

課題名	放射性核種をマルチトレーサーとした海洋表層での二酸化炭素循環メカニズムに関する研究		
担当研究機関	独立行政法人 放射線医学総合研究所		
研究期間	平成15-17年度	合計予算額 (当初予算額 ベース)	110,742千円 (うち17年度 32,340千円)
研究体制 放射性核種をマルチトレーサーとした海洋表層での二酸化炭素循環メカニズムに関する研究 (独立行政法人 放射線医学総合研究所)			
研究概要			
1. 序 (研究背景等)			
<p>大気中に放出された人類起原の二酸化炭素の約2/7は海洋が吸収しているといわれており、海洋は地球表面における炭素循環において重要な役割を担っている。海洋に吸収された二酸化炭素は植物プランクトンの光合成により有機物となり、その一部は海洋深部に粒子として運ばれ、一部は分解して再び無機の炭素になる。これら一連のプロセスは単に生物学的な過程のみならず、化学的、物理的な過程の影響も受けている。関連する過程として、(1)大気/海洋ガス交換、(2)光合成による炭素の固定、(3)生物起源粒子の沈降、(4)沈降粒子の分解 (無機化)、(5)粒子の凝集/破碎、(6)栄養塩の中/深層よりの供給、(7)栄養塩の水平方向の移流、等がある。これらの諸過程が相互に関連しながら最終的な結果としてその海域での炭素の収支を決める。</p> <p>従来の炭素循環研究において、各々の過程に注目して多くの成果が上げられてきたが、その全体像をとらえること、すなわち諸過程の相互作用、キープロセスの定量化に関しては、決して満足しうる成果が上がっている訳ではない。しかし、海洋表層における炭素循環は海洋全体における炭素循環のスタート点でありそこで起こっている現象を定量的かつ総合的に記述し、解析することは地球環境変動・変化を予測する上で必須の要素である。</p>			
2. 研究目的			
<p>本研究の目的は、海洋表層における炭素循環に関わる諸過程 (ガス交換を除く) に関わるパラメータを明らかにして、相互の関係を定量的かつ総合的に把握することである。実際には、各々の過程で行動を共にすると考えられる放射性核種の存在量、移動量、変化量を見積もることにより、炭素を中心とした物質の定量的な移動、変質過程の見積もりを行う。具体的には、本研究では、以下の四つの放射性同位元素をトレーサーとして使う。</p> <p>(1)トリウム同位体 (^{228}Th、^{230}Th、^{234}Th) : Th は粒子へ吸着しやすいという性質を利用し、粒状有機物の移動、変質に関わるパラメータの精密化を図る。</p> <p>(2)ラジウム同位体 (^{226}Ra、^{228}Ra) : Ra は粒子になりにくいために海水の移動・混合過程を把握するために使う。</p> <p>(3)リン同位体 (^{32}P、^{33}P) : リンは植物プランクトンの成長にとっては、必須の栄養塩である。表層における生物活動による栄養塩の取り込み、粒子の移動・分解プロセスについて解明する。</p> <p>(4)放射性ベリリウム (^7Be) : ^7Be は大気から供給され、かつ半減期が短いことを利用し、表層水の混合速度を見積もる。</p> <p>これら放射性核種のデータ解析により得られた種々のパラメータを、同時に測定する溶存・粒状栄養塩、全炭酸、粒状有機物、溶存酸素等に適用し、海洋表層での炭素循環機構を総合的に明らかにする。</p> <p>上記目的を達成するためには、目的とする放射性核種の存在形態別 (溶存、小粒子、大粒子) の鉛直分布を明らかにする必要がある。それには大容量のサンプル (海水量にして~数 m^3) を処理しなければならない。本研究では目的に合致する現場型大容量海水濾過装置 (以下、濾過装置) を開発する。また、同濾過装置を用いて、北太平洋で観測を行い、天然放射性核種の分布を明らかにする一方、得られたデータから生物活動の変化に伴う炭素とそれに関連する物質の移動変質過程の定量化を行なうことを目的とした。</p>			

3. 研究の内容・成果

(1) 現場型超大容量海水濾過装置の製作

海水中に濾過器を降下し、目的深度で海水を濾過、同時に溶存核種を濃縮する濾過装置の設計及び製作を行った。製作した「濾過装置」は海水中で濾過を行う装置本体(図1)とそれに電気を供給するケーブルからなる。濾過装置本体は2つのシステムに分けられる。大容量(数トン)の海水を濾過し、粒子成分の捕集を行い、また濾過海水については溶存の微量成分を濃縮する吸着フィルターを有するシステム(メインシステム)と、比較的少量(数百リットル)の海水を濾過し、目的成分を濃縮するシステム(サブシステム)である。メインフィルターには孔径の異なる2種類の濾紙を使用し、粒径 $70\ \mu\text{m}$ 以上の大粒子と粒径 $1\text{--}70\ \mu\text{m}$ の小粒子の分別捕集を行った。また濾紙上で乱流などにより採取した粒状物質の損失を防ぐために、逆流防止のためにビニルシートで覆った高さ $10\ \text{cm}$ の筒状のバップルを先端に取り付けた。メインフィルターを通過した濾過海水はメインの吸着材を通した。この吸着材には、P同位体と ^7Be が濃縮される水酸化鉄コーティングフィルターを用いた。サブシステムでは孔径 $1\ \mu\text{m}$ のプレフィルター(サブフィルター)を用い、濾過をおこなった。この濾過海水は二酸化マンガンコーティングフィルターを通り、溶存態のTh同位体やRa同位体等の濃縮を行った。サブ吸着材を通過した海水はサブ流量計を通り、メインのシステムの海水と合流する。その後、海水はメインの流量計を通過して排出される。システム全体の流量とサブの流量差から、メインシステムの濾過量を計算した。

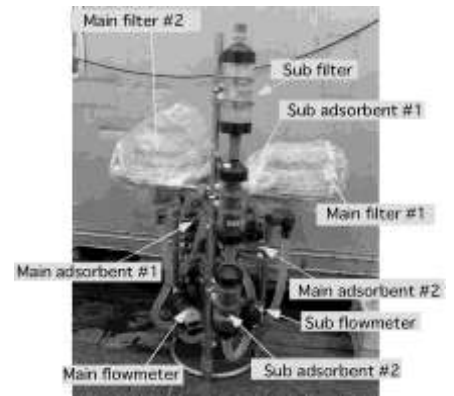


図1. 現場型超大容量海水濾過装置

東海村沖海域において、濾過装置のテストを行った。濾過を4時間実施した結果、システム全体では7トン以上の海水を濾過した。メインシステムの濾過量はシステム全体の濾過量の6割以上を占めており、サブシステムの吸入口の調整によりメインとサブの海水濾過量の割合を調整することも実証でき、本装置は今後の研究に十分に対応できるものであることを明らかにした。

(2) リンの吸着剤の検討

海水に含まれる放射性リンの放射能は非常に低い($\sim 0.007\ \text{dpm/L}$)。また、短半減期核種(^{32}P : 14日、 ^{33}P : 25日)であり、船上での試料採取から実験室での測定までに数週間かかることから、その間の減衰を考慮するとその測定には数トンの海水を必要とする。上記濾過装置の高流速条件下で溶存態リンを吸着濃縮する吸着剤の検討を行なった。吸着剤は活性アルミナと水酸化鉄を試験した。活性アルミナの平均リン吸着率は18.6%と低かった。海水中に含まれるリン酸よりも高い極性を持つ様々な溶存物質が活性アルミナに吸着することで、リン酸の吸着が妨げられていると考えられた。このことから、活性アルミナは本研究の吸着剤として不適当であった。水酸化鉄を付着させた活性アルミナの吸着率も同レベルで、より小さい粒径(たとえば $0.1\text{--}0.2\ \text{mm}$)では高流速での濾過が不可能であるため、本研究の目的にそぐわないことが分かった。水酸化鉄付着カートリッジフィルターの平均リン吸着率はいずれも活性アルミナに比べて高い吸着率を示した。そこで、試験結果から(流速) \times (平均吸着率)の値が最も高い孔径 $5\ \mu\text{m}$ の鉄付着フィルターを最適条件とみなし、濾過装置の吸着剤として使用することにした。Beの平均吸着率は95.8%であった。水酸化鉄付着カートリッジフィルターは放射性リンと同じく宇宙線起源の放射性 ^7Be の最適吸着濃縮システムであることを明らかにした。平成16年3月の茨城県東海村沖海域で現場型濾過装置の試験を行なったところ、流速 $18\text{--}29\ \text{L/分}$ で海水 $4.4\text{--}5.5$ トンを濾過して、吸着率は35.2–52.6%であった。水深 $0\text{--}50\ \text{m}$ で検出可能な放射性リンを採取することができ、これまでの報告例(水深 $0\text{--}80\ \text{m}$)と大きな差はなかった。

(3) 分離、定量法の確立

低レベルの放射性リン2核種を同時に定量するため、他社製品に比べて最もバックグラウンドが低い超低バックグラウンド液体シンチレーションカウンター(Packard社製Tri-Carb2900TR)を用いて、測定の最適条件に関する種々の検討を行なった。その結果、 ^{32}P 、 ^{33}P の検出限界は、10時間測定で 0.20 、 $0.16\ \text{dpm}$ まで下げることに成功した。さらに繰り返し測定を行なうことで $0.10\ \text{dpm}$ 以下にすることができた。つまり報告例のある海水中最低レベルの放射性リン($0.02\pm 0.02\ \text{dpm/トン}$)について数トンの海水での高精度測定を可能にした。すなわち、製作した濾過装置と吸着剤により採取した試料から定量測定法を開発した。また液体シンチレーションカウンターで海水中の放射性リンを定量するためには、 β 線を放出する他の核種の除去や他の測定核種である ^7Be やTh同位体を定量分析するために分画する必要がある。そこで、一つの試料から核種毎に分別する定量法の検討を行い、分析法を確立した。

(4) 北太平洋西部亜寒帯域における観測

北太平洋亜寒帯域は、高い栄養塩濃度にも関わらずクロロフィル量が低い海域として知られている。また現場海域での鉄の添加実験より、同海域では鉄濃度が植物プランクトンの増殖の制限因子の一つとして確認されている。2004年7月に海水中への鉄添加実験を行い、約1ヶ月間観測を行った(図2-A)。7月20日に鉄溶液を北緯48度、東経166度付近に、縦横8kmの範囲で散布を行った。この日を「D00」とした。鉄パッチ内で、CTD観測を行い、鉄散布後の2日目(D02)、4日目(D04)、9日目(D09)、23日目(D23)、31日目(D31)に、濾過装置を用いて、海洋試料の採取を行った。ポンプ稼働時間3-4時間で、3-10 m³の海水の濾過を行うことができた。

大型粒子は、水深と共に濃度は減少する傾向にあり、粒子中の粒子態有機炭素(POC)および粒子態有機窒素(PON)濃度の鉛直分布は、粒子濃度の分布に良く類似していた。小型粒子濃度は、概ね0.5 mg/L以下で、表層から水深50mにかけて一度減少し、これ以深ではわずかに増加した。小型粒子中のPOCおよびPON濃度の鉛直分布は、D31を除いて、表層で濃度が高く、水深と共に水深100mまで減少し、それ以深では大きな変動は認められなかった。大粒子態²³⁴Thは、いずれも濃度は0.2 dpm/L以下で、水深50mで濃度が増えた。小粒子態²³⁴Thでは、D02で表層において最大濃度を示し、水深と共に減少した。溶存態は、小粒子態²³⁴Thの濃度が高かったD02では、水深30mで0.2 dpm/Lと最も低く、水深50-100mに掛けて増加した。D09は、水深30mで1.5 dpm/L以上で、水深50-100mに掛けて増加した。海水中の全²³⁴Th濃度はD02の水深30mを除いて溶存態の割合が70%以上であった。また鉄散布直後D02の方が、鉄散布後D09のプランクトン増殖期よりも、²³⁸Uに対する放射能の非平衡量が大きい結果が得られた。溶存⁷Beは10-153 dpm/m³の範囲で変動し、水深20-50mで濃度が低くなる傾向が見られた。溶存態リンの放射能分布は、0.01-0.96 dpm/m³の範囲で変動した。溶存態放射性リンの同位体比(³³P/³²P)は0.75-1.71の範囲で変動し、水深が深くなると共にこの比が高くなる傾向が見られた。小粒子試料の同位体比は0.64-0.86の範囲を示した。

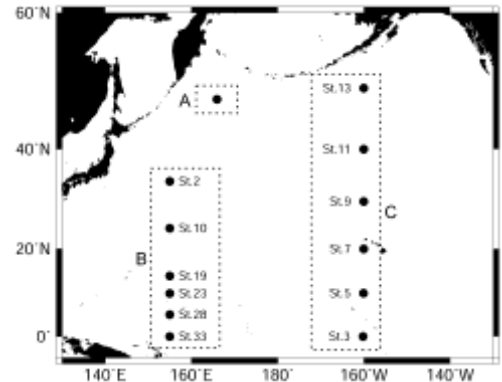


図2. 観測点

- A: 白鳳丸航海(2004年)
- B: みらい航海(2004年)
- C: 白鳳丸航海(2005年)

(5) 西部北太平洋における観測

東経155度線に沿った観測(図2-B)の結果、大粒子濃度は0.52-1.57 mg/Lの範囲で変動した。どの測点においても最大濃度は蛍光強度ピークとほぼ同じ水深であった。小粒子濃度は10-141 mg/Lの範囲で変動した。小粒子は表層付近と蛍光強度以深で高い濃度を示す傾向が見られた。全体的に、外洋の生物生産の低い貧栄養海域を反映して、粒子濃度は低い傾向にあった。溶存無機リン濃度は0.1 μM以下と、混合層内で欠乏していることから、貧栄養海域であることが示された。また有機リンは混合層内の全溶存リンの55-100%を占めていたことから、表層のプランクトンは混合層にある有機態栄養塩を再利用している可能性が考えられる。海洋表層の溶存態放射性リン濃度は、0.11-1.61 dpm/m³の範囲で変動した。粒状物の放射性リンは小粒子のみで検出され、0.04-0.19 dpm/m³の範囲で変動した。これは低生物生産の海域のため、大粒子中のリンを測定するには十分な粒子量が得られなかったためと考えられる。溶存態放射性リンの同位体比(³³P/³²P)は0.63-1.29の範囲で変動し、水深が深くなるにつれてその比は高くなる傾向にあった。小粒子試料の同位体比は0.64-0.86の範囲であった。

(6) 中部北太平洋における南北断面観測

西経160度線を南緯10度から北緯53度まで北上した本航海では(図2-C)、亜熱帯、温帯、亜寒帯域における特徴が見られる分布が観測された。粒子濃度は必ずしも蛍光強度の分布に比例したものではなかった。表層付近においては、Stn.3では赤道湧昇流の影響により、亜寒帯のStn.13と同じようなPOCやPON濃度を観測した。大粒子は小粒子に比べて、粒子濃度、有機態炭素および窒素濃度は1-2桁低い値であった。粒子中の有機態炭素量の割合を比較すると、小粒子はばらつきが大きい。大粒子は測点毎に近い割合を示した。Stn.3とStn.5における各粒子態²³⁴Th濃度は0.4 dpm/L以下であった。また粒子濃度と粒子態²³⁴Thに相関性は認められなかったが、POCと粒子態²³⁴Thに相関性が認められる測点もあった。水深100mより以浅では、親核種の²³⁸U濃度に対して²³⁴Th濃度は非平衡状態であった。水深150m付近では²³⁸U濃度に対して13-16%の過剰の²³⁴Th濃度が観測された。卓越した赤道湧昇流により過剰の²³⁴Thが供給されているものと思われる。

4. 考察

(1) 北太平洋西部亜寒帯域における鉄散布実験

^{234}Th の分析結果から親核種 ^{238}U を用い、溶存態 ^{234}Th と粒子態 ^{234}Th の平均滞留時間を計算すると、D02 では 0.7 と 0.3 ヶ月、D09 では 3.0 と 0.4 ヶ月であった。粒子態 ^{234}Th の平均滞留時間は時間の経過による変動が見られなかったが、溶存態 ^{234}Th の平均滞留時間は約 4 倍大きくなった。これは、水深 100 m までの溶存態 ^{234}Th の存在量が 1 週間で 2 倍に増加したためである。沈降速度の大きい大粒子中の POC/Th 比と ^{234}Th フラックスを用いて POC エクスポートフラックス（下方移動束）の推定を行った。D02 で $7.9 \text{ mmol/m}^2/\text{day}$ に対して D09 では $4.1 \text{ mmol/m}^2/\text{day}$ と半減した。これは D09 と比較して D02 の方が水深 50 m 以浅では粒子の濃度が高いためと考えられる。

研究海域は鉛直混合のさかんな海域であり、深層から豊富な栄養塩が供給されている。深層からの栄養塩供給量を推定するために、表層と深層の間の鉛直渦拡散係数 (K_z) について ^7Be を用いて評価を行った。 K_z は D02-09 で大きく、D23 と D31 で小さかった。一方、混合層深度は D02-09 で深く、D23 と D31 で浅い。また、溶存態宇宙線核種の存在量は、 ^7Be が D09 に最大値をとるのに対して、 ^{32}P は D02 に最大値を示し、以後 D23 までは減少傾向にあった。このことは、D02-23 の期間に降水による宇宙線起源核種の供給があったにもかかわらず、リンが消費されていたことを示している。また鉛直渦拡散係数が D02 と D04、D09 でほとんど変わらないことや小粒子中の ^{32}P 、 ^{33}P 存在量が D09 で増加していることから、リンがプランクトンに取り込まれていたことが考えられる。

リンの平均滞留時間は、小粒子態と比べると溶存態は深度が増すにつれて長くなった。これはプランクトンによって生産された粒子はすみやかに深層へ除去されるのに対し、溶存態は鉛直拡散による受動的な移動に支配されながら減衰していくことに起因する。また、溶存態が小粒子態よりも長い滞留時間を示したことは、プランクトンが「新しい」リンを取り込んでいることに対して、溶存態は有機リンの分解によってリサイクルされた「古い」リンの影響を受けていることが考えられる。D09 と D23 で小粒子態のリンの平均滞留時間が長くなっていることは、プランクトン増殖初期に生産された粒子が表層に滞留している可能性が考えられた。これらの結果を図 3 に示す鉄散布実験における栄養塩循環モデルにまとめた。図中の矢印線が太いほど移動量が多いことを示す。プランクトン増殖前期 (D02- D04) では、 ^7Be の結果から鉛直混合により下層から栄養塩の供給があったと推定された。

$^{33}\text{P}/^{32}\text{P}$ 比から、表層の栄養塩（リン酸）を植物プランクトンが取り込む過程の滞留時間は 1 日以内と推定された。新しく生産された粒子は 1 日以内に多くが下層へと沈降していた。懸濁粒子としては、C/N 比からも推測できるように、分解の進んだ（減衰により放射性リンが検出できなくなる）数週間以上経った粒子が残っていると考えられた。プランクトン増殖後期 (D09) も依然として下層からの栄養塩供給と降水による ^{32}P 、 ^{33}P 、 ^7Be の供給があった。クロロフィル濃度の増加と小粒子態 ^{32}P 、 ^{33}P 存在量の増加からプランクトンの生産量は 3 倍近くまで増加したと推定された。粒子の多くは沈降し、C/N 比からも分解の進んでいない有機粒子が下層にて確認された。新しく生産された粒子の一部は懸濁粒子として残存しており、その滞留時間は 3-7 日と見積もることができた。プランクトン増殖終了後 (D23- D31) は、鉛直拡散も小さく、降水も少なかった。生物生産は小さくなり、懸濁粒子の生成量も少なくなった。プランクトン増殖期に生成された易分解性の懸濁粒子はさらに溶存態有機リンまで分解が進んだと考えられるが、無機化までは進行していないと考えられる。

(2) 西部北太平洋における栄養塩循環とその地理的変動

鉛直分布が得られた測点について存在量を計算すると、溶存態リンは Stn.28 で最大値になることが示された。これは赤道域に特徴的な現象であるスコールが海洋表層に放射性リンを多く供給していることを示唆している。宇宙線は高緯度になるほど強度を増すために宇宙線起源放射性核種の生成量が多いが、短半減期核種である放射性リンは、高頻度の雨により降下することで、少ない減

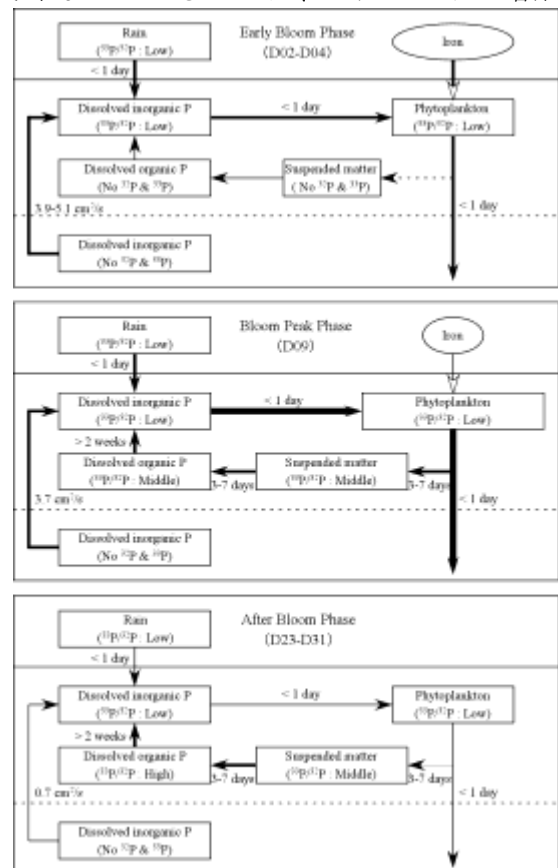


図 3. 鉄添加により発生したブルームにおけるリン循環の模式図

衰の影響で海洋に供給されると考えられる。北太平洋亜熱帯循環内にあるハワイ沖の結果に比べて表層のリンの放射能が低い要因としては、混合層の厚みが考えられた。

存在状態別のリンの滞留時間を求めると、亜熱帯域に比べて赤道域における溶存態の滞留時間が短いことがわかる。これは降水頻度が高いことが原因と考えられる。得られた結果より、西部北太平洋低緯度域の海洋表層における栄養塩循環を模式化したものを図4に示した。Stn.28は、降水頻度が高く、溶存態放射性リンの存在量が最も高いことから、表層の $^{33}\text{P}/^{32}\text{P}$ 比がほぼリン酸（無機リン）の値を反映しているものと考えられる。小粒子態と溶存態リンと植物プランクトンとの平均滞留時間の差から、プランクトンのリン酸取り込みには1-4日の期間が必要と考えられる。また各測点で小粒子の $^{33}\text{P}/^{32}\text{P}$ 比に鉛直変化がほとんど見られないことから、生産された粒子のほとんどは1日以内に下層に除去されると考えられる。溶存態リンの平均滞留時間は0.5-1ヶ月であるが、溶存態リンの55-100%が有機態であることを考慮すると、有機態リンの平均滞留時間は1ヶ月以上と推測される。すなわち、植物プランクトンから懸濁粒子、溶存態有機リンへの変遷に1ヶ月以上かかることが考えられる。特にStn.02や19で見られる小粒子中の高い $^{33}\text{P}/^{32}\text{P}$ 比は、有機態リンの取り込みを反映していることが示唆される。西部北太平洋亜寒帯域の結果と比較すると、温帯や亜熱帯海域ではリンから求めた栄養塩の循環速度が遅い。つまりこの海域が栄養塩の欠乏により生物生産が低いことと一致する結果を得た。

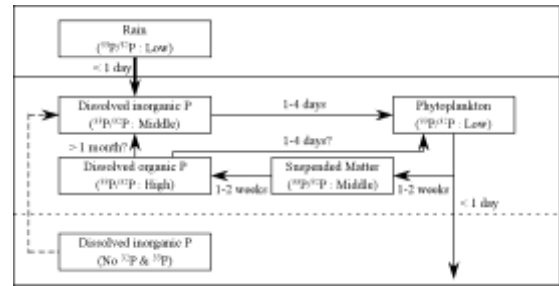


図4. 低緯度海域におけるリン循環の模式図.

(3) 中部北太平洋における物質循環とその地理的変動

赤道と北緯10度で観測された ^{238}U と ^{234}Th の非平衡量からThフラックスを計算した。また大粒子中のPOC/Th比を用いて、水深100mにおけるPOCエクスポートフラックスを求めたところ、0.3-1.0 mmol/m²/dayであった。生物生産量の高い西部北太平洋に比べて、中部太平洋におけるPOCエクスポートフラックスは低く、活発な炭素輸送が行われていないことが考えられる。また中部北太平洋の断面観測から、宇宙線生成核種の生成量の緯度変化に強く関係した放射性リンの存在量が確認された。貧栄養海域では西部北太平洋中低緯度域と同様の栄養塩循環が認められた。また、亜寒帯や赤道周辺の富栄養海域では、鉄散布実験終了後(D31)の西部亜寒帯海域と同様の循環様式であった。これらの結果から、北太平洋の栄養塩循環は大きく2つのモデルに分類することができた。この結果から、海洋表層で光合成により二酸化炭素が固定されるプロセスの時間軸を評価することができた。