

深海シロウリガイ群集堆積物間隙水の溶存無機炭素の¹⁴C濃度と硫酸還元

増澤 敏行*、北川 浩之**、中塚 武*、半田 暢彦*、中村 俊夫***

*名古屋大学大気水圏科学研究所 〒464-01 名古屋市千種区不老町

**国際日本文化研究センター 〒610-11 京都市西京区御陵大枝山町

***名古屋大学年代測定資料センター 〒464-01 名古屋市千種区不老町

はじめに

大洋中央海嶺の熱水系深海高密度生物群集とは別に、1984年以来オレゴン沖や日本海溝などプレートの沈み込み帯などで、高温の熱水を伴わない所謂”冷湧水”系深海高密度生物群集が発見され始めた。どちらも太陽光の届かない深海にあり、光合成ではない化学合成に基礎をおく生態系と考えられているが、深海熱水系とは異なり、深海冷湧水系ではその高密度生態群集を支える栄養物質とエネルギー源がどのようなものがあまり明らかでない。その一つの理由は、熱水系とは異なり、冷湧水系では肉眼的に確認できるような湧水の存在は極めてまれであり、冷湧水を潜水調査船によっても直接採集するのが極めて困難なことによる。

1984年に潜水調査船しんかい2000により発見された相模湾初島沖の水深1100-1200mに分布する大型二枚貝であるシロウリガイ(*Calyptogena soyoae*)を優先種とする高密度生物群集は、冷湧水生物群集の代表例の一つとして、1986年以来しんかい2000による潜航調査が継続して行われている。筆者らは、生きているシロウリガイ群集直下の堆積物の間隙水が、この群集を支えている物質を解明する上で最も直接の情報を与えるとの想定のもと、潜水調査船用現場間隙水抽出装置(ISPS-S)開発し、間隙水の採集とその化学組成および同位体組成の解析を行ってきた(Masuzawa et al., 1992; 増澤他, 1993)。本研究では、シロウリガイ群集を支えているエネルギー源物質である硫化水素の生成機構を、間隙水の溶存無機炭素の¹⁴Cおよび¹³C濃度の立場から解明を試みる(Masuzawa et al., 1994)。

試料と方法

相模湾初島沖の高密度シロウリガイ

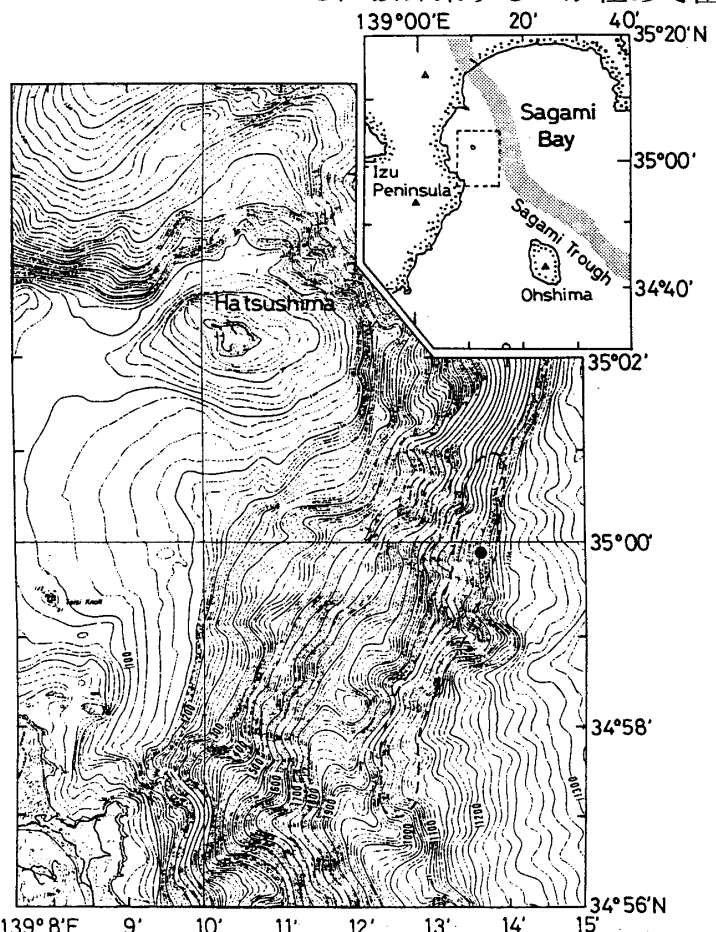


Fig. 1. Topographic map of the Hatsushima site, Sagami Bay, Japan (35°00.0'N, 139°13.5'E; 1,146m).

イ群集は、伊豆半島の急な陸斜面が 緩い傾斜面に移る水深900-1200mの南北7kmにわたって、10カ所程の長径数10から200m程度の密集した群集が分布している(Hashimoto et al., 1989)。その中で最大の群集(35°00.0'N, 139°13.5'E;水深1,146m; Fig. 1) で、1986年以来しんかい2000による潜航調査を継続している。1988年以後は、その中の同じシロウリガイのパッチで間隙水の採集を行っている。間隙水の採集は、しんかい2000用現場間隙水抽出装置 (ISPS-S; 増澤他, 1991) によりしんかい2000の第521潜航 (1990年11月4日)、第593潜航 (1991年12月2日)、第720潜航 (1993年11月26日)で行った。この装置は、装置を群集内に設置し、深さ0-45 cmに6カ所の抽出ポートを設けた槍をマニピュレータで重錘を繰り返し落下させることにより堆積物に打ち込み、その後流路開閉バルブを開いてシリンダーのバネで作動するピストンを作動させることにより間隙水を抽出し、最後に流路開閉バルブを閉じて、装置を潜水調査船のプラットホームに揚収し、母船なつしまに帰還した。母船上で、間隙水試料を装置から回収し、測定する各成分項目に応じた固定、保存措置をとって、試料を陸上の研究室に持ち帰った。東京大学海洋研究所淡青丸のKT-89-11航海でこのシロウリガイ群集の東方約4.5kmでボックスコア試料を採集し(KT-89-11, Bx-10; 34°59.8'N, 139°16.4'E;水深1368m; 長さ25cm)、相模湾の通常の堆積物としての参照として冷却遠心器により間隙水を抽出し、同様に分析を行った。

間隙水の主、少量イオン種および栄養塩類はMasuzawa et al. (1992)の方法で分析を行った。間隙水中の溶存無機炭素(DIC)は、真空ラインに直結した、過塩素酸溶液を入れたDIC追いだし装置に間隙水を導入し、精製した高純度Heをキャリアとして抽出し、液体窒素で捕集し、真空ラインに導入して精製し定量した。この一部を用いてMAT-252により、炭素安定同位体比($\delta^{13}\text{C}$)の測定を行い、残りの大部分を用いてバッチ法による鉄触媒水素還元法によりグラファイトに還元してホルダーにプレスしてターゲットとし(Kitagawa et al., 1993)、名古屋大学年代測定資料センターのタンデム加速器質量分析計(AMS)により、NBSシュウ酸標準試料を標準として ^{14}C 濃度を測定し(Nakamura et al., 1987), $\Delta^{14}\text{C}$ として求めた(Stuiver and Polack, 1977)。Bx-10コアの堆積物試料は、塩酸により無機態炭素を除去後、封管中で燃焼させ、真空ライン中で二酸化炭素を精製し(Minagawa et al., 1984)、同様に堆積物の有機態炭素(POC)の $\delta^{13}\text{C}$ と $\Delta^{14}\text{C}$ を求めた。

結果と考察

Fig. 2に相模湾の通常堆積物であるBx-10コアの間隙水の硫酸イオン濃度とDICとPOCの

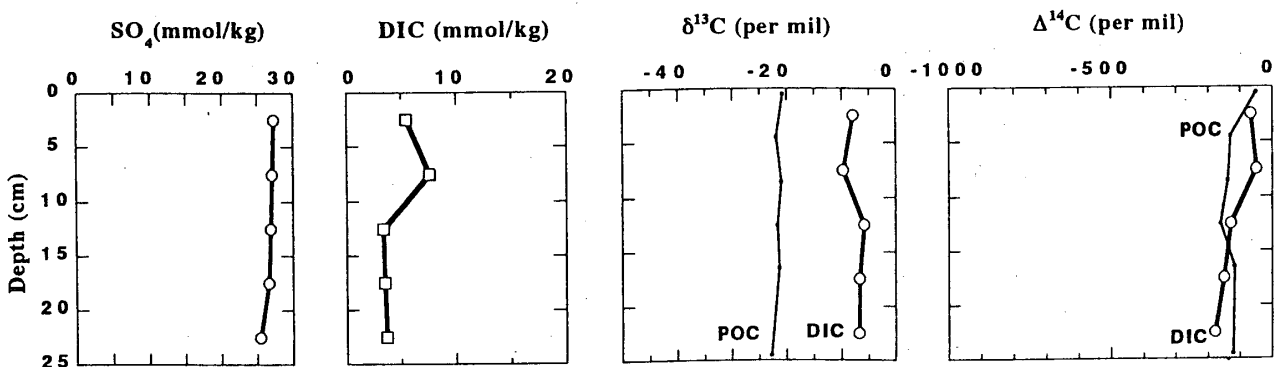
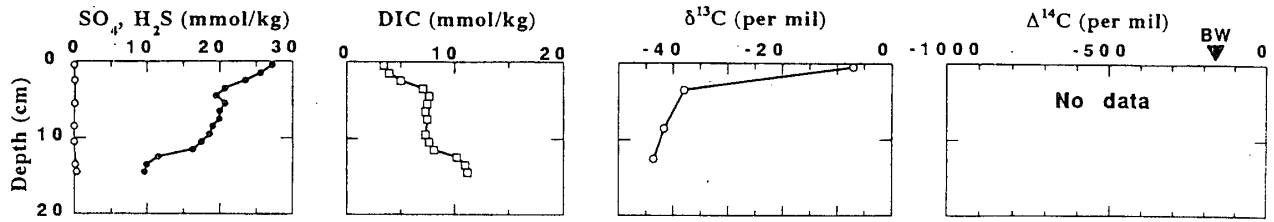
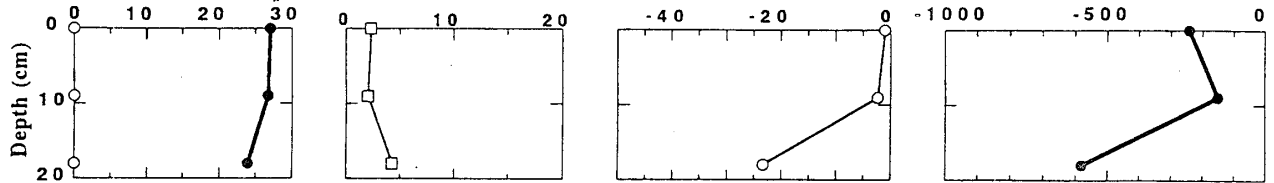


Fig. 2. Vertical profiles of sulfate (SO₄), dissolved inorganic carbon (DIC) and $\delta^{13}\text{C}$ and $\Delta^{14}\text{C}$ of DIC in pore waters as well as $\delta^{13}\text{C}$ and $\Delta^{14}\text{C}$ of particulate organic carbon (POC) of sediments in Core KT89-11, Bx-10 (34°59.8'N, 139°16.4'E; 1368m deep; 27 cm long) from the Sagami Bay.

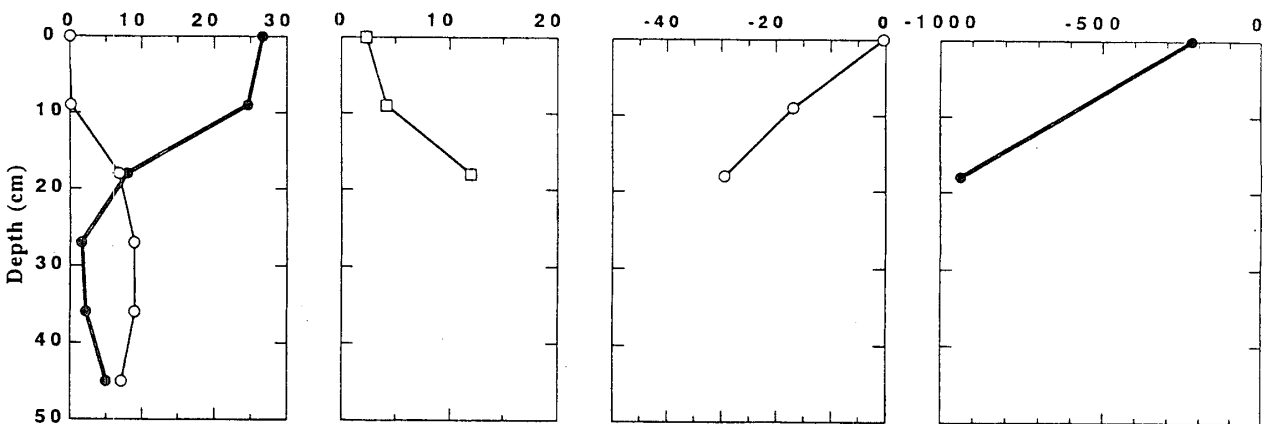
D380 (Nov. 4, 1988)



D521 (Nov. 14, 1990)



D593 (Dec. 2, 1991)



D720 (Nov. 26, 1993)

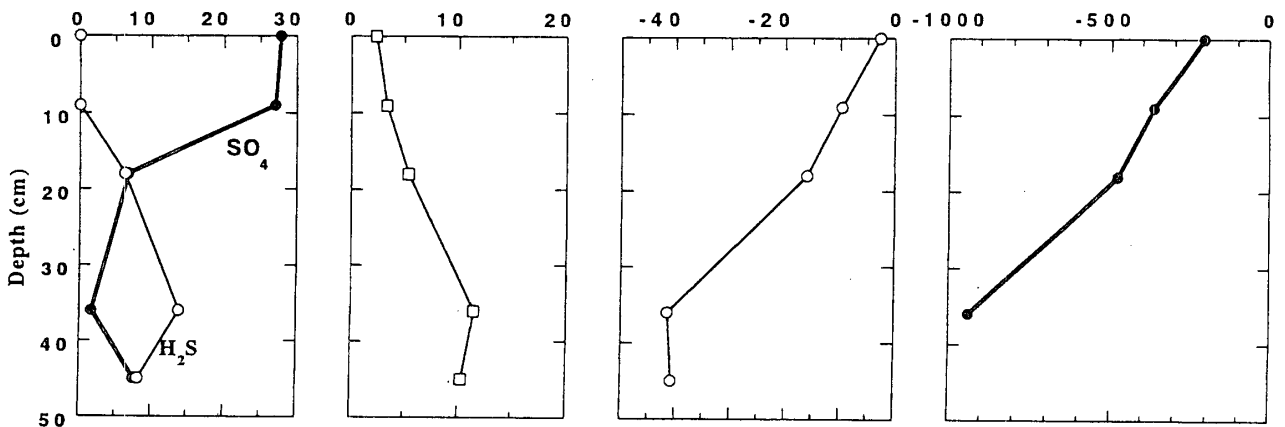


Fig. 3. Vertical profiles of sulfate (SO₄) and hydrogen sulfide (H₂S), dissolved inorganic carbon (DIC) and δ¹³C and Δ¹⁴C of DIC in pore waters collected with an in situ pore water squeezer for a submersible (ISPS-S) from a *Calyptogena* patch in the largest *Calyptogena* community at the Hatsushima site during Dives 521 (November 14, 1990), 593 (December 2, 1991) and 720 (November 26, 1993) of the submersible SHINKAI 2000. The top row shows those for pore waters extracted from a weight driven core collected at the same *Calyptogena* patch during Dive 380 (November 4, 1988) taken from Masuzawa et al. (1992). A Δ¹⁴C value of a bottom water (BW) collected at the community is also shown in the top row (solid triangle).

$\delta^{13}\text{C}$ と $\Delta^{14}\text{C}$ の鉛直分布を示す。主に海洋表層の光合成に由来すると考えられるPOCの $\delta^{13}\text{C}$ 値は-20.7から-22.8‰でありまた $\Delta^{14}\text{C}$ 値は0-1cmで-51‰が深さとともにやや減少し、深さ12-13cmで-161‰の極小値に至り、深さ24-25cmで-121‰になっていた。

Fig. 2に初島沖シロウリガイ群集で1990年(D521)、1991年(D593)と1993年(D720)に採集された間隙水の、硫酸イオン、硫化水素と、DICの濃度、 $\delta^{13}\text{C}$ 及び $\Delta^{14}\text{C}$ の鉛直分布を示す。比較として、第380潜航(1988年11月4日)に重錐コアラールにより同じシロウリガイパッチで採集した間隙水の結果(Masuzawa et al., 1992)も示す。

D593とD720の結果に明瞭に示されているように、硫酸イオン濃度は深さ9から20cmあたりで急激に減少し、深さ約20から40cmあたりで2mmol/kg以下という極めて低い極小値を示す。これに対応し、硫化水素濃度は急激に増加し、最高D593では9mmol/kg、D720では13.8mmol/kgという、極めて高い濃度が観測された。さらに硫酸イオンの減少に対応してDICも大きく増加している。DICの $\delta^{13}\text{C}$ 値は、堆積物表面での0‰から深さに伴うDICの著しい増加とともに急激に減少し-40から-45‰という、光合成起源の炭素の値にくらべ極めて低い値を示している。また $\Delta^{14}\text{C}$ 値も深さとともに急激に減少し、D593の深さ18cmでは $-938 \pm 20\text{‰}$ 、D720の深さ36cmでは $-9398 \pm 4\text{‰}$ と ^{14}C としてほぼ死んだ値を示している。これらの $\delta^{13}\text{C}$ と $\Delta^{14}\text{C}$ の鉛直分布は通常の堆積物であるBx-10コア(Fig.2)のそれらとは著しい違いを示している。

Fig.4に硫酸イオン濃度に対するDIC濃度、 $\delta^{13}\text{C}$ 値と $\Delta^{14}\text{C}$ 値との関係を示す。これらから、海水の値(BW)を出発とし、硫酸イオン濃度の減少にともないDIC濃度の増加と $\delta^{13}\text{C}$ 値の著しい減少及び $\Delta^{14}\text{C}$ 値の著しい減少が起こっていることが認められる。

これらの結果から、生きているシロウリガイ直下の間隙水中の深さ約20から40cmあたりで、極めて活発な微生物的硫酸還元とそれによる硫化水素の生成が進行中であることを示している。また、この微生物的硫酸還元に使われた還元剤である有機物が、光合成に由来する有機物ではなく、メタンであることを示している(Whiticar et al., 1986; Masuzawa et al., 1992)。

Fig.5に $\delta^{13}\text{C}$ の $\Delta^{14}\text{C}$ に対する関係を示す。SPOCは現在の海洋表層での光合成によって生

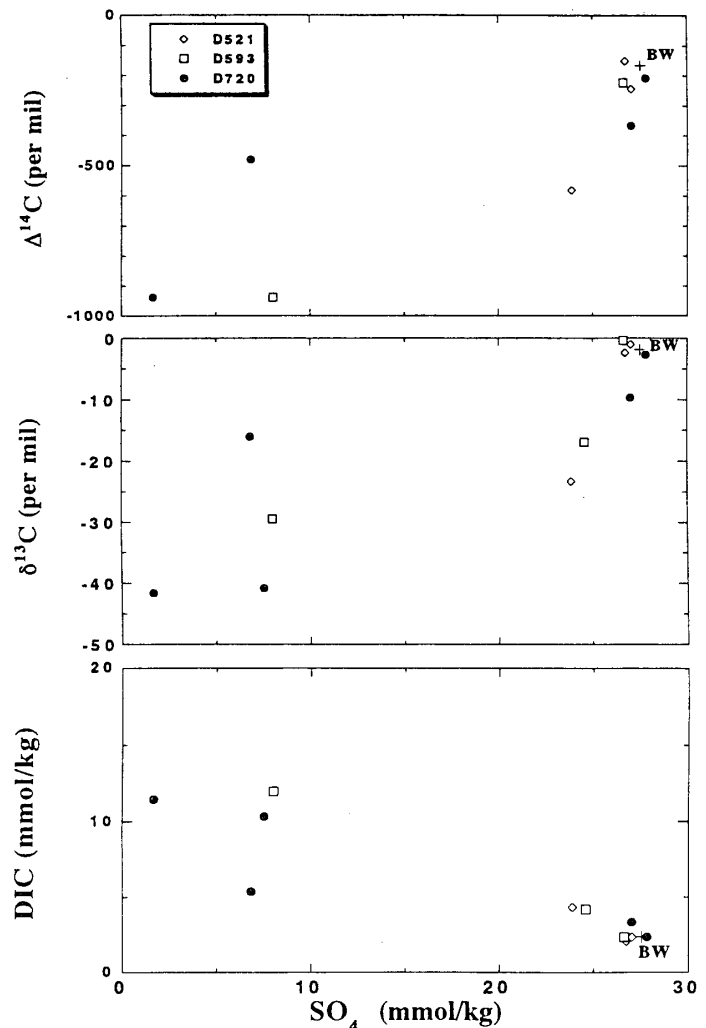


Fig. 4. Relationships of DIC (bottom), $\delta^{13}\text{C}$ (middle), and $\Delta^{14}\text{C}$ (top) versus sulfate in pore waters sampled with ISPS-S and in bottom water (BW) collected at a *Calyptogena* patch at the Hatsushima site.

産された粒子態有機物の値を ($\delta^{13}\text{C}=-20\text{‰}$ 、 $\Delta^{14}\text{C}=+140\text{‰}$; Druffel and Williams, 1990)。この図から、Bx-10コアのPOCは光合成起源の有機物が ^{14}C の放射解変により変化したものとして理解される。Bx-10コアの間隙水のDICは低層水のDICとSPOCの分解物との混合したものとして理解される。

一方シロウリガイ群集間隙水のDICは、相模湾の通常堆積物であるBx-10のPOCもしくはDOCとは全く別のものであることが、明瞭に示されている。3回の潜航調査で採集されたどれも、低層水の値から $\delta^{13}\text{C}$ 値および $\Delta^{14}\text{C}$ ともほぼ直線的に減少している。とりわけ、D720の結果では測定できた4試料がほぼBWを通る直線上に分布している。このことは、シロウリガイ群集間隙水中で、メタンを還元剤とする微生物的硫酸還元により生成したDICの ^{13}C と ^{14}C とが相互に保存的に振る舞っていることを示し、この間隙水中のDICが低層水(BW)のDICとメタンに由来するDICとの混合物として理解できるとを示している。このことから、酸化されたメタンが ^{14}C として死んでいると仮定する($\Delta^{14}\text{C}=-1000\text{‰}$)と $\delta^{13}\text{C}$ 値として -45‰ が推定される。

結論

相模湾初島沖の深海冷湧水シロウリガイ群集で、潜水調査船しんかい2000により現場間隙水抽出装置(ISPS-S)により群集内堆積物間隙水を採集しその化学組成を求めるとともに、そのDICの $\delta^{13}\text{C}$ と $\Delta^{14}\text{C}$ とを測定し、相模湾の通常の堆積物のそれらの値と比較した。その結果、シロウリガイ群集堆積物間隙水のDICが相模湾の通常の堆積物のDICとは全く異なるものであることが見いだされた。そのDICは、生きているシロウリガイ群集直下の深さ20-40cmで活発に進行中の、メタンを還元剤とする微生物的硫酸還元により生成し、その使われたメタンが極めて古いものであり、地下深所から供給されたものと推定された。またこのDICの $\delta^{13}\text{C}$ と $\Delta^{14}\text{C}$ とは相互に保存的に振る舞っており、その関係から $\Delta^{14}\text{C}=-1000\text{‰}$ の時の $\delta^{13}\text{C}$ 値として -45‰ が推定された。

謝辞

しんかい2000による潜航調査にあたっては段野司令を始めとするしんかい運行チームの協力を得た。あつく感謝する。

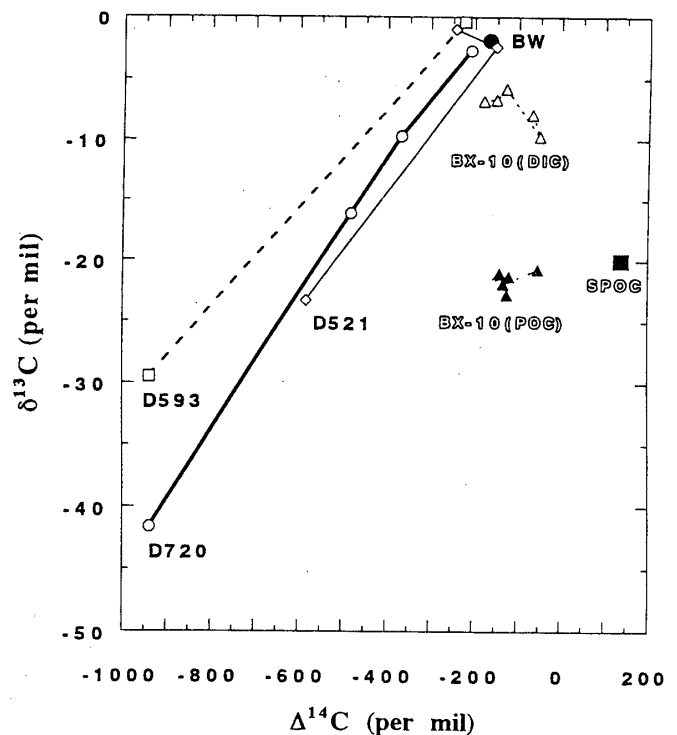


Fig. 5. Relationships between $\Delta^{14}\text{C}$ and $\delta^{13}\text{C}$ of DIC in pore waters samples with ISPS-S and those of a bottom water (BW) collected at a *Calyptogena* patch at the Hatsushima site as well as those of DIC and POC of Core KT89-11, Bx-10 from the western Sagami Bay.

参考文献

- Druffel, E.R.M and P.M.Williams (1990) Identification of a deep marine source of particulate organic carbon using bomb ^{14}C . *Nature*, **347**, 172-174.
- Hashimoto, J., S. Ohta, T. Tanaka, H. Hotta, S. Matsuzawa and H. Sakai (1989) Deep-sea communities dominated by the giant clam *Calymene* *soyoae*, along the slope foot of Hatsushima Island, Sagami Bay, central Japan. *Palaeogeography, Palaeoclimatology and Palaeoecology*, **71**, 179-192.
- Kitagawa, H., T. Masuzawa, T. Nakamura and E. Matsumoto (1993) A batch preparation method for graphite targets with low background for AMS ^{14}C measurements. *Radiocarbon*, **35**, 295-300.
- 増澤敏行, 北川浩之、半田暢彦 (1991) 潜水調査船用現場間隙水抽出装置による相模湾初島沖海底生物群集からの間隙水の採集: その2 (「しんかい2000」第521潜航) . 第7回「しんかい2000」研究シンポジウム報告書, 7-15.
- 増澤敏行, 中塚武、半田暢彦 (1993) 潜水調査船用現場間隙水抽出装置による相模湾初島沖海底生物群集からの間隙水の採集: その3 (「しんかい2000」第593潜航) . 第9回しんかいシンポジウム報告書, 221-231.
- Masuzawa, T., N. Handa, H. Kitagawa and M. Kusakabe (1992) Sulfate reduction using methane in sediments beneath a bathyal "cold seep" giant clam community off Hatsushima Island, Sagami Bay, Japan. *Earth and Planetary Science Letters*, **110**, 39-50.
- Masuzawa, T., H. Kitagawa, T. Nakatsuka, N. Handa and T. Nakamura (1994) AMS ^{14}C measurements of dissolved inorganic carbon in pore waters from a deep-sea "cold seep" giant clam community off Hatsushima Island, Sagami Bay, Japan. *Radiocarbon* (submitted).
- Minagawa, M., D. Winter and I.R. Kaplan (1984) Comparison of Kjeldahl and combustion methods for measurement of nitrogen isotope ratios in organic matter. *Analytical Chemistry*, **56**, 1859-1861.
- Nakamura, T., N. Nakai and S. Ohishi (1987) Techniques of tandem accelerator mass spectrometry and their applications to ^{14}C measurements. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, **B29**, 335-360.
- Stuiver, M. and H.A. Polach (1977) Reporting of ^{14}C data. *Radiocarbon*, **19**, 355-363.
- Whiticar, M.J., E. Faber and M. Schoell (1986) Biogenic methane formation in marine and freshwater environments: CO_2 reduction vs. acetate fermentation-Isotope evidence. *Geochimica Cosmochimica Acta*, **50**, 693-709.

¹⁴C Concentration of Dissolved Inorganic Carbon in Pore Waters from a Deep-sea *Calyptogena* Community and Microbial Sulfate Reduction

Toshiyuki Masuzawa*, Hiroyuki Kitagawa**, Takeshi Nakatsuka*,
Nobuhiko Handa* and Toshio Nakamura***

* *Institute for Hydrospheric-Atmospheric Sciences, Nagoya University, Nagoya 464-01, Japan*

***International Research Center for Japanese Studies, Kyoto 610-11, Japan*

****Dating and Material Reserch Center, Nagoya University, Nagoya 464-01, Japan*

ABSTRACT. Pore waters were collected using an in situ pore water squeezer for a submersible (ISPS-S) at six different depths (0, 9, 18, 27, 36, and 45 cm beneath the bottom surface) within a deep-sea "cold seep" giant clam community off Hatsushima Island, Sagami Bay, Japan (35°00.1'N, 139°13.4'E; 1146m deep) during Dives 521, 593 and 720 of the submersible SHINKAI 2000. A box core sample was collected ca. 4.5 km east of the community and pore waters were separated as a usual Sagami Bay sediment. Dissolved inorganic carbon (DIC) was extracted and purified in a vacuum line and ¹⁴C concentration was determined with a Tandetron AMS at Nagoya University after conversion to graphite targets by a batch Fe-catalytic hydrogen reduction method in addition to ¹³C/¹²C ratio. $\Delta^{14}\text{C}$ values decreased extremely to -938 ‰ with increasing depth at the minimum of sulfate concentration. This indicates that methane used for the active reduction of sulfate and formation of hydrogen sulfide, which is used by symbiotic chemoautotrophic bacteria in gills of the giant clams, is almost dead and might be supplied from the deep. $\Delta^{14}\text{C}$ values of DIC vary linearly with $\delta^{13}\text{C}$ values along a mixing line between the bottom water and DIC produced by oxidizing almost dead methane. The $\delta^{13}\text{C}$ value of the oxidized dead methane is estimated to be ca. -45 ‰.

口頭発表

増澤敏行、中塚武、半田暢彦 (1993) 相模湾初島沖深海シロウリガイ群集堆積物間隙水の化学組成 (続報). 1993年度日本海洋学会春季大会講演要旨集 (東京) 31-32.

増澤敏行 (1993) "冷湧水" 深海生物群集の地球化学的研究. 第10回しんかいシンポジウム予稿集 (東京), 59-64.

増澤敏行、中塚武、半田暢彦 (1994) 相模湾深海シロウリガイ群集間隙水の化学組成. 1994日本地球化学会年会講演要旨集 (名古屋), 31-32.

Masuzawa, T., H. Kitagawa, T. Nakatsuka, N. Handa and T. Nakamura (1994) AMS ^{14}C measurements of dissolved inorganic carbon in pore waters from a deep-sea "cold seep" giant clam community off Hatsushima Island, Sagami Bay, Japan. In: Abstracts of 15th International Radiocarbon Conference (ed. by G.T. Cook et al.), Glasgow, Scotland, 15-19 August, 1994.

学会誌への発表

Kitagawa, H., T. Masuzawa, T. Nakamura and E. Matsumoto (1993) A batch preparation method for graphite targets with low background for AMS ^{14}C measurements. Radiocarbon, 35, 295-300.

増澤敏行、中塚武、半田暢彦 (1993) 潜水調査船用現場間隙水抽出装置による相模湾初島沖海底生物群集からの間隙水の採集: その3 (「しんかい2000」第593潜航). 第9回しんかいシンポジウム報告書, 221-231.

Masuzawa, T., H. Kitagawa, T. Nakatsuka, N. Handa and T. Nakamura (1994) AMS ^{14}C measurements of dissolved inorganic carbon in pore waters from a deep-sea "cold seep" giant clam community off Hatsushima Island, Sagami Bay, Japan. Radiocarbon (submitted).