 10 河川 (石狩川、尻別川、後志利別川、鶴川、沙流川、十勝川、米代川、岩木川、鷹瀬川、馬淵川) に加えて、日本海北東部への物質負荷の影響が大きいと考えられる雄物川、最上川、阿賀野川および信濃川を加えた計 14 河川において、河口付近で河川水 (20~40L) を採取後、濾過し、懸濁粒子試料を得た。河川から供給される平

均的な粒子の情報を得るため、懸濁物採取と同じ観測点で河川底堆積物を採取した。河川水の採取は採水バケツを、河川底堆積物の採取は、橋上から安全に採取できるように改良した簡易採泥器を用いた。

対象の河川では、春季 (融雪期) に流出する粒子が年間の粒子負荷量の 40% 以上を占めることを考慮して、試料採取は 4 月から 5 月に集中的に実施した。一部の観測点では、流量の少ない秋季または晩冬季 (11 月または 3 月) にも試料を採取した。

河川水中の POM は、予め燃焼して有機物を除去したガラス繊維ろ紙上に集めた。懸濁粒子の凝集や分解の影響を最小限にするため、電源、アスピレータ、マニホルダー等を現場に持ち込んで河川水の採取後 5 時間以内には濾過を行った。採取済みの試料は冷凍した状態で随時実験室に輸送した。

(2) 試料分析

得られた POM 試料中の ^{14}C 同位体比は、AMS (加速器質量分析) 法によって分析した。予め塩酸蒸気に晒して無機炭酸を除去した粒子試料 40~100 mg (乾重量) を、酸化剤と共に石英管内に封入後加熱酸化し、二酸化炭素ガスとした。続いて、専用のガラス製反応管内に二酸化炭素化した試料と水素を封入し、加熱還元させた。得られたグラファイト (炭素) 試料を AMS 測定用のターゲットに圧着させ、原子力機構青森研究開発センターのターゲットロン AMS で放射性炭素同位体比 ($^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$) を計測した。二酸化炭素ガス試料の一部は、気体測定用質量分析装置に導入し、安定炭素同位体比 ($^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$) を測定した。粒子試料中の有機炭素濃度は、CHN 元素分析計によって計測した。

(3) データ解析

AMS 測定によって得た河川水中懸濁物および河川底堆積物の $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比および $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比から、放射性炭素年代の指標となる $\Delta^{14}\text{C}$ 値と、同位体分別の程度を示す $\delta^{13}\text{C}$ 値を算出した。さらに、北西部北太平洋および北東部日本海の各海域について、対象河川からの POM 負荷量で重み付けをした $\Delta^{14}\text{C}$ の加重平均値を算出した。各河川からの流量および懸濁粒子濃度は、国土交通省が公開する「水文水質データベース」 (<http://www1.river.go.jp/>) のデータを用いた。

4. 研究成果

(1) 河川 POM の $\Delta^{14}\text{C}$ 値の地理的分布

各河川における、懸濁態 POM の $\Delta^{14}\text{C}$ 値を図 1 に示す。 $\Delta^{14}\text{C}$ 値は -720‰ (沙流川) から +27‰ (米代川) の範囲で、河川底堆積物の $\Delta^{14}\text{C}$ 値は -410‰ (沙流川) から +40‰ (米代川) の範囲であった。春季に沙流川の懸濁態 POM でみ

られた著しく低い $\Delta^{14}\text{C}$ 値を除けば、懸濁物と表層堆積物の $\Delta^{14}\text{C}$ 値は $\pm 50\%$ 以内で一致した。北海道の太平洋岸に注ぐ河川(鶴川、沙流川、十勝川)では、流量の少ない秋季に比べて、流量が増加する春季(4月~5月)の $\Delta^{14}\text{C}$ 値が低かった。融雪による流量増加の効果が大きな河川では、融雪期の粒子輸送が、より $\Delta^{14}\text{C}$ 値の低い(古い)POMを沿岸域に流出させたものと推測される。

各河川からのPOM負荷量で重み付けをした $\Delta^{14}\text{C}$ の加重平均値は、北西部北太平洋で $-314 \pm 54\%$ 、北東部日本海で $-86 \pm 14\%$ であった。この結果から、河川によって沿岸域に運ばれるPOMの「見かけの年齢」は、太平洋側で2,400~3,800年、日本海側で640~990年程度であると見積もられた。

$\Delta^{14}\text{C}$ 値と同様の方法で見積もった河川POM中の $\delta^{13}\text{C}$ の加重平均値は、太平洋側で $-26.1 \pm 1.2\%$ 、日本海側で $-26.3 \pm 0.5\%$ で、一般的な陸上植物の値と同程度であった。

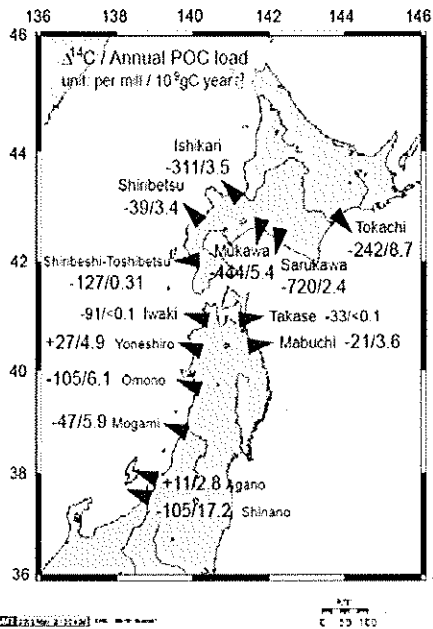


図1. 北日本の主要14河川における、懸濁態POMの $\Delta^{14}\text{C}$ 値(‰)と年間POM負荷量(10^9 炭素/年)。

(2) 海水中POMの見かけの年齢の変動因子

図2に、3種類の海洋性POM(海水をろ過して得た懸濁態POM、海底堆積物中のPOM、セジメントトラップで捕集した沈降POM)の $\delta^{13}\text{C}$ 値と $\Delta^{14}\text{C}$ 値との関係を示した。

北西部北太平洋(図2a)において、海洋性POMは、陸起源POM(本研究で実測)と海洋生物起源POM($\delta^{13}\text{C}$ 値は周辺海域の表面水温から推定、 $\Delta^{14}\text{C}$ 値は有光層における溶存無機炭酸の $\Delta^{14}\text{C}$ 値から推定)の理論混合線(図中の濃色部分)上にプロットされた。対象海域の海水柱内でのPOMの経過時間は、図中の理

論混合線からの $\Delta^{14}\text{C}$ 値のずれとして表れると予想されたが、図2aに示した結果からは、有意なずれは観測されなかった。

先に述べたとおり、図2aに示した海洋POMのデータは、主に水深500m以浅の海域で得られたものであることを考慮すると、浅海域では、陸起源POMと海洋生物起源POMは素早く(少なくとも ^{14}C 年代の誤差範囲内で)混合し、外洋へと輸送されていることがわかった。

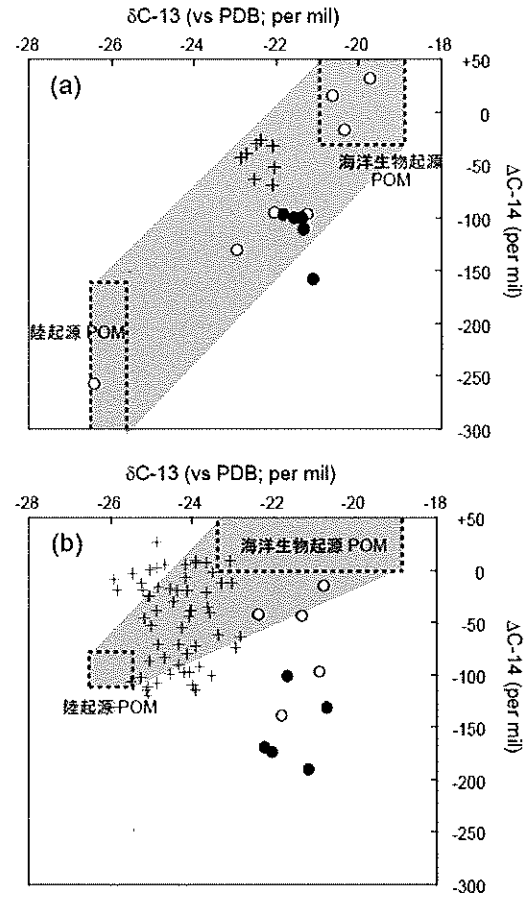


図2. 北西部北太平洋(a図)と北東部日本海(b図)における、海水中的懸濁態POM(○)、海底堆積物中POM(●)および沈降POM(+) $\Delta^{14}\text{C}$ 値と $\delta^{13}\text{C}$ との関係。陸起源POMと海洋生物起源POMは、とりうる値の範囲を点線で示した。

北東部日本海(図2b)では、沈降POMおよび有光層内で得られた一部の懸濁態POMは、陸起源POMと海洋生物起源POMの理論混合線上にプロットされたものの、深海域で得られた懸濁態POMと堆積物は、混合線より高 $\delta^{13}\text{C}$ ・低 $\Delta^{14}\text{C}$ 側にプロットされた。この海域では、堆積物や懸濁粒子中のPOMが、同海域・同水深で得られる沈降POMに比べて有意に低い $\Delta^{14}\text{C}$ 値と高い $\delta^{13}\text{C}$ 値を持っていた(図2bおよび3)。この特徴から、(i)懸濁態POMや堆積物中のPOMが十分な時間をかけて変

質（例えば、脂質や腐植物質といった難分解性で低い $\delta^{13}\text{C}$ 値をもつ POM の無機化など）を受けていることと、(ii) 海水中 POM に占める「新鮮な」沈降 POM の割合は十分に小さいことが示唆された。

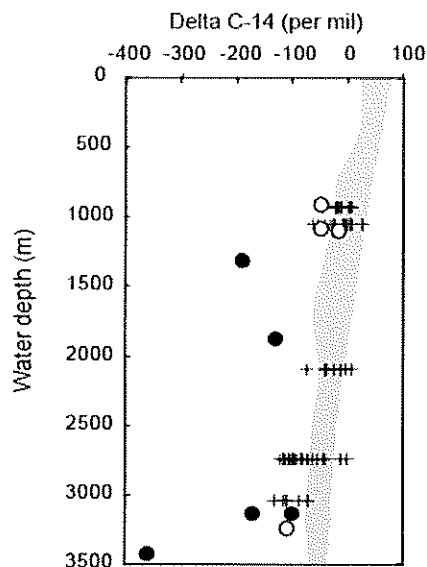


図 3. 日本海における、海水中の懸濁態 POM (○)、海底堆積物中 (●) および沈降 POM (+) の $\Delta^{14}\text{C}$ 値の鉛直分布. 濃色部分は無機炭酸の $\Delta^{14}\text{C}$ (海水の年齢の指標) を示す.

(3) 日本海における POM の輸送速度

日本海の 5 観測点で得られた海底堆積物 (0-1 cm 層) の $\Delta^{14}\text{C}$ 値は、その堆積物が得られた水深とは有意な関係が見られない (図 3)。その一方で、堆積物中の $\Delta^{14}\text{C}$ 値を縦軸に、堆積物を採取した観測点の陸棚縁辺 (観測点と至近の 200 m 等深線) からの水平距離を横軸にプロットすると、日本列島に近い 4 観測点でのデータが同一の直線上に位置し、その切片 ($\Delta^{14}\text{C} = -79$) は、北部日本列島陸起源の POM が持つ $\Delta^{14}\text{C}$ 値と一致した (図 4)。

上記の結果は、日本列島起源の POM が、陸棚域の堆積物に一旦取り込まれた後、海底-海水境界を通過して海盆中央部に向かって水平輸送されたと考えれば説明が可能である。この考えが正しいとすると、図 4 に示す直線の傾きが -0.56‰/km (約 4.5年/km) であることから、海底付近での POM の水平輸送速度は、年間に約 220 m であると見積もられる。この速度は、陸起源 POM のみならず、POM を媒体として深海域を移動する陸起源物質の輸送速度をも間接的に示すものと考えられる。

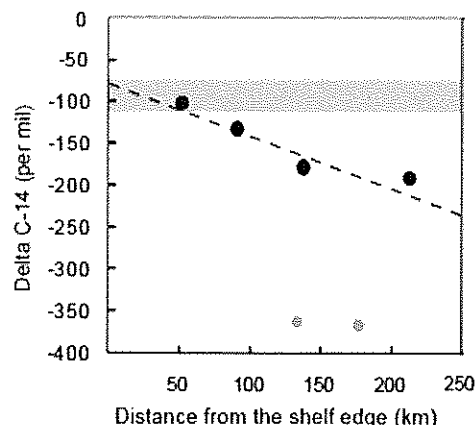


図 4. 日本海における堆積物中の $\Delta^{14}\text{C}$ 値と、堆積物を採取した観測点の陸棚縁辺からの水平距離との関係. 濃色部分は、本研究で明らかにした陸起源 POM (日本海側) の変動範囲.

(4) まとめと今後の展望

本研究では、日本列島の主要河川から海洋に流出する陸起源 POM の「平均年齢」を定量化し、得られた結果から、対象海域における陸起源物質の輸送速度を見積った。本研究で得た成果は、陸起源物質 (特に難溶解性有機物質) の海洋内部での輸送過程に時間スケールを与えたという意味で、極めて重要なものであるといえる。

本研究では、研究体制や期間等の制約により、北日本の主要河川のみを調査対象としたが、本研究で確立した手法・条件を他の地域に展開することにより、より一般性の高いデータベースを構築することが今後の課題である。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 2 件)

- ① Otosaka, S., T. Tanaka, O. Togawa, H. Amano, E.V. Karasev, M. Minakawa, S. Noriki: Deep sea circulation of particulate organic carbon in the Japan Sea. *J. Oceanogr.* 64, 911-923 (2008), 査読有.
- ② 乙坂重嘉, 田中孝幸, 外川織彦, 天野光: 日本海および青森周辺海域における粒子状有機物の循環過程. *JAEA-Conf.* 2008-003, 67-70 (2007), 査読無.

[学会発表] (計 5 件)

- ① 乙坂重嘉: 海洋における粒子状物質の輸送過程 -海の中でもものがどう運ばれるか-. 第 4 回むつ海洋・環境科学シンポジウム~若手研究者からのメッセージ~, むつグランドホテル(青森県むつ市), 2008 年 11 月 7 日.
- ② Otosaka, S., T. Tanaka, O. Togawa, H. Amano, M. Minakawa, B.-K. Khim, S. Noriki: Timescale of POC cycle in the Japan Sea. 2008 Ocean Sciences Meeting,

2008年3月3日, オレンジカウンティコンベンションセンター (米国フロリダ州オーランド市) .

- ③ 乙坂重嘉, 田中孝幸, 外川織彦, 天野光. 日本海および青森周辺海域における粒子状有機物の循環過程. 第1回JAEAタンデトロンAMS利用報告会. むつ科学技術館 (青森県むつ市), 2007年11月14日.
- ④ 乙坂重嘉, 田中孝幸, 天野光, 外川織彦, 乗木新一郎, 皆川昌幸. 粒子状有機物の「見かけの年齢」の変動因子. 2007年度日本海洋学会秋季大会, 琉球大学 (沖縄県中頭郡), 2007年9月27日.
- ⑤ 乙坂重嘉, 田中孝幸, 外川織彦, 天野光, 乗木新一郎, 蒲正人, 皆川昌幸. 日本海における粒子状有機物の輸送・循環過程. 2006年度日本海洋学会秋季大会, 名古屋大学 (愛知県名古屋市), 2006年9月28日.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

乙坂 重嘉 (OTOSAKA SHIGEYOSHI)
独立行政法人日本原子力研究開発機構・原子力基礎工学研究部門・研究職
研究者番号: 40370374