

機関番号：13901

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2008～2010

課題番号：20310007

研究課題名(和文)

天池堆積物の高分解能解析による過去5万年間の大気中の炭素14濃度変化の解明

研究課題名(英文) Atmospheric radiocarbon variation during the past 50 ka by the high-resolution analysis of heaven lake sediment

研究代表者：

北川 浩之 (KITAGAWA HIROYUKI)

名古屋大学・環境学研究科・教授

研究者番号：00234245

研究成果の概要(和文)：中国東北部黒龍江省・内モンゴル自治区の山頂火山湖(中国語で「天池」という)の堆積物コアから高精度の気候変動シグナルを解読し、炭素14年代較正曲線の時間分解能を高めることを最終ゴールとした。堆積物に気候変動記録を高い時間分解能で解読する目的で、自動UV画像解析装置、レーザ誘起ブレイクダウン分光分析装置を開発した。天池には均質な堆積物が堆積しており気候変動シグナルの解読には至らなかった。韓国・KIGAM及び米国UCI-KCCAMSと協力してAMS<sup>14</sup>C測定の高度化を図った。現在、0.05～0.3 mgの炭素を含む試料の高精度な炭素14測定を確実に行うことが可能となった。本研究では、天地の堆積物からの炭素14年代較正曲線の高精度化に繋がるデータの新たな取得は今後の課題とした。既存のデータを入力とした地球規模炭素循環モデルを作成し、大気と海洋の炭素14濃度の違い相互の変動の違いについて検討した。海洋試料からの炭素14年代較正曲線の問題点が明らかになった。

研究成果の概要(英文)：To investigate the <sup>14</sup>C variations in atmospheric CO<sub>2</sub> (<sup>14</sup>CO<sub>2</sub>) during the past 50 ka, we had a high-resolution analyses of the heaven lake sediments from Heilongjiang and Inner Mongolia, northeastern China. We focused on three subjects in this research; (1) development of analytical methods for reading out climatic signals from the heaven lake sediments with a high-temporal resolution, (2) establishment of high-precision AMS <sup>14</sup>C measurements for small-size sample and enhancement of sample preparation throughput and (3) numerical model experiments for reconsidering the atmospheric <sup>14</sup>CO<sub>2</sub> changes and marine response on atmospheric changes for <sup>14</sup>CO<sub>2</sub>.

We have developed the system of automatic UV-image analyze and laser-induced breakdown spectroscopy (LIBS) for sediment core analysis. Although we applied newly developed method to the heaven lake sediments, we need more experiments for detecting climatic signals. With a collaboration with UCI-KCCAMS (USA) and KIGAM (Korea), we developed an automatic preparation system for AMS <sup>14</sup>C measurement (for >0.3 mg C) and established a technique for extremely small samples (0.07~0.3 mg C). We are planning to apply these techniques developed to the other lake sediments. Finally we modified a global carbon cycle model, and discussed about the <sup>14</sup>C response of atmospheric <sup>14</sup>CO<sub>2</sub> changes on marine reservoir using the available data set.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	8,300,000	2,490,000	10,790,000
2009年度	4,500,000	1,350,000	5,850,000
2010年度	1,700,000	510,000	2,210,000
総計	14,500,000	4,350,000	18,850,000

研究分野：同位体地球化学・気候変動解析

科研費の分科・細目：環境学・環境動態解析

キーワード：炭素14、天池、湖沼堆積物、炭素循環、編年

## 1. 研究開始当初の背景

地球システムの変動は地球規模の炭素循環とカップリングしている。大気中の二酸化炭素の炭素 14 濃度（以後、「 $^{14}\text{CO}_2$ 」という）は地球規模の炭素循環の状態により影響を受け、大気中の  $^{14}\text{CO}_2$  の経年変化を過去に遡って明らかにすることができれば、地球システム変動の歴史を検討することが可能と考えられる。

$^{14}\text{CO}_2$  の経年変化を調べる試みは、多くの研究グループによって行われてきた。申請者らは、世界に先駆け、福井県水月湖の年縞堆積物（堆積過程の季節変化が乱されることなく記録されている堆積物）から過去 4 万 5 千年間の大気中の  $^{14}\text{CO}_2$  経年変化（Kitagawa and van der Plicht, 1998, Science 279）を高い時間分解能をもって明らかにした。その後、鍾乳石やサンゴ化石などから大気中の  $^{14}\text{CO}_2$  の経年変化を調べる研究が行われたが、未だ、26,000 年前（以後、「26,000 cal BP」と記す）に関しては研究者間で一致した見解は得られていない。現状では海洋から採取された試料であるサンゴ化石や深海底堆積物の有孔虫から得られた  $^{14}\text{CO}_2$  の経年変化から大気中の変化を推定しているが、海洋と大気中の  $^{14}\text{CO}_2$  の違いの補正に不確かさが残され、さらに炭素リザーバのサイズが大きい海洋の  $^{14}\text{C}$  の経年変化は地球システムの急激な変化には応答しない欠点がある。地球規模の炭素循環に敏感な大気中の  $^{14}\text{CO}_2$  経年変化を高い時間分解能で推定するためには、大気中の  $^{14}\text{CO}_2$  をダイレクトに反映する陸域植物試料を用いるのが望ましい。

## 2. 研究の目的

本研究では、湖沼堆積物に記録された地球規模の気候シグナルを解読し、氷床コア等の暦年代スケールを備えた気候変動パターンと関連づけることで炭素 14 年代とは独立な堆積編年を定め、同堆積物に関して大気中の  $^{14}\text{CO}_2$  をダイレクトに反映する陸域植物試料の炭素 14 を高時間分解能で行なうことで、過去の大気中の  $^{14}\text{CO}_2$  を短期の変化（揺らぎ）を探ることを目標とした。

## 3. 研究の方法

本研究を実施するために必要な重要な課題として、次の 3 つを実施した。

- (1) 堆積物コアに記録された気候変動の定量的・高時間分解能な記録の解読方法の検討
- (2) 高精度炭素 14 年代測定法の確立（微量試料の年代測定法の確立）
- (3) 簡易炭素循環モデルを作成し、大気中の  $^{14}\text{CO}_2$  変化の海洋への応答に対する検討

具体的には、中国黒龍江省・五大連池火山群・南格粒球山の天池の堆積物（平成 18～19

年度海外学術研究で採集）の炭素 14 年代測定を高密度に行い炭素 14 年代編年を求め、さらに堆積物に記録されている気候変動シグナルを解読してグリーンランドの氷床コア（GISP2）の気候変動シグナルと関連づけ炭素 14 年代とは独立に堆積年代を決定し、両編年を対比することで以前の大気中の二酸化炭素の  $^{14}\text{CO}_2$  の経年変化を調べる。さらに、堆積物から得られた気候変動と  $^{14}\text{CO}_2$  経年変化を地球規模の炭素循環モデルの入力として、氷期の炭素循環、短い期間の急激な気候変動について考察する。

## 4. 研究成果

本研究で得られた成果、堆積物コア解析技術等について以下に簡潔にまとめ、今後の研究の展開について述べる。

### (1) 高時間分解能のコア解析技術の開発

本研究では、堆積物から高い時間分解能で気候変動シグナルを解読する目的で 3 つの方法（UV-image analysis, LA-ICPMS, LIBS）を検討した。紫外線（UV）で堆積物コアを照射して得られる画像を解析することで、堆積物中の有機成分組成の変動や生物種固有の有機物を検出する自動画像解析装置（UV-image analysis）を開発した。天池で採集した堆積物の分析を行なった結果、気候変動と関連すると解釈される長周期の変動は確認できたが、堆積物中で移動しない成分（画像解析をして得られる波長）を特定が困難で、堆積速度が小さく（約 30 cm/年）、有機物含有量が小さい天地堆積物では、気候シグナルの詳細な解読が困難であった。UV-image analysis 法は全ての堆積物に適用できるわけではなく、気候変動により生物生産が応答する堆積物、長期の湖沼環境の変化を探るには有効であると思われるが、天池の積物から気候シグナルを解読するにはさらなる方法論的な検討が必要である。LA-ICPMS を用い（本研究で Nd-YAG 4 倍波長レーザを使ったアブレーション装置（分解能約 20  $\mu\text{m}$ ）を設計・開発）、天池の堆積物の金属元素を試験的に測定した。天池の堆積物の主要な供給源は風成塵であり、過去数万年間では顕著な変化が認められなかった（本研究成果については、技術開発の側面から論文を作成中）。本研究で開発したレーザアブレーションと小型分光形を使いレーザ誘起ブレイクダウン分光（LIBS）分析装置を開発（制御プログラム、分光計とレーザのインターフェースを開発）した。光学系をより厳密に調整できれば、堆積物コアの元素組成を、ppm オーダの感度で、20～30  $\mu\text{m}$  の分解能を持って測定できることが確認できた。本装置を用い天地堆積物の元素分析を行った結果、定量性には問題が残されるが、

Ti/Si, Al/Si (Si は基準化のため測定) には気候変動と関係すると考えられる変動が見られた。データのキャリブレーションを行い、金属元素の組成変化と気候変動の関係を明らかにするのは今後の課題である。

## (2) 堆積物コアの高精度年代測定技術

天地堆積物には、過去の大気中の  $^{14}\text{CO}_2$  をダイレクトに反映する陸域植物試料が含まれることは稀である (内モンゴル自治区の山頂火山湖の湖底から採集したコアの堆積物を篩にかけ有機物片を分離したが、1 mm 以上のサイズの有機物片は平均 0.5 試料/m)。高精度の年代測定を行なうために、微量試料の炭素 14 年代測定法の確立が必要となった。微量測定について実績がある UCI-KCCAMS の J. R. Southern 博士の協力を得て、50  $\mu\text{g}$  程度の炭素試料でも 4 万年前まで遡って試料の炭素 14 年代測定が可能となった。図 1 は試料の処理段階の外来炭素の混入が 0.4  $\mu\text{g}$  程度であることを示している。本研究で行なった分析技術開発で、試料のサイズの制限で年代決定できなかった堆積物コアについても高い精度での年代決定が可能となった (現在、天地堆積物の高分解能な年代測定を実施中)。最近 AMS の高精度化に伴い多数の試料の測定が可能となっている。このような状況で効率的な試料調整法の確立が望まれている。本研究では、微量試料の処理方法の開発と合わせて自動処理装置の開発を行なった (Nagasawa et al., 投稿中)。

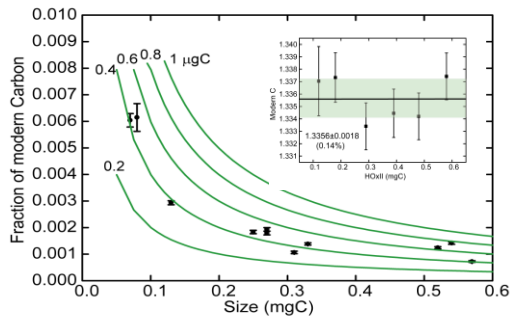


図 1 : 微量試料の炭素 14 年代測定. 炭素 14 を含まない試料の測定結果

## (3) 地球規模炭素循環モデルを使った大気中の炭素 14 変動に関する実験

大気中の  $^{14}\text{CO}_2$  は宇宙線強度 ( $^{14}\text{C}$  の生成率) と地球規模の炭素循環の変化によって変化することが知られている。 $^{14}\text{C}$  に関する地球規模の循環モデルを作成し、海洋試料からのデータをもとに求められた大気中の  $^{14}\text{CO}_2$  の変動の問題点や、大気中の  $^{14}\text{CO}_2$  変化に対する海洋の  $^{14}\text{C}$  の応答について検討した。本研究で構築した簡易モデル (概念図は図 2) は、定量的な議論をするには適していないが、気候

変動に伴う大気中の  $^{14}\text{CO}_2$  の応答についての傾向を探ることが可能である。

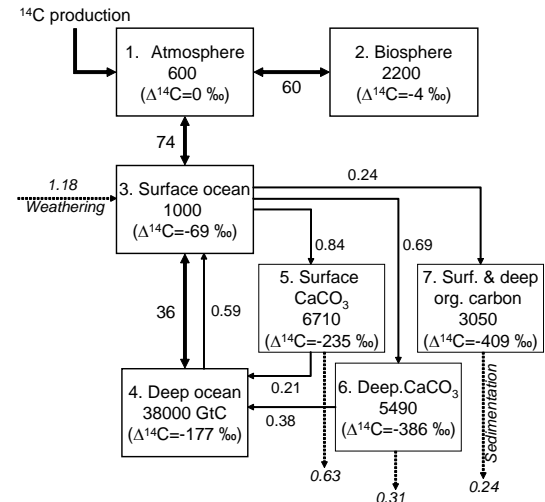


図 2 : 炭素 14 に関する地球規模の循環モデルの概念図

図 3 は、大気—海洋間の二酸化炭素の交換、海洋循環の変動に対して、大気と海洋の  $^{14}\text{C}$  変化について検討した結果を示す。気候変動に伴い大気中の  $^{14}\text{CO}_2$  が大きく変化し、海洋と大気の  $^{14}\text{C}$  の差が変化することが示されている。海洋試料からのデータをもとに求められた大気中の  $^{14}\text{CO}_2$  の変動は、大気中の  $^{14}\text{CO}_2$  をダイレクトに反映する陸域植物試料を用いその信頼性を検証していく必要があることが明らかである。また、大気中の  $^{14}\text{CO}_2$  を求めることができれば、大気と海洋の  $^{14}\text{CO}_2$  の違いから気候変動に伴う海洋の変化等についての重要な知見が得られるものと考えられる (他のモデル実験の結果に関しては省略)。

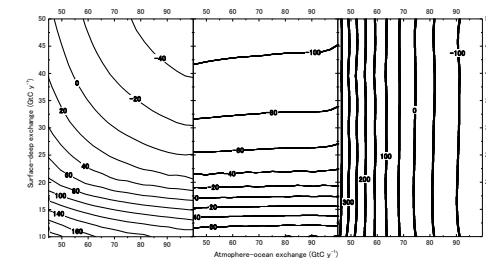


図 3. 大気—海洋二酸化炭素の交換と海洋の循環の変化による炭素 14 の変動

## (4) 今後の展望

本研究では、最終ゴールである過去の大気中の  $^{14}\text{CO}_2$  の解明まで至らなかったが、本研究で開発した技術は他の湖沼で得られた堆積物コアに適用可能である。今後、本研究で行なった研究開発の成果を、琵琶湖、Bien Ho lake (今年度日本・ベトナムの共同研究とし

て堆積物採集を計画している)等の湖沼堆積物に応用すれば、過去の大気中の<sup>14</sup>C<sub>2</sub>の変化を明確にできると考えられる。

#### 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 8 件, 査読有りのみ抜粋)

- ① 竹村恵二・岩部智紗・林田明・檀原徹・北川浩之・原口強・佐藤智之・石川尚人: 琵琶湖における過去 5 万年間の火山灰と堆積物. 第四紀研究 49(3), 147-160, 2010.
- ② M. S. Tareq, H. Kitagawa and K. Ohta: Lignin biomarker and isotopic records of paleovegetation and climate changes from Lake Erhai, southwest China, since 18.5 ka BP, Quaternary International 229, 47-56, 2010.
- ③ H. Kitagawa, J. Lim, K. Takemura, A. Hayashida, T. Haraguchi: Radiocarbon content of lignin-enriched fraction in core sediment from Lake Biwa, central Japan. Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B 268, 1077-1079, 2010.
- ④ B. Chen, H. Kitagawa, K. Hu, DM. Jie, JP Yang, JM. Li: Element and mineral characterization of dust emission from the saline land at Songnen Plain, Northeastern China. Journal of Environmental Science-China 21(10), 1363-1370, 2009.
- ⑤ LP. Zhu, XL. Zhen, JB. Wang, HY. Lu, MP. Xie, H. Kitagawa, G. Possnert. A similar to 30,000-year record of environmental changes inferred from Lake Chen Co, Southern Tibet. Journal of Paleolimnology 42(3), 343-358, 2009.
- ⑥ M. Makohonienko, H. Kitagawa, T. Fujiki, X. Liu, Y. Yasuda and H. Yin: Late-Holocene vegetation changes and human impact in the Changbai Mountains area, Northeast China. Quaternary International 184, 94-108, 2008.
- ⑦ H. Miyahara, K. Nagaya, K. Masuda, Y. Muraki, H. Kitagawa and T. Nakamura: Transition of solar cycle length in association with the occurrence of grand solar minima indicated by radiocarbon content in tree-rings. Quaternary Geochronology 3(3), 208-212, 2008.
- ⑧ B. Chen, H. Kitagawa, D. Jie, K. Hu, J. Lim: Dust transport from the northeastern China inferred from

carbon stable isotopes of atmospheric dust carbonate Atmospheric Environments, 42(19), 4790-4796, 2008.

[学会発表] (計 4 件, 国際学会の発表抜粋)

- ① S. Nagasawa, H. Kitagawa, T. Nakanishi S. Tanabe: Newly developed automatic graphitization system for AMS <sup>14</sup>C measurements (12<sup>th</sup> AMS Conference, Wellington(NZ), 2011年3月21-25日).
- ② S. Tani, H. Kitagawa and JR. Southorn: High-yield recovery of contamination-free organic matters from plant remains for AMS <sup>14</sup>C measurement (12<sup>th</sup> AMS Conference, Wellington(NZ), 2011年3月21-25日).
- ③ H. Kitagawa and John R. Southorn: CO<sub>2</sub>-laser decomposition method of carbonate for AMS <sup>14</sup>C measurements (12<sup>th</sup> AMS Conference, Wellington(NZ), 2011年3月21-25日)
- ④ H. Kitagawa: Maar sediments on Cheju Island as achieve of the past atmospheric circulations over East Asia. International Symposium for the preservation/restoration of the Hanon maar (Cheju, Korea)[Invited, 2010年11月26日]

[図書] (計 3 件)

- ① H. Kitagawa: Lacustrine varves as a dating technique: advantages and disadvantages. The Oxford Handbook of Wetland Archaeology (Edited by M. Francesco), *in press*.
- ② 北川浩之: 土壌・堆積物 「地球化学講座第8巻「地球化学実験法」(日本地球化学会(監修), 田中 剛・吉田 尚弘(編集)) 29-32, 培風館, 2010
- ③ 北川浩之: 関連科学と縄文研究「放射性炭素年代測定」, 縄文の考古学 XII 研究の行方—何がわからなくて何をすべきか (小杉康・水ノ江和同, 谷口康浩, 矢野健一, 谷口泰民編) 125-135, 同成社, 2009.

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

名称:  
発明者:  
権利者:  
種類:  
番号:  
出願年月日:

国内外の別：

○取得状況（計 0 件）

名称：

発明者：

権利者：

種類：

番号：

取得年月日：

国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

北川 浩之 (KITAGAWA HIROYUKI)

名古屋大学・大学院環境学研究科・教授

研究者番号：00234245

### (2) 研究分担者

竹村 恵二 (TAKEMURA KEIJI)

京都大学・理学(系)研究科(研究院)教授

研究者番号：00201608

### (3) 連携研究者

海外連携研究者

①Professor Wan Hong: Korea Institute of  
Geoscience and Mineral Resources (KIGAM),

②Dr. John R. Southen: UCI KCCAMS Facility