

B-7 北太平洋の海洋表層過程による二酸化炭素の吸収と生物生産に関する研究

(1) 海洋炭酸系測定の高度化に関する研究

②全炭酸・アルカリ度の測定間誤差要因の解明

経済産業省 産業技術総合研究所資源環境技術総合研究所
環境影響予測部 海洋環境予測研究室 原田 晃、渡辺 豊、鶴島 修夫
環境影響予測部 水野 光一

平成8～12年度合計予算額 8,939千円

(うち、平成12年度予算額 4,553千円)

[要旨] 主に太平洋の海水中の全炭酸とアルカリ度の測定を行っている研究機関の間で1999年と2000年の二回にわたって相互検定を行った。全炭酸は各研究機関とも高精度な分析を行っているが、初年度は報告値に系統的な差違があった。これは検定方法の問題とみられる。次年度には改善され、ほぼ目標の範囲内に収まった。アルカリ度については、初年度はばらつきが大きく測定方法に問題を残していたが、次年度には改善され、参照物質の保証値を用いて補正することでほぼ目標の範囲内に収まった。いずれの測定でも、変動要因をキャンセルするために、試料と同時に参照物質を随時測定することが推奨された。

[キーワード]全炭酸、アルカリ度、海水、相互検定

1. はじめに

海洋は人為起源二酸化炭素の吸収源であり、大気中に年々放出される化石燃料起源の二酸化炭素(約6.5Gt/年)のおよそ40%である年間約2Gtの炭素を吸収している。モデルでは、2000年代中盤に4GtC/年程度まで海洋の二酸化炭素吸収が増加し、その後減少に転ずると予測された。海洋・大気観測のデータ蓄積と解析から、地球規模炭素循環の推定精度が高まってきつつあるが、まだ不十分である。現代の炭素循環の正確な解明こそ将来予測の出発点であり、それを旨とする炭素循環研究が世界各国で重点的に進められようとしている。海洋観測から得られる観測量で、モデルの精度向上のために重要な量は、海洋の二酸化炭素吸収量および、その年々変動であり、二酸化炭素のグローバルデータセットの確立と解析が緊急に求められている。わが国は、太平洋を囲む国々の中の先進国であり、各省庁連携体制のもとで、太平洋域の二酸化炭素に関わる海洋観測を積極的に行ってきた。

2. 研究目的

海洋の二酸化炭素吸収速度を評価する最も直接的な方法は、海水中の二酸化炭素濃度を測定し、その年々変動を検出することである。海水中の二酸化炭素濃度はおよそ2000 $\mu\text{mol/kg}$ であり、二酸化炭素を吸収することで毎年増加する量は表面海水でおよそ2 $\mu\text{mol/kg/年}$ であるため、0.1%の精度、正確さで測定を行わなければならない。また、海洋は大気と比べて場所・深さによる変動が大きく不均一であるため、様々な海域で同時期に観測を行うことが必要となる。このため、世界各国の複数の研究機関がそれぞれの近隣海域(日本であれば西部北太平洋)を中心に

調査を行っているのが現状である。全海洋の吸収速度を見積もるにはこれらの複数機関のデータを統合して解析しなければならない。しかしながら、上記のような 0.1% の測定精度は現在開発されている測定方法で出せる限界に近く、研究機関ごとの微妙な方法の差違により有意な測定誤差が生じる可能性は否定できない。国内・国際的に広くデータ統合を行う場合、測定値間に系統誤差が存在すると、解析する際に問題が生ずる。そのため、機関間の値の偏差を明らかにする相互検定が必要である。本研究課題では主に太平洋観測に携わっている世界各国の研究機関と国内の研究機関とで、全炭酸・アルカリ度の標準試料を用いた相互検定を行った。

3. 研究方法

1999 年と 2000 年に一回ずつ、全炭酸・アルカリ度測定の研究機関相互検定を行った。全炭酸は海水中の溶存二酸化炭素の全量を表し、アルカリ度は炭酸カルシウムの生成・溶解によって変化する炭酸量の指標となる。この二つを組み合わせることで二酸化炭素分圧と pH の算出も可能であり、両方を正確に測定することが必要である。

経緯

本相互検定実験は、PICES (North Pacific Marine Science Organization) 各国の研究機関が、共通の海水試料を分析することで、各国の海水二酸化炭素分析の正確さを確保し、北太平洋の炭素循環観測の推進とそのデータ集約に役立てるの目的で行ったものである。本実験は、1998 年 10 月 14-15 日 PICES 総会 (アラスカ、フェアバンクス) における WG13 会合で提案された。

以前に行われた主な相互検定実験

- 1 回目 20 ボトルを 3 研究室に送り、1 日 2 本ずつ 10 日にわたり分析した。
各研究室それぞれの再現性の検定を含むもの。
主としてクーロメータであったが違う方法もあった。
- 2 回目 SOMMA を有する 5 研究室での検定
1900-2400 μM の直線性も調べた。
ガスループによるキャリブレーションには問題があった。

今回の相互検定のねらい

- ・日、米、加の研究機関の観測データ一元化を進めるために、各研究室独自スケールでの測定値と、Dickson/SIO 標準で規格化したときの測定値の報告を受ける。
- ・特に、1999 年に行われる SAGE P1 観測、KNOT 観測、日本の航海での US/CANADA WOCE 測線とのクロスオーバー点での観測、を一元化できるかどうか確認するため、急ぎ 1999 年 4 月までに第一段の結論を得る。
- ・今回の相互検定の結果で、とりあえず国内主要機関は Dickson/SIO 標準で規格化されたことになる。
- ・各研究室の分析精度の確認も行うために、精度を議論できる繰り返しボトル数とする。
- ・将来すすめる ^{13}C 相互検定に役立つデータを得る。

1999 年相互検定

下記の 4 種類の試料を各研究機関に配布し、測定値を報告してもらい、比較検討を行った。

① 参照物質 Certified Reference Material by SIO (CRM-SIO)

カリフォルニア大学スクリプス海洋研究所の A. Dickson 研究室で作成された参照物質。栄養塩濃度の低い表面海水をサンプリングし、濾過・殺菌した後 500ml のガラスびんに詰めたもの。マノメトリー法（真空脱気・圧力測定）により正確な値付けがなされている。

② 未知試料 (SIO)

同じくカリフォルニア大学スクリプス海洋研究所の A. Dickson 研究室で作成された未知試料。作成方法は CRM-SIO と同じ。

③ 参照物質（北海道大学）

北海道大学地球環境科学研究科化学物質循環講座にて作成された参照物質。作成方法は CRM-SIO に準ずる。

④ 深層水未知試料

西部北太平洋上にて採取した 3000m 深の海水を約 50 l のビニール製バッグに詰め、殺菌・濾過して 500ml ガラスびんに詰めたもの。

参加機関

アメリカ

スクリプス海洋研究所 (SIO)

大気海洋庁

NOAA/PMEL

NOAA/AOML

ワシントン大学(WU)

カナダ Institute of Ocean Science(IOS)

日本

電力中央研究所 CRIEPI

北海道大学 Hokkaido Univ.

海洋科学技術センターJAMSTEC

科学技術振興事業団／国立環境研究所

CREST/KNOT project

気象研究所 MRI

資源環境技術総合研究所／関西総合環境センターNIRE/KEEC

科学技術振興調整費 SAGE project

実施スケジュール

1999 年 2 月

試料配布

4 月中旬

データ報告締め切り

4 月 20-22 日 ワークショップ（つくばにて）

2000年相互検定

1999年の結果を踏まえ、特に研究室間のばらつきが大きかったアルカリ度に焦点を絞って、相互検定を行うこととなった。

下記の4種類の試料を各研究機関に配布し、測定値を報告してもらい、比較検討を行った。

参照物質 Certified Reference Material by SIO (CRM-SIO)

② 未知試料 (SIO)

③ 参照物質 (資源環境研)

資源環境技術総合研究所にて作成された参照物質。作成方法は CRM-SIO に準ずる。

深層水未知試料

参加機関は 1999 年とほぼ同様。

アルカリ度の値を決める要素の一つである滴定用塩酸の濃度を統一するために、SIO で作成・値付けをした塩酸を配布し、これを用いて各機関が測定を行った。

実施スケジュール

2000年 7月	試料配布
9月中旬	データ報告締め切り
10月20日	ワークショップ (つくばにて)

各研究機関の全炭酸測定方法

SIO

方法1. 真空抽出/圧力測定で、面倒ではあるが独立した方法である。

方法2. SOMMA では、ガスループを感度変動チェックに利用、これは試料の均一性検定の際に行う方法である。測定値は CRM で検定。

NOAA/PMEL

SIO 同様の SOMMA でありガスループで評定し CRM でチェックしている。

NOAA/AOML

NOAA/PMEL と全く同じ

IOS

自動操作クーロメトリー、Station P のワーキング海水で評定。

CRIEPI

手動操作クーロメトリー、炭酸ナトリウム6点濃度標準溶液で検定、炭酸ナトリウムで既に評定したワーキング海水もあるので報告形式Aは2種類。

Hokkaido Univ.

手動操作クーロメトリー、炭酸ナトリウムで検定した北海道大学ワーキング海水で評定。

JAMSTEC

自動クーロメトリー、炭酸ナトリウム5点濃度標準溶液で検定する。

CREST/KNOT

紀本自動クーロメトリー、評定法は Hokkaido Univ. と同じ。

MRI

自動クーロメトリー、炭酸ナトリウム標準溶液で検定する。

NIRE/KEEC

自動クーロメトリー、炭酸ナトリウム標準溶液シリーズで検定、検定済みワーキング海水もある。

SAGE

紀本自動クーロメトリー、2濃度炭酸ナトリウム標準溶液で検定。

各研究機関のアルカリ度測定方法

SIO

2ステージオープンセル滴定、120g 海水(25°C)に塩酸 3ml を添加、pH3.6 として 10 分スタートで攪拌して CO₂ を追い出す、さらに塩酸を加えて 20 点の滴定を行い、Glan plot で算定。使用する塩酸は電位差滴定で評定。

NOAA/PMEL

AOML と同様

NOAA/AOML

Millero 1996 に基づき、微量のヘッドスペースは存在するがクロードセルで行う滴定、サンプル量は 200ml、塩酸の検定は CRM 海水で行う。

IOS

NOAA と同様なクロードセル滴定。サンプル量は 200ml、St. P のワーキング海水で評定。塩酸の検定は炭酸ナトリウムで行っている。

CRIEPI

1ステージオープンセル滴定。50ml サンプル。HCl は炭酸ナトリウムで検定、CRM による検定も行っている。

Hokkaido Univ.

1点法、0.1N HCl 15 ml を海水 50ml に加え、pH 変化を測定する。塩酸は炭酸ナトリウムで検定する。

JAMSTEC

1ステージオープンセル滴定。100ml 海水は手動秤取、Glan plot で終点決定。0.1N HCl+NaCl は3濃度の炭酸ナトリウム+NaCl で検定。

CREST/KNOT

紀本式クロードセル滴定、少量のヘッドスペースあり、サンプルは 100ml を恒温サンプルループで秤取する。20 分間に 50 点の滴定を行い記録して、non linear least square fit にて算出。HCl は 0.2N で1濃度の炭酸ナトリウムで検定。

MRI

アルカリ度は測定していない。

NIRE/KEEC

1ステージオープンセル滴定。100ml 海水は手動秤取、Glan plot で終点決定。0.1N HCl+NaCl は1濃度の炭酸ナトリウム+NaCl で検定。

SAGE

紀本式クロードセル滴定（予定）、P1航海では1点法を併用する（予定）。

4. 結果・考察

1999年相互検定

全炭酸

表1に1999年の相互検定における国内5つの研究期間の全炭酸濃度報告値を示す。

表1：1999年相互検定国内研究機関測定結果

各種試料の全炭酸濃度報告値（ $\mu\text{mol/kg}$ ）

	A		B		C		D		E	
CRM-SIO	1987.9	(0.5)	1992.4	(1.1)	1988.1	(1.4)	1996.9	(1.3)	1995.98	(1.1)
未知試料 (SIO)	1985.3	(1.4)	1991.5	(2.1)	1988.3	(0.8)	1995.8	(0.4)	1994.50	(0.5)
RM-北大	2122.1	(0.9)	2126.0	(2.3)	2132.1	(1.6)				
深層水	2326.8	(1.1)	2336.6	(2.1)	2333.5	(0.4)	2336.3	(0.7)	2339.93	(1.7)

カッコ内は標準偏差。

個々の研究機関には4種類の試料を4本ずつ配布した。表のカッコ内に示したのはこの4本の測定値の標準偏差で、最大2.3、ほとんどが $2\mu\text{mol/kg}$ 以内であった。海外を含めたどの研究機関もクーロメータを用いた測定法を採用しており、習熟度も高いため高精度の分析が可能になっていることがわかる。しかしながら、研究機関間の測定値には有意な差があり、 $10\mu\text{mol/kg}$ 以上のずれも認められた。

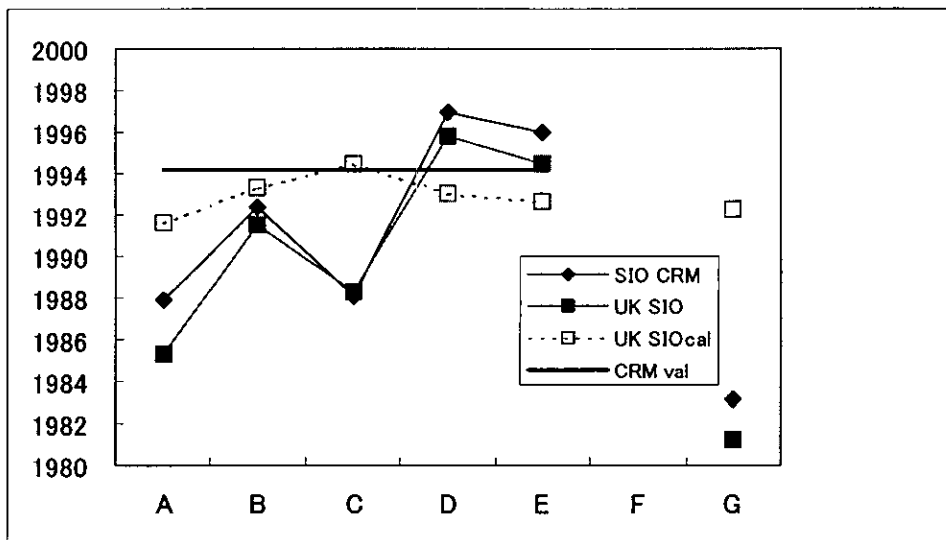


図1：国内研究機関1999相互検定全炭酸測定結果1

図1に国内の研究機関によるSIO-参照物質(SIO CRM)と未知試料(UK SIO)の測定結果を

示す。A～Cは SIO-CRM の保証値(CRM val ; マノメトリーにより測定)に比べて低い値を出しているのに対し、D, E はやや高い値となっている。また、G は著しく低い。この傾向は未知試料 UK SIO についても全く同じである。ここで、SIO CRM の値が保証値になるようにそれぞれの未知試料測定値に係数を掛けると (UK SIO cal)、すべての研究機関の値がほぼ $2 \mu\text{mol/kg}$ 以内に収まることがわかった。この傾向は北大参照物質(HU RM)と深層水 (DSW) についても同じであった (図 2)。これらの結果から、測定自体に大きな問題はないものの、絶対値を決めるための検定方法に問題があることが示唆された。国内の研究機関はいずれも炭酸ナトリウム溶液を検定に用いている。これは高純度の固体炭酸ナトリウムを正確に秤量し、純水に溶かして作成するものであり、大気中の二酸化炭素のコンタミを極力避けなければならないため、作業には熟練を要する。また、固体炭酸ナトリウムの保存中に純度が変わる可能性も否定できない。一方欧米の研究機関は検定にガスループを用いている。これは既知容量のステンレスチューブのループに純二酸化炭素ガスを流し込み、定量するものである。操作は比較的簡単で、純二酸化炭素ガスの変質はまず無いといってよい。その結果、日本の研究機関に見られたようなばらつきはほとんど見られなかった。この結果、ガスループによる検定が推奨される。

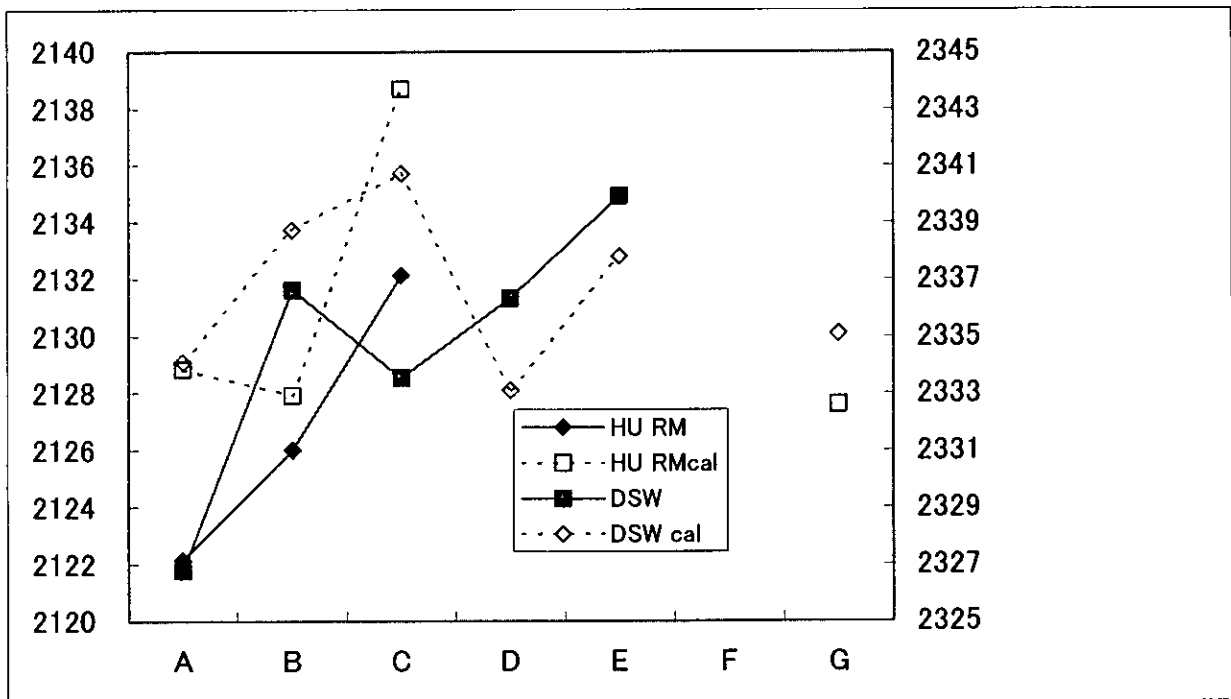


図 2 : 国内研究機関 1999 相互検定全炭酸測定結果 2

<まとめ>

- ・ 各研究機関とも海洋の炭酸吸収能を論じるために必要な高精度分析が可能である。
- ・ 国内研究機関間の絶対値のばらつきは大きく $10 \mu\text{mol/kg}$ 以上であった。
- ・ 検定に問題有り。炭酸ナトリウムの純度、溶液作成手順などの再確認が必要。
- ・ ガスループによる検定が推奨される。
- ・ たとえ検定に問題があっても、SIO CRM かまたはそれに準ずるような参照物質を必ずサンプルと一緒に測定すれば、値の補正が可能である。これは濃度の高い深層水についても適用で

きる。

アルカリ度

表2に1999年の相互検定における国内5つの研究期間のアルカリ度報告値を示す。全炭酸に比べると4本の試料の繰り返し精度が若干劣り、特に研究機関Cは最大で4.5 $\mu\text{mol/kg}$ にも達している。何らかの測定上の問題があったと考えられる。

研究機関間のばらつきはさらに大きく、SIO-CRMの値は最大で約40 $\mu\text{mol/kg}$ のずれが見られた(図3)。

全炭酸と同様にSIO CRMで補正すると、ばらつきはやや小さくなるが、UK SIOの5研究機関のばらつき(標準偏差)は10 $\mu\text{mol/kg}$ であり、求められる正確さには達していない。この傾向はHU RM, DSWでも同様であった(図4)。今回測定に問題があったと思われるCとGを除くどどのサンプルについてもばらつきは3 $\mu\text{mol/kg}$ 程度となった。

表2: 1999年相互検定国内研究機関測定結果

各種試料のアルカリ度報告値($\mu\text{mol/kg}$)

	A	B	C	D
CRM-SIO	2209.4 (0.7)	2180.5 (3.4)	2207.7 (3.2)	2192.4 (1.7)
未知試料(SIO)	2194.7 (1.0)	2164.7 (2.6)	2178.7 (4.3)	2181.4 (0.4)
RM-北大	2184.2 (1.1)	2151.3 (1.0)	2170.9 (4.5)	
深層水	2422.0 (1.3)	2396.6 (0.8)	2417.4 (1.5)	2405.4 (4.1)

カッコ内は標準偏差。

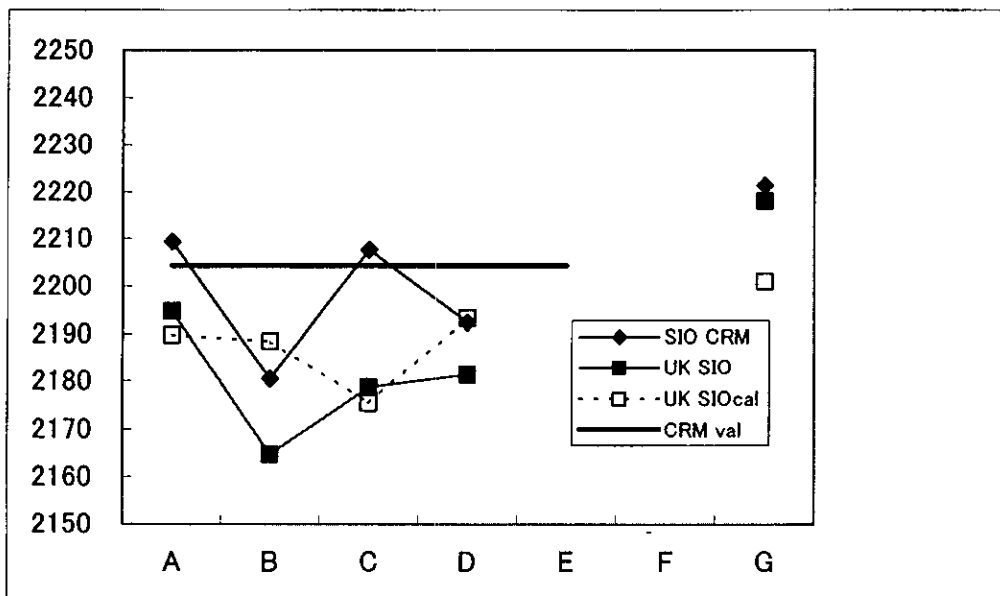


図3: 国内研究機関1999相互検定アルカリ度測定結果1

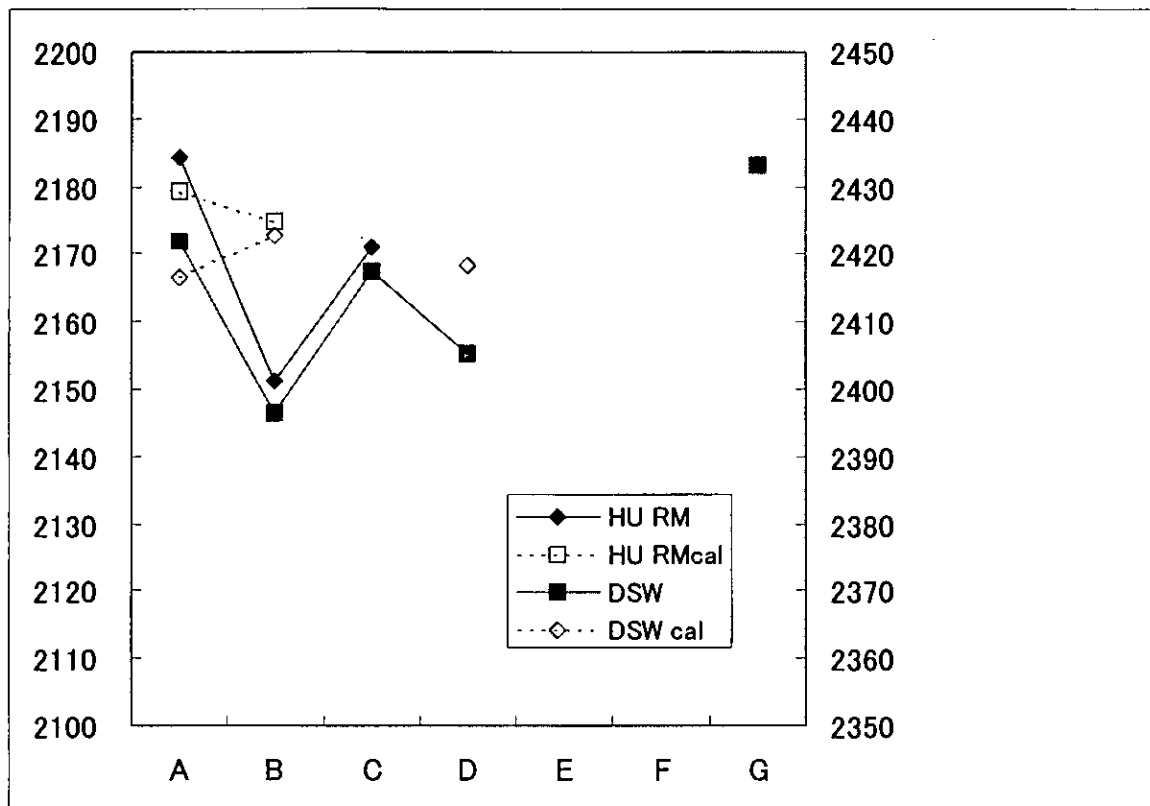


図4：国内研究機関1999相互検定アルカリ度測定結果2

全炭酸の場合と違って、アルカリ度の測定方法は研究機関ごとに異なっている。大きく一点法、オープンセル滴定法、クローズドセル滴定法、2ステージオープンセル滴定法がある。一点法、オープンセル滴定法は滴定中に大気とのガス交換が起こる可能性があり、誤差の原因になるので、測定時に十分注意を払うことが必要であり、習熟を要する。クローズドセル滴定法は装置がやや大がかりで時間がかかる欠点があるので現場観測に最適とは言えず、国内で導入しているのは一機関のみである。が、今回の相互検定では0.1%の精度の測定結果が得られており、また CRM-SIO に合わせ込んだ他のサンプルの測定値は SIO によって測定された値とほぼ一致した。SIO は 2ステージオープンセル滴定法を用いており、精度、正確さが良く、クローズドセル滴定法と比較すると短時間・簡便に測定できるこの方法を推奨している。

研究機関間のずれは海外も含めて大きく、全炭酸と同様、検定に問題があると思われる。滴定に用いる塩酸の濃度、ビュレットの体積補正、サンプル容量などがずれていると、当然系統誤差の原因になる。塩酸の濃度決定はやはり炭酸ナトリウムを用いて行われることが多く、純度の問題もあるし、習熟を要する。また、長期間航海では次第に揮発が起こり、濃度が変化する可能性もある。ビュレットは 2ml 程度の少量のものを使う事が多いため、精密な容量検定が必要である。クローズドセルそのものをサンプルの定量に使っている場合は、サンプル容量に変化がないか特に注意する必要がある。系統誤差には、以上のような複数の要因が考えられるため、次回の相互検定ではこのうちの一つの要因を無くして、結果の解釈をわかりやすくするため、SIO で作成・値付けした塩酸を配布する事となった。

<まとめ>

- ・ 各研究機関の精度は全炭酸と比べて悪かった。特にオープンセル滴定法・一点法ではその欠点（ガス交換）を十分に留意し、測定に充分習熟して行うことが必要である。
- ・ クローズドセル滴定法は装置が大がかりで時間がかかるが、原理上の欠点は少なく、高精度の測定が可能である。
- ・ 系統誤差については要因が多いため、次回の相互検定ではより詳細な検討を行う。
- ・ 全炭酸と同様、CRM-SIO の保証値を用いて補正を行うと研究機関間のばらつきは小さくなるので、実際の観測においてサンプルと一緒に測定することが推奨された。

2000 年相互検定

全炭酸

全炭酸の国内研究機関の報告値を表 3 に示す。

表3:2000年相互検定国内研究機関測定結果

各種試料の全炭酸報告値 ($\mu\text{mol/kg}$)

CT		A	B	C	D	E	F	G
Own scale								
Av. for 4 bottles	CRM50	2007.2	2006.6	2008.9	2006.3	2010.8	2002.0	2006.3
	Y	2049.5	2053.6	2054.9	2050.6	2048.9	2048.1	2049.4
	DSW	2359.7	2360.2	2360.7	2360.8	2359.9	2357.6	2357.9
	RM00A1	2049.6	2049.6	2054.8	2049.9	2052.6	2046.6	2047.6
std. dev. for 4 bottles	CRM50	2.0	1.4	0.5	0.5	1.7	2.4	0.7
	Y	0.4	2.1	0.9	0.8	0.9	1.4	1.3
	DSW	3.4	2.3	1.4	2.7	2.6	0.8	3.6
	RM00A1	0.9	1.5	1.4	0.7	2.0	2.0	1.3

4 本のボトルを測定したときの繰り返し精度は前回同様、良い。また、測定機関間のばらつきも少なく、標準偏差で $3\mu\text{mol/kg}$ 以内である。検定方法については前回の相互検定でガスループ法が推奨されているが、国内では未だ使われていない。今回の結果は、前回の相互検定の結果を踏まえて、各研究機関が炭酸ナトリウムを用いた検定方法について、検討・改善を行った結果と考えられる。

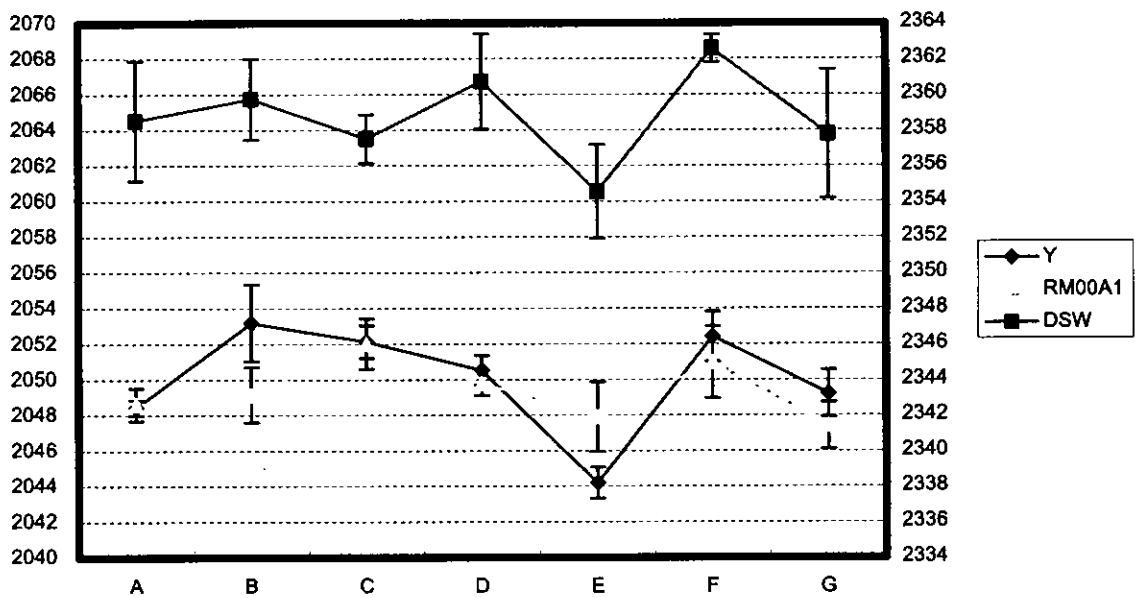


図5：国内研究機関2000相互検定全炭酸補正值

CRM-SIO の保証値を用いて各サンプルの値を補正した結果（図5）今回初めて参加した E を除くと、ばらつきは目標の $2 \mu\text{mol/kg}$ 以内となった。

<まとめ>

- ・ 前回の相互検定の結果を踏まえ、各研究機関で検定方法の検討・改善が行われたことにより、研究機関間のばらつきが小さくなった。
- ・ 国内の研究機関ではガスループによる検定は行っておらず、炭酸ナトリウム溶液を一次標準として、また CRM-SIO や独自に作成した参照物質をランニングスタンダードとして用いている。参照物質の作成には多大な労力がかかるし、炭酸ナトリウムによる検定は習熟を要することから、ガスループ検定と参照物質を併用する事が推奨された。

アルカリ度

アルカリ度の国内研究機関の報告値を表4に示す。

測定精度はいくつかのサンプルについて、 $2 \mu\text{mol/kg}$ を越えているが、前回と比べると改善がみられる。研究機関間のばらつきは標準偏差で各サンプル $5 - 8 \mu\text{mol/kg}$ と前回（約 $20 \mu\text{mol/kg}$ ）と比べて大きく改善されたが、目標よりは大きい。今回は SIO で作成された塩酸を用いて皆が測定したので、塩酸以外の要因でずれが生じたと考えられる。

表 4: 2000年相互検定国内研究機関測定結果
各種試料のアルカリ度報告値 ($\mu\text{mol/kg}$)

AT		A	B	C	D	E
SIO acid scale						
Av. for 4 bottles	CRM50	2201.6	2213.4	2193.7	2212.0	2211.0
	Y	2257.4	2270.2	2265.2	2272.0	2268.6
	DSW	2395.3	2406.9	2389.8	2410.4	2408.5
	RM00A1	2231.6	2238.7	2228.6	2239.1	2242.2
std. dev. for 4 bottles	CRM50	0.5	2.8	2.8	1.2	1.9
	Y	3.3	1.2	2.8	0.5	1.7
	DSW	0.7	2.4	4.0	1.1	3.4
	RM00A1	4.9	3.0	2.3	1.1	1.6

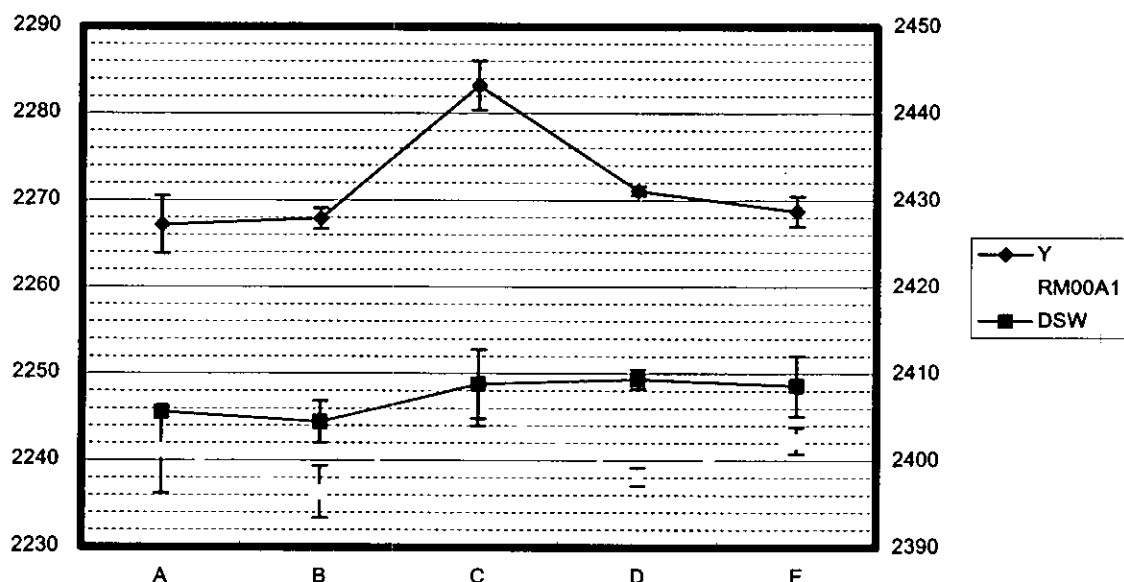


図 6 : 国内研究機関 2000 相互検定アルカリ度補正值

CRM-SIO による補正を行うと、今回測定に問題があったとされるCを除いてはばらつきが小さく、標準偏差で目標の $2\mu\text{mol/kg}$ 以内に達した。塩酸濃度やビュレットの容量などは長期の観測航海中には変化してしまう可能性もあるので、CRM-SIO や独自の参照物質を、全炭酸同様にサンプルと一緒に測定することが推奨される。

今回はいずれも電位差測定に基づく方法であり、pH 電極の善し悪しによって測定精度が大きく左右される事が報告された。購入した時点で何割かは新品でも除外しなければならない場合もあるという。また、連続して使っていると劣化も起こる。今後は電極を使わない色素法によるアルカリ度測定法の開発が推進されていくようである。

<まとめ>

- ・ 測定方法は各機関昨年度からの変更は無かったが、精度に若干の向上がみられた。

- ・ 国内研究機関報告値のばらつきは前回の半分以下になり、大幅に改善された。
- ・ CRM-SIO 保証値で補正したサンプル測定値のばらつきは 0.1%の目標に近いものであった。
- ・ 電極を用いる方法としては 2 ステージオープンセル滴定法が推奨される。今後、高価で不確実な電極を用いない、色素法による測定法の開発が推進されるだろう。

5. 本研究により得られた成果

初年度の相互検定により、全炭酸・アルカリ度ともに検定の不備による系統誤差が研究機関間にあることが示された。過去のデータ統合については、この点に充分留意して、参照物質の測定があればこれを利用して整合性のあるデータセットを作ることが重要である。2000 年度の相互検定では、各研究機関の測定方法・検定方法の検討・改善の結果、全炭酸・アルカリ度ともばらつきが小さくなり、今後のデータ蓄積に向けて、大きな収穫があった。

[国際共同研究等の状況]

資源環境技術総合研究所において、日本、米国、カナダ、韓国から 32 名の研究者が参加した、相互検定結果のまとめのためのワークショップを開催。

[研究成果の発表状況]

(1) 誌上発表（学術雑誌）

- ① K. Harada: Proceedings of 2nd International Symposium on Ocean Sequestration of Carbon Dioxide, p15-19, 1999, "Oceanic Environment of the Western North Pacific for the CO2 sequestration"

(2) 口頭発表

- ① 原田晃：二酸化炭素隔離に関するシンポジウム、東京、1999、「西部北太平洋における海洋環境」

(3) 出願特許

なし

(4) 受賞等

なし

(5) 一般への公表・報道等

なし