

## B-5 海洋における炭素の循環と固定に関する研究

### (2) 海洋沈降粒子による炭素の沈降フラックスに関する研究

研究代表者 国立環境研究所 野尻幸宏

環境庁	国立環境研究所 地球環境研究グループ	
	温暖化現象解明研究チーム	野尻幸宏
	同	斉藤千鶴 (科学技術特別研究員)
(委託先)	東京大学海洋研究所	野崎義行
	名古屋大学大気水圏科学研究所	半田暢彦

平成2～4年度合計予算額 52,373千円

[要旨] 表層海洋から深層海洋への正味の炭素のフラックスを明らかにするために、セディメントトラップ実験を行った。伊豆小笠原海溝における係留実験からは、陸起源物質の外洋への輸送過程と、粒子の沈降過程における変質を明らかにする研究を行った。

海洋沈降粒子の鉛直フラックスは、海洋表層で生物生産された有機物、炭酸カルシウム、ケイ酸などを主成分とする比較的大型の粒子に実質的に支配される。ただし、海溝域では陸起源の粘土鉱物の寄与、マンガンの溶存態から粒子態への移行、海溝斜面に由来する再懸濁粒子の寄与なども合わせて観測された。また、海溝深部(5000m以深)では、炭酸殻の沈降量の急激な減少が認められた。この結果は、実際の炭酸殻を海洋深部に係留して行った溶解実験で、カルサイトとアラゴナイトの2種類の炭酸殻が1年間で完全溶解した結果と整合的であった。

海洋沈降粒子の有機炭素の起源に関する研究を、主に放射性炭素による有機炭素の年齢の解析から行った。日本近海の高層域のセディメントトラップ実験によって得た沈降粒子と、その海域の懸濁粒子の有機炭素の年齢を測定した。その結果、中層、深層の懸濁粒子が著しく古く、沈降粒子は表層の新生有機物と懸濁粒子の中程度の年齢であった。このことは、高層域の有機物の輸送が斜面域の堆積粒子の再懸濁と、引き続いて起こる粒子の水平方向の輸送の寄与があることを意味する。そして、沈降粒子は高層域の中深層で懸濁粒子を取り込みながら、沈降してゆく状況が明らかにされた。

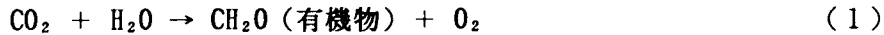
[キーワード] 海洋、セディメントトラップ実験、海洋沈降粒子、有機炭素、フラックス

#### 1. はじめに

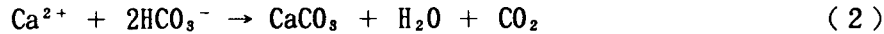
人為的に放出されるCO<sub>2</sub>の量が年間6x10<sup>15</sup>gC程度であることを考えると、海洋と大気間のCO<sub>2</sub>交換量である100x10<sup>15</sup>gCという量はたいへん大きなものであり、人為的なCO<sub>2</sub>放出による大気中CO<sub>2</sub>濃度の増大に対する緩和を行っている。現に、現在までに人為的に付加されてきたCO<sub>2</sub>のうち、大気圏に残存する割合はおよそ1/2であり、多くの部分を海洋が吸収したと考えるのが定説である。ただし海洋はCO<sub>2</sub>を一方向的に吸収しているわけではなく、海面で大量の吸収と放出を行っているが、そのCO<sub>2</sub>ガス交換の収支における数パーセントの片寄りとして、正味2-3x10<sup>15</sup>gC程度人為起源のC

O<sub>2</sub>を吸収していることになる。しかし、残念ながらその直接的な証拠が乏しいのが現状である。海洋が吸収しているCO<sub>2</sub>の正味の量を明らかにすることは、今後続くであろうCO<sub>2</sub>の人為的放出に対しての海洋のレスポンスを予測する上で、最も重要な点の一つである。

海洋表面での光合成による生物生産は簡単には次式で表される。



すなわち、無機炭素を有機炭素に変換する反応であり、この反応が進むにつれて表面海水中のCO<sub>2</sub>分圧が減少し、大気中のCO<sub>2</sub>の吸収の原動力になる。その活性の大きさは、物理的・化学的環境条件、代表的なものとして、光の量、栄養塩の量に大きく影響されるものである。また、広く分布する海洋生物である有孔虫やココリスなどでCaCO<sub>3</sub>殻が生成される化学反応は次式で表わされる。



この式は、海水中の炭酸水素イオンが生物体に取り込まれて、カルシウムと当量の遊離炭酸が水中に放出される反応で、海水中の全炭酸の量は減少するにもかかわらず、CO<sub>2</sub>の分圧が上昇することにより、海洋からCO<sub>2</sub>を放出する原動力となる。つまり、生物生産の大小が単純に海洋のCO<sub>2</sub>吸収能を与えるだけでなく、その影響が生物種の組成によって変わり得ることを意味する。自然の海洋では、物理・化学的な要因と式で示した生物的要因の複合的な効果でCO<sub>2</sub>の放出海域と吸収海域が生じ、それが経時変化し、全体としてCO<sub>2</sub>の放出・吸収がおよそ釣り合っている。大きな放出量と大きな吸収量の差から小さな正味の吸収量を求めるのは極めて困難である。

(1)式の光合成産物は有機体炭素を主とする生物体であって、大部分は表層水中で分解し溶存CO<sub>2</sub>に戻るが、一部は水中を沈降して深海に達する。沈降して除去される部分がないならば、表層海水と大気はCO<sub>2</sub>について平衡を保ち、正味の吸収が起こらない。この有機炭素の沈降量が、表層海水からのCO<sub>2</sub>の正味の除去量と考えることができる。そして、沈降した有機体炭素の粒子は沈降中に分解を受けて深層海水にCO<sub>2</sub>を加え、CO<sub>2</sub>分圧を高める。このように深層海水に付加されたCO<sub>2</sub>は1000年オーダーの深層海水大循環の流れに加わって、ゆっくり表層海水、そして大気に戻ってくることになる。すなわち、人為的なCO<sub>2</sub>放出による大気濃度の増大を大きく遅らせる効果がある。また、水中や沿岸堆積物中で有機炭素が増えつつあり、CO<sub>2</sub>のシンクとなっているとする考え方もあり、その検証のためにも、外洋域での正味の炭素固定量の正しい見積もりは重要である。

そこで、この研究課題において、表層海水から深層海水への正味のCO<sub>2</sub>輸送フラックスを測定するために、沈降粒子捕集(セディメントトラップ)実験を行う。沈降粒子捕集実験によると、通常の海洋観測データとは異なり、時間平均された長期の観測結果が得られる。すなわち、通常の観測船からの観測では、特定の時期の特定の海域でのデータが得られるのみである。例えば、海洋と大気間のガス交換現象が特に活発に起こるのは、強風の荒天時である。高緯度海域での生物生産現象は、春先の極めて限られた時期に起こるのみであることも知られている。この実験では、炭素を含む粒子状物質の鉛直輸送フラックスを実測し、海域による季節変動特性の違いを明らかにすることを第一の目的とする。そして、沈降粒子を深度別に採取し、炭素およびその他の元素の存在量と存在形態を化学分析で明らかにすることにより、沈降粒子の深層海水での分解過程を明らかにすることを第二の目的とした。このことから、粒子束のうち堆積物に移行する炭素量と深層海水に戻る炭素量を明らかにするための情報が得られる。

また、陸起源物質の海洋での挙動および超深海で起こる物質循環を明らかにするために、本グループを含む合同研究チームで、1986年から現在にかけて、伊豆小笠原海溝北端(水深 9200m、

J T地点と呼ぶこととする)でセディメントトラップ装置を用いた沈降粒子の捕集を継続して行っている。本研究はウッズホール海洋研究所による北大西洋での実験に次ぐ長期の継続実験であり、水深では世界最深である。海溝という海洋環境の特殊性を把握して一般化することをめざしている。

## 2. 沈降粒子捕集実験

外洋域での長期の沈降粒子捕集(セディメントトラップ)実験には、セディメントトラップ装置そのものを整備することの他に、観測海域に設置と回収のための適当な時間間隔で観測船もしくは作業船を派遣しなくてはならない困難さがある。この研究課題のためにその条件を整えることは不可能であるが、東京大学海洋研究所が中心となって行っているいくつかの沈降粒子捕集実験による採取試料の一部を本研究に用いる計画となった。

1990年12月には、低緯度西部太平洋域に、約2年間の採取期間に設定したセディメントトラップを含む係留系が設置された。設置位置は、赤道上(0°S, 150°E)、熱帯海域(4°N, 148°E)、亜熱帯海域(19°N, 143.5°E)である。設置海域の水深はおよそ4000-5000mであり、これらの係留系には、海面下1000mに浅層のトラップ、海底上500mに深層のトラップが取り付けられている。各トラップ装置には、13個の受け器があって、時系列的に試料採取を行う。

伊豆小笠原海溝北端水深9200mの地点(J T)では、東京大学海洋研究所が中心となって、1986年から継続的にセディメントトラップ装置を係留して沈降粒子の捕集を行っている。これは、世界最深の係留実験である。1991年までは、水深8800mと4000~5000mの2層にトラップを設置し、1991年3月から1992年3月には1000、3500、5000、8800mの4層のトラップで実験を行い、無事回収に成功して現在再係留している。最近、従来からのJ T地点に加え、1992年9月には伊豆小笠原海溝南部とマリアナ海溝にセディメントトラップ装置を追加して係留を始め、それぞれ1993年5月と7月に回収に成功した。現在、得られた沈降粒子試料の化学分析作業を行っているところである。これまでに得られた粒子フラックスの変動を図1に示す。かなり大きな時間変動を示すが、それらは必ずしも表層での生物生産の変動に対応しない。また、深い方の捕集装置でフラックスが大きい傾向にある。

## 3. 無機化学成分と放射性同位元素からみた海洋沈降粒子の沈降動態

J Tでのセディメントトラップの試料についての放射性同位元素の分析から、つぎの結果を得た。

冬期に異常に高いフラックスが得られる頻度が高い。この時には、海洋の表層に起源を持つ<sup>239</sup>、<sup>240</sup>プルトニウムや<sup>210</sup>鉛の濃度が粒子中に低くなることから、数10年より古い堆積物の混入があったものと考えられた。すなわち、海溝斜面などから舞い上がった粒子が再輸送された結果である。堆積物に換算した堆積速度は約5cm/1000年程度であるが、<sup>230</sup>トリウムの堆積量は水柱内の<sup>234</sup>ウランからの生成量の約3倍である。このことは、粒子状物質の海溝底への集積が起こっていることを示す。海水中から付加する<sup>230</sup>トリウムや<sup>231</sup>プロトアクチニウムは、水深が深くなると濃度が増加するが、フラックスが増加してもその濃度はあまり変わらない。同様に、カルシウムを除く他の化学成分のフラックス変動は、粒子間の凝集-崩壊の繰り返しにより、各水深で粒子の均質化が起こっていることを示す。カルシウムは主として有孔虫や翼足虫の比較的大型の粒

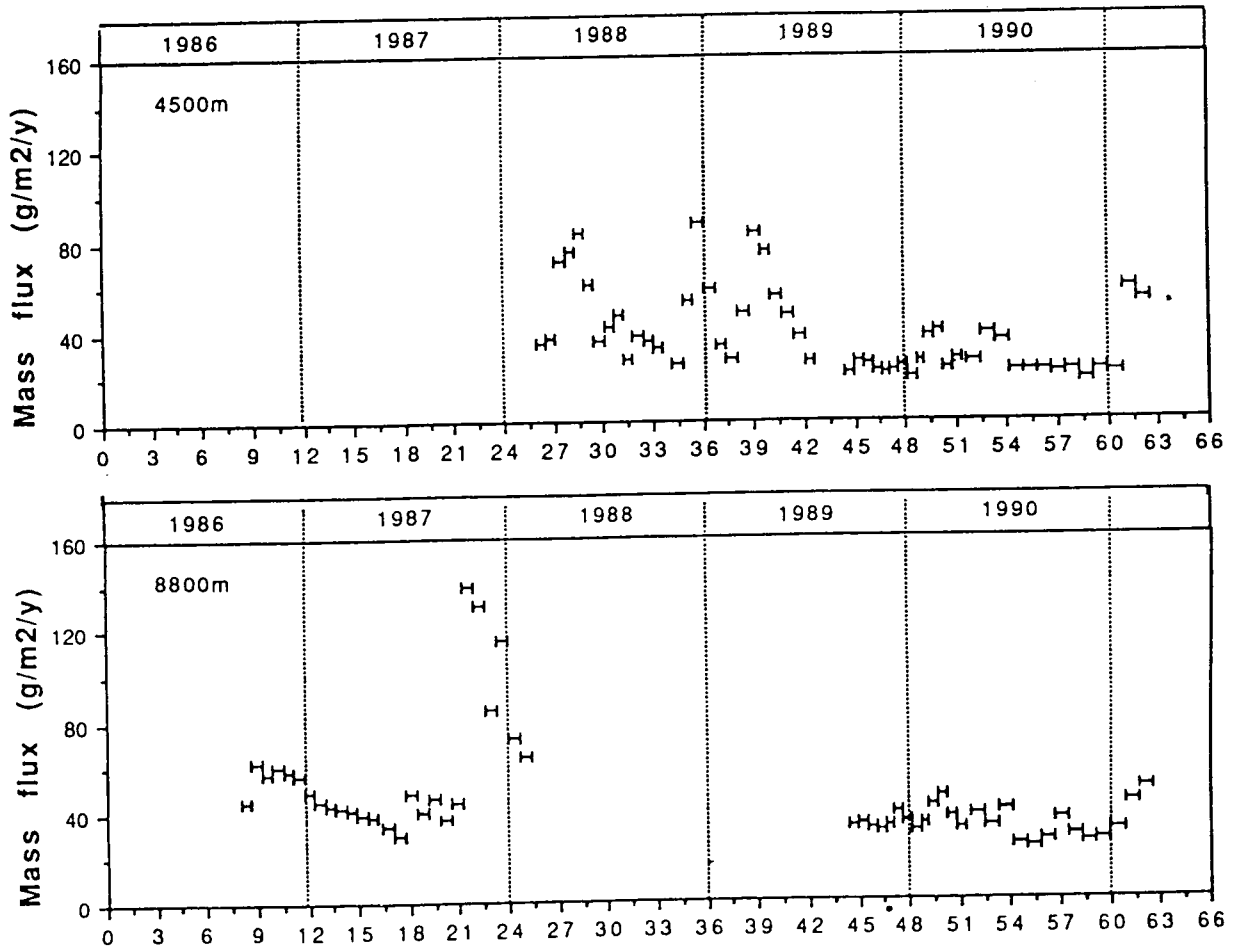


図1 伊豆小笠原海溝北端（JT）地点での  
沈降粒子捕集実験で得られた粒子沈降量

子として沈降し、海底で分解する。これは8800mのトラップに多量の炭酸カルシウム殻が見られるにも関わらず、堆積物には存在しないことから推定される。

これまでのセディメントトラップ実験の結果とあわせて、海洋沈降粒子の由来を次のようにまとめた。

- 1) 海洋表層に由来する部分は、生物生産された有機物、炭酸カルシウム、生物起源のケイ酸などを主とするの比較的大型の粒子であり、各深度における鉛直フラックスを実質的に支配している。炭素、窒素、リンの栄養物質フラックスは表層から1000m付近にかけて減少するが、それ以深は余り大きく変化しない。
- 2) アルミニウムをはじめとする水平的に輸送される細粒の粘土鉱物に由来する部分は、微小なため沈降速度は遅いが、表層からの大型粒子に付着するなどして、鉛直フラックスに寄与する。
- 3) 海水から除去されて粒子化する重金属はマンガンや銅などで、溶存態から粒子態への移行によって降下的に沈降除去される。天然放射性核種としては $^{230}\text{Th}$ がその典型である。
- 4) 海底からの再懸濁粒子として、特に海溝斜面からのタービタイトの寄与が重要と考えられ、そ

れを示すデータが断片的ながら得られつつある。

#### 4. 海溝域の沈降粒子捕集実験における無機成分の挙動

本研究では、任意の期間の粒子を得る時間分割式セディメントトラップでその元素組成の時間変動を測定した。JTではこれまでに、1986年から1991年までの平均全粒子束として、5000m水深で $105\text{mg}/\text{m}^2\text{day}$ 、9000m水深で $126\text{mg}/\text{m}^2\text{day}$ の値が得られている。この数値は、通常の大陸斜面で行われた実験と比較すると小さなものであるが、生産性の低い低中緯度太平洋域よりは大きなものであった。海洋沈降粒子は、生物起源ケイ酸塩、生物起源炭酸カルシウム（炭酸殻）、生物起源有機物と非生物起源粘土粒子（例えばAlが指標となる）からなる。そこで、沈降粒子中の金属元素を定量することから、粒子としての炭酸殻の挙動、海水と粒子間の元素の移動に関する研究を行った。

沈降粒子の全粒子束の増減には明確な季節性は見いだせなかった。一時的に全粒子束が平常時の数倍に高まる現象が5000m深度と9000m深度の両方のトラップでたびたび見いだされた。これまでのセディメントトラップ実験の知見によると、生物生産の大きな海域では表層での生物生産の季節性を反映して、深海でも全粒子束の変動が見られている。ところがJTでの実験での全粒子束の大きな変動には生物起源粒子がそれほど大きく関与しておらず、陸起源物質の変動の寄与が大きいということが明らかになった。とりわけ、9000m深度での変動には陸源物質の寄与が大きかったが、このことは深海で生物起源粒子の沈降による溶解が進むこと、あるいは、地滑りのような現象で海溝斜面の海底堆積物が大量に運ばれることがあることと関係する。

炭酸カルシウムは沈降粒子の主成分であり、主にプランクトンに由来する成分である。表層では過飽和にあるものの、深海では未飽和で急激に溶解する。これまでは沈降粒子中の炭酸カルシウムは約5000mまでの値しか報告されておらず、9000mの深海における観測は初めてであった。結果として、カルシウムは9000m深まで粒子の形で沈降することがほとんどないが、断続的に表、中層で溶解しきらなかったものが9000mの深海まで到達していた。土壌由来のカルシウムを差し引くことで生物起源のカルシウム沈降量を求めると、5000mで $14.4\text{mg}/\text{m}^2\text{day}$ 、9000mでは $1.6\text{mg}/\text{m}^2\text{day}$ であった。両深度での明かな炭酸カルシウム沈降量の差からこの4000m水柱内での炭酸カルシウムの溶解量を求めることができ、 $1.2\text{mg}/\text{m}^3\text{yr}$ が得られた。これは大西洋、太平洋での表層から5000mまでの水柱内での溶解量より一桁大きなものに相当する。また、堆積物の分析結果から日本海溝堆積物中のカルシウムがすべて非炭酸殻と見なせることも、炭酸殻の5000m以深での急速な溶解を支持するものである。

また、沈降過程に伴う沈降粒子の組成の変化の解析を、表面化学分析と微量成分分析を用いから行う研究を、JTでの沈降粒子試料を対象として試みた。ESCAによる表面分析では、粒子の主成分である炭素とケイ素の分析が可能で、アルミニウム、鉄、カリウム、マグネシウム、カルシウム等の無機成分との相関の解析が可能となった。特に、炭素とカルシウムの組成比の変動およびその表面濃度と全濃度との関係、その鉛直的な変化を解明することが、粒子の生物による生成とその沈降にともなう変質過程を議論する上で重要であり、海洋での炭素の除去過程に関する有効な情報を与える。

#### 5. 深海での炭酸殻の溶解実験

有孔虫の現場溶解実験をセディメントトラップの係留系を用いて行った。炭酸カルシウムの海水に対する溶解度は、その未飽和度に依存することが室内実験により知られているが、現場での実験は少ない。特に9000mにも及ぶ海溝では水圧の影響でその溶解が加速されることが期待される。深海での炭酸カルシウムの溶解は海水中的アルカリ度の増大を通じて、過去の大気の海洋間の炭素サイクルとの関係がある。この実験は大場忠道氏（北海道大学）と協力して行った。

実験試料は赤道域（4°59.8'S、159°59.6'E、水深1720m）から得たボックスコア試料から得た。試料底質は水洗乾燥し、600~710μmのフルイの間から11種類の炭酸殻を拾いだした。それぞれの約100個体を精度±5μgで秤量し、100μmメッシュの網に入れて、1991年2月26日から1992年3月20日までの約1年間にわたり4水深に係留した。その結果を表1に示す。1000m以深の海水ではカルサイトとアラゴナイトのいずれもが溶解することがわかるが、特に後者は完全に溶解した。またカルサイトは水深が増すほど溶解率が高くなり、8000mを越えると完全に溶解した。

CaCO<sub>3</sub>の溶解速度、R (%/day) は室内実験では次の式に従う。

$$R = k (1 - \Omega)^n \quad (1)$$

k: 定数 (%/day)、n: 定数（無次元）、Ω: 飽和度（無次元）。ただし、

$$\Omega = [\text{Ca}^{2+}] [\text{CO}_3^{2-}] / K_{sp} \quad (2)$$

ここで[Ca<sup>2+</sup>]: カルシウムイオン濃度 (mol/kg)、[CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>]: 炭酸イオン濃度 (mol/kg)、K<sub>sp</sub>: 炭酸カルシウムの現場濃度、圧力、塩分下での溶解度積である。K<sub>sp</sub>(calcite)/K<sub>sp</sub>(aragonite) < 1 であるので、カルサイトよりアラゴナイトは海水に溶解し易い。このことは実験結果とも一致する。また、1000m以深では温度や塩分の変化は比較的小さいので、K<sub>sp</sub>の変化は主に圧力に依存する。これは次式で表される。

$$\ln(K_{sp}/K_{sp}) = -(\Delta V/RT) P + (0.5 \Delta K/RT) P^2 \quad (3)$$

ここでΔV: モル容積の変化、ΔK: 圧縮率の変化、R: 気体定数、T: 絶対温度(°C)、P: 圧力(at m)。カルサイトの場合、-ΔV = 48.76 - 0.5304 t、-10<sup>5</sup>ΔK = 11.76 - 0.3692 t (t: 温度) であり、この場合深さ（圧力）が増すほどK<sub>sp</sub>が大きくなる。その結果、飽和度Ωが小さくなり溶解速度を早めるものと考えられる。これはセディメントトラップで得られた生物性炭酸カルシウムのフラックスが5000mから9000mにかけて激減することとも調和している。

得られた現場実験の結果を室内実験のそれと比較すると、1)室内実験では未飽和度(1 - Ω)が0.3を越えないとほとんど溶解が進まないのに対して、現場海水は0.1でも溶解が進むこと、2)試薬のカルサイトや有孔虫を用いた室内での溶解実験では、nは4.5前後であるのに対し、現場実

表1 有孔虫の深海での溶解実験

depth (m)	initial weight		after experiment		weight loss		rate of dissolution	
	mg C	mg A	mg C	mg A	% C	% A	%/day C	%/day A
1174	122.35	4.7	92.12	0	24.7	100	0.073	>0.3
3680	121.41	10.23	68.17	0	43.9	100	0.129	>0.3
5687	124.80	10.56	34.41	0	72.4	100	0.213	>0.3
8688	124.31	7.87	0	0	100	100	>0.294	>0.3

C: calcite, A: aragonite

験のnは1以下で溶解速度の未飽和度に対する依存性が大きく異なること、がわかった。その原因として、現場海水では有孔虫などに対する有機物の表面被膜の形成などがありうると考えられる。

## 6. 沈降粒子の有機炭素に関する研究

れ

海洋の深層に輸送される有機物のソースとして、外洋表層で生産された有機物粒子の鉛直輸送の他に、大陸棚および大陸棚斜面を通して水平に輸送される成分の存在が知られるようになった。そこで、陸起源有機物の定量的評価に役立つ、有機物の $\Delta^{14}\text{C}$ 、アミノ酸の光学異性体比、n-アルカンの奇数炭素優位指数 (CPI = carbon preference index)、リグニンフェノール組成およびアルキルベンゼンスルホン酸組成を明らかにする化学分析手法を開発することとした。そして、日本近海のセディメントトラップ実験で得られた試料への応用結果を得た。本報告では、加速器質量分析装置による沈降粒子試料中の有機炭素の $\Delta^{14}\text{C}$ 測定の方法と結果を報告する。

5730年の半減期を持つ放射性炭素 ( $^{14}\text{C}$ ) は有機物が生成した年代を与える指標である。従来の放射性炭素の分析法より格段に高感度な加速器質量分析装置によっても、有機炭素として5mg以上の試料がこれまでは必要であって、セディメントトラップ試料のような少量試料に適用することは感度の点で困難であった。そこで、新たな試料処理法を開発した。

試料の有機物は過剰の水素とともに封管し、680°Cで4時間加熱し炭素に変える。この際封管中に金属鉄粒子を入れておき、鉄粒子上に炭素をグラファイトとして結晶化させる。この試料によれば測定の際より強い $^{14}\text{C}$ のイオンビームが得られ、感度の著しい向上をみた。現在のところ0.5-1mgCの試料で、誤差1.5%以下の $\Delta^{14}\text{C}$ 測定が可能となった。

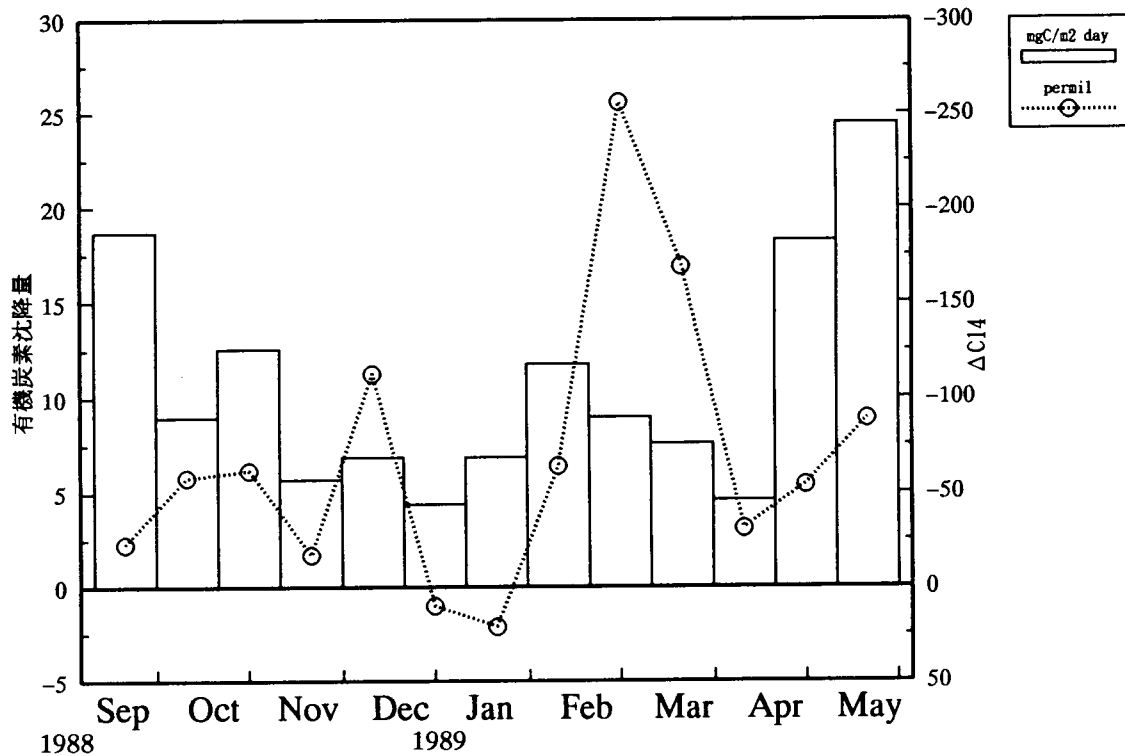


図2 沈降粒子捕集実験で得られた有機炭素の沈降フラックスとその放射性炭素濃度の時間変動 (日高舟状海盆)

北太平洋において、溶存酸素消費量から見積もられる1km以深の深層水中の有機物分解速度は5-30mgC/m<sup>2</sup>/dayであり、セディメントトラップ実験から得られる沈降有機炭素フラックスの2-20 mgC/m<sup>2</sup>/dayより大きい。このことは、鉛直方向の粒子の沈降だけでなく、生産性の高い沿岸域から外洋深層に向けての、有機物負荷が存在することを、示唆するものである。この実態の解明のために、JTと日高舟状海盆で得られた沈降粒子試料の有機炭素に関する分析を行った。

襟裳岬沖の日高舟状海盆に設置した時系列型セディメントトラップで得られた沈降粒子の有機物に、本法を適用して得られた測定結果を、図2に示す。この結果には二つの特徴がある。その第一は、冬季の沈降粒子試料中の炭素が著しく低い $\Delta^{14}\text{C}$ 値を示す点である。この原因は、再懸濁を強制された年代の古い大量の沿岸堆積物が、大陸棚斜面に沿って外洋側に移動して、再堆積したものと考えた。第二は、沈降粒子の $\Delta^{14}\text{C}$ 値が、表層水中の懸濁粒子の $\Delta^{14}\text{C}$ 値（通常+150‰）に比して常に低いことである。この事実は、沿岸から外洋に向かって、堆積物に由来する年齢の古い有機物が、大陸棚斜面を通して常に輸送されていることを示唆する。

JT観測点における沈降粒子試料は4,519m深と8,519m深の2層から採集し、懸濁粒子および海底堆積物は相模舟状海盆から採集した。これらの試料について炭素の安定および放射性同位体比を測定し次の結果を得た。

1) 上下2層における有機炭素フラックスには大きな変化はないが、 $\Delta^{14}\text{C}$ は大きく変化した。下層は上層に比べて100-200パーミル低い値を示した。沈降粒子の降下に伴い有機物は分解するのが一般的であることから考えて、有機物が分解される量に見合った量の有機物が沈降粒子に付加されているものと判断される。しかし、この有機物の $\Delta^{14}\text{C}$ 値はかなり低い（古い）ものであるはずである（図3）。

2) 沈降粒子への有機物の付加は、海底乱泥流の発生あるいは海溝斜面堆積物の再懸濁によるものと考えられる。いずれの場合も、これらの過程によって生ずる粒子中の有機物の $\Delta^{14}\text{C}$ はきわめて低い（古い）ものでなければならない。

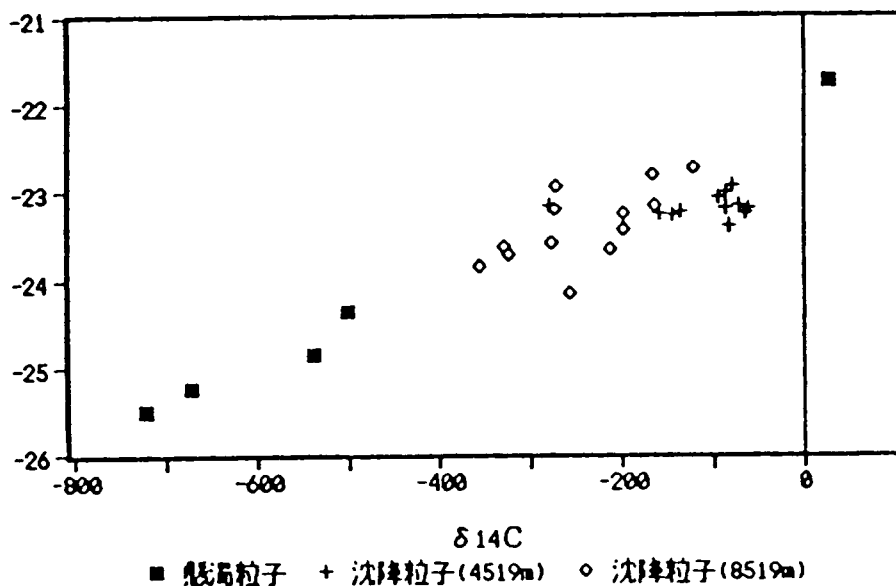


図3 日本海溝最南端部（JT）における沈降粒子および懸濁粒子有機物の $\delta^{13}\text{C}$ および $\Delta^{14}\text{C}$



