炭素・窒素の安定・放射性同位体組成から見た海洋沈降粒子有機物の分解過程

中塚　武・半田暢彦・杉本多津宏[1]・今泉茂巳[2]・原田尚美[3]・松本英二
（名古屋大学大気水圏科学研究所（現：[1]トヨタ自動車、[2]岐阜県庁
[3]日本海洋科学技術センター））

1．はじめに

マリンスノーや動物プランクトンの糞粒（フィーカルペレット）等の沈降粒子は、海洋において、溶存物質濃度の鉛直分布を規定する中心的役割を担っており、その活発な炭素等生元素の表層から深層への運搬能力（バイオロジカルポンプ）は、海洋表面水の炭酸濃度を低め、間接的に大気中の二酸化炭素濃度をコントロールする、地球表層の物質循環系の鍵を握る部分である。海洋の物理的な大循環モデルに化学・生物過程を組み込んだ「海洋物質循環モデル」でも、この沈降粒子は基幹的部分として組み込まれ（Bacastow and Maier-Reimer,1990など）、その海洋表層での生産量（＝新生産量）および中・深層での分解率を精度良く決定すること（Martin et al, 1987など）は、海洋物質循環の過去・現在・未来を定量的に認識・予測する上で、極めて重要であることとされてきた。そうした目的で、過去約２０年間にわたり、沈降粒子を捕捉するための、数多くのセジメントトラップ実験が行われてきたが、その中で明らかとなってきたことの一つが、「海洋深層の沈降粒子の中には、海洋表層から直接沈降してきたものの他に、直下の海底や周辺の大陸斜面から再懸濁した堆積物粒子が、相当量含まれている」という事実である（Honjo et al., 1982など）。有機炭素・窒素等の沈降粒子有機物のフラックスの鉛直変化から、その分解率等を正確に決定するためには、この再堆積性の沈降粒子の影響を定量的に除去しなければならない。筆者らの研究グループでは、沈降粒子有機物の炭素・窒素安定同位体比の時空間変動から、その生成・分解過程の解析を進めると同時に、堆積物の放射性炭素同位体比が、表層起源の沈降粒子のそれと比べて極めて低い値を持つことを利用して、沈降粒子への堆積物からの再懸濁粒子の混入の影響についても検討を進めてきた（半田等，1993、中塚・半田，1994）。本論では、過去数年にわたる観測によって蓄積した、それら同位体組成のデータから、主に「堆積物粒子の沈降粒子への混入率の評価」および「表層から来る沈降粒子の分解メカニズムの検討」を行う。

2．試料と方法

本論で取り扱う沈降粒子試料は、図１に示した各地点に、表１の期間・深度にわたって、設置されたセジメントトラップによって、採取されたものである。設置地点は、南からそれぞれ、赤道域、温帯域、亜北極域に位置すると共に、地形的には、深海平原の真中、海溝の内部、海溝の外側数百kmといった場所に位置し、水平的にも鉛直的にも、特徴的な同位体比のシグナルが得られることが期待できた。それぞれのセジメントトラップには、各13（または、21）個の自動交換式のサンプル採取ボトルが装着

表１．セジメントトラップの設置場所（水深）・深度・期間 (Table 1. Site location (water depth) and deployment depth and period of sediment traps)

	Location	Water depth	Deployment depth	Period
(NNWP-02)	44°N,155°E	5305m	1335m,4785m	89/6/30-90/5/21
(JT-06)	34°10'N,142°E	9200m	4789m,8789m	90/3/25-91/2/20
(JT-07)			1674,4180,5687,8688m	91/3/5-92/3/3
(CEPS-01)	0°N,175°E	4800m	830m,4290m	90/10/15-91/9/18
(CEPS-03)			1700m,4220m	92/9/22-93/8/24

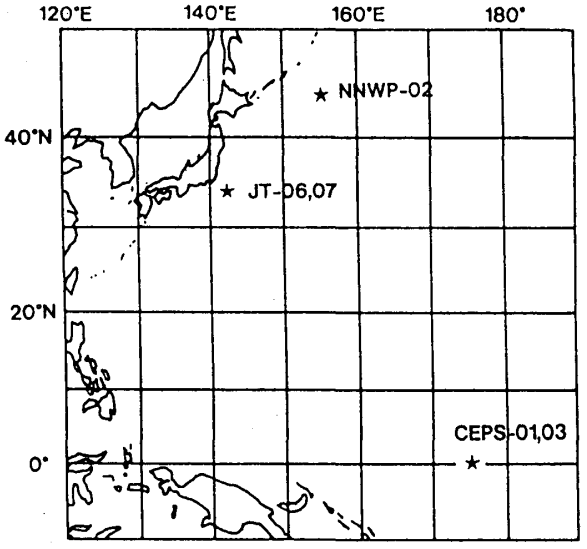
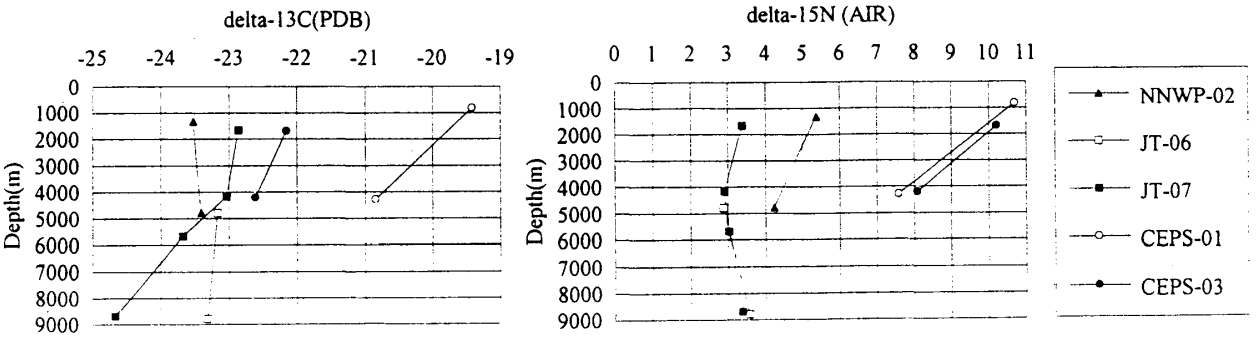


図１．セジメントトラップの設置地点 (Fig.1. Site Locations of Sediment Traps)



(a) (b)

図２．沈降粒子の全有機炭素・全窒素の$\delta^{13}C$ (a)、$\delta^{15}N$値 (b) (時間荷重平均値）の空間分布 (Fig.2. Spatial distribution of $\delta^{13}C$ (a) and $\delta^{15}N$ (b) of total organic carbon and total nitrogen (temporal weighted mean values) in sinking particles.)

され、各設置期間内に等時間間隔で、各13（21）個の時系列サンプルが得られるようになっている。各ボトルには、現場でのサンプルの腐敗防止のために、濾過海水で薄めた５％ホルマリン溶液を、あらかじめ充填した。回収したサンプルの一部は、実験室内で塩酸処理を行って、炭酸塩を除去した後、蒸留水で脱塩、乾燥し、その一部を、Yanako CHN Corder (MS-1)による全有機炭素・全窒素含有量の分析に供した。元素分析の残りの脱炭酸塩試料は、石英管中に酸化銅、還元銅各１ｇと共に真空封管し、850 ℃にて２時間燃焼して、含有の全有機炭素・全窒素を、それぞれCO_2,N_2ガスに変換した（Minagawa et al.,1984）。生成したCO_2,N_2ガスは、真空ライン中で冷媒法で分離・精製し、それぞれMAT251質量分析計にて、その安定同位体比を測定した。また、上記の方法で精製した、CO_2 ガスの一部は、Kitagawa et al.(1984) の鉄－水素還元法にてグラファイト化して、名古屋大学年代測定資料研究センターのタンデム加速器質量分析計で、その$^{14}C/^{13}C$ 比を測定した。グラファイトターゲットは、測定後酸化銅と共に石英管に真空封管し、1000℃で８時間の燃焼により再びCO_2 化して、その$^{13}C/^{12}C$ 比をMAT251質量分析計にて測定し、グラファイトの$^{14}C/^{12}C$ 比を計算すると共に、グラファイト生成時の同位体分別効果の補正を行った。炭素・窒素の安定同位体比、炭素の放射性同位体比は、それぞれ以下の方法で表示する。

$$\sigma X = (R\,sam/R\,std - 1) \cdot 1000 \quad (‰)$$

ここで、ＸとＲは、それぞれ、^{13}Cと$^{13}C/^{12}C$、^{15}Nと$^{15}N/^{14}N$、^{14}Cと$^{14}C/^{12}C$であり、各表記中のスタンダードは、それぞれ米国ノースカロライナ州PeeDee層産の矢石化石（PDB）、大気窒素（AIR)、1950年に大気中で形成された-25‰の安定同位体比を持つ木の1950年当時の値である（Stuiver and Polach, 1977）。測定誤差は、$\delta^{13}C$値、$\delta^{15}N$値の場合、繰り返し再現性にして、それぞれ、±0.1、0.2‰以内、$\delta^{14}C$値の場合、標準偏差（１σ）にして、10‰程度である。以下に述べるように、同位体比は、沈降粒子の１年間の荷重平均値（数サンプル以上の平均値）にして表示するので、個々の誤差の大きさについては、以下、表示しない。

３．沈降粒子同位体組成の水平・鉛直分布とその特徴

本論では、主に沈降粒子の鉛直輸送に伴う分解過程や、そこへの堆積物からの再懸濁粒子の混入の問題について検討する。ところで、各セジメントトラップ実験から得られたデータは、各深度ともに、もともと、約１年間の時系列変化を含むデータである。それらは、表層水環境の季節変動等の情報を含む貴重なものであるが、その時系列データを鉛直方向にそのまま比較した場合には、粒子の沈降にともなう上下トラップ深度間のタイムラグ等の影響で、単純な鉛直方向の変化の議論が難しい。そこで、一般に、沈降過程での粒子の変質等を純粋に議論する場合には、時系列データを、あらかじめ１年間の荷重平均値にして、鉛直的に比較することが多い（Walsh et al., 1988等）。本論でも、季節変動の議論等はひとまずおいて、同位体組成の１年間の荷

重平均値のデータを用いて、その空間分布を議論することとした。ただし、NNWP-02 および CEPS-01では、セジメントトラップの機械的トラブルにより、それぞれ上部のトラップにおいて、13期間中の後半６および５期間のサンプル採取が行えなかったため、荷重平均操作は、上下層とも、前半の７および８期間のサンプルについてのみ、行っている。

図２に沈降粒子全有機炭素・全窒素のδ^{13}C、δ^{15}N値の荷重平均値の空間分布を示す。上部層のトラップにおける水平方向の比較では、δ^{13}C値の場合、CEPS＞JT＞NNWPの順に、同位体比が低下した。これは、当該海域表層の水温変化傾向と調和的であり、海洋表層で作られる植物プランクトンのδ^{13}C値が、水温の高い赤道海域において、その表層水中の低い遊離炭酸濃度（[CO2]aq） や高い光合成活性によって、炭酸取り込み時の同位体分別効果が小さくなること（Laws et al.,1995）を反映し、他の海域より高くなっていることに由来していると思われる。δ^{15}N値の場合、水平方向には、CEPS＞NNWP＞JTの順に変化した。CEPS地点の沈降粒子のδ^{15}N値は、通常、外洋域で表層水に供給される唯一の窒素源である「深層からの硝酸のδ^{15}N値」（＝約６‰：Liu and kaplan, 1991）より、遥かに大きい。これは、当西部赤道太平洋の表層水に供給される硝酸が、直下の深層水からではなく、主に東部赤道太平洋の湧昇域から表層を南赤道海流により運ばれてくること（Pena et al.,1994）、および、その西方向への表層移流中に植物プランクトンによりδ^{15}N値の低い硝酸が優先的に取り込まれ、その結果、当海域へ供給されるときには硝酸のδ^{15}N値が著しく高くなったことを反映している（Altabet and Francois, 1994）。また、JT地点での、低いδ^{15}N値は、当黒潮海域における窒素固定能を持ったらん藻の存在により説明できる（窒素固定により生産された植物プランクトンのδ^{15}N値は、０‰程度）。本論では、しかし、こうした水平方向の議論（Nakatsuka et al., 1995）ではなく、鉛直方向への同位体比の変化について、以下、主に考察する。

鉛直方向には、概ね全ての地点で、δ^{13}C、δ^{15}N値ともに、下方へ向けての低下傾向が見られた。一般に、物理化学過程においては、軽い分子、即ち^{12}Cや^{14}Nで出来ている分子の方が、^{13}Cや^{15}Nからなる分子より反応性に富む。それ故、単純に考えれば、沈降時の有機物の分解過程でも、軽い分子が優先的に消失し、残った沈降粒子中の有機物の同位体比は、高くなる（即ち、鉛直下方に向けて、δ^{13}C、δ^{15}N値は増大する）はずである。しかし、δ^{13}C値の場合には、分子種間のその値の差が著しく、糖やアミノ酸などの高いδ^{13}C値の分子が、脂質などの低いδ^{13}C値の分子に比べて優先的に分解するということで、こうした分解時のδ^{13}C値の低下は、堆積物や懸濁粒子においては、説明されてきた（Spiker and Hatcher, 1984等）。ここで、大きな問題になるのは、δ^{15}N値の低下である。一般に、分解に伴うδ^{15}N値の低下は、沈降粒子以外では全く確認されておらず、実際、懸濁粒子のδ^{15}N値は、鉛直下方へ向けてむしろ増大する（Saino and Hattori,1980）。こうした沈降粒子δ^{15}N値の鉛直下方への低下をはじめて報告した Altabet et al.(1991) は、その説明として、次の２つ、即ち、Ａ．重いδ^{15}N値を持つ特定の分子種の優先的分解、もしくは、Ｂ．

深層水中での軽いδ^{15}N値を持った有機物の付加（＝バクテリアによる周辺の硝酸の、大きな同位体分別を伴う取り込み）の２つの可能性を示唆した。しかし、現在に至るまで、その具体的なメカニズムは一切、明らかとなっていない。

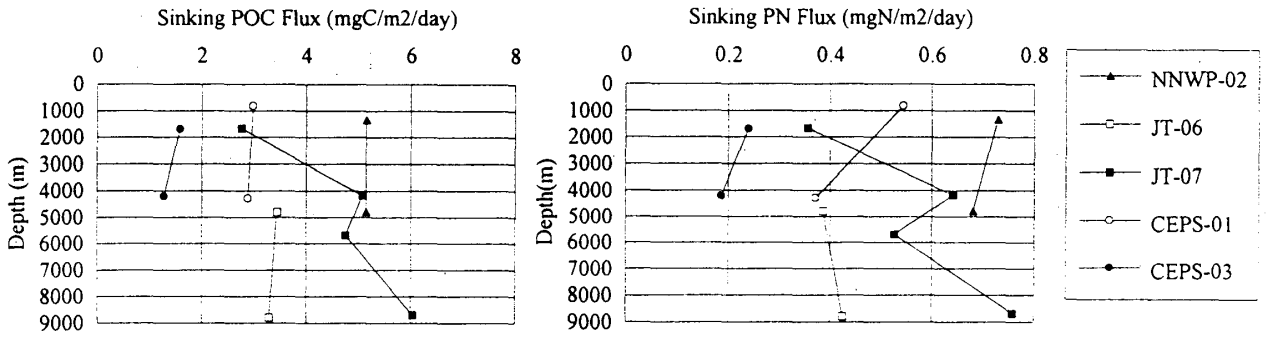
今回得られた、図２-bの結果には、更に幾つかの特徴が見られる。１つは、鉛直下方へのδ^{15}N値の減少率が、CEPS＞NNWP＞JTの順に小さくなり、もともとδ^{15}N値の高い沈降粒子において、減少率が大きくなっているということである。これは、海洋深層の広範な領域において、バクテリア起源の「同じ低さのδ^{15}N値」を持った有機物が、沈降粒子に等しく付加しているとすれば説明でき、上記の Altabet et al.(1991）のＢの仮説を支持する。しかし、同時に、JT地点では、上記の２つの仮説では説明できない「海溝内部でのδ^{15}N値の鉛直分布の屈曲」が認められ、また、図３に見られるように、沈降粒子フラックス自身が、鉛直下方へ向けてむしろ増大するという現象も見られた。これらは、沈降粒子に対する下方からの、堆積物の再懸濁粒子の混入の可能性を強く示唆しており、沈降粒子有機物のδ^{13}Cやδ^{15}N値の、沈降過程での純粋な変化を議論するためには、それら再懸濁粒子の影響の除去が不可欠であることを示している。

しかし、現実には、個々のセジメントトラップ実験における粒子の沈降過程での分解率が分からないので、図３のプロファイルのみからでは、再懸濁成分の割合を定量的に決定することはできない。そこで、本論で再懸濁成分の定量的評価のために用いるのが、沈降粒子有機炭素のδ^{14}C値である。一般に、沈降粒子の沈降速度は、100m/day程度（Deuser et al.,1990）であるから、表層から沈降してくる沈降粒子のδ^{14}C値が、沈降中に大きく変化することはあり得ない。それ故、図４に見られる、JT-06 や NNWP-02トラップでの、-100や-200‰といった低い値は、必然的に、堆積物からの再懸濁粒子の混入によってのみ、説明可能である。図中、３地点でのδ^{14}C値の鉛直プロファイルは、深海平原の真中（CEPS-03)では、堆積物の再懸濁の影響がほとんど見られないのに対して、海溝内部（JT-06)や海溝の周辺部（NNWP-02)では、堆積物の再懸濁の影響が、特に下層のトラップにおいて、著しいことを示唆している。このような海溝付近での堆積物の再懸濁の発生の原因については、第一に、大陸棚や大陸斜面に近いことによる、深層の水平方向からの再懸濁粒子の輸送の可能性（Honjo et al., 1982）に加えて、第二に、これらの海域が大洋の西岸に位置することで、強い深層流が流れていること（Hogg, 1983）にも由来する可能性がある。

４．δ^{14}C値による堆積物からの再懸濁起源フラックスの計算ー試論

図４の沈降粒子有機炭素のδ^{14}C値が、実際に、表層から来る沈降粒子のδ^{14}C値と堆積物の再懸濁起源粒子のδ^{14}C値の混合で決まっているとすると、各サンプルのδ^{14}C値（δ^{14}Csink）について、以下の式が成り立つ。

$$\delta^{14}\mathrm{Csink} = \delta^{14}\mathrm{Cnew}\cdot(1-rc) + \delta^{14}\mathrm{Csed}\cdot rc \qquad (1)$$



(a) (b)

図３．沈降粒子の全有機炭素（a）・全窒素（b）フラックス（時間平均値）の空間分布（Fig. 3. Spatial distribution of fluxes of sinking particulate total organic carbon (a) and total nitrogen (b) (temporal mean values).）

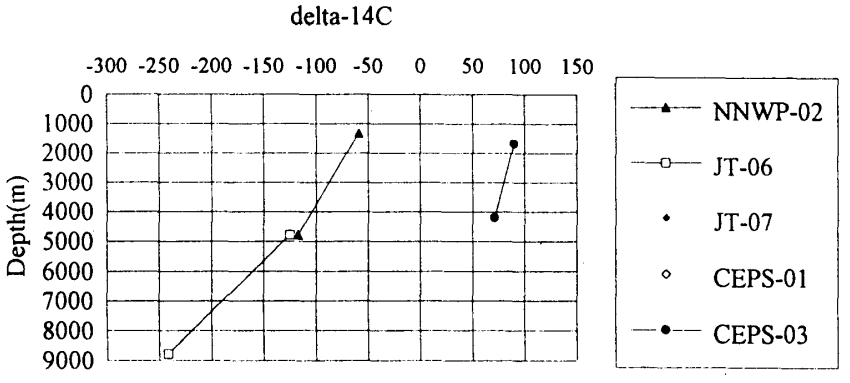


図４．沈降粒子の全有機炭素の$\delta^{14}C$値（時間荷重平均値）の空間分布（Fig. 4. Spatial distribution of $\delta^{14}C$ of total organic carbon (temporal weighted mean values) in sinking particles.）

表２．トラップ周辺域での表層懸濁粒子及び表層堆積物の$\delta^{14}C$、$\delta^{13}C$、$\delta^{15}N$、C／N比（Table 2. $\delta^{14}C$, $\delta^{13}C$, $\delta^{15}N$ and C／N ratios of surface water suspended particle and surface sediment organic matter around trap sites.）

		$\delta^{14}C$	$\delta^{13}C$	$\delta^{15}N$	C／N
(JT-06)	Surface POM (CB-1-2)[1]	+27			
	Surface Sediment (LM-6)[2]	-291	-20.9	5.7	8.6
(NNWP-02)	Surface POM (DE-2)[3]	-44			
	Surface Sediment (DR-13)[4]	-291	-20.6	5.5	7.1

[1] 200m (1987.6.7), [2] 0-1cm, [3] 50m (1985.8.11: 46°42.9'N, 162°22.4'E)
[4] 0-5cm ($\delta^{14}C$), 4-12cm ($\delta^{13}C$, $\delta^{15}N$, C／N) (53°09.7'N, 177°19.4'E)

ここで、δ^{14}Cnew、δ^{14}Csedは、それぞれ、表層から直接沈降してくる粒子および堆積物から再懸濁した粒子のδ^{14}C値であり、ｒｃ は、沈降粒子中の全有機炭素に占める堆積物の再懸濁成分の割合である。式（１）を変形すると、ｒｃ を求める式、

$$rc = (\delta^{14}Cnew - \delta^{14}Csink) / (\delta^{14}Cnew - \delta^{14}Csed) \quad (2)$$

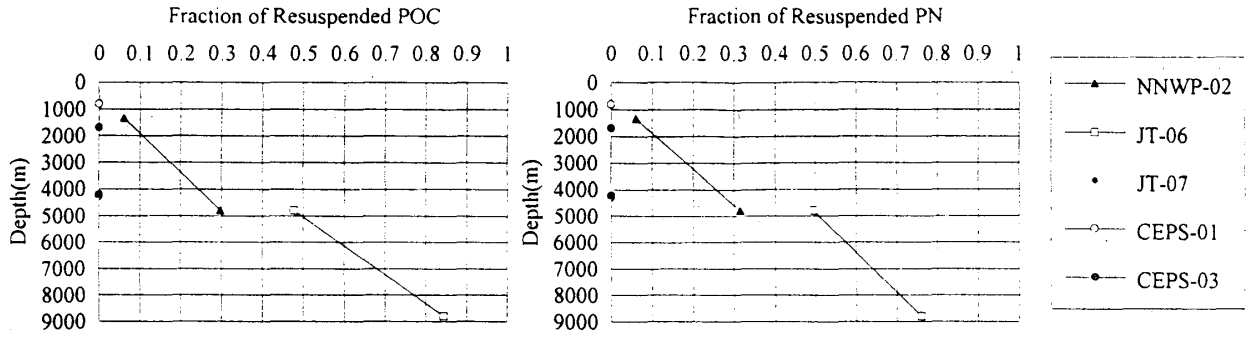
が得られる。

この式（２）から、実際に、ｒｃ を求めるためには、δ^{14}Cnew、δ^{14}Csedを各トラップ地点において、決定することが必要である。その決め方には、第一に、沈降粒子の同位体組成やフラックスの時空間分布データから、（仮定を幾つかおいて）計算で求める方法と、第二に、実際の表層水の植物プランクトン（懸濁粒子）や堆積物のδ^{14}C値を測定して決める方法がある。それぞれ、「仮定の信頼性」や「測定データの普遍性」といった問題点をはらんでいるが、今回は、後者の方法を採った。δ^{14}C new、δ^{14}Csed を、決定するのに用いたサンプルの由来と、それぞれのδ^{14}C、δ^{13}C、δ^{15}N値、C/N比のデータを、各トラップ地点毎に、表２に示す。各々の、分析方法は、本論２章に述べた沈降粒子の分析法に準じた。尚、CEPS-01,03については、図４のプロファイルから「この地点では堆積物の再懸濁の影響はない」と判断して、式（２）の計算は行わず、あらかじめ、ｒｃ ＝０とした。表２の中で、JT地点については、堆積物・表層懸濁粒子ともに、トラップの直下（LM-6）および、直上のサンプル（CB-1-2）を用いているが、NNWP-02 地点については、完全に同じ場所のサンプルがなかったため、表層懸濁粒子については、同じ北西部北太平洋のDE-2地点から、堆積物については、極前線以北の北部北太平洋海域を代表するものとして、ベーリング海南部のDR-3地点（渡邊、1988; Nakatsuka et al., 1995）の値を採用した。この場の表層懸濁粒子のδ^{14}C値が、JT地点のそれと比べて低いのは、冬期の活発な鉛直混合により、下層からの「古い水」の供給が盛んであることを反映していると思われる。一方、堆積物表層の値は、生物擾乱等を反映して、予想通り、表層水中の懸濁物に比べてかなり低くなっている（表２）。

図５-aに、式（２）と図４・表２のデータを使って求めた、JT-06およびNNWP-02の沈降粒子有機炭素に対する、堆積物からの再懸濁粒子の混入率（ｒｃ）の鉛直プロファイルを示す（JT-07 については、δ^{14}C値の測定をしていないので、表示していない）。ここで、更に沈降粒子全窒素に対する同様の計算を行うために、堆積物粒子の再懸濁の際には、粒子のＣ／Ｎ比（表２）は保存されるとして、以下の式を用いた。

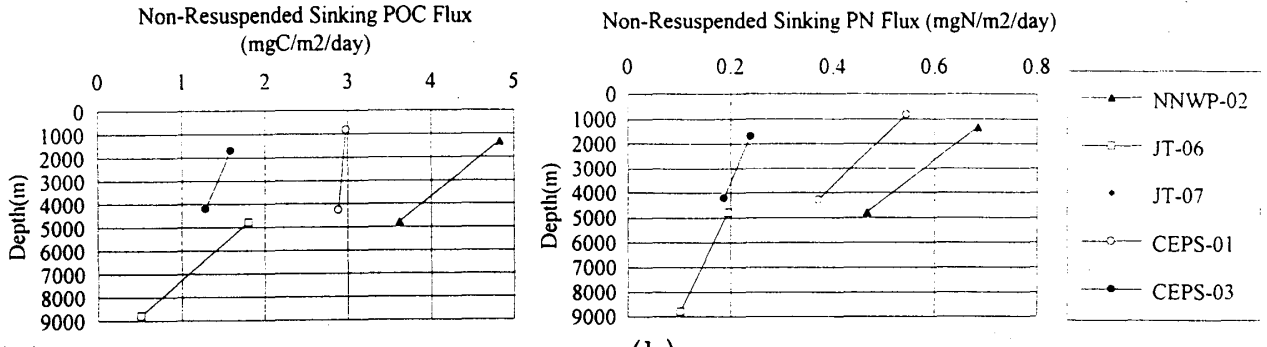
$$rn = rc \cdot (C/N)sink / (C/N)sed \quad (3)$$

ここで、ｒｎ は、沈降粒子全窒素に対する堆積物からの再懸濁成分の混入比、（Ｃ／Ｎ）sink,sedは、それぞれ、対象となる沈降粒子サンプルと堆積物のＣ／Ｎ比である。図５-bに、ｒｎ の計算結果を示す。図５では、海溝内部（JT06）やその周辺（NNWP02）



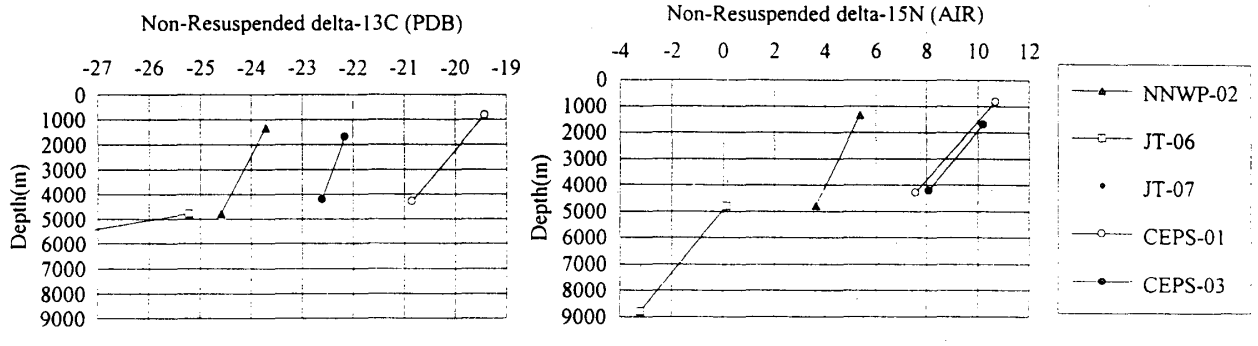
(a) (b)

図5．沈降粒子の全有機炭素（a）・全窒素（b）フラックス中の堆積物からの再懸濁成分の割合（時間荷重平均値）の空間分布（Fig.5. Spatial distribution of proportions of resuspended sedimentary organic carbon (a) and total nitrogen (b) (temporal weighted mean values) in sinking particles.）



(a) (b)

図6．表層から直接沈降してくる沈降粒子の全有機炭素（a）・全窒素（b）のフラックス（時間平均値）の空間分布（Fig.6. Spatial distribution of fluxes of non-resuspended sinking particulate total organic carbon (a) and total nitrogen (b) (temporal mean values).）



(a) (b)

図7．表層から直接沈降してくる沈降粒子の全有機炭素（a）・全窒素（b）の $\delta^{13}C$（a）、$\delta^{15}N$値（b）（時間荷重平均値）の空間分布（Fig.7. Spatial distribution of $\delta^{13}C$ (a) and $\delta^{15}N$ (b) of non-resuspended sinking particulate total organic carbon (a) and total nitrogen (b) (temporal weighted mean values).）

で、鉛直下方に向けて、急激に再懸濁粒子の混入率が増大してゆく様子が、分かる。

図３の、沈降粒子有機炭素・窒素フラックスの鉛直プロファイルから、ｒｃ、ｒｎの割合で含まれる再懸濁成分を引いて、純粋に表層から沈降してくる沈降粒子有機炭素・窒素フラックスの鉛直分布を求めたのが、図６である。それぞれ鉛直下方に向けて、ほぼ一様に減少傾向を示し、粒子の沈降に伴う分解が生じていることが分かる。

５．粒子の沈降に伴うδ^{15}N，δ^{13}C値の鉛直変化

第３章で議論したように、粒子の沈降に伴うδ^{15}N値の変化は、従来の単純な有機物の分解過程とは異なるプロセスの存在の可能性を示唆していたが、その定量的議論には、堆積物の再懸濁成分からの影響の除去が不可欠であった。「堆積物粒子の再懸濁の際には、そのδ^{15}N値は（既に十分な分解を経ていることにより）変化しない」と仮定すると、沈降粒子全窒素の見かけのδ^{15}N値（δ^{15}Nsink）は、以下の式で決まると考えられる。

$$\delta^{15}\mathrm{Nsink} = (1 - rn) \cdot \delta^{15}\mathrm{Nnon\text{-}sed} + rn \cdot \delta^{15}\mathrm{Nsed} \quad (4)$$

ここでδ^{15}Nnon-sed、δ^{15}Nsed は、それぞれ、表層から直接沈降してきた沈降粒子、および堆積物から再懸濁してきた粒子の、δ^{15}N値である。この式（４）と、図２、図５、表２に示したδ^{15}Nsink、ｒｎ、δ^{15}Nsed を用いれば、表層から直接沈降してくる過程での、沈降粒子のδ^{15}N値（δ^{15}Nnon-sed ）の鉛直変化が計算できる。δ^{13}C値についても、全く同様に、そのδ^{13}Cnon-sed を計算することができる。

図７に、それらδ^{13}Cnon-sed、δ^{15}Nnon-sed の鉛直変化の結果を示す。図２-bの生データの中では、NNWP-02やJT-06のように、鉛直下方に向けてのδ^{15}N値の減少率が、他の海域と比べて小さい、もしくは、むしろ増大するという事例が見られたが、堆積物からの再懸濁成分の補正を行った結果、その鉛直分布は、海域・深度によらず深さ方向にほぼ一定の減少傾向を示した（図７-b）。つまり、沈降粒子におけるδ^{15}N値の鉛直下方へ向けての変化は、海域によらない普遍的減少率を持った現象であることが分かる。このことは、第３章で議論した、仮説Ｂ（同一の軽いδ^{15}N値をもった窒素が、バクテリア等により全海域の深層の沈降粒子に等しく取り込まれることで、元々の沈降粒子のδ^{15}N値の高い海域ほど、深層へ向けてのδ^{15}N値の変化率が大きい）を支持せず、そのメカニズムが、仮説Ａ（沈降過程でのδ^{15}N値の高い分子の優先的分解）に近いものである可能性を示唆する。粒子の沈降に伴う同様の普遍的減少傾向は、δ^{13}C値にもみられた（図７-a）。しかし、その減少率は、JT-06 においてのみ異常に大きいものとなり、筆者らの研究グループが、過去にも報告してきたように（中塚・半田、1994）、「海溝の内部ではδ^{13}C値の異常に低い成分が、特別に付加している可能性」を示唆している。それ故、海溝内部のδ^{13}C値の変化については、他の海域と同じメカニズムでは、説明できない可能性がある。

これら、粒子の沈降に伴う普遍的なδ^{15}N（およびδ^{13}C）値の減少のメカニズム

は何であろうか。本論では、沈降粒子δ^{15}N値の鉛直下方へ向けての減少傾向をはじめて報告した上記の Altabet at al.(1991) 等でも、全く議論されてこなかった、δ^{15}N値とδ^{13}C値の関係から、１つの仮説を提案したい。本論で、これまでの議論で明らかとなったことは、「海域によらず比較的一定の、δ^{15}Nとδ^{13}C値の鉛直下方への減少が、認められる」ということであるが、δ^{15}N値とδ^{13}C値が同じ方向に同時に変化することは、上述の仮説A（有機物の分子種レベルでの選択的分解）では説明しにくい。なぜなら、δ^{13}C値の減少を一般的に説明できる「高いδ^{13}C値を持つ糖やアミノ酸の、低いδ^{13}C値を持つ脂質に対する、優先的分解」では、δ^{15}N値を減少させることができないからである（窒素の入っている分子は、このなかでアミノ酸だけであり、脂質には入っていないから）。

一方で、有機物の分子種レベルでの選択的分解ではなくて、生物粒子種レベル（別の言い方をすれば、生態学的地位のレベル）での選択的分解（というより分離）というメカニズムならば、この困難を解消できる。Wada et al. (1987)は、南極海の食物連鎖を同位体的にマッピングして、その同位体比が食物連鎖の栄養段階を１つ上がる毎に、δ^{15}Nとδ^{13}C値にして、3.3‰ および約２‰ずつ増大することを示した。また、吉岡（1994）も、食物連鎖に沿って、δ^{15}Nとδ^{13}C値が、それぞれ、３から５‰および１‰ずつ増大することを、多くの水域食物連鎖の中で確認している。図７にみられるδ^{15}Nとδ^{13}C値の鉛直変化率の相互の間の比は、表３に示すように、（JT-06 を除いて）２から５の間に入り、上述の食物連鎖に伴う同位体分別による、変化の関係と調和的である。つまり、図７にみられた「沈降粒子には、海域によらず比較的一定のδ^{15}Nとδ^{13}C値の鉛直下方への減少が認められる」という事実は、食物連鎖上の栄養段階の高い生物（動物プランクトン、バクテリアなど）を起源とする粒子（＝δ^{15}Nとδ^{13}C値が、ともに高い）が、粒子の沈降過程で、優先的に沈降粒子から脱離してゆくというメカニズムで、説明できる。図７は、そのメカニズムが、表層付近だけでなく、深層水の中においても継続的に生じるものであることを示している。

沈降過程で「栄養段階の高い生物を起源とする粒子」が、優先的に分解（脱離）しているとすれば、どのくらいの高さの栄養段階の生物に由来する粒子が、分解（脱離）しているのであろうか。この分解（脱離）時の同位体分別の大きさをεとすると、沈降過程でのδ^{15}N値の変化は、レーリーモデルによって、以下の式で表せる。

$$\delta^{15}\mathrm{N}_{deep} = \delta^{15}\mathrm{N}_{shallow} + \varepsilon \cdot \ln(F_d / F_s) \qquad (5)$$

ここで、δ^{15}Ndeep、δ^{15}Nshallow は、それぞれ各地点での、深い方、および浅い方のトラップにおける、表層から直接沈降してきた粒子のδ^{15}N値（δ^{15}Nnon-sed）であり、Fd, Fsは、それぞれの深度のトラップでの、表層から直接沈降してきた沈降粒子の全窒素のフラックスである。図７-b、図６-bのデータを使って、各地点毎に式（５）から、εを計算したのが、表４である。食物連鎖上で栄養段階を１つ上がる毎に、δ^{15}N値が、 3.3‰増大する（Wada et al.,1987）とすれば、表４の結果から、

表３．沈降粒子の沈降に伴うδ^{15}N値とδ^{13}C値の変化の関係（Table 3. relationship between variations of δ^{15}N and δ^{13}C values during settling process of sinking particles.）

	NNWP-02	JT-06	CEPS-01	CEPS-03
($\Delta\delta^{15}$N／$\Delta\delta^{13}$C)	2.0	0.3	2.2	4.6

表４．沈降粒子の沈降に伴うδ^{15}N値の変化の見かけ上の同位体分別係数（Table 4. Apparent isotopic fractionation factor (ε) of δ^{15}N during settling process of sinking particles.）

	NNWP-02	JT-06	CEPS-01	CEPS-03
(ε)	4.5	5.2	8.2	8.5

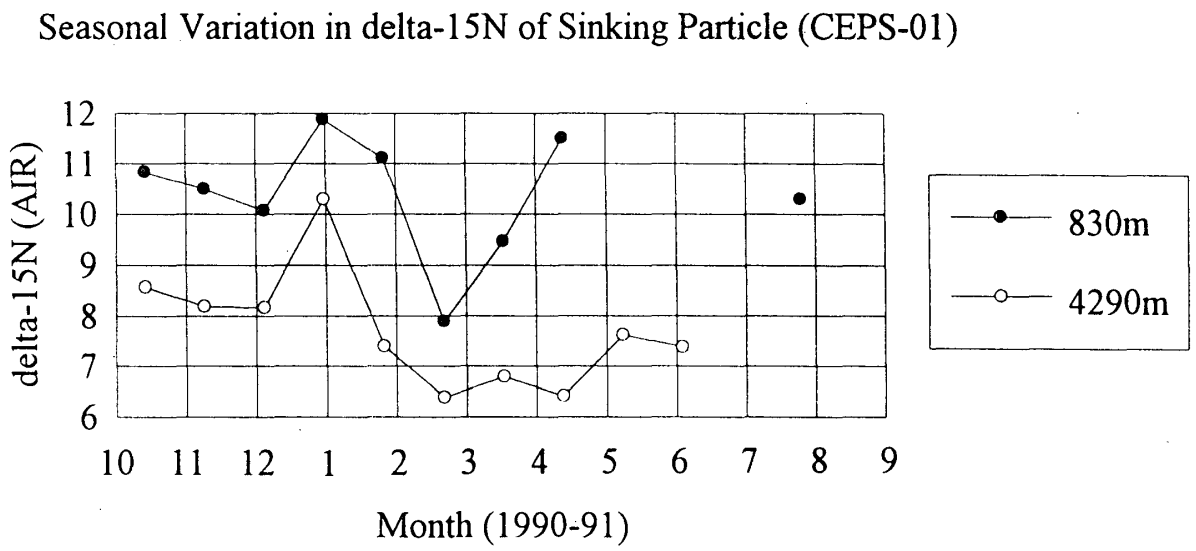


図８．CEPS-01 における沈降粒子全窒素のδ^{15}N値の時空間変動（Fig.8. Spatio-temporal distribution of δ^{15}N of sinking particulate total nitrogen at CEPS-01.）

計算上、沈降過程で分解（脱離）する粒子の栄養段階は、全体の平均と比べて、1.4から、2.6 段階上位のものであることになる。ただし、もちろんこれは平均値であって、実際には様々なδ^{15}N値を持った（様々な栄養段階の）粒子が、ある範囲で同時に分解（脱離）しているに違いない。低緯度海域（CEPS01、03）で、この見かけのεが、高緯度海域（NNWP02）に比べて大きいのは、この海域で、表層水の成層化が比較的発達していて、植物プランクトン生産に対する、新生産（実際に沈降粒子化する部分）の割合（f値：Eppley and Peterson,1979）が、小さく（＝沈降前に、動物プランクトンなどによって捕食され、消失する有機物の割合が大きく）、その分、表層水中でより複雑な（＝より栄養段階の高い部分を持つ）食物連鎖系が発達していることを反映しているのかも知れない。

この「栄養段階の高い生物を起源とする粒子の優先的脱離」というメカニズムについては、しかし、１つ１つの大型沈降粒子の中で、実際に起きている分別過程なのか、それとも、異なる栄養段階の生物を起源とする異なる沈降粒子の間での沈降速度や分解率等の違いを反映した、見かけ上のものなのかは、現段階では不明である。ただし、図８に見られるように、鉛直方向への沈降粒子δ^{15}N値の変化は、時間的にも、比較的一定の大きさを保ったまま推移することから、そのメカニズムが、かなり定常的なものであることは間違いない。それ故、植物プランクトンブルーム時の植物プランクトン凝集体（低いδ^{15}N値を持ち、速い沈降速度を持つ）のような、一過性の沈降粒子媒体と、それ以外の通常時の沈降粒子（ゆっくり沈降＝良く分解する？）の分解レートの差、のような単純なものだけでは、この見かけのδ^{15}N・δ^{13}C値の鉛直変化は、説明できない。今後、顕微鏡下の観察も含めたより細かいメカニズムの解明が、沈降粒子の分解（消失）過程の定量的把握のためにも、必要である。

６．まとめ

緯度的・地形的に異なる３つの海域で、実施されたセジメントトラップ実験で得られた沈降粒子の有機炭素・窒素のδ^{15}N・δ^{13}C値は、特徴ある鉛直下方へ向けた普遍的減少傾向を示したが、海溝域および海溝周辺域では、堆積物の再懸濁粒子の影響と思われる、δ^{15}N・δ^{13}C値の鉛直変化パターンの「ずれ」が、認められた。

沈降粒子有機炭素のδ^{14}C値、および表層懸濁粒子、表層堆積物のδ^{14}C値から、各沈降粒子サンプルへの「堆積物からの再懸濁フラクション」を計算し、更に、表層堆積物のδ^{15}N・δ^{13}C値を用いて、沈降粒子のδ^{15}N・δ^{13}C値への再懸濁成分の混入を補正したところ、表層から直接沈降してきた沈降粒子の有機炭素・窒素のδ^{15}N・δ^{13}C値は、海域・深度によらず普遍的な、鉛直下方へ向けた減少率を示した。

この沈降過程での、δ^{15}N・δ^{13}C値の同時的減少は、「食物連鎖上の栄養段階の高い生物を起源とする粒子が、沈降の過程で、優先的に沈降粒子から脱離してゆく」というメカニズムで、説明することができた。このことは、これまで一次反応モデルで表されてきた、沈降粒子の分解過程が、実際にはかなり複雑な様相を呈したものである可能性を、示唆している。

謝辞

本研究を進めるに当たっては、まず、セジメントトラップ実験に際して、東京大学海洋研究所淡青丸、北海道大学水産学部北星丸、金属探鉱事業団白嶺丸の各研究航海において、船長、乗組員、乗船研究者の皆さんに大変お世話になった。また、同位体比の測定を行うに当たっては、京都大学生態学研究センターの和田英太郎教授や、国際日本文化研究センターの北川浩之氏らに、ご教授賜った。最後に、タンデム加速器質量分析計による放射性炭素濃度の測定に際しては、名古屋大学年代測定資料研究センターの中村俊夫助教授、池田晃子氏に、大変なお世話になった。以上の方々に、厚く御礼申し上げる次第である。

引用文献

Altabet,M.A. and Francois,R. (1994) : Sedimentary nitrogen isotopic ratio as a recorder for surface ocean nitrate utilization. *Global Biogeochem. Cycles*, **8**, 103-116.

Altabet,M.A., Deuser,W.G., Honjo,S. and Stienen,C. (1991) : Seasonal and depth related changes in the source of sinking particles in the North Atlantic. *Nature*, **354**, 136-139.

Bacastow,R. and Maier-Reimer,E. (1990) : Ocean-circulation model of the carbon cycle. *Climate Dynamics*, **4**, 95-125.

Deuser,W.G., Muller-Karger,F.E., Evans,R.H., Brown,O.B., Esaias,W.E. and Feldman,G.C. (1990) : Surface-ocean color and deep-ocean carbon flux: how close a connection ?. *Deep-Sea Res.*, **37**, 1331-1343.

Eppley,R.W. and Peterson,B.J. (1979) : Particulate organic matter flux and planktonic new production in the deep ocean. *Nature*, **282**, 677-680.

半田暢彦・杉本多津宏・伊藤雅彦・才野敏郎 (1993) : 沿岸ー海溝系における物質輸送過程について. 名古屋大学加速器質量分析計業績報告書 (IV) . pp.53-59.

Hogg,N.G. (1983) : A note on the deep circulation of the western North Atlantic: its nature and causes. *Deep-Sea Res.*, **30**, 945-961.

Honjo,S., Spencer,D.W. and Farrington,J.W. (1982) : Deep advective transport of lithogenic particles in the Panama Basin. *Science*, **218**, 883-884.

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

Laws,E.A., Popp,B.N., Bidigare,R.R., Kennicutt,M.C. and Macko,S.A. (1995) : Dependence of phytoplankton carbon isotopic composition on growth rate and $[CO_2]aq$: Theoretical considerations and experimental results. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **59**, 1131-1138.

Liu,K-K. and Kaplan,I.R. (1989) : The eastern tropical Pacific as a source

of ^{15}N-enriched nitrate in seawater off southern California. *Limnol. Oceanogr.*, **34**, 820-830.

Martin,J.H., Knauer,G.A., Karl,D.M. and Broenkow,W.W. (1987) : VERTEX: carbon cycling in the northeast Pacific. *Deep-Sea Res.*, **34**, 2667-2685.

Minagawa,M., Winter,D.A. and Kaplan,I.R. (1984) : Comparison of Kjeldahl and combustion methods for measurement of nitrogen isotope ratios in organic matter. *Anal. Chem.*, **56**, 1859-1861.

中塚　武・半田暢彦 (1994) : 深海における粒状有機物の起源と輸送. 名古屋大学加速器質量分析計業績報告書 (V) . pp.154-160.

Nakatsuka,T., Handa,N. and Imaizumi,S. (1995) : Spatial and temporal variation of δ15N in sinking particles in deep waters : its implication for the origin and transport of particulate organic matter. in "*Biogeochemical Processes and Ocean Flux in the Western Pacific*" eds. by H.Sakai and Y.Nozaki, TERRAPUB, Tokyo, pp.355-374.

Nakatsuka,T., Watanabe,K., Handa,N., Matsumoto,E. and Wada,E. (1995) : Glacial to interglacial surface nutrient variations of Bering deep basins recorded by δ^{13}C and δ^{15}N of sedimentary organic matter. *Paleoceanogr.*, **10**, 1047-1061.

Pena,M.A., Lewis,M.R. and Cullen,J.J. (1994) : New production in the warm waters of the tropical Pacific Ocean. *J. Geophys. Res.*, **99**, 14,255-14,268.

Saino,T. and Hattori,A. (1980) : ^{15}N natural abundance in oceanic suspended particulate matter. *Nature*, **283**, 752-754.

Spiker,E.C. and Hatcher,P.G. (1984) : Carbon isotope fractionation of sapropellic organic matter during early diagenesis. *Org.Geochem.*, **5**, 283-290.

Stuiver,M. and Polach,H.A. (1977) : Discussion Reporting of ^{14}C Data. *Radiocarbon*, **19**, 355-363.

Wada,E., Terasaki,M., Kabaya,Y. and Nemoto,T. (1987) : ^{15}N and ^{13}C abundances in the Antarctic Ocean with emphasis on the biogeochemical structure of the food web. *Deep-Sea Res.*, **34**, 829-841.

Walsh,I, Dymond,J. and Collier,R. (1988) : Rates of recycling of biogenic compounds of settling particles in the ocean derived from sediment trap experiments. *Deep-Sea Res.*, **35**, 43-58.

渡邊一樹 (1990) : ベーリング海深海盆の堆積作用と堆積年代測定. 名古屋大学大学院理学研究科大気水圏科学専攻修士論文. 76p.

吉岡崇仁 (1994) : 生態物質循環における安定同位体の分布. in"*微生物の生態19*",小池勲夫編、学会出版センター、東京、pp.139-161.

Decompositional process of marine sinking particulate organic matter in the viewpoint of stable and radioactive isotopic ratios of carbon and nitrogen

Takeshi Nakatsuka, Nobuhiko Handa, Tatsuhiro Sugimoto[1], Shigemi Imaizumi[2], Naomi Harada[3] and Eiji Matsumoto

(Institute for Hydrospheric-Atmospheric Sciences (Present affiliation : [1]Toyota Motorcar Corporation, [2]Governmental Office of Gifu Prefecture, [3]Japan Marine Science and Technology Center))

Sinking particles were collected using year-long time-series sediment trap systems, at different three latitudinal and geomorphological sites in western North Pacific ocean. The $\delta^{13}C$ and $\delta^{15}N$ values of sinking particulate organic carbon and nitrogen decreased downward, while some different vertical profiles of $\delta^{13}C$ and $\delta^{15}N$ were also demonstrated at sites inside and near the trenchs, probably due to resuspension of sedimentary particles.

We calculated the proportions of resuspended sedimentary organic carbon and nitrogen in sinking particles, based on $\delta^{14}C$ values of sinking particle and those at surface water suspended particle and surface sediment. After removal of the influence of resuspended sedimentary particles, common downward decreasing trends of $\delta^{13}C$ and $\delta^{15}N$ values in sinking particles were found, independently from the locality and depth of sediment traps.

We can explain these simultaneous downward decreases in $\delta^{13}C$ and $\delta^{15}N$ values of sinking particles, as the result of a mechanism that the particles originated from higher trophic level organisms are preferentially decomposed during settling process of sinking particles. This suggested that the decompositional process of sinking particulate organic matter is more complicated than that ever described in usual first-order decompositional models.

＜印刷物＞

1. Nakatsuka, T., N. Harada, E. Matsumoto, N. Handa, T. Oba, M. Ikehara, H. Matsuoka, and K. Kimoto (1995) : Glacial-interglacial migration of an upwelling field in the western equatorial Pacific recorded by sediment $^{15}N/^{14}N$.
Geophysical Research Letter, 22(18), 2525-2528.

2. Nakatsuka, T., K. Watanabe, N. Handa, E. Matsumoto, and E. Wada (1995) : Glacial to interglacial surface nutrient variations of Bering deep basins recorded by $\delta^{13}C$ and $\delta^{15}N$ of sedimentary organic matter.
Paleoceanography, 10(6), 1047-1061.

3. 中塚　武 (1995): 海洋深層における粒子状有機炭素の起源と輸送－炭素同位体組成（$^{14}C/^{12}C$, $^{13}C/^{12}C$）からの評価－
月刊 海洋, 号外 8, 121-126.

4. 中塚　武 (1995): 堆積物窒素同位体比による西赤道太平洋における湧昇・海流系変動の復元.
月刊 海洋, 27, 483-487.