

令和 5 年 6 月 16 日現在

機関番号：82706

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2020～2022

課題番号：20K23369

研究課題名(和文) 大気中の燃焼起源鉄は海洋一次生産を増やすか？～極微量鉄の安定同位体分析から探る～

研究課題名(英文) Does atmospheric combustion Fe enhance primary production in the surface ocean?
An investigation from Fe isotope ratios

研究代表者

栗栖 美菜子 (Kurisu, Minako)

国立研究開発法人海洋研究開発機構・海洋機能利用部門(海底資源センター)・研究員

研究者番号：80880864

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,200,000円

研究成果の概要(和文)：鉄の不足は海洋の植物プランクトンの生産性を制限する原因のひとつである。本研究では、鉄供給源のうち、人間が大気中に排出したエアロゾル中の鉄を植物プランクトンが利用できるのか、それに伴う鉄安定同位体比の変化の定量的評価を目的とした。そのために室内培養実験を行い、珪藻を含む海水に起源の明らかなエアロゾルを添加し、珪藻の増殖度合いや安定同位体比の変化を定量した。その結果、鉱物粒子・人為起源粒子ともに珪藻の増殖を引き起こし、生物が利用可能であることが確かめられた。同位体分析の結果からは、鉄の起源の違いに関わらず、珪藻は海水に対して高い同位体比を示し、珪藻が重い同位体を選択的に取り込むことが示唆された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

海洋における鉄の不足は、植物プランクトンの増殖を制限することで、海洋の炭素循環に大きな影響を及ぼし、ひいては大気中の二酸化炭素濃度などの変動を介して、気候変動にも関わる。そのため、鉄がどこからどのように供給されて、生物の増殖に寄与しているかを知ることが海洋化学の目標の一つとなっている。本研究で得られた、鉄の取り込み機構の定量的な情報は、今後天然環境における鉄の取り込み機構を包括的に理解し、例えば数値モデルなどを用いて全球的な鉄循環・炭素循環の推定をする上で重要となる。

研究成果の概要(英文)：Iron (Fe) deficiency is one of the limiting factors of the phytoplankton productivity in the ocean. The objective of this study was to quantitatively evaluate whether phytoplankton can utilize Fe in aerosols emitted by anthropogenic activities, and the associated changes in iron stable isotope ratios. We conducted laboratory culture experiments with diatoms. Different sources of aerosols (natural dust and anthropogenic aerosol) was added to seawater culture containing diatoms, and quantified the degree of diatom growth and changes in stable isotope ratios. The results confirmed that both natural and anthropogenic particles caused diatom growth and were available to the organisms. Regardless of the origin of Fe, diatoms exhibited higher isotope ratios to the seawater, suggesting that diatoms selectively take up heavier isotopes.

研究分野：地球化学

キーワード：鉄安定同位体 植物プランクトン エアロゾル 人為起源

1. 研究開始当初の背景

鉄は、海洋の植物プランクトンにとっての必須栄養元素である。海洋の3分の1のエリアでは、その鉄の不足によりプランクトンの生産性が制限されている^{1,2}。鉄の供給は海洋の一次生産を活発化させることで、大気中二酸化炭素濃度の低下につながり、炭素循環や気候変動とも密接に関わる。そのため、海洋表層において生物が利用可能な鉄がどこから供給されるかを知ることは重要な課題である。「どこから」に関して、エアロゾル中の鉱物ダスト(例：黄砂³)、沿岸堆積物⁴、熱水⁵、さらに工場などから排出されるエアロゾル中の燃焼起源鉄⁶などが供給源と考えられるが、それらの相対的な寄与は未解明である。また「生物が利用可能な鉄」に関して、従来は溶存態の鉄の供給のみが重要視されていたが、プランクトンが粒子態の鉄の溶解を促進して利用することも示唆されており^{7,8}、海洋表層での粒子態・溶存態・生物間の鉄の移行過程は未だ不明瞭である。

本研究が着目するエアロゾル中の燃焼起源鉄は、鉱物ダストより排出量は少ないが、水への溶解性が高いため重要な溶存鉄の供給源であると示唆されている⁹。申請者らはこれまでの研究から、燃焼起源鉄が鉱物ダスト中の鉄に対して非常に低い鉄安定同位体比($\delta^{56/54}\text{Fe}$)を持つことを初めて明らかにし、 $\delta^{56/54}\text{Fe}$ からエアロゾルの起源の違いを区別できることを示した¹⁰⁻¹³。洋上で採取したエアロゾル中でも低い $\delta^{56/54}\text{Fe}$ が見られ、燃焼起源鉄の洋上輸送が確認できたが、表層海水へ到達した後、プランクトンが利用可能かどうかの観測例はなく、定量的な解析が必要である。

2. 研究の目的

本研究では、鉄安定同位体比を指標として、「室内培養実験に基づいて、エアロゾル中の燃焼起源鉄の海洋表層での溶解過程、生物利用性の定量的評価を行うこと」を目的とした。

3. 研究の方法

(1) 培養実験

珪藻(*Thalassiosira Weisflogii*)を用いて、エアロゾルを鉄源として添加する室内培養実験を行った。エアロゾルは、東京大学の屋上で粒径を分けて採取した。鉄安定同位体比を測定すると、粗大粒子では地殻物質の0‰、微小粒子では燃焼起源由来の低い値が見られ、それぞれ起源が異なることが分かる(図1)。この結果をもとに、2.5 μm 以上、2.5 μm 以下の粒径に分けてそれぞれエアロゾルを添加した。また、エアロゾルの溶解性と珪藻の増殖度の違いを見るため、エアロゾルをそのまま添加する系と、半透膜チューブ(1000 kDa, 100 kDa の2種類)にエアロゾルを入れることで、半透膜を通過する可溶性鉄のみがプランクトンに接する系を適用した。

培地として用いた海水は、海洋地球研究船「みらい」MR-21-01 航海において、西部北太平洋亜寒帯域(47°N, 160°E)で採取した。鉄制限となるように硝酸・リン酸・ケイ酸などの栄養塩のほか、鉄以外の微量元素、ビタミンなどを添加し、濾過して用いた(f/2 培地)。培養はインキュベーター内で20度、光強度150 $\mu\text{mol photons/m}^2/\text{s}$ の条件で、洗浄済みのポリカーボネート容器を用いて行い、フローサイトメーターを用いて毎日細胞数の観測を行った。培養開始から5-8日程度たった後、0.2 μm フィルターで培地をろ過し、ろ過海水を回収した。フィルター上の粒子(主に珪藻)は、シュウ酸-EDTA 混合溶液を流して珪藻表面に沈殿した水酸化鉄を洗い落とし、上で分析に用いた。

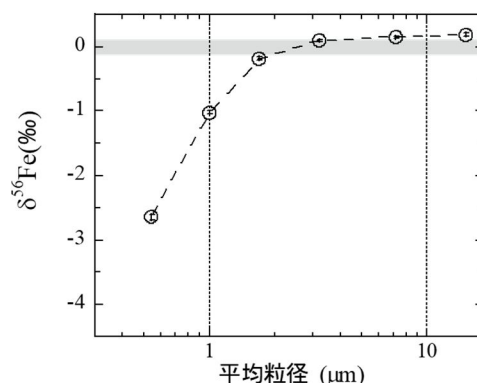


図1. 培養実験に用いたエアロゾルの鉄安定同位体比の粒径分布. 微小粒子は燃焼起源(4‰)と自然起源の混合と考えられる。

(2) 鉄同位体分析

マルチコレクター型誘導結合プラズマ質量分析計を用いて、ろ過海水と珪藻の鉄安定同位体比の分析を行った。回収したろ過海水は、キレート樹脂(Nobias PA-1)を用いて脱塩濃縮を行った後、陰イオン交換樹脂(AG-MP-1)に通して鉄の分離をした上で、同位体分析に用いた。フィルター上の珪藻は、硝酸・フッ酸を用いて分解して溶液にしたのち、同様に陰イオン交換樹脂で鉄の分離をした。

4. 研究成果

(1) 起源によるエアロゾルの溶解性、可溶性鉄の鉄安定同位体比の違い

珪藻の存在しない培地にエアロゾルを加えて可溶性鉄の濃度を測定すると、微小粒子のほうが高い濃度を示した。鉄溶解率は、粗大粒子(2.5 μm 以上)で0.1%、微小粒子で2%程度と、微小

粒子のほうが高い値を示した。半透膜の有無による溶解率の差は小さく、可溶性鉄は 100 kDa 以下のものが大半を示していることが示唆された。

可溶性鉄を含むろ過海水の鉄安定同位体比は、添加したエアロゾルの全鉄の値と比較して、粗大粒子ではほとんど変わらず、微小粒子では 1%程度低い同位体比を示した。これは微小粒子中に含まれている燃焼起源鉄が鉱物粒子よりも高い溶解性を持つために選択的に溶出し、燃焼起源鉄由来の低い同位体比を示した結果と考えられる。

(2) エアロゾル添加による増殖

鉄制限状態の海水にエアロゾルを添加し、珪藻を植え継いだところ、図 2 のように、粗大粒子・微小粒子ともに珪藻の増殖が確認され、微小粒子中に多く含まれる燃焼起源鉄も増殖に寄与していることが確かめられた。半透膜の有無を比べると、半透膜がないほうが増殖が速く、溶存態として存在する鉄だけでなく、粒子態中の鉄も増殖に関わっていることが示唆された。また、粗大粒子と微小粒子とを比較すると、半透膜なしの条件では粗大粒子のほうが増殖速度が大きかったのに対して、半透膜がある条件では、微小粒子のほうが増殖速度が大きかった。これは、燃焼起源を含む微小粒子の溶存鉄濃度が高かったことと整合的な結果である。

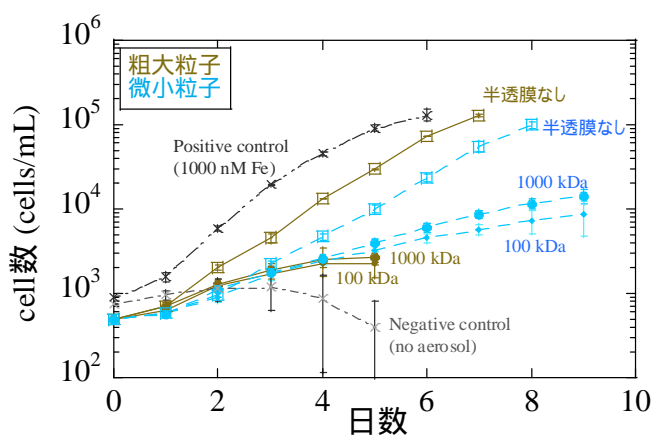


図 2. エアロゾルを添加した珪藻の細胞数の日変化。

(3) 珪藻の増殖に伴う同位体比の変化

培養を終えた海水は、珪藻なしの海水に対して、微小粒子では約 0.3‰低く、粗大粒子では 0.2-1.7‰低くなった。一方、珪藻は培養後の海水に対して、粗大粒子・微小粒子ともに 1.6-2%程度高い値を示した。これは、珪藻が重い同位体を優先的に取り込んで、海水が低くなった結果と考えられる。レイリー分別を仮定して、海水と珪藻間の分別係数を推定したところ 1.0008-1.0014 程度の値が算出された。しかし、この結果は、天然の観測結果から報告されている分別(生物が軽い同位体を優先的に取り込む)とは逆の結果になっていた¹⁴⁻¹⁶。この理由として、天然と培養実験とで、鉄の系からの除去機構や、鉄の細胞表面への沈殿などの環境が違ふことが考えられる。今後は、特に表面沈殿に着目しながら、実際の天然環境で起きている現象がどのように説明されるかを明らかにしていくことを検討している。

<参考文献>

1. Martin, J. H. *et al.* Testing the iron hypothesis in ecosystems of the equatorial Pacific Ocean. *Nature* vol. 371 123–129 (1994).
2. Moore, C. M. *et al.* Processes and patterns of oceanic nutrient limitation. *Nat. Geosci.* **6**, 701–710 (2013).
3. Jickells, T. D. Global iron connections between desert dust, ocean biogeochemistry, and climate. *Science* (80-.). **308**, 67–71 (2005).
4. Nishioka, J. & Obata, H. Dissolved iron distribution in the western and central subarctic Pacific: HNLC water formation and biogeochemical processes. *Limnol. Oceanogr.* **62**, 2004–2022 (2017).
5. Tagliabue, A. *et al.* Hydrothermal contribution to the oceanic dissolved iron inventory. *Nat. Geosci.* **3**, 252–256 (2010).
6. Schroth, A. W., Crusius, J., Sholkovitz, E. R. & Bostick, B. C. Iron solubility driven by speciation in dust sources to the ocean. *Nat. Geosci.* **2**, 337–340 (2009).
7. Rubin, M., Berman-Frank, I. & Shaked, Y. Dust- and mineral-iron utilization by the marine dinitrogen-fixer *Trichodesmium*. *Nat. Geosci.* **4**, 529–534 (2011).
8. Sugie, K. & Yoshimura, T. Effects of pCO₂ and iron on the elemental composition and cell geometry of the marine diatom *Pseudo-nitzschia pseudodelicatissima* (Bacillariophyceae)1. *J. Phycol.* **49**, 475–488 (2013).
9. Takahashi, Y. *et al.* Seasonal changes in Fe species and soluble Fe concentration in the atmosphere in the

- Northwest Pacific region based on the analysis of aerosols collected in Tsukuba, Japan. *Atmos. Chem. Phys.* **13**, 7695–7710 (2013).
10. Kurisu, M., Takahashi, Y., Iizuka, T. & Uematsu, M. Very low isotope ratio of iron in fine aerosols related to its contribution to the surface ocean. *J. Geophys. Res. Atmos.* **121**, 11119–11136 (2016).
 11. Kurisu, M. *et al.* Variation of iron isotope ratios in anthropogenic materials emitted through combustion processes. *Chem. Lett.* **45**, 970–972 (2016).
 12. Kurisu, M., Adachi, K., Sakata, K. & Takahashi, Y. Stable Isotope Ratios of Combustion Iron Produced by Evaporation in a Steel Plant. *ACS Earth Sp. Chem.* **3**, 588–598 (2019).
 13. Kurisu, M. & Takahashi, Y. Testing iron stable isotope ratios as a signature of biomass burning. *Atmosphere (Basel)*. **10**, 1–20 (2019).
 14. Ellwood, M. J. *et al.* Iron stable isotopes track pelagic iron cycling during a subtropical phytoplankton bloom. *Proc. Natl. Acad. Sci.* **112**, E15–E20 (2015).
 15. Ellwood, M. J. *et al.* Distinct iron cycling in a Southern Ocean eddy. *Nat. Commun.* **11**, 1–8 (2020).
 16. Radic, A., Lacan, F. & Murray, J. W. Iron isotopes in the seawater of the equatorial Pacific Ocean: New constraints for the oceanic iron cycle. *Earth Planet. Sci. Lett.* **306**, 1–10 (2011).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 栗栖美菜子, 杉江恒二
2. 発表標題 鉄安定同位体比を用いたエアロゾル中の鉄の生物取り込み過程に関する研究
3. 学会等名 2022年度北大低温研・共同利用研究集会「寒冷圏大気-海洋間の生物地球化学的相互作用に関する研究集会」
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 栗栖美菜子, 坂田昂平, 植松光夫, 伊藤彰記, 高橋嘉夫
2. 発表標題 鉄安定同位体比に基づく大気・海洋における鉄の起源の推定
3. 学会等名 北海道大学低温科学研究所 令和2年度共同利用研究集会「寒冷圏大気-海洋間の生物地球化学的相互作用に関する研究集会」
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------