

2004年9月10日

COE 成果報告書

陸圏排出物質の近海への影響：北海道河川から北太平洋

炭素・窒素安定同位体比を用いた十勝沖表層堆積物中の有機物の起源に関する研究

碓井敏宏

北海道大学大学院地球環境科学研究科 地球環境変遷学講座 COE 研究員

担当教官：南川雅男

## 1. はじめに

有機炭素の海洋堆積物への埋没とその堆積岩への移行は、炭素循環における長期間の貯蔵過程として重要であり、またこの過程は好気的な大気環境の形成・維持に極めて重要な役割を果たしている (Hedges & Keil, 1995)。海洋においては有機炭素の埋没の9割以上が大陸斜面で浅で起こっていると考えられているが、内湾・河口域、大陸棚、大陸斜面のどこにどれだけ蓄積されているかということ、精度良く見積もることができる段階には至っていない (Hedges & Keil, 1995; de Haas et al., 2002)。さらに、埋没フラックスを制御するメカニズムはまだよく解明されていない (Hedges & Keil, 1995; de Haas et al., 2002)。これまでに堆積物中の有機物の動態に関する研究が行われた海域は、大陸棚・斜面全体の10%を超えるか (de Haas et al., 2002)、空間的・時間的変動が大きい海域であるため、大陸棚・斜面の堆積物における有機炭素の挙動を明らかにするためには、さらに多くの海域での研究が必要である。

我々の研究グループでは、十勝沖海域の炭素循環を量的・質的に理解することを目的として本年度より現地調査を開始した。本研究ではその一環として、十勝沖の堆積物およびその起源となる海水と十勝川の懸濁粒子、さらに沈降粒子を採取し、有機炭素・全窒素量とその安定同位体比を分析して、堆積物中の有機物の起源について考察を行った。

## 2. 試料および方法

十勝沖の堆積物試料は、産業技術総合研究所により行われた第2白嶺丸による航海 (2002年8月) と北海道大学水産学部のうしお丸による航海 (2003年5、8、11月) において採取した (図1)。第2白嶺丸では木下式グラブ採泥器により88地点で、またうしお丸ではアシュラ採泥器を用い7地点で採取を行い、堆積物試料の最上部3cmに関し分析を行った。またうしお丸航海においては水深567m地点で鉛直採水を行い、GF/Fフィルターを用いて海水中の懸濁粒子を捕集した。2003年7月から11月にかけて大陸棚上の水深50m地点において、水深40mに時系列セジメントトラップを設置し、4~7日間隔で沈降粒子を採取した。また2003年の5、6、7、8、9、11月に十勝川下流域で採水を行い、GF/Fフィルターで濾過して懸濁粒子を採取した。実験室において、無機炭素の除去のため試料を塩酸溶液で処理し、60℃で乾燥後錫箔に包み、元素分析計付きの質量分析計 (Finnigan MAT252) により、有機炭素・全窒素量と安定同位体比を測定した。堆積物の粒径組成は比重計法で測定した (野田私信)。

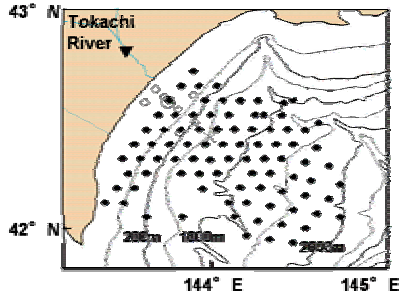


図1 試料採取地点。○：堆積物（第2白嶺丸で採取）、●：堆積物（うしお丸で採取）、×：海洋懸濁粒子、□：河川懸濁粒子、■：沈降粒子。

### 3. 結果と考察

表層堆積物中の有機炭素量の分布を図2に示した。有機炭素量は大陸斜面の1000m付近で高く、またそれには及ばないが大陸棚上の十勝川河口付近でも上昇が見られた。全窒素量も同様の分布を示した。

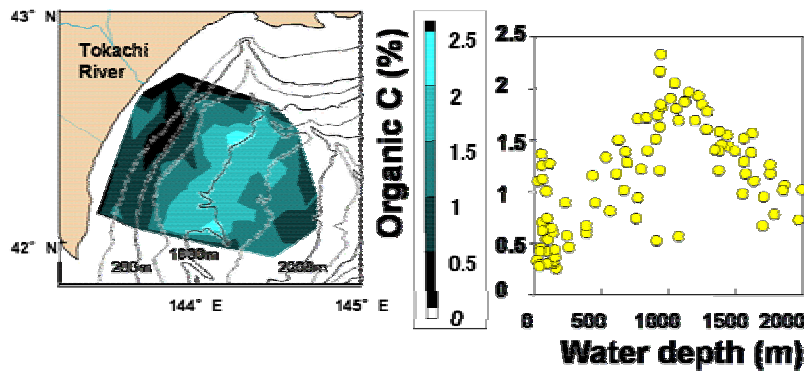


図2 十勝沖表層堆積物中の有機炭素量の水平分布及び水深に対する分布。

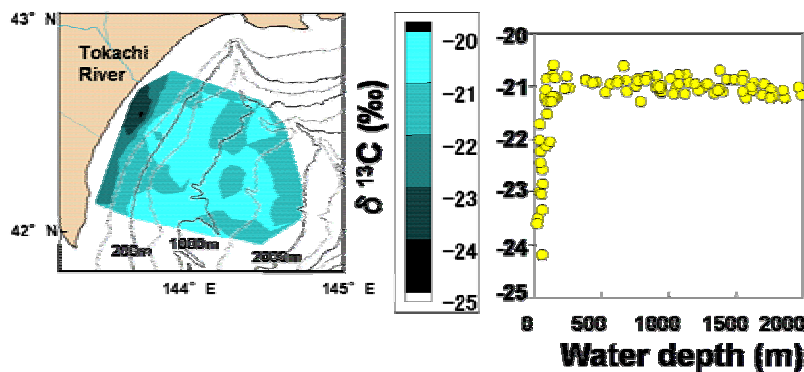


図3 十勝沖表層堆積物中の有機炭素の安定同位体比の水平分布及び水深に対する分布。

表層堆積物中の有機炭素の安定同位体比とC/N比を図3と4に示した。炭素・窒素同位体比は大陸棚上、特に十勝川河口付近で低く（ $^{13}\text{C}$  -24.2‰、 $^{15}\text{N}$  4.5‰）沖に向かって急速に上昇し、水深130m以深では変化が少ないという分布であった（130m以深の平均±標準偏差： $^{13}\text{C}$  -21.0±0.2‰、 $^{15}\text{N}$  5.9±0.3‰）。C/N比は、同位体比とは逆に陸側、特に河口付近で高く（12 mol/mol）沖に向かって急激に低下し、水深130m以深では変動が小さかった（130m以深の平均±標準偏差：8.4±0.3）。

堆積物と、懸濁粒子、沈降粒子の有機炭素・全窒素の同位体比の関係を図5に示した。北半球の中緯度域においては、河川を通して陸から運ばれる粒子状有機物と海洋表層の懸濁態有機物の炭素同位体比は、それぞれおおむね-25~-30‰、-18~-23‰であり、陸起源有機物の方が低い（Peters et al., 1978; Hedges & Mann, 1979; Holligan et al., 1984; Wada et al., 1987; Goericke & Fry, 1994; Thornton & McManus, 1994; 平山, 1996; Middelburg & Nieuwenhuize, 1998; Minagawa et al., 2001）。陸起源と海起源の有機物の窒素同位体比の範囲は重なりあっており（それぞれおおむね0から5‰、3から8‰）同位体比から区別することは炭素の場合に比べ難しいが、窒素同位体比に関しても陸起源の方が海洋

起源より低いことが多い (Peters et al., 1978; Wada et al., 1987; Thornton & McManus, 1994; 平山, 1996; Middelburg & Nieuwenhuize, 1998; Minagawa et al., 2001)。本研究で得られた結果を見ると、8月の海水の懸濁粒子の炭素同位体比が $-26\text{‰}$ と軽いほかは、上記の範囲に入っており、河川懸濁粒子の方が炭素・窒素とも低い値であった。植物プランクトンの成長速度が低下する時期には、光合成に伴う分別が増大し海洋植物プランクトンの炭素同位体比が軽くなることが報告されている (Laws et al., 1995)。現場の栄養塩およびクロロフィル a 濃度から、5月と11月はそれぞれ春と秋のブルームにあたり植物プランクトンの生長が高まり、炭素同位体比が上昇したと考えられた。一方8月は表面水温上昇による成層化の進行により亜表層からの栄養塩の供給が低下し、植物プランクトンの生長が低下して炭素同位体比も低下したと考えられた。懸濁体窒素に関しては、植物プランクトンが利用できる硝酸態窒素の量が低下すると同化の際の分別が起こらなくなり同位体比が上昇することが知られている。春のブルームの終盤(5月)と夏季(8月)には硝酸態窒素が枯渇していたため、窒素同位体比が上昇し、一方秋季の鉛直混合により表層に硝酸態窒素がもたらされていた11月には窒素同位体比が低下したと考えられた。

7 - 11月の水深50m地点の沈降粒子の炭素・窒素同位体比は水深567m地点の表層懸濁粒子に比べて変動が小さかった。水深50mの地点付近の表層水で生産される懸濁粒子の同位体比の季節変化が小さいか、もしくは季節変化があっても、海底上10mで採取したため、同位体比の季節変化の少ない堆積物の巻き上がりの影響を受けて表層懸濁粒子の変化の影響が小さくなったということが考えられた。

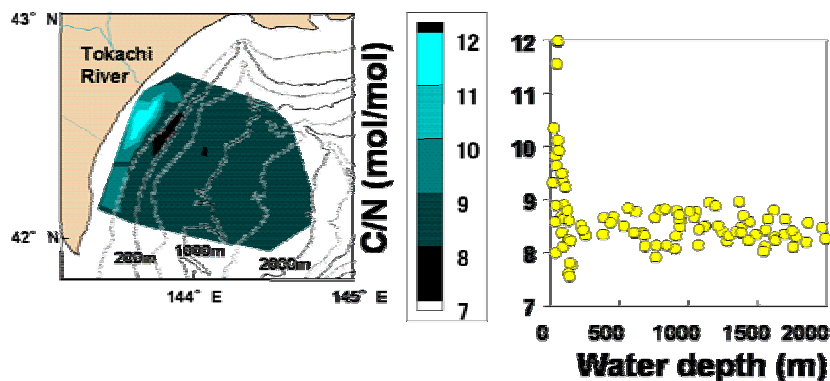


図4 十勝沖表層堆積物中のC/N比の水平分布及び水深に対する分布。

表層堆積物の炭素・窒素同位体比から、十勝沖海域においては陸から供給された有機物の堆積が大陸棚上部、特に十勝川河口沖で起こっており、一方130m以深の堆積物中の有機物の起源は、主に海洋表層で生産されたものであることが示唆された。また陸上の高等植物起源の有機物のC/N比は高く( $>12$ )、植物プランクトンを主体とする海洋表層の懸濁粒子は低い(6~9)ことが知られているが (Thornton & McManus, 1994; Middelburg & Nieuwenhuize, 1998) 十勝沖表層堆積物のC/N比の分布も、有機物の起源に関し炭素・窒素同位体比から示唆されることを支持している。

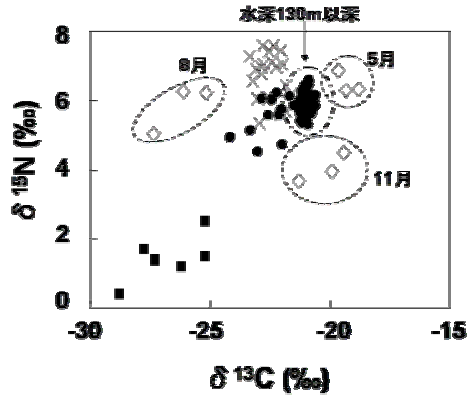


図5 堆積物(○) 懸濁粒子(海洋、水深 567 地点：●)、河川(●) 沈降粒子(水深 50m 地点：×)の有機炭素・全窒素の同位体比の関係。海洋の懸濁粒子については、海面から懸濁態有機炭素濃度のピークがある層(10 もしくは 20m)までの値を示した。

大陸棚及び大陸斜面上部においては、堆積物のシルトクレイ含量と有機炭素量との間に正の相関が見られることが多い(Hedges & Keil, 1995; de Haas et al., 2002)。無機粒子表面での吸着により有機物が堆積物に保持され、さらに微生物分解を受けにくくなるため、粒径の細かさと有機物含量の間に正の関係がある、また有機物粒子とシルトクレイ画分の無機粒子の沈降速度が近い、という主に物理化学的なメカニズムでこれらの関係は説明されている。十勝沖表層堆積物に関してもそのような関係が見られたが、水深 130 以浅ではそれ以深に比べ、シルトクレイ含量に対する有機物含量が高い観測点があった(図 6a)。そのようなデータは、有機炭素同位体比が低い場所で得られる傾向があった(図 6b)。浅い観測点では、堆積物表面での有機物保持に加えて、植物片などの陸起源有機物が粒子として存在することにより、シルトクレイ含量に対する有機物含量が高くなったと考えられた。

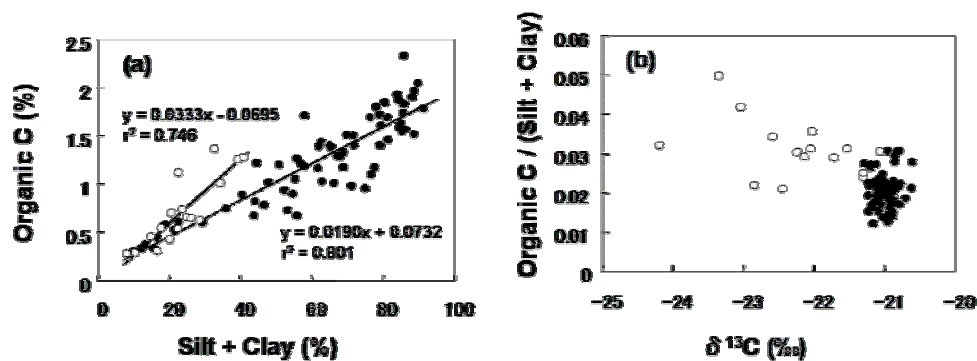


図6 (a) 堆積物のシルトクレイ含量と有機炭素含量の関係。(b) 堆積物の有機炭素の同位体比と(有機炭素含量/シルトクレイ含量)の関係。それぞれ、130m 以浅の地点は○、130m 以深は●で表示。

#### 4. まとめ

十勝沖表層堆積物中の有機炭素・全窒素の安定同位体比と C/N 比から、陸から供給された有機物の堆積が大陸棚上部、特に十勝川河口沖で起こっており、一方 130m 以深の堆積物中の有機物の起源は、主に海洋表層で生産されたものであることが示唆された。堆積物中の有機炭素量の分布は底質の細かさと対応しており、海流や潮汐による粒子の堆積状況の違いが有機炭素量を制御している第一の要因と考えられた。それに加えて大陸棚上では陸起源の有機物が粒子として堆積することにより、有機物含量が高まっていたと考えられた。

水深 50m 地点の沈降粒子と水深 567m 地点の懸濁粒子の炭素・窒素同位体比の季節変化が一致しなかったことから、大陸棚と大陸斜面では懸濁粒子の同位体比に空間的な変化がある可能性があることが示唆された。すでにこれまでの観測航海において、陸棚から斜面への変化を明らかにするための懸

濁粒子試料を採取しており、今後その試料を用いて解析を行っていく。

春季ブルームと融雪による河川の増水により、4月に海洋起源・河川起源とも年間の内で最も堆積物への粒子状有機物の供給量が多くなることが予想される。それに対応するため2004年4月に観測を行い、現在試料を分析中である。そのデータとここに示した結果と合わせ、堆積物へ供給される海起源・陸起源粒子の炭素・窒素安定同位体比の年平均値を推定し、堆積物中の有機物の起源をより精度よく推定したいと考えている。

十勝沖の陸棚と斜面でこれまでに7本の堆積物コア試料を採取した。現在、それらに関し堆積速度( $^{210}\text{Pb}$ 法)及び有機炭素量の測定を行っており、その結果を用いて、十勝沖海域の堆積物への有機炭素埋没フラックスと、海域の炭素循環への寄与を明らかにする予定である。

## 5. 謝辞

この研究は、北海道大学大学院地球環境科学研究科の南川雅男氏、乗木新一郎氏、長尾誠也氏、山本正伸氏、小野元也氏、北海道大学大学院水産科学研究科の工藤勲氏、門谷茂氏との共同研究により行いました。試料の採取にあたっては、うしお丸の船長及び乗組員の皆様、うしお丸第28、36、43次航海の乗船者の皆様、北海道大学低温科学研究所の関宰氏、北海道大学大学院地球環境科学研究科入野智久、小野元也、足立洋輔、堀川恵司の各氏にお世話になりました。またGH02航海の乗船者の方々には貴重な試料を分けていただきました。産業技術総合研究所の野田篤氏からは堆積物の粒径のデータをいただきました。厚くお礼申し上げます。

## 6. 引用文献

- de Haas H, van Weering TCE, and de Stieger H (2002) Organic carbon in shelf seas: sinks or sources, processes and products. *Continental Shelf Research*, 22, 691-717.
- Goericke R and Fry B (1994) Variations of marine plankton  $^{13}\text{C}$  with latitude, temperature, and dissolved  $\text{CO}_2$  in the world ocean. *Global Biogeochemical Cycles*, 8, 85-90.
- Hedges JI and Keil RG (1995) Sedimentary organic matter preservation: an assessment and speculative synthesis. *Marine Chemistry*, 49, 81-115.
- Hedges JI and Mann DC (1979) The characterization of plant tissues by their lignin oxidation products. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 43, 1803-1807.
- 平山篤志 (1996) 鶴川・沙流川水系より流出する懸濁態有機物の炭素・窒素同位体組成に関する研究。北海道大学大学院地球環境科学研究科修士論文。
- Holligan PM, Harris RP, Newell RC, Harbour DS, Head RN, Linley EAS, Lucas MI, Tranter PRG, and Weekley CM (1984) Vertical-distribution and partitioning of organic-carbon in mixed, frontal and stratified waters of the English Channel. *Marine Ecology Progress Series*, 14, 111-127.
- Laws EA, Popp BN, Bidigare RR, Kennicutt MC and Macko SA (1995) Dependence of phytoplankton carbon isotopic composition on growth rate and  $\text{CO}_2\text{aq}$ : Theoretical considerations and experimental results, *Geochimica et Cosmochimica acta*, 59, 1131-1138.
- Middelburg JJ and Nieuwenhuize J (1998) Carbon and nitrogen stable isotopes in suspended matter and sediments from the Schelde Estuary. *Marine Chemistry*, 60, 217-225.

Minagawa M, Ohashi M, Kuramoto T, and Noda N (2001)  $^{15}\text{N}$  of PON and nitrate as a clue to the origin and transformation of nitrogen in the subarctic North Pacific and its marginal sea. *Journal of Oceanography*, 57, 285-300.

野田 篤・片山 肇・池原 研 (2003) 十勝沖海域の表層堆積物 . 千島弧 - 東北日本弧会合部の海洋地質学的研究 ,平成 14 年度研究概要報告書 - 十勝沖海域 - ,地質調査総合センター速報 no.26 , 54-63 .

Peters KE, Sweeney RE and Kaplan IR (1978) Correlation of carbon and nitrogen stable isotope ratios in sedimentary organic matter. *Limnology and Oceanography*, 23, 598-604.

Thornton SF and McManus J (1994) Application of organic carbon and nitrogen stable isotope and C/N ratios as source indicators of organic matter provenance in estuarine systems: evidence from the Tay Estuary, Scotland. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 38, 219-233.

Wada E, Minagawa M, Mizutani H, Tsuji T, Imaizumi R, and Karasawa K (1987) Biogeochemical studies on the transport of organic matter along the Otsuchi River watershed, Japan. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 25, 321-336.

## 6 . 発表リスト

### 学会口頭発表

・ 碓井敏宏、長尾誠也、山本正伸、工藤勲、門谷茂、南川雅男 . 炭素・窒素安定同位体比を用いた十勝沖表層堆積物中の有機物の起源に関する研究 . 2004 年度海洋学会春季大会、筑波大学、2004 年 3 月 27 日 .

### 報告書等

・ 碓井敏宏・山本正伸・南川雅男、GH02 航海で採取された十勝沖表層堆積物の有機炭素・全窒素の安定同位体比と C/N 比 ( 予報 ) . 地質調査総合センター速報、30、170-179 .

・ 碓井敏宏、十勝沖海域における炭素循環の研究 - 海洋の炭素循環における沿岸域の役割の解明に向けて - . COE プログラムニュースレター第 3 号、北海道大学大学院地球環境科学研究科、2003 .

### 参考事項

### 投稿中の学術論文

Seiya N, Usui T, Yamamoto M, Minagawa M, Iwatsuki T and Noda A, Use of  $^{14}\text{C}$  and  $^{13}\text{C}$  values as a tracer of transportation and deposition processes of particulate organic matter with terrestrial origin in coastal marine environments. *Organic Geochemistry*.

### 学会口頭発表申し込み済み

碓井敏宏、工藤 勲、南川雅男、十勝沖海域における懸濁態有機炭素・窒素安定同位体比の季節変化 . 2004 年度海洋学会秋季大会、愛媛大学、2004 年 9 月 26 日 .