

## 福島第一原発事故による放射性物質の環境汚染

## シミュレーションに関する講習会報告\*

梶野 瑞 王<sup>\*1</sup>・滝川 雅 之<sup>\*2</sup>・田中 泰 宙<sup>\*3</sup>・津 旨 大 輔<sup>\*4</sup>  
 川 原 慎 太郎<sup>\*5</sup>・杉 山 徹<sup>\*6</sup>・森 野 悠<sup>\*7</sup>・鶴 田 治 雄<sup>\*8</sup>  
 井 上 豊 志 郎<sup>\*9</sup>・打 田 純 也<sup>\*10</sup>・関 山 剛<sup>\*11</sup>・眞 木 貴 史<sup>\*12</sup>  
 中 島 映 至<sup>\*13</sup>

## 1. はじめに

2013年10月28日から29日にかけて、東京大学本郷キャンパス浅野地区情報基盤センター大演習室2において、標記講習会が開催された。科学研究費補助金・新学術領域研究「福島原発事故により放出された放射性核種の環境動態に関する学際的研究」(略称 ISET-R) (総括班・代表・筑波大学・恩田裕一) (2012-2016年度) における若手育成策の一環として、A01-1班 (大気物理班) 「放射性降下物大気輸送モデリングと移行過程の理解」(代表・東京大学・中島映至) が、モデリングに興味のある若手を対象としたチュートリ

アル実習を主催したものである。また、共催の A01-2班 (大気陸面班) と A02-3班 (海洋班) からそれぞれ講師を招き、講演を依頼した。

本講習会の資料 (講義スライド, プログラム, マニュアル) は全て、東京大学大気海洋研究所のサーバ上 (<http://157.82.240.167/~dl3/> 2014.3.31閲覧) で公開されている。ログインに必要なパスワード等の問い合わせについては、上記サイトを参照されたい。

## 2. 講習会の概要

講義の内容は第1表の通りである。前半は、最先端の研究活動に用いられる放射性核種の動態モデルの概要と適用研究に関する講義を3題行った: ①領域大気モデルを用いた東北・関東地方を中心としたローカルな輸送・沈着に関する研究 (海洋研究開発機構・滝川雅之), ②全球大気モデルを用いた北半球循環に関する研究 (気象研究所・田中泰宙), ③高解像モデルを用いた福島近海における放出及び拡散現象, また広域モデルを用いた太平洋域での海洋拡散現象に関する研究 (電力中央研究所・津旨大輔)。

後半は、FORTRAN 言語を用いたラグランジュ型移流・拡散・沈着コードを配布し、演習室端末において気象庁メソ解析データ (GPV-MSM) を用いて、東北・関東スケールの領域拡散数値実験を行い (担当: 気象研究所・梶野瑞王), 3D可視化ソフトウェア VDVGE (Volume Data Visualizer for Google Earth) により Google Earth 上で描画するまでの実習 (担当: 海洋研究開発機構・川原慎太郎, 杉山徹) を行った。

\* Report on a tutorial class for environmental pollution simulations of radionuclides associated with the accident of Fukushima Daiichi nuclear power plant.

\*1 (連絡責任著者) Mizuo KAJINO, 気象研究所. [kajino@mri-jma.go.jp](mailto:kajino@mri-jma.go.jp)

\*2 Masayuki TAKIGAWA, 海洋研究開発機構.

\*3 Taichu Y. TANAKA, 気象研究所.

\*4 Daisuke TSUMUNE, 電力中央研究所.

\*5 Shintaro KAWAHARA, 海洋研究開発機構.

\*6 Tooru SUGIYAMA, 海洋研究開発機構.

\*7 Yu MORINO, 国立環境研究所.

\*8 Haruo TSURUTA, 東京大学大気海洋研究所.

\*9 Toshiro INOUE, 東京大学大気海洋研究所.

\*10 Junya UCHIDA, 東京大学大気海洋研究所.

\*11 Tsuyoshi T. SEKIYAMA, 気象研究所.

\*12 Takashi MAKI, 気象研究所.

\*13 Teruyuki NAKAJIMA, 東京大学大気海洋研究所.

© 2014 日本気象学会

第1表 講習会プログラム。

日 時	タイトル	講 師
10月28日		
13:30-13:40	開会・趣旨説明	東京大学・中島映至
13:40-14:20	領域大気モデル	海洋研究開発機構・滝川雅之
14:30-15:10	全球大気モデル	気象研究所・田中泰宙
15:20-16:00	海洋モデル	電力中央研究所・津旨大輔
16:10-17:00	移流・拡散モデルの解説	気象研究所・梶野瑞王
10月29日		
9:30-10:30	移流・拡散モデルの動作	気象研究所・梶野瑞王
10:30-12:00	EXTRAWING/VDVGE 講義・可視化実習	海洋研究開発機構・川原慎太郎、杉山 徹



第1図 講習会の様子。

講習会の様子を第1図に示す。1日目は、3題の講義と、移流・拡散モデルの概要についての解説を行った。1日目の夜には、当日に同時並行で開催されていた ISET-R A01-1班会議、および日本学術会議総合工学委員会原子力事故対応分科会「原発事故による環境汚染調査に関する検討小委員会」（委員長：柴田徳思博士）内の大気・海洋拡散シミュレーションワーキンググループ（座長：東京大学・中島映至教授）との合同懇親会を、東京大学本郷キャンパス・山上会館で行った。2日目は、移流・拡散モデルの動作説明と実行、VDVGEの概要の解説とモデル結果の可視化を行った。

### 3. 参加者

告知は、講習会の約2ヶ月前から ISET-R のホームページ (<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/hydrogeo/isetr/> 2014.3.31閲覧)、同メーリングリストほか、日本気象学会、日本地球惑星科学連合、大気化学研究会等のホームページ及びメーリングリストで行った。演

習室の端末に限りがあるため、参加者は41名としたが、申し込み期日を待たずに満員御礼となった。参加者のうち、学生が20名で最も多く、大学の職員が8名、地方自治体環境系研究所の職員が7名、会社員が4名であった。定員を超えた後も17名の参加希望者があり、資料のみの配布とさせて頂いた。地方自治体職員は、定員超えて参加頂けなかった6名を含めて合計13名（13自治体：新潟県、奈良県、千葉県、島根県、東京都、兵庫県、広島県、石川県、さいたま市、群馬県、沖縄県、静岡県、名古屋市）にのぼり、講習会全体を通して、原子力発電所を持つ地方自治体やその近隣の自治体の関心の高さを実感した。今回地方自治体の方々への周知が出遅れ

てしまったことを反省し、今後は、最初の送り先リストに、大気環境学会や全国環境研協議会などを含めることにした。

告知の段階では日本全国から参加者を幅広く集めたいと意図し、数値モデルの習熟度については限定しなかったため、参加者は、プログラミング・数値モデルの初心者からモデル専門家まで多岐に渡った。そこで講習会当日は、参加者のニーズを以下の3つに大別し、着席する位置を大まかに指定した：①UNIX系端末の初心者で、手順に沿って体験できれば十分、②全くの初心者ではなく、モデルを走らせることに興味がある、③モデル操作に慣れており、VDVGEでの可視化に興味がある。また講師の方々からも、参加者のニーズの絞り込みがなされなかったため、テーマの焦点化が難しく、講義の準備に困ったとの意見があり、本講習会の反省点の一つであった。

4. 講義

4.1 領域大気モデル

領域大気モデルの講義では、大気拡散シミュレーション手法（プルームモデル、パフモデル、ラグランジュモデル、オイラーモデル等）の紹介とそれら手法の違いについて説明し、先行研究としてチェルノブイリ原発事故における領域モデル研究の結果を示した。

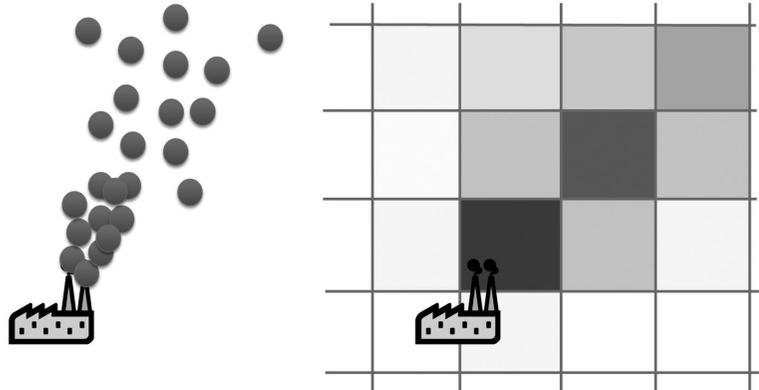
また、前述の日本学術会議下のワーキンググループで実施されている領域大気モデルによるマルチモデル相

互比較研究結果（国内から6モデル、海外から3モデルが参加）を紹介し、積算沈着量の文科省モニタリングとの差異や、モデル間の差異はおおむねファクター10程度であることを示し、今後はモデル間差異の要因について検討を進めるだけでなく、気象場の推定誤差が放射性物質の拡散・沈着シミュレーションに与える影響について評価する必要性を示した。また、原子力機構、ノルウェー大気研究所、東京電力等による、様々な放出源推定に関する比較について紹介し、いぜんとして総放出量および放出量の時間変動についても推定幅が大きいことを示した。最後に日本国内での他の原発（柏崎、敦賀、女川、玄海、大飯など）でのリスク推定に関するモデル結果について紹介した。質疑では、モデル間の沈着量の予測結果が大きく異なることに対して、原発事故が生じた際にモデル予測により信頼のできる避難計画を提示することが可能かどうか、という問いがあった。それに対しては、沈着量はモデル不確実性が大きいために予測が困難であるが、緊急時における避難誘導については内部被曝リスク低減のための大気濃度予測が重要であり、イベント的な汚染気塊の輸送経路推定は沈着量分布推定に比べると不確定要素が低いため、数値モデルによる情報提供は避難誘導にも有益であろう、と回答した。

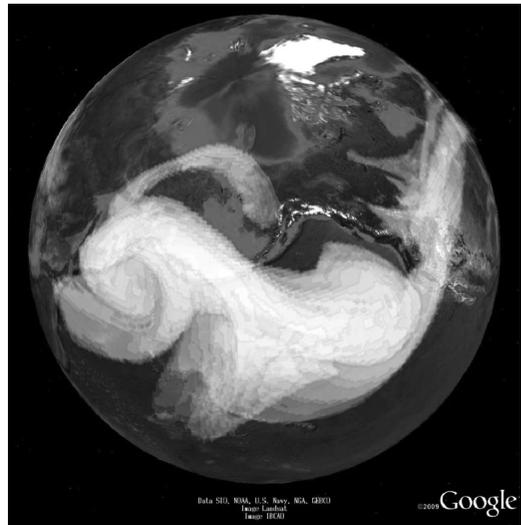
（滝川雅之）

4.2 全球大気モデル

若手育成のための全球大気（輸送）モデルの講義、ということで依頼を引き受けたものの、内容をどうするかで、はたと困ってしまった。講義は領域大気モデ



第2図 (左) ラグランジュ法と(右)オイラー法の違い。ラグランジュ法では、ある点からの物質の拡散の計算に適している一方、計算時間が長くなると流体粒子のばらつきが大きくなり、精度が落ちる。



第3図 気象研全球輸送モデルMASINGAR-mk2による<sup>137</sup>Cs濃度分布計算結果のVDVGEによる可視化例。

ルと全球大気モデルに分けられているものの、基本的な輸送プロセスに大きな違いはないためと、非常に限られた1コマの講義時間のみで細かいプロセスをすべて説明するのは無理なためである。そこで、全球大気モデルを用いた放射性物質輸送シミュレーションの概要の紹介とともに、大気微量物質輸送におけるもっとも基本的な過程をできるだけ平易に説明するように努めた。

特に焦点を当てたのが移流過程である。移流過程を

ラグランジュ的に扱うか、オイラー的に扱うかは、数値モデル内の物質の扱いや、計算結果の解釈を行う上で大きなポイントとなる。原子力発電所のように、1点から放出される物質の大気輸送を数値モデルで扱う場合は、発生源周辺ではラグランジュ的扱いの方が精度を出しやすい一方、全球輸送のように長距離までの輸送を考慮する場合はオイラー的扱いの方が有利である(第2図)。数値モデルを扱う際にはこのような特性を知っておくことが重要であることを説明した。(ただ、領域大気モデルの講義と内容的に若干被ってしまったところは残念である。)

全球大気モデルを用いた放射性物質輸送シミュレーションについては、チェルノブイリ原発事故の例に触れ、広域への輸送の評価の必要性、領域大気モデルとの違いなどを述べた。また、気象研究所で行っている原発事故に起因する放射性物質の輸送(Tanaka *et al.* 2013)(第3図)や、自然起源のラドン222、再処理施設に起因するクリプトン85の研究を例としてシミュレーション結果を紹介した。この講習会を通じて、全球モデルによる大気微量物質輸送シミュレーションの現状を少しでも理解して、関心をもっていただけたのであれば幸いである。(田中泰宙)

### 4.3 海洋モデル

福島第一原子力発電所事故によって放出された放射性物質の海洋拡散シミュレーションと題して、福島第一原発事故以前の状況、原発事故による海洋汚染の状況(モニタリング結果)、海洋への直接漏洩量の推定、北太平洋モデル(ROMS; Regional Ocean Modeling System)、福島沖合モデルについて、それぞれ紹介した。

まず、2000年頃から10年以上にわたって続けられてきた海洋大循環モデルによる1950年代から2000年までの北太平洋表層における<sup>137</sup>Csの動態研究を紹介し、福島第一原発事故以前に1-4 Bq(ベクレル)/m<sup>3</sup>程度のバックグラウンド濃度が存在していることを指摘した。電力中央研究所、日本原子力研究開発機構、海洋研究開発機構、東京電力、トゥールーズ大学(フランス)による福島原発事故による海洋への直接漏洩量は3-6 PBq(ペタベクレル)程度におよそ収束していること、また IRSN (Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire, フランス)の27 PBq や米国による16 PBq の見積もりに対しては手法の問題点を指摘し、過大評価であるとの見方を示した(Tsumune *et al.* 2013)。さらに、大気拡散モデル、領域海洋モデ

ル、海底土モデル、動的海生生物移行モデルを組み合わせた高度なモデルシステムである福島沖合モデルの概要を紹介し、海洋観測で得られた福島沖合における表層濃度や鉛直プロファイルがこのモデルでよく再現できた事例を報告した。最後に、海水中の<sup>137</sup>Cs濃度は低下傾向が見られるが、一部の海生生物汚染は継続していることを示し、モデル計算における今後の課題をまとめた。

福島第一原発事故の影響については、大気への放出量が15-20 PBq、そのうち日本陸域への降下量が3 PBq、北太平洋への降下量は12-17 PBq、海洋への直接漏洩量は $3.6 \pm 0.7$  PBqとして総放出量は18.5-23.5 PBqであるという気象研究所や電力中央研究所等のグループの推定結果を示した。過去の大量放出事例と比較すると、大気圏核実験による北太平洋への影響は2011年時点で69 PBq、またセラフィールド再処理施設(英国)からの放出は41 PBqであった(Tsumune *et al.* 2012)。(津旨大輔)

### 5. 移流拡散モデルを用いた実習

講習会で使用した移流拡散モデルは、気象業務支援センターより配布される気象庁メソ解析データ(GPV-MSM、緯度方向0.125度、経度方向0.1度間隔、等気圧面データ)を用いて、ラグランジュ法により粒子の移流・拡散を計算するものである。輸送過程(移流+乱流拡散)および湿性沈着過程は気象庁予報部(2008)、乾性沈着過程には古野ほか(1999)を使用している。

現在の化学輸送計算においては、計算機資源に応じて、領域・解像度あるいは、モデル素過程オプションの選択の任意性を確保するために、気象解析値を初期・境界条件として、気象モデルを走らせる方法が主流となっている(たとえばChino *et al.* 2011; Morino *et al.* 2011; Adachi *et al.* 2013)。その一方で、本講習会で配布したモデルは、長期積分、単純なパラメータチューニング、大量の感度解析を可能とするために、気象モデルを介さずに、解析データを用いて直接計算を行う。そのため計算機負荷は非常に軽く、1時間あたり100個のラグランジュ粒子を発生させる場合、演習室の端末(iMac 21.5-inch, Mid 2011, Intel Core i5 2.5 GHz クアッドコア、メモリ 4 GB、並列化無し)で、関東・東北エリアにおける1ヶ月積算計算は10分程度で終了する。計算結果は次節で紹介する。本講習会においては、1時間あたり1000個のラグラン

ジュ粒子を発生させた計算を標準結果とした。ラグランジュモデルの場合は、計算機負荷は発生させるラグランジュ粒子の個数に比例するため、計算時間は100個/hrの場合に比べて10倍程度になり、1ヶ月積算に1.5時間程度かかる。ラグランジュモデルにおいては、粒子の発生数を  $n$  倍すると統計誤差は  $1/\sqrt{n}$  になる。 $n=10$ ならば約31.6%である。

計算機負荷が軽い一方、気象モデルを介さないがゆえに、乱流拡散係数、雲水量・雨水量混合比、接地境界層パラメータ等の変数が得られないため、鉛直方向の乱流拡散係数は高度1 km以下で50 m<sup>2</sup>/s、1 km以上で1 m<sup>2</sup>/sと一定と仮定している。また乾性沈着速度は0.001 m/s、降水による粒子の捕集効率を0.05と一定と仮定するなど、大胆な仮定が入っていることに注意が必要である。本モデルを業務・研究目的として用いるためには、これら輸送・沈着に重要となるパラメータを精度良く求めて与えるというよりは、むしろ現実的な範囲でパラメータを変える感度実験を行い、結果の違いを不確定性として議論に加えることを想定している。本プログラムのライセンスは三条項 BSD (Berkeley Software Distribution) であり、二次利用の目的を問わず、改変および他のモデルへの組み込み等を可能としている。

ラグランジュモデルは特に境界層内の流跡線解析に有用でもある。通常流跡線解析では、平均風を用いて時間を前方あるいは後方に積分しながら空気塊を追跡するため、乱流の効果は反映されない。ラグランジュモデルを用いると上述のように乱流の効果を反映した確率分布付きの流跡線解析が可能となる。GPV-MSMを用いた流跡線解析機能付きラグランジュモデルはWeb上には公開されていないが、問合せを頂ければ個別に対応させて頂く。(梶野瑞王)

## 6. EXTRAWING/VDVGE を用いた可視化実習

海洋研究開発機構地球シミュレータセンター(現地球情報基盤センター)における情報発信プロジェクト「EXTRAWING (Exploring and Traveling the World Inside Geoscientific Data)」および、プロジェクト内で開発したGoogle Earth用ボリューム可視化ソフトウェア「VDVGE」の概要について説明するとともに、VDVGEを使った可視化実習を行った。

VDVGEは、可視化ソフトウェアGrADS(Grid Analysis and Display System)で用いられる形式のスカラー場データを入力とし、Google Earthで表示

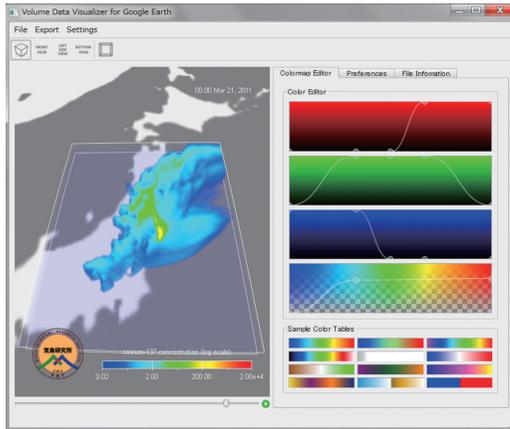
可能なデータ形式にて可視化・出力するためのソフトウェアである。GUIによる簡単な操作で可視化パラメータを設定することができ、本ソフトウェアの最大の特徴であるGoogle Earth上でのボリュームレンダリング風表現の他、カースライス、等値線の表現が可能である。時系列データの入力にも対応しており、VDVGE上でのアニメーション表示だけではなく、タイムコードを含むGoogle Earth用コンテンツファイルとして出力、Google Earth上でのアニメーション表示も可能である。EXTRAWINGの詳細については<http://www.jamstec.go.jp/esc/extrawing> (2014.3.31閲覧)を、VDVGEの詳細については<http://www.jamstec.go.jp/esc/research/Perception/vdvge.ja.html> (2014.3.31閲覧)をそれぞれ参照されたい。

可視化対象としては、前章における実習にて参加者自らが実行したプログラムにより得られた、放射性物質の大気濃度の3次元データおよび乾性・湿性沈着量の2次元データを用いた。データの読み込み、可視化のためのパラメータ設定、Google Earth用コンテンツファイルの出力、Google Earth上での表示までをステップバイステップにて説明することにより、全ての参加者が端末上でGoogle Earth上で可視化結果をアニメーション表示することができた。VDVGEでの可視化の様子とGoogle Earth上での表示結果を第4図に示す(ただしここに示す計算結果は、本講習会のラグランジュ型移流拡散モデルの結果ではなく、サンプルとして計算結果のみ配布したオイラーモデル(Adachi *et al.* 2013)のものである)。

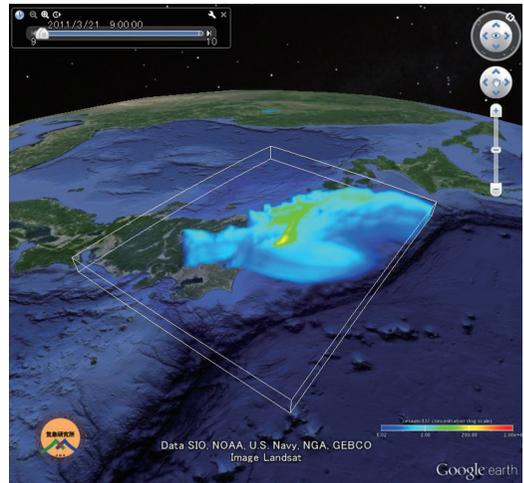
応用として、大気濃度、沈着量それぞれを異なるカラーテーブルを用いて可視化し、それらをGoogle Earth上で同時に表示する方法を紹介した。VDVGEでは同時に複数の物理量を可視化することはできないが、異なる物理量からそれぞれ作成した複数のコンテンツファイルをGoogle Earthで順次読み込むことにより、複数の物理量の可視化結果を重ね合わせ表示することができる。第5図では、白黒のカラーテーブルにより放射性物質の大気濃度を、レインボーカラーのカラーテーブルにより地表面への乾性沈着量を同時に示している。

また、初期条件の異なるシミュレーション結果や、異なるモデルの可視化結果をWebブラウザ上に同時に表示し、比較する例についても紹介した(第6図)。Google EarthにはWebブラウザ用のプラグインが用

(a)

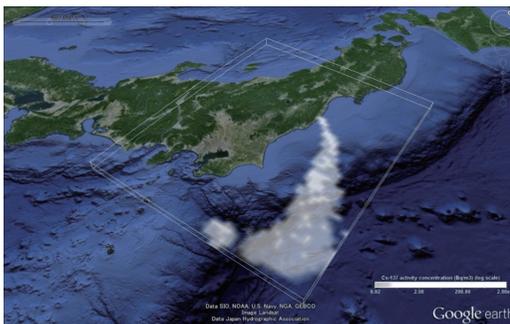


(b)

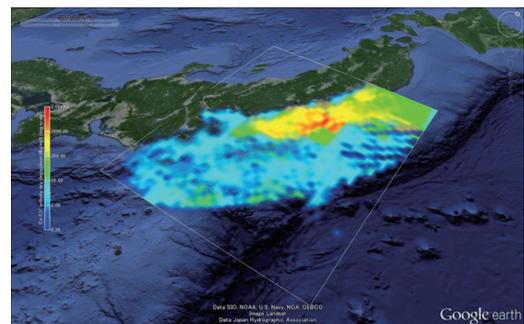


第4図 VDVGEとGoogle Earthでの表示の比較。(a)VDVGE上での表示,(b)Google Earth上での表示。

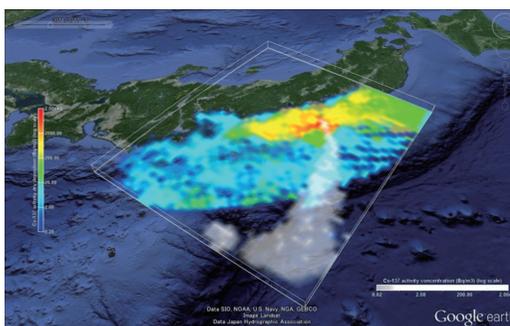
(a)



(b)



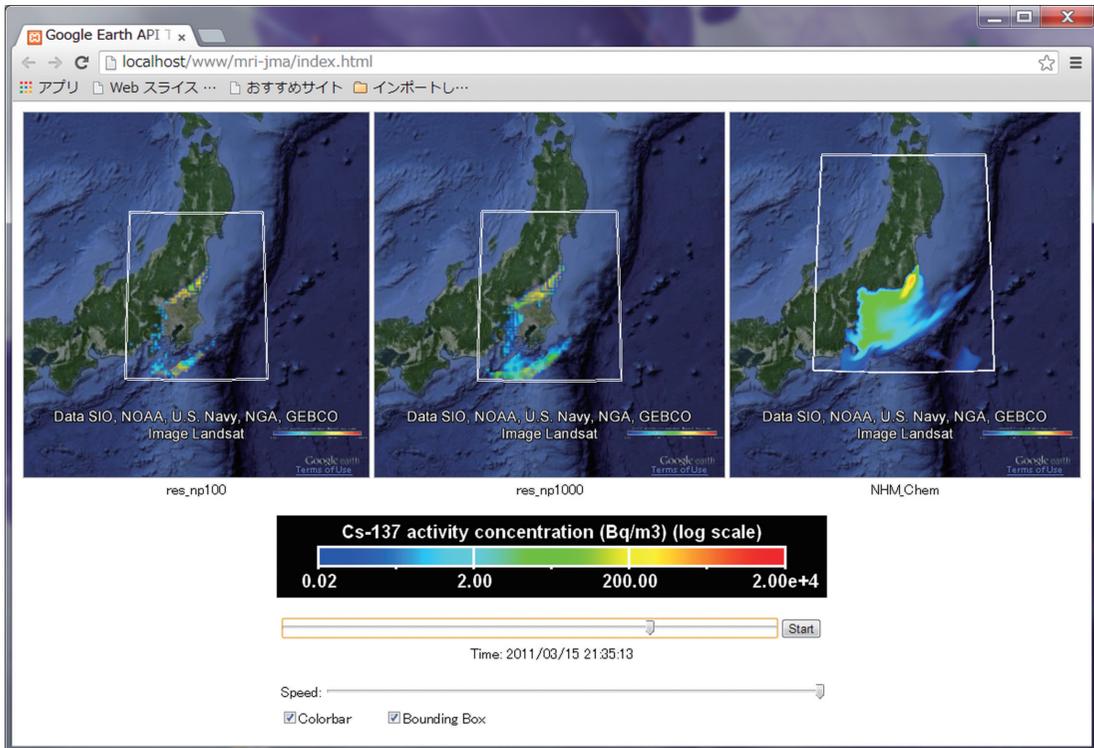
(c)



第5図 複数の物理量の可視化結果のGoogle Earth上での重ね合わせ表示。(a)放射性物質の大気濃度,(b)乾性沈着量,(c)(a)および(b)をGoogle Earthに順次読み込んだ結果。

意されており、同一ページ内に複数のGoogle Earthを表示することができる。また、Google Earth APIを使ったプログラミングにより、プラグイン間の視点や表示すべきデータ時刻を同期させることも可能である。第6図は左から順に、粒子発生率100粒子/hrの

ラグランジュモデル、粒子発生率1000粒子/hrのラグランジュモデル、オイラーモデルの結果を示したものである。このように並列表示することにより、モデル間の差異を直感的に確認することができる。しかしながら、本講習会では時間の制約上、VDVGEで出力



第6図 Webブラウザ上での異モデルの比較（放射性物質の大気濃度）。

したコンテンツファイルをWebページで公開するための、HTMLおよびJavaScriptの基本的な書式の紹介に留めた。

VDVGEはマルチプラットフォームのGUIツールキットであるQtを用いて開発されており、Windows、MacOSX、Linuxで動作する。本ソフトウェアのライセンスはGPL（GNU General Public License）Ver.3であり、ソースコードを含め、誰でも自由に利用することができる。アウトリーチ活動を含め、自身の研究成果の表現に広く利用されることを期待したい。（川原慎太郎・杉山 徹）

## 7. アンケート・レポート

ISET-Rの若手育成策では、総括班より若手研究者の旅費・宿泊費の支援と、レポートの作成が推奨されている。本講習会では、参加者全員に修了証書を配布し、旅費・宿泊費の支援を受けたものはレポートの提出は必須、それ以外の参加者については任意とした。最終的には6名からレポート、8名よりアンケートが提出された。講習会全体として概ね高い評価を頂いた

が、講義半日、実習半日という日程では、内容に対して時間が短いのではないかという意見も多く聞かれた。ほかにも様々なコメントが寄せられたが、次回開催時には可能な限り参加者のニーズに応えられるよう工夫したい。

## 謝辞

ISET-R 総括班（筑波大学・恩田裕一教授）には若手育成策全般と参加者の旅費支援、ならびに恩田研スタッフの松井陽子氏には参加者との事務連絡につき、謝意を表したい。東京大学・情報基盤センター教育用計算機システム担当の皆様には本講習会のための端末環境の整備、東京大学・大気海洋研究所の荒井俊昭氏には本講習会ホームページの立ち上げとメンテナンス、防災科学技術研究所の清水慎吾氏にはGPV-MSMデコードプログラムのご提供、また、東京大学中島研スタッフの渋谷恵理佳氏、廣瀬真理氏には、会場・懇親会の手配、講習会受付、資料等送付にサポート頂いたことをそれぞれ深く感謝したい。

## 参考文献

- Adachi, K., M. Kajino, Y. Zaizen and Y. Igarashi, 2013: Emission of spherical cesium-bearing particles from an early stage of the Fukushima nuclear accident. *Sci. Rep.*, **3**, 2554, doi:10.1038/srep02554.
- Chino, M., H. Nakayama, H. Nagai, H. Terada, G. Katata and H. Yamazawa, 2011: Preliminary estimation of release amounts of  $^{131}\text{I}$  and  $^{137}\text{Cs}$  accidentally discharged from the Fukushima Daiichi nuclear power plant into the atmosphere. *J. Nucl. Sci. Technol.*, **48**, 1129-1134.
- 古野朗子, 茅野政道, 山澤弘実, 1999: 世界版緊急時環境線量情報予測システム (WSPEEDI) モデルコード (II) - 広域用濃度・線量予測モデルGEARN-. JAERI-Data/Code 99-044, 日本原子力研究所, 69pp.
- 気象庁予報部, 2008: 気象庁非静力学モデル II - 現業利用の開始とその発展-. 数値予報課報告・別冊第54号, 気象業務支援センター, 265pp.
- Morino, Y., T. Ohara and M. Nishizawa, 2011: Atmospheric behavior, deposition, and budget of radioactive materials from the Fukushima Daiichi nuclear power plant in March 2011. *Geophys. Res. Lett.*, **38**, L00G11, doi:10.1029/2011GL048689.
- Tanaka, T. Y., T. Maki, T. T. Sekiyama, Y. Igarashi, M. Kajino and M. Mikami, 2013: Numerical analysis of the global transport of radionuclides from Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident. 93<sup>rd</sup> American Meteorological Society Annual Meeting.
- Tsumune, D., T. Tsubono, M. Aoyama and K. Hirose, 2012: Distribution of oceanic  $^{137}\text{Cs}$  from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant simulated numerically by a regional ocean model. *J. Environ. Radioact.*, **111**, 100-108.
- Tsumune, D., T. Tsubono, M. Aoyama, M. Uematsu, K. Misumi, Y. Maeda, Y. Yoshida and H. Hayami, 2013: One-year, regional-scale simulation of  $^{137}\text{Cs}$  radioactivity in the ocean following the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *Biogeosciences*, **10**, 5601-5617.