

令和 4 年 5 月 12 日現在

機関番号：10101

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2019～2021

課題番号：19H04233

研究課題名（和文）海洋大気の有機態窒素エアロゾル：生成量を制御する海洋微生物活動の支配要因は何か？

研究課題名（英文）Organic nitrogen aerosol in the marine atmosphere: Which factors control the amount of organic nitrogen in marine microbial activity?

研究代表者

宮崎 雄三（Miyazaki, Yuzo）

北海道大学・低温科学研究所・助教

研究者番号：60376655

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,300,000円

研究成果の概要（和文）：亜熱帯北太平洋における研究船を用いた観測結果から、表層海水中の窒素固定生物によって生成された有機態窒素が海洋表面から大気に放出され、有機態窒素エアロゾルが生成するプロセスが初めて示唆された。実験室内での窒素固定生物培養-大気測定実験により、窒素固定生物の増殖に伴う有機態窒素の大気放出を実証した。さらに窒素固定生物の増殖後の衰退期に、高揮発性の有機態窒素が主に塩基性の気相成分として大気放出されることが示唆された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

海洋大気反応性窒素については、人間活動等により放出され大気輸送の後、海洋や陸域へ沈着し海洋生態系に影響を与える成分として、これまで無機態窒素（硝酸やアンモニア）のみが考慮されてきた。本研究の成果から、海洋-大気間における反応性窒素の収支や海洋上の大気酸性度・光化学反応場を理解する上で、時期や海域（特に貧栄養塩海域）によっては海洋表層の微生物活動、特に窒素固定生物の活動に由来する大気有機態窒素の放出・生成が重要であることが初めて示唆された。

研究成果の概要（英文）：Shipboard measurements of atmospheric aerosols and surface seawater in the subtropical North Pacific indicated that organic nitrogen, produced and exuded by nitrogen-fixing microorganisms in surface seawater, significantly contributed to the formation of atmospheric organic nitrogen aerosols. Laboratory experiments of incubation of nitrogen-fixing microorganisms followed by atmospheric measurements confirmed sea-to-air emissions of organic nitrogen associated with the growth of nitrogen-fixing microorganisms. Furthermore, the experiment revealed that the emission of organic nitrogen, mainly consisted of highly-volatile, basic components, increased during the decay of microorganisms.

研究分野：大気化学

キーワード：有機態窒素 大気エアロゾル 窒素固定生物 反応性窒素 アンモニア

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

(1) 海洋上の大気エアロゾル(大気に浮遊する微粒子)は太陽光を散乱・吸収するほか、雲を生成する核として、雲の量や降水過程に影響を与えるなど、気候変動に重要な役割を果たす。エアロゾルには有機物が最大 80~90%の割合で含まれ、中でも海洋の表層から放出される有機物は、組成や存在量によってエアロゾルの雲粒生成能を促進も抑制もするため、海洋大気エアロゾルの雲粒生成能を理解する上で重要であると考えられている。しかし、その起源や生成プロセスの理解が不十分であるため、海洋大気エアロゾルの気候影響評価は不確定性が大きい。

(2) 地球の表面積の約 7 割を占める海洋の表面からは、微生物の活動に伴う有機物が海水飛沫により大気へ放出され、エアロゾルの組成に大きく影響すると推定されている。申請者は海洋上の大気エアロゾルが有機態窒素に富むことを発見した。有機態窒素はエアロゾルの酸性度や水溶性特性(雲の生成)、太陽光の吸収性(気温の変化)に影響し、これまで考慮されていない大気-海洋間の窒素収支への寄与や、海洋微生物の量・組成・活性の将来的な変化に伴う有機物の気候影響・大気質を考える上での鍵となる。しかしながら、海洋大気における有機態窒素の起源や生成量を支配する要因の多くは未解明である。

(3) 海洋大気エアロゾル中の有機態窒素エアロゾルの起源を解明するには大気だけではなく、表層海水中の微生物およびその活動に伴う有機物と大気エアロゾルの変動との関係を同時に調べる必要がある。解明すべき課題として、海水飛沫により海洋表面から大気エアロゾルへ移行する有機態窒素の量と組成が、海洋表層に生息する微生物の量・組成・活性によって、どのように支配されるかを理解する必要があった。

2. 研究の目的

本研究は研究船を用いた観測および室内実験により、大気エアロゾルと海水試料の有機物組成、微生物情報を直接比較することで、海洋上の大気有機態窒素エアロゾルの起源とその生成量を支配する海洋微生物(量、組成、活性の変化)の要因を解明することを目的とした。具体的な内容は以下の通りである。

(1) 安定炭素同位体比による大気と海水との関連付け、無機態窒素(アンモニウム塩、硝酸塩、亜硝酸塩)と有機態窒素濃度の測定から、有機態窒素エアロゾルの起源を明らかにする。

(2) 大気と海水中の有機物組成・微生物の群集組成と活性度を比較し、海水に由来する有機態窒素エアロゾルの生成量と組成は、海洋表層の微生物活動のどのような因子によって決定づけられているかを明らかにする

(3) 実験室内で海洋微生物培養-大気捕集システムを用い、(2)の観測結果によって示唆された大気有機態窒素エアロゾルの生成制御要因を検証する。

3. 研究の方法

(1) 学術研究船白鳳丸により亜熱帯北太平洋上(主に北緯 23 度上)で採取した大気エアロゾル試料を用い、水溶性有機態窒素や無機態窒素(アンモニウム塩、硝酸塩、亜硝酸塩)を測定した。測定は、エアロゾル試料の一部を純水抽出した後に、溶存全窒素計を用いて水溶性全窒素(Water-Soluble Total Nitrogen: WSTN)濃度を測定し、イオンクロマトグラフ(IC)を用いて無機態窒素($IN = NH_4^+ + NO_3^- + NO_2^-$)を測定した。WSTN と IN の差から水溶性有機態窒素(Water-Soluble Organic Nitrogen: WSON = WSTN - IN)濃度の値を算出した。また、起源推定のために水溶性有機炭素の安定炭素同位体比を元素分析-同位体質量分析計で、ナトリウムイオンを主とする海塩成分を IC で、糖類を主とする分子トレーサーをガスクロマトグラフ質量分析計で各々測定した。また、東京大学・高橋一生教授のご協力の下、表層海水試料を用いて測定された窒素固定速度との比較を行った。

(2)(1)の観測結果から示唆された窒素固定生物による有機態窒素の大気放出を実証するため、実験室内で海洋微生物培養-大気捕集システムを構築した。恒温槽内に、人工海水での微生物培養と大気捕集が可能な測定システムを容量約 30L の水槽を使用して製作した。光合成のための光を照射し、大気吸引するため、培養容器(水槽)は透明かつ耐圧性があり、測定への有機

成分の干渉が少ないアクリルを最適な材質として選定した。窒素固定生物を培養する培地（人工海水）として YBC-II を作成・使用し、代表的な窒素固定生物で培養株が単離されているトリコデスミウムを用いた培養-大気捕集実験を試験的に行い、培養条件や大気捕集条件の検討を行った。

(3) 最適化した実験条件の下、約 2 か月間の窒素固定生物培養と大気・海水試料の取得を行った。恒温槽内の人工海水でトリコデスミウムを培養し、24 時間おきに採水と大気捕集フィルターの交換を行った。採水試料の一部を用い、蛍光光度計で細胞内蛍光強度を測定し、クロロフィル *a* 濃度（トリコデスミウムの現存量）を計算することで、細胞増殖の経時変化を捉えた。この経時変化の情報をもとに、培養開始から細胞の増殖期・死滅期まで大気捕集を行った。大気試料の取得は 3 段のインパクターを用い、上段は石英繊維フィルターで粒子（エアロゾル）、中段と下段は塩基性・酸性溶液で含浸したセルロースフィルターを用い、気相の反応性窒素（中段：酸性の有機態・硝酸態、下段：アンモニア態・塩基性の有機態）を捕集した。大気の吸引体積速度は毎分 20L で設定した。大気試料は純水抽出し、(1) と同様の手法で溶存全窒素濃度、無機態窒素濃度を測定し、WSON 濃度を計算した。

4. 研究成果

(1) 亜熱帯北太平洋の北緯 23 度上において、東部 (200-240°E) における微小粒子 WSON 平均濃度は西部 (135-200°E) における平均濃度より約 3 倍高いという明瞭な経度分布の傾向が見られた。水溶性有機炭素の安定炭素同位体比の測定結果および後方流跡線の解析結果から、東部において観測された微小粒子中の WSON は海洋表層由来であることが示唆された。さらに、この WSON 濃度は海洋表層の窒素固定速度と有意な正の相関を示した。これらの結果から、表層海水中の窒素固定生物によって生成された反応性窒素（溶存有機態窒素やアンモニウム）が、海洋表面から大気に放出され、大気中で WSON エアロゾルが生成されるプロセスが初めて示唆された。簡易的な経験式から見積もった結果、海洋から大気へ放出される反応性窒素エアロゾルのうち、主要成分であるアンモニウム塩に対する WSON の正味の放出フラックスは最大約 70% であった。この結果から、海洋-大気間における窒素収支や大気の酸性度等を評価・予測する上で、時期や海域（特に貧栄養塩海域）によっては海洋表層微生物活動に由来する WSON 生成が重要であることが示唆された。

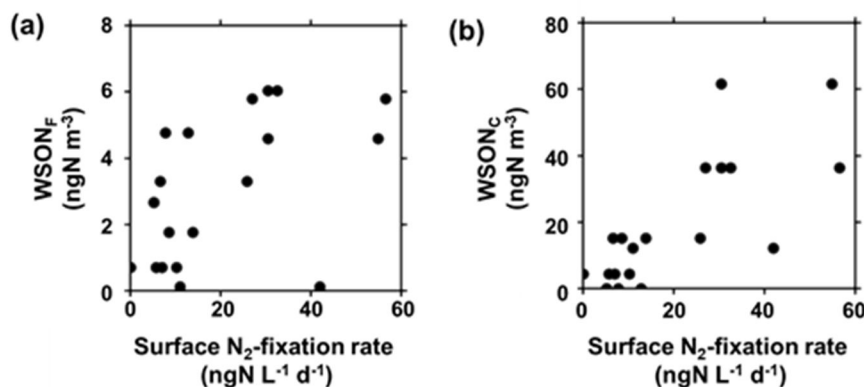


図 1. 亜熱帯北太平洋の北緯 23 度上において観測された (a) 微小粒子および (b) 粗大粒子中の水溶性有機態窒素 (WSON) 濃度 (縦軸) と海洋表層の窒素固定速度 (横軸) の散布図。窒素固定速度データは東京大学・高橋一生教授の提供による (Dobashi et al., in revision)。

(2) 約 2 か月間の培養実験において、人工海水中のクロロフィル *a* 濃度の変動により、本実験システムにおけるトリコデスミウムについて、移行期から対数増殖期（約 1 週間）、安定期（約 2 週間）、減衰期（約 10 日間）までの活動度を確認した。人工海水中の溶存態窒素及び溶存有機炭素濃度の経時変化はクロロフィル *a* 濃度と対数増殖期まで対応し、これら溶存物は窒素固定に伴う海水への放出物であることを示した。大気水溶性有機態窒素の濃度は、粒子相・気相（酸性・塩基性）のうち、塩基性の気相成分が 9 割以上の質量割合を示し支配的な成分であることがわかった。さらに気相の塩基性水溶性有機態窒素濃度は増殖期よりも衰退期で顕著な上昇を示した。この観測事実は、トリコデスミウムの増殖に伴う滲出物である溶存態窒素や溶存有機炭素が微生物分解され、揮発性の高い水溶性有機態窒素成分として大気中への放出が増大したことを示唆した。本研究は、海洋上の大気観測により示唆された、海洋表層での窒素固定生物による大気への有機態窒素の放出を室内での培養-大気捕集実験により実証した。

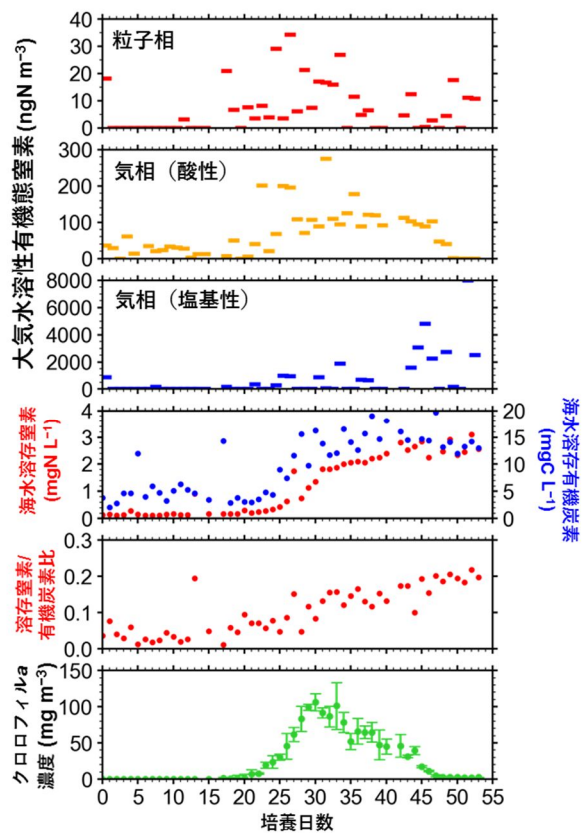


図 2. 実験室内での人工海水を用いた窒素固定生物(トリコデスミウム)の培養に伴って放出された、大気の水溶性有機態窒素の粒子相、気相(酸性・塩基性)濃度、および人工海水中の溶存窒素・溶存有機炭素濃度とそれらの質量比、クロロフィル a 濃度の時系列。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 4件）

1. 著者名 宮崎 雄三	4. 巻 35
2. 論文標題 海洋表層の生物生産が駆動する海洋大気有機エアロゾルの生成	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 エアロゾル研究	6. 最初と最後の頁 183 ~ 191
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.11203/jar.35.183	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Miyazaki Yuzo, Suzuki Koji, Tachibana Eri, Yamashita Youhei, Mueller Astrid, Kawana Kaori, Nishioka Jun	4. 巻 10
2. 論文標題 New index of organic mass enrichment in sea spray aerosols linked with senescent status in marine phytoplankton	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 17042
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-020-73718-5	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 飯塚 芳徳, 的場 澄人, 宮崎 雄三	4. 巻 44
2. 論文標題 アイスコア-極域海氷-海洋エアロゾル研究の新展開	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 大気化学研究	6. 最初と最後の頁 044A01
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Jung Jinyoung, Han Byeol, Rodriguez Blanca, Miyazaki Yuzo, Chung Hyun Young, Kim Kitae, Choi Jung-Ok, Park Keyhong, Kim Il-Nam, Kim Saewung, Yang Eun Jin, Kang Sung-Ho	4. 巻 10
2. 論文標題 Atmospheric Dry Deposition of Water-Soluble Nitrogen to the Subarctic Western North Pacific Ocean during Summer	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Atmosphere	6. 最初と最後の頁 351 ~ 351
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/atmos10070351	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 Simu Sharmine Akter, Miyazaki Yuzo, Tachibana Eri, Finkenzeller Henning, Brioude Jerome, Colomb Aurelie, Magand Olivier, Verryken Bert, Evan Stephanie, Volkamer Rainer, Stavrakou Trissevgeni	4. 巻 21
2. 論文標題 Origin of water-soluble organic aerosols at the Maito high-altitude observatory, Reunion Island, in the tropical Indian Ocean	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Atmospheric Chemistry and Physics	6. 最初と最後の頁 17017 ~ 17029
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.5194/acp-21-17017-2021	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計5件 (うち招待講演 1件 / うち国際学会 1件)

1. 発表者名 土橋司、鈴木光次、宮崎雄三
2. 発表標題 海洋窒素固定生物が大気反応性窒素生成に及ぼす影響
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
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Sharmine Akter Simu, Yuzo Miyazaki, Eri Tachibana, Henning Finkenzeller, Rainer Volkamer, Jerome Brioude, Trissevgeni Stavrakou, and OCTAVE Science Team
2. 発表標題 Origin of marine atmospheric water-soluble organic aerosols at a high-altitude observatory, Reunion Island in the tropical Indian Ocean
3. 学会等名 JpGU-AGU Joint Meeting 2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 宮崎雄三
2. 発表標題 海洋大気有機エアロゾルと海洋表層水の生物地球化学的リンケージ
3. 学会等名 日本地球化学会年会 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 土橋司, 宮崎雄三, 立花英里, 岩本洋子, 高橋一生, 堀井幸子, Shu-Kuan Wong, 濱崎恒二
2. 発表標題 北太平洋亜熱帯域における海洋大気エアロゾル中の水溶性有機態窒素の起源
3. 学会等名 日本地球惑星科学連合大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Tsukasa Dobashi, Yuzo Miyazaki, Eri Tachibana, Yoko Iwamoto, Shu-Kuan Wong, and Koji Hamasaki
2. 発表標題 ORIGIN OF WATER-SOLUBLE ORGANIC NITROGEN IN MARINE ATMOSPHERIC AEROSOLS IN THE SUBTROPICAL NORTH PACIFIC
3. 学会等名 SOLAS open science conference (国際学会)
4. 発表年 2019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
研究 分担者	鈴木 光次 (Kouji Suzuki) (40283452)	北海道大学・地球環境科学研究所・教授 (10101)	
研究 分担者	山下 洋平 (Youhei Yamashita) (50432224)	北海道大学・地球環境科学研究所・准教授 (10101)	

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
---------	---------