

氏名(本籍)	おお もり ゆう こ 大 森 裕 子 (兵庫 県)			
学位の種類	博 士 (理 学)			
学位記番号	博 甲 第 5721 号			
学位授与年月日	平成 23 年 3 月 25 日			
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当			
審査研究科	生命環境科学研究科			
学位論文題目	Dynamics of Marine Humic-like Fluorescent Dissolved Organic Matter in Western North Pacific and Their Biogeochemical Roles (西部北太平洋域における海洋腐植様蛍光溶存態有機物の動態と生物地球化学的役割)			
主査	筑波大学教授	理学博士	濱 健 夫	
副査	筑波大学教授	工学博士	福 島 武 彦	
副査	筑波大学准教授	博士(理学)	廣 田 充	
副査	気象庁気象研究所室長	理学博士	石 井 雅 男	

論 文 の 内 容 の 要 旨

海洋に存在する溶存態有機物 (DOM) は、地球表層の最大級の有機炭素プールのひとつであり、DOM の動態の解明は地球上の炭素循環の理解に必要不可欠である。しかしながら、海洋 DOM の大半が未同定の有機物で構成されていることもあり、DOM の生成・分解・蓄積プロセスはよくわかっていない。本研究の対象物質である海洋腐植物質は、化学構造が未同定の有機物グループでありながら、DOM の主要な構成成分の一つと考えられている。特に、生物分解に耐性をもつことから、重要な炭素リザーバーとして知られている。従って、海洋腐植物質の動態を明らかにすることは、海洋の炭素循環の理解に重要な意義をもつ。

近年、高感度で測定できる海洋腐植物質特有の蛍光を、その存在量として推定する手法が用いられ、この海洋腐植様蛍光を有する DOM を海洋腐植様蛍光溶存態有機物 (FDOM_M) として研究が進められている。これまでの研究から、外洋域における FDOM_M の空間的分布、主な生成・分解要因が明らかにされつつある。今後、さらなる FDOM_M の動態の理解を進めるためには、様々な物質で構成されている有機物グループである FDOM_M について、構成成分レベルで動態を明らかにすることが有効だと考えられる。しかし、FDOM_M は蛍光のみを指標にして、常に画一的に扱われているため、FDOM_M の構成成分の性質や分布に関する知見は少ない。また、FDOM_M がどのように炭素循環に寄与しているのか、に関する直接的な研究は皆無であり、FDOM_M の蛍光と炭素量の関係を明らかにする必要がある。本研究では、西部北太平洋域を対象域として FDOM_M の構成成分の動態とそれを支配する要因、FDOM_M と炭素循環との関わりを明らかにすることを目的とした。

まず、西部北太平洋域における FDOM_M の分布の支配要因を明らかにするため、広域における時系列分布の観測を行った。FDOM_M の蛍光強度は、測点に関わらず年間を通じて表層 (10 m: 0.2 ± 0.1 QSU, $n = 24$) で低く、中深層で増加する (1000 m: 1.0 ± 0.1 QSU, $n = 22$) 傾向が確認された。従来の研究から、表層における FDOM_M は太陽光照射によって常に低い蛍光強度に維持されていると考えられる。特に中緯度域 (北緯 30、25 度) では、混合層の深度と同様に、蛍光強度が低く一定な層 (< 0.3 QSU) の深度が冬に深く、夏に浅くな

る季節変動が確認された。これにより、表層の FDOM_M の蛍光強度は太陽光照射と混合層の深度に強く依存していることが示唆された。中深層においては、FDOM_M の蛍光強度と見かけの酸素消費量（バクテリアの酸素消費量に相当）の間に強い正の相関関係が確認された。このことから、バクテリアの生物活動によって FDOM_M が生成されていることが示唆される。一般的に、バクテリア生産速度は表層で最も高く、深度とともに急激に低くなることが知られている。このことから、バクテリアは表層で最も活発に FDOM_M を生成していると考えられる。しかし実際には表層では常に蛍光強度が低く維持されていることから、表層で生成された FDOM_M の蛍光は速やかに太陽光によって消失していることが予想される。

FDOM_M の分子量分布の測定のため、上記の海水試料から疎水性樹脂を用いて FDOM_M の抽出・濃縮を行った。得られた疎水性画分中の FDOM_M（疎水性 FDOM_M）の分子量分布を、サイズ排除クロマトグラフィー（HPSEC）を用いて測定した。疎水性 FDOM_M は、HPSEC による分析の結果、測点および深度に関わらず 1.8 kDa 以下の分子量範囲に検出され、またいくつかのピークにより構成されていた。そこで、高分子量側から A、B、C と 3 つの画分に大別したところ、3 画分の構成比（分子量組成）が表層と中深層で顕著な違いを示した。疎水性 FDOM_M の分子量組成に与える太陽光の影響を評価するために、1000m の海水試料を用いて太陽光照射実験を実施した。その結果、光照射後の 1000m の疎水性 FDOM_M の分子量組成は、表層の分子量組成とほぼ一致した。このことから、深度による分子量組成の違いを引き起こす要因が太陽光照射であることが示唆される。また、分子量画分によって残存率が異なっていたことから、FDOM_M は太陽光照射に対する安定性が異なる成分で構成されている可能性が考えられる。

深度 10m と 1000m の海水試料を用いて、疎水性画分の分子量分布を蛍光と炭素量で同時に評価した。10m と 1000m の疎水性画分中の FDOM_M と DOC は、HPSEC 分析の結果、ほぼ同じ分子量の有機物で構成されることが示された。特に 1000m の疎水性画分では、蛍光強度と DOC 濃度に正の強い相関が確認された。このことから、中深層では FDOM_M が疎水性 DOM の主要な構成成分である可能性が高い。また、太陽光照射実験において、期間中の疎水性画分の DOC 濃度と照射前後の DOC の分子量分布を測定した。1000m の疎水性 DOM へ太陽光照射した結果、蛍光強度が 60% 減少したが、DOC 濃度の変化はほとんどみられなかった。従って、疎水性 FDOM_M は太陽光照射により蛍光特性を失った後も、有機物として残存していることが示唆される。

表層では FDOM_M のバクテリアによる活発な生成と、速やかな太陽光照射による蛍光特性の消失が起きていることが推測される。この際、FDOM_M としての DOM プールへの寄与はわずかであるが、蛍光を失った有機物として表層の DOM プールに蓄積していることが本研究の結果から予想される。このことは、表層において FDOM_M の存在量は非常に少ないが、蛍光を失った後に表層の DOM プールに寄与している、という新しい DOM の蓄積プロセスを示唆するものである。

審査の結果の要旨

海洋に存在する溶存態有機物は、地球表層における有機炭素の最大級のプールの一つであり、その動態の解明は、海洋における物質循環にとどまらず、地球環境の変動を考える上でも非常に重要である。本研究では、溶存態有機物の中でも特に炭素のリザーバーとして機能していると考えられる海洋腐植物質の動態に着目して研究を実施した。

西部北太平洋域における海洋腐植様溶存態有機物の蛍光強度の時空間的变化の測定から、表層における蛍光強度は太陽放射に強く支配されており、その変化は表面の混合層深度の季節的な上下と関係をもつことが明らかとなった。これは、本研究が、緯度として 15 度に渡る比較的広域な海域における現象を、外洋域における観測としては頻度の高い観測を通して、始めて明らかにできたものである。また、疎水性樹脂とサイ

ズ排除クロマトグラフィーを併用した手法を用いることにより、海洋腐植様蛍光溶存態有機物の分子量分布を明らかにすると共に、それが深度により変化することを見いだした。実験的解析を含め、このような分子量分布の変化は、太陽放射に影響されていることを示すことができ、海洋腐植様蛍光溶存態有機物の分子量と太陽放射との関係に関して、今後の規範となる情報を得たものと評価できる。更に、太陽放射の影響について実施した蛍光強度と有機炭素濃度との関係に関する実験から、海洋腐植様蛍光溶存態有機物は、蛍光を消失した後もその多くは溶存態有機物として残存することを明確に示す事ができた。この結果は、現在多くの注目を集めている海洋表層における溶存態有機物の生成・蓄積過程について、新しい提案を含んでいるものであり、海洋物質循環過程の理解に大きな貢献をもつものと思われる。

よって、著者は博士（理学）の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。