

## エアロゾル中の様々な起源の鉄のHNLC海域に対する寄与: 化学種および安定同位体比からの考察

### Speciation and stable isotope study for iron in aerosols from various sources to determine their contributions to HNLC region

\*高橋 嘉夫<sup>1</sup>、栗栖 美菜子<sup>1</sup>

\*Yoshio Takahashi<sup>1</sup>, Minako Kurisu<sup>1</sup>

1. 東京大学大学院理学系研究科地球惑星科学専攻

1. Department of Earth and Planetary Science, Graduate School of Science, The University of Tokyo

In the North Pacific, three sources of iron (Fe) transported via atmosphere can be suggested: (a) mineral dust from East Asia, (b) anthropogenic Fe, and (c) aerosols from volcanic origin. Considering these different sources, Fe can be found and transported in a variety of chemical forms, both water-soluble and -insoluble. It is generally believed that only the soluble fraction of Fe can be considered as bioavailable for phytoplankton. To assess the biogeochemical impact of the atmospheric input, attempt was made to determine Fe species by X-ray absorption fine structure spectroscopy (XAFS) and its water solubility, in particular to compare the three sources. In particular, it was found that Fe stable isotope contribute to determination of Fe emitted from anthropogenic sources.

(i) Iron species and soluble Fe content in aerosol collected at Tsukuba (Japan) through a year were investigated to compare the contributions of mineral dust and anthropogenic components. It was found that the soluble Fe content is correlated with those of sulfate and oxalate originated from anthropogenic sources, suggesting that soluble Fe is mainly derived from anthropogenic sources, which was supported by XAS analysis showing presence of Fe(III) sulfate. Moreover, soluble Fe content was closely correlated with that of Fe(III) sulfate. In spite of supply of high concentrations of Fe in mineral dust from East Asia, anthropogenic Fe fraction is important due to its high water solubility by the presence of Fe(III) sulfate.

(ii) Marine aerosol samples originated from volcanic ash were collected in the western North Pacific during KH-08-2 cruise (August, 2008). XAFS suggested that Fe species of volcanic ashes changed during the long-range transport, while dissolution experiment showed that Fe solubility of the marine aerosol is larger than that of volcanic ashes, possibly due to the transform of insoluble Fe in volcanic ashes into highly soluble Fe such as Fe(II) sulfate. It was found that the soluble Fe content in the aerosol supplied as volcanic ashes should be important due to its very high content of soluble Fe.

(iii) A series of recent studies showed that Fe in anthropogenic aerosols is more soluble than that in natural aerosols (Takahashi et al., 2013) and has lower isotopic ratio (Mead et al., 2013). However, the difference between Fe isotopic ratio ( $\delta^{56}\text{Fe}$ :  $[(^{56}\text{Fe}/^{54}\text{Fe})_{\text{sample}} / (^{56}\text{Fe}/^{54}\text{Fe})_{\text{IRMM-14}}] - 1$ ) of two origins reported in Mead et al. (2013) is not so large compared with the standard deviation. Therefore, the aim of this study is to determine Fe species and  $\delta^{56}\text{Fe}$  in anthropogenic aerosols more accurately and to evaluate its contribution to the ocean surface.

Dominant Fe species in the samples were, ferrihydrite, hematite, and biotite. It was also revealed that coarse particles contained more biotite and that fine particles contained a larger amount of hematite, which suggested that anthropogenic aerosols were emitted during combustion processes. In addition, results of Fe isotopic ratio analysis suggested that  $\delta^{56}\text{Fe}$  of coarse particles were around +0.25‰, whereas that of fine particles were from -0.5 to -2‰, which was lower than the  $\delta^{56}\text{Fe}$  in anthropogenic

aerosol by Mead et al. (2013). The size-fractionated sampling made it possible to determine the  $\delta^{56}\text{Fe}$  in anthropogenic aerosol. Soluble component in fine particles extracted by simulated rain water also showed much lower  $\delta^{56}\text{Fe}$  ( $\delta^{56}\text{Fe} = -3.9\text{‰}$ ), suggesting that anthropogenic Fe has much lower isotopic ratio. The remarkably low  $\delta^{56}\text{Fe}$  may be caused by the anthropogenic combustion process. The  $\delta^{56}\text{Fe}$  in anthropogenic aerosol measured here is important to model the budget of iron in the surface ocean.

キーワード：鉄、エアロゾル、HNCL海域、XAFS、鉄安定同位体比

Keywords: Iron, Aerosol, HNCL, XAFS, Fe stable isotope

## 親潮域春季ブルームに与える沿岸親潮水のインパクト

### Impact of the Coastal Oyashio water on spring bloom on the Oyashio area

\*黒田 寛<sup>1</sup>、戸谷 タ子<sup>1</sup>、西岡 純<sup>2</sup>、桑田 晃<sup>3</sup>、長谷川 大介<sup>3</sup>、渡辺 剛<sup>3</sup>、谷内 由貴子<sup>1</sup>

\*Hiroshi Kuroda<sup>1</sup>, Yuko Toya<sup>1</sup>, Jun Nishioka<sup>2</sup>, Akira Kuwata<sup>3</sup>, DAISUKE HASEGAWA<sup>3</sup>, Tsuyoshi Watanabe<sup>3</sup>, Yukiko Taniuchi<sup>1</sup>

1. 国立研究開発法人 水産研究・教育機構 北海道区水産研究所、2. 北海道大学低温科学研究所、3. 国立研究開発法人 水産研究・教育機構 東北区水産研究所

1. Hokkaido National Fisheries Research Institute, Japan Fisheries Research and Education Agency, 2. Institute of Low Temperature Science, Hokkaido University, 3. Tohoku National Fisheries Research Institute, Japan Fisheries Research and Education

冬春季にオホーツク海から北西太平洋に流出する沿岸親潮水は、一般に、水温2℃以下、塩分33以下で定義され、親潮水よりも低温低塩であり、植物プランクトンの増殖に不可欠な栄養塩と溶存鉄を豊富に含む。ただし、北海道～三陸沖の北西太平洋において、沿岸親潮水の分布は沿岸～大陸棚域に限定されると考えられているため、それよりも沖合の親潮～混合域における春季ブルームへの寄与はほとんど調べられていない。本研究では、既往の研究結果を統合して、沿岸親潮水が親潮域の春季ブルームに重要に寄与する仮説「沿岸親潮水ブルーム制御仮説」を提唱する。本仮説を検証するために、1990年以降5月における厚岸沖Aラインモニタリングデータを解析し、親潮～混合域における春季ブルームと水塊特性（水温塩分特性）との対応を把握し、親潮域の春季ブルームに対応する水塊が沿岸親潮水あるいはその変質水であることを示す。さらに、北西太平洋全域における歴史的な水温塩分データを用いて、春季ブルームと潜在的に対応する水塊の時空間分布を示し、親潮全域の春季ブルームに沿岸親潮水が寄与する可能性を議論したい。

キーワード：親潮域、春季ブルーム、沿岸親潮水

Keywords: Oyashio area, Spring bloom, Coastal Oyashio water

## 蛍光性溶存有機物を用いた沿岸親潮水の起源推定

## Evaluation of the origin of the Coastal Oyashio Water using fluorescent dissolved organic matter

水野 優<sup>2</sup>、西岡 純<sup>3</sup>、多田 雄哉<sup>4</sup>、鈴木 光次<sup>1,2</sup>、\*山下 洋平<sup>1,2</sup>Yu Mizuno<sup>2</sup>, Jun Nishioka<sup>3</sup>, Yuya Tada<sup>4</sup>, Koji Suzuki<sup>1,2</sup>, \*Youhei Yamashita<sup>1,2</sup>

1. 北海道大学 大学院地球環境科学研究院、2. 北海道大学 大学院環境科学、3. 北海道大学 低温科学研究所、4. 海洋研究開発機構

1. Faculty of Environmental Earth Science, Hokkaido University, 2. Graduate School of Environmental Science, Hokkaido University, 3. Institute of Low Temperature Science, Hokkaido University, 4. Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology

西部北太平洋亜寒帯域は、生物活動による海水中の二酸化炭素分圧の季節的減少が最も大きい海域であり、地球規模の炭素循環を考える上で重要な海域である。春季の北海道東部沖では低水温、低塩分で特徴付けられる沿岸親潮水が分布しており、春季植物プランクトンブルームに影響を与えるなど、西部北太平洋亜寒帯域の生態系および炭素循環に大きく関与している可能性がある。ここで、沿岸親潮水の淡水の起源として、河川水および海水融解水が考えられている。しかし、沿岸親潮水の淡水成分の起源や時空間分布は明らかでなく、沿岸親潮水が春季植物プランクトンブルームにどのように影響しているかは明確でない。そこで本研究は、淡水成分のトレーサーとして溶存有機物中の腐植様物質を用い、沿岸親潮水の淡水成分の起源を明らかにすることを目的とした。河川水中の腐植様物質は難分解であり、沿岸域では腐植様物質の存在量と塩分との間に負の相関が一般的に見られる。一方、海水生成時に溶存有機物はブラインと共に排出されることから、海水中の腐植様物質の存在量は少ない。すなわち、腐植様物質と塩分の関係から、沿岸親潮水の淡水成分を評価できる可能性は大きい。

海水試料採取は、2015年3月6日から3月26日に実施された白鳳丸KH-15-1次研究航海において、北海道東部沖の沿岸親潮および親潮域において行った。また、淡水の端成分として、河川水及び海水を採取した。河川水試料の採取は2011年9月18日から9月21日にかけて、主に北海道東部の河川で行われた。海水試料の採取は2012年2月14日、2013年2月25日と2月28日、2014年2月16日に砕氷船そうやにおいて行われた。海水試料は2 L容のPTFEビーカーに入れて暗所・室温で解凍させた。各試料は濾過し、溶存有機炭素濃度、三次元蛍光スペクトル、紫外可視吸収スペクトルの分析を行った。また、得られた三次元蛍光スペクトルをParallel Factor Analysis (PARAFAC) により個々の蛍光成分へと分解した。

先行研究に従って水塊分類を行った結果、沿岸親潮水(水温<2.0 °C、塩分<33.0)、親潮水(水温<7.0 °C、塩分33.0-33.7、密度<26.7)、低層水(密度>26.7)の3つの水塊に分類された。PARAFACにより三次元蛍光スペクトルは4つの蛍光成分へと分解された(C1-C4)。先行研究で報告されている蛍光成分とピークの位置や形状を比較し、C1とC2が陸起源腐植様蛍光成分、C3が海洋自生性腐植様蛍光成分、C4がトリプトファン様蛍光成分であると判断した。沿岸親潮水中において、陸起源腐植様蛍光成分であるC1およびC2蛍光強度と塩分との間に負の相関が見られた。また、沿岸親潮水中におけるC1およびC2蛍光強度と塩分の回帰直線の切片を求めた結果、切片は河川水で観測された蛍光強度の範囲内に位置した。ここで、海水中のC1およびC2蛍光強度は海水中のC1およびC2蛍光強度よりも低かったため、本研究で観測した沿岸親潮水は河川水の影響を強く受けていることが示唆された。また、回帰直線の切片は、湿地を流れる釧路川の観測結果に近かった。このことから、本研究で観測した沿岸親潮水の淡水成分は河川水の中でも湿地の影響を強く受けている河川水に由来することが考えられた。

キーワード：沿岸親潮水、淡水成分、蛍光性溶存有機物

Keywords: Coastal Oyashio Water, freshwater end-member, Fluorescent dissolved organic matter

# 北西太平洋亜寒帯域植物プランクトンブルーム過程における鉄の生物利用能の変化

## Influences of organic Fe-binding ligands on natural phytoplankton growth in the western subarctic Pacific

\*近藤 能子<sup>1</sup>、武田 重信<sup>1</sup>、西岡 純<sup>5</sup>、佐藤 光秀<sup>2</sup>、齊藤 宏明<sup>3</sup>、鈴木 光次<sup>4</sup>、古谷 研<sup>2</sup>

\*Yoshiko Kondo<sup>1</sup>, Shigenobu Takeda<sup>1</sup>, Jun Nishioka<sup>5</sup>, Mitsuhide Sato<sup>2</sup>, Hiroaki Saito<sup>3</sup>, Koji Suzuki<sup>4</sup>, Ken Furuya<sup>2</sup>

1. 長崎大水産環境、2. 東大院農学生命、3. 東大気海洋研究所、4. 北大院地球環境、5. 北大低温研

1. Nagasaki University, 2. The University of Tokyo, 3. Atmosphere and Ocean Research Institute, 4. Hokkaido University, 5. Institute of Low Temperature Science Hokkaido University

鉄は北太平洋亜寒帯域など高栄養塩低クロロフィル (HNLC) 海域における一次生産の制限要因の一つである。外洋表層の溶存鉄の99%以上は天然の有機配位子と錯形成しているため、植物プランクトンによる有機錯体鉄の利用過程の解明は一次生産の制御機構を理解する上で重要である。海水中に存在する鉄の有機配位子には、原核生物が鉄欠乏時に生産するシデロフォアや、細胞溶解や摂食過程で滲出する色素やタンパク質由来化合物、細胞外多糖類、腐植物質などがある。これらの種類の違いは植物プランクトンによる鉄取り込み速度から推定される鉄の生物利用能に影響を与えるが、植物プランクトンの増殖応答がブルーム過程でどう変化するかについては明らかでない。本研究では、それを解明するため船上培養実験を実施した。

船上培養実験は北西太平洋亜寒帯域にて計5回実施した (Ex1~Ex5)。Ex1では白鳳丸KH-03-02次航海 (2003年10月) の測点 6 (48°50' N, 165°00' E) で得たHNLC状態の水を、Ex2~Ex5では白鳳丸KH-04-03次航海 (2004年7~8月) で行われた大規模鉄撒布実験SEEDS II (Tsuda et al., 2007) で形成された植物プランクトンブルームパッチ内の水を10 m層から採取した。Ex2~Ex5の培養開始時の海水は、Chl *a*濃度から、それぞれブルームの誘導期 (Ex2)、増殖期 (Ex3)、安定期 (Ex4)、衰退期 (Ex5) と判断された。培養実験用の海水は孔径202 μmのテフロンメッシュを通して大型動物プランクトン等を排除した後、以下の処理を行なった。Ex1では、陸上微生物由来シデロフォアであるdesferrioxamine B (DFB) と、ポルフィリン化合物であるprotoporphyrin-IX (PP) を有機配位子として用い、それぞれ無機鉄と有機配位子を1:10の割合で混合した溶液を作成して、有機錯体鉄濃度が4 nMになるように添加した。また比較のため、4 nM無機鉄添加区を設定し、未処理のものを対照区とした。Ex2~Ex5では40 nMのPPのみを添加する実験区 (PP添加区)、DFBのみを0.5、1、5、10、100 nM添加する実験区、無機鉄添加区を設定した。培養はEx1では7日間、Ex2~Ex5では4日間、3連で行った。植物プランクトンの増殖応答はサイズ分画Chl *a*濃度 (10 μm、<10 μm、蛍光法)、ピコ・ナノ植物プランクトン細胞密度 (フローサイトメトリー) で評価した。

培養開始時、全ての実験において全Chl *a*の65%以上は<10 μmサイズ画分で占められていた。一方、初期溶存鉄濃度はEx1~Ex5で0.06、0.16、0.59、0.54、0.11 nMと変化した。Ex1では全Chl *a*濃度は無機鉄添加区で対照区に比べて高い値を示したが、PP鉄添加区ではそれを上回る増加が認められた。このChl *a*の増加は主に<10 μmサイズ画分によるものであり、ピコ真核植物プランクトンおよび*Synechococcus*細胞密度も他系列に比べ増加した。一方、DFB鉄添加区ではChl *a*やピコ・ナノ植物プランクトン細胞密度に有意な低下が認められた。Ex1とEx2~Ex5では増殖応答に相違点が見られた。PP添加に関しては、誘導期や増殖期でEx1同様の増殖促進効果が認められたが、安定期や衰退期では見られなかった。ブルーム安定期や衰退期では、パッチ内に動物プランクトンによる捕食等に由来するポルフィリン様化合物が多く存在していた可能性に加え、現場の鉄濃度自体の低下によって、増殖促進効果が不明瞭になったと考えられた。一方、DFBによる増殖抑制効果はEx2~Ex5のいずれにおいても高濃度の添加 (100 nM) で認められたが、それ以下ではその効果は低下

し、対照区との差も不明瞭になった。Ex2~Ex5では各実験開始時のパッチ内の天然有機配位子濃度は0.58~1.80 nMの範囲で推移しており、低濃度のDFB添加では天然有機配位子と鉄の錯形成に関して競合し、増殖抑制効果が低下したと考えられた。一方、増殖期には高濃度のDFB存在下でもナノ真核植物プランクトンやクリプト藻の細胞密度は対照区に比べ増加し、DFBの効果も生理状態により変化することが示唆された。本研究により、北西太平洋亜寒帯域の植物プランクトン群集の増殖に関わる鉄利用能は、存在する有機配位子の種類や濃度、またプランクトン自身の生理状態や種組成に強く影響を受けることが示された。一方で、PPは海水に難溶であることが指摘されており、本研究で見られた増殖促進機構については不明な点が多い。今後、有機配位子が現場海水中の鉄の生物利用能を高める機構について検討する必要がある。

キーワード：有機配位子、鉄、植物プランクトン、北西太平洋亜寒帯、デスフェリオキサミンB、プロトポルフィリンIX

Keywords: Organic ligand, Iron, Phytoplankton, Western subarctic Pacific, Desferrioxamine B, Protoporphyrin IX

## Higher temperature accelerate the growth of iron-limited phytoplankton communities in the subarctic Pacific

\*杉江 恒二<sup>1</sup>、芳村 毅<sup>2</sup>、西岡 純<sup>3</sup>

\*Koji Sugie<sup>1</sup>, Takeshi Yoshimura<sup>2</sup>, Jun Nishioka<sup>3</sup>

1. 国立研究開発法人海洋研究開発機構 地球環境観測研究開発センター、2. 一般財団法人電力中央研究所 環境科学研究所、3. 国立大学法人北海道大学低温科学研究所 環オホーツク観測研究センター

1. Research & Development Center for Global Change, Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology, 2. Environmental Science Research Laboratory, Central Research Institute of Electric Power Industry, 3. Pan-Okhotsk Research Center, Institute of Low Temperature Science, Hokkaido University, Hokkaido University

Iron is one of the key element determining the carrying capacity of primary production in the marine ecosystem. Because of iron scarcity in certain oceanic regions, phytoplankton communities were dominated by small-sized non-diatom species and thus less efficient trophic transfer and biological carbon pump. However, the effect of climate change such as warming on iron-limited phytoplankton is poorly investigated. This study investigated that the effect of higher temperature (+ 4–5°C relative to controls) and iron addition on the growth dynamics of phytoplankton communities in the subarctic Pacific. Two experiments were conducted during summer in 2014 aboard R/V *Mirai* (MR14W: 47°N, 160°E; MR14E: 47°N, 148°W) and another one experiment was conducted during late winter in 2015 aboard R/V *Hakuho-Maru* (KH15: 42°N, 146°E). The addition of iron enhanced the specific growth rate of larger phytoplankton groups in all three experiments whereas smaller phytoplankton groups were rarely affected. In MR14W and KH15 experiments, higher temperature enhanced the growth of phytoplankton in both unamended controls and iron-added treatments. The magnitude of growth enhancement by the temperature increases was larger in smaller phytoplankton groups relative to the larger groups in the KH15 experiment. According to the relative growth rate analysis (between higher temperature (+ 4–5°C) treatment to control temperature under each iron conditions, and between iron-added to non-iron-added treatment under each temperature conditions), we found that the summer phytoplankton communities were iron-limited rather than temperature-limited whereas late winter phytoplankton community was temperature-limited rather than iron-limited. Our results suggest that the temperature conditions could modify the dynamics of iron-limited phytoplankton communities, especially for the low-temperature conditions. In addition, future global warming may enhance the growth of phytoplankton even in the iron-limited open ocean. Given the higher temperature could enhance the growth of smaller phytoplankton groups relative to the larger ones as observed in the KH15 experiment, not only climate change but also seasonal warming from winter to summer may play a key role in the dynamics of community composition in the ocean.

キーワード：温暖化、植物プランクトン、亜寒帯北太平洋

Keywords: Global warming, phytoplankton, subarctic Pacific Ocean

## 春季親潮・沿岸親潮水の光学的性質と海色クロロフィルa濃度推定への影響

### Effect of optical properties variability on retrieval of chlorophyll a from ocean color data in Oyashio and coastal Oyashio waters in early spring

\*平譚 享<sup>1</sup>、和賀 久朋<sup>2</sup>、金子 拓郎<sup>2</sup>、鈴木 光次<sup>3</sup>、山下 洋平<sup>3</sup>、西岡 純<sup>4</sup>

\*Toru Hirawake<sup>1</sup>, Hisatomo Waga<sup>2</sup>, Takuro Kaneko<sup>2</sup>, Koji Suzuki<sup>3</sup>, Youhei Yamashita<sup>3</sup>, Jun Nishioka<sup>4</sup>

1. 北海道大学大学院水産科学研究院、2. 北海道大学大学院水産科学院、3. 北海道大学大学院地球環境科学研究院、4. 北海道大学低温科学研究所

1. Faculty of Fisheries Sciences, Hokkaido University, 2. Graduate school of Fisheries Sciences, Hokkaido University, 3. Faculty of Environmental Earth Science, Hokkaido University, 4. Institute of Low Temperature Science, Hokkaido University

釧路沖の親潮域・沿岸親潮域では、春季に大規模な植物プランクトンブルームが発生し、海色衛星によっても高いクロロフィルa (chl.a)濃度が観測される。この海域の海色chl.a濃度は、実測値の+/-35%の範囲に収まるという報告がある一方、春季には十勝川河川水が河口域に光学的性質に影響を与えると示唆されている。しかしながら、この海域における春季の光学的性質の詳細は良くわかっていない。そこで本研究では、2015年3月に白鳳丸により、リモートセンシング反射率( $R_{rs}$ )、吸収係数、後方散乱係数( $b_{bp}$ )およびchl.a濃度を測定し、光学的性質と海色chl.a濃度推定への影響について調べた。

3月10日から13日の低気圧通過に伴い、沿岸付近は数日間懸濁し、植物プランクトン以外の吸収係数( $a_d$ )は粒子の吸収係数( $a_p$ )の60%以上を占め、 $b_{bp}$ も他の観測点の2-7倍高かった。また一部の観測点では有色溶存有機物質(CDOM)の吸収係数( $a_{CDOM}$ )もやや高かった。それらの影響により、低気圧通過後の沿岸付近では $R_{rs}$ が極めて高く、海色Chl.aアルゴリズムを適用した場合、2-3倍chl.aを過大評価した。しかしながら、3月20日には $a_d$ の比率と $b_{bp}$ は減少し、海色chl.aアルゴリズムによる推定値と良く適合した。

443 nmにおける植物プランクトンの吸収係数( $a_{ph}(443)$ )および $b_{bp}(555)$ は、それぞれchl.a濃度および $a_d(443)$ と直線関係にあった。これらの関係を海色データに適用したところ、海色chl.a画像に見られた沖合のやや高いchl.a濃度は、 $a_d$ および $a_{CDOM}$ の影響を受けており、懸濁物やCDOMが沖合まで輸送されていることが示唆された。

以上より、本海域における光学的性質の時空間変化は沖合でも大きく複雑であるため、標準の海色chl.a濃度よりも $a_{ph}$ などの海水固有の光学的性質を利用したchl.a濃度推定が望ましいと考えられる。

キーワード：光学的性質、海色リモートセンシング、親潮

Keywords: optical property, ocean color remote sensing, Oyashio

## 西部北太平洋亜寒帯域における基礎生産量の季節性の経年変動 Interannual variation of seasonality of primary production in the subarctic region of western North Pacific

\*金子 拓郎<sup>1</sup>、平譚 享<sup>2</sup>、西岡 純<sup>3</sup>

\*Takuro Kaneko<sup>1</sup>, Toru Hirawake<sup>2</sup>, Jun Nishioka<sup>3</sup>

1. 北海道大学大学院水産科学院、2. 北海道大学大学院水産科学研究所、3. 北海道大学低温科学研究所

1. Graduate school of Fisheries Sciences, Hokkaido University, 2. Faculty of Fisheries Sciences, Hokkaido University, 3. Institute of Low Temperature Science, Hokkaido University

西部北太平洋亜寒帯域は植物プランクトンにより鉄が消費されると、栄養塩や光が豊富に存在しても基礎生産が制限されるHigh Nutrient Low Chlorophyll (HNLC) 海域となる。千島列島海峡部における潮汐流と複雑な海底地形によって発生した内部波は強い鉛直混合を引き起こし、高い鉄濃度の中層水を表層にもたらし得ることが示唆されているため、物理・化学的な側面から海洋の鉛直混合の研究が行われている。現在、鉛直混合過程や海洋中の鉄を含む栄養物質の循環について研究が推進されている。もし、継続的な鉛直混合が鉄を含んだ中層水を表層に供給するならば、ブルーム以後の夏や秋も基礎生産が維持されていると考えられるが、鉛直混合がもたらす栄養物質と生物生産との関係については不明な点が多い。衛星リモートセンシングは各季節における基礎生産量の時間変化を観測できるため、栄養物質含量に対する基礎生産の応答を推察することが可能である。また、そのためには基礎生産量変動の季節性を定義することが必要である。

そこで本研究では、基礎生産量変動の季節性を表す指標を定義し、その類似性から海洋を区分した。また、季節ごとに基礎生産量の経年変動の要因を明らかにすることを目的とした。

2003年から2015年の13年間にMODIS/Aquaで取得された、リモートセンシング反射率と光合成有効放射照度を利用した（空間解像度9 km、8日平均）。リモートセンシング反射率から植物プランクトンの光吸収係数をQAA（半経験的アルゴリズム）で求め、光吸収ベースの基礎生産量推定アルゴリズム(Absorption-Based Production Model)で基礎生産量を算出し、各年の同一週における基礎生産量の対数平均値を気候値とした。海氷密度は2003年から2010年の8年間にAMSR-E/Aquaで取得された、空間解像度12km、1日平均のデータを利用した。また、2003年から2012年の10年間にAVHRR/NOAAで取得された、空間解像度4km、1日平均の海表面水温も利用した。さらに、NCEPが提供する2003年から2015年の13年間の純熱フラックスの再解析データ（空間解像度1度、1月平均）を利用した。気候変動指数として、ワシントン大学が提供する2002年1月から2015年12月のPDO (Pacific Decadal Oscillation) 指数を取得し、年平均値を算出して利用した。

基礎生産量の気候値に対してクラスター解析 (K平均法) を適用し、基礎生産量の時間変動を12のクラスに分類した。そして、クラス毎に基礎生産量の2回のピークを抽出し、1期: 1回目のピークの期間（ピーク幅）、2期: 1回目のピーク後から2回目のピーク前までの期間、3期: 2回目のピークの期間とした。

オホーツク海の北岸と西岸、およびカムチャッカ半島北部の東岸は春以降海氷に覆われていたが、海氷融解直後にピークが見られた。カムチャッカ半島南部の東西においては春と秋の2回、同規模のピークが見られた。カムチャッカ半島先端部とアリューシャン列島付近では、2回目のピークが1回目のピークよりも大きかった。オホーツク海中央部と東部、ベーリング海西部と中央部、および親潮域は1回目のピークの方が2回目のピークより大きかった。

いずれの領域においても冬期の熱フラックスが最小になり、SSTが最小になった後、1期の基礎生産量増加が始まっていたため、1期の時期は海洋の冷却と混合層の発達が収まったことに関連していると考えられる。各期間の変動を主成分分析したところ、いずれも第1モードの寄与率が70%以上であった。1期および2期における水温の平均値と熱フラックス量の経年変動は、PDO指数の経年変動と位相が逆であり、基礎生産量の積算値

の第1モードの経年変動とPDO指数との間には有意な相関関係があった。したがって、1期と2期つまり春から夏にかけての基礎生産量の経年変動に、気候変動が影響していると示唆された。

キーワード：基礎生産量、リモートセンシング、HNLC海域  
Keywords: Primary Production, Remote sensing, HNLC sea

# 親潮域におけるジメチルスルフォニオプロピオネート代謝細菌群の動態 Abundance and distribution of dimethylsulfoniopropionate-degrading bacteria in the Oyashio water off the coast of Hokkaido, northern Japan

崔 英順<sup>1,2</sup>、鈴木 翔太郎<sup>1</sup>、金子 亮<sup>1,3</sup>、黄 淑郡<sup>1</sup>、\*浜崎 恒二<sup>1</sup>

Yingshun Cui<sup>1,2</sup>, Shotaro Suzuki<sup>1</sup>, Ryo Kaneko<sup>1,3</sup>, Shu Kuan Wong<sup>1</sup>, \*Koji Hamasaki<sup>1</sup>

1. 東京大学大気海洋研究所、2. 韓国生命工学研究院、3. 岡山大学大学院環境生命科学研究科

1. Atmosphere and Ocean Research Institute, The University of Tokyo, 2. Korea Research Institute of Bioscience and Biotechnology, 3. Graduate School of Environmental and Life Science, Okayama University

海洋細菌群集は、植物プランクトンによって生成される有機硫黄化合物ジメチルスルフォニオプロピオネート(DMSP)の代謝分解や硫化ジメチル(DMS)への酵素変換を通じて、海洋表層の硫黄循環や大気への二次生成エアロゾル供給に影響を及ぼしている。また、DMSは様々な海産動物に対するシグナリング物質として作用することも報告されていることから、細菌群集によるDMS生成過程の解明は海洋生態系における生物間相互作用の理解という点からも重要と考えられる。現在、DMSPの細菌代謝については3つの主要経路が知られており、これらの代謝を行う細菌種の変動がDMS生成量の変動を左右していると考えられる。このうち、DMSPリアーゼによるDMSとアクリル酸への直接的開裂、アシルコエンザイムとの結合を経て3ヒドロキシプロピオン酸(3-HP)とDMSへ開裂する二次的変換はDMS生成ソースとなり、脱メチル化によりメチルメルカプトプロピオン酸(MMPA)やメチオニンに変換される経路はDMSPシンクとなる。そこで本研究では、DMSP代謝に関わる主要遺伝子のコピー数を指標として、様々な海域におけるDMSP代謝細菌群の分布と現存量を調べ、これらを規定する環境要因やDMS生成量との関係を明らかにすることを目的とした。本発表では、沿岸親潮域における春季ブルーム観測で得られた成果を中心に報告する。海水試料は、2015年3月のKH-15-1白鳳丸航海において、北海道東方沖17観測点、表層とクロロフィル極大層の2層から採集した。海水を孔径3.0と0.22  $\mu\text{m}$ のフィルターによって連続濾過し分析まで $-20^{\circ}\text{C}$ に保存した。フィルターからDNAを抽出し、リアルタイムPCR法を用いてDMSPリアーゼ遺伝子の*dddP*と*dddD*、DMSP脱メチル化酵素遺伝子の*dmdA*、細菌数の指標として16S rRNA遺伝子のコピー数を定量した。*dmdA*は細菌種による配列の違いがあるため、7タイプに分けて定量した。また、16S rRNA遺伝子についてPCR増幅産物の配列解析も行い、各サンプルの細菌群集構造を決定した。解析の結果、*dddP*と*dddD*に加えて、7タイプの*dmdA*のうちC/2およびD/1クレードの2タイプが調査海域の主要なDMSP代謝遺伝子として検出された。沖合の親潮域では、ほとんどの観測点で*dmdA*のコピー数が、*dddP*あるいは*dddD*より多いのに対して、岸に近い沿岸親潮域では*dddP*あるいは*dddD*のコピー数が、*dmdA*より多い傾向にあった。今回検出された*dmdA*のコピー数は約 $10^3$ - $10^4$  copies/mlで、既往研究や我々が太平洋熱帯・亜熱帯域、東北沖で行った同様の解析で得た値(約 $10^4$ - $10^5$  copies/ml)と比べて一桁以上少ない値であった。主に検出された*dmdA* C/2およびD/1クレードは、海洋で最も優占する*Pelagibacter* (SAR11) グループのうちそれぞれ1bおよび1aサブクレードが持つ遺伝子であることから、本調査海域にはこれらの細菌グループの割合が比較的少なかったと考えられる。一方、DMSPリアーゼ遺伝子の*dddP*と*dddD*については、既往研究では*dddP*が海洋における主要なDMS生成遺伝子とされてきたが、本研究によって*dddD*が主要な海域もあることが示された。東北沖の観測でも同様の傾向が見られており、*dddD*をDMSPリアーゼ遺伝子として持つ細菌が特に多いことが親潮域の特徴と考えられる。さらに、今回得られた*dddD*のシーケンスを行い、既往の配列と系統解析を行った結果、*Gammaproteobacteria*綱の*Porticoccus*属(SAR92)の*dddD*に近縁であることが示された。以上本研究によって、沿岸親潮域や親潮域では既往研究とは異なるDMSP代謝細菌の群集構造が見られることが分かった。今後、これらの結果と同時にを行ったDMSP及びDMS濃度測定の結果を比較することにより、本調査海域において見られたDMSPリアーゼ遺伝子のタイプの違いやDMSP脱メチル化酵素遺伝子が他の海域に比べて少ないことが、DMSPの消長やDMS生成にどのように影響するのかを明らかにすることが期待される。

キーワード：親潮、ジメチルスルフォニオプロピオネート、細菌

Keywords: Oyashio, DMSP, Bacteria

## 春季親潮域における揮発性有機化合物の海洋および大気観測 Marine and atmospheric observations of volatile organic compounds during early spring in the Oyashio region

\*大森 裕子<sup>1</sup>、谷本 浩志<sup>2</sup>、猪俣 敏<sup>2</sup>、岡本 祥子<sup>2</sup>、宮崎 雄三<sup>3</sup>、西岡 純<sup>3</sup>

\*Yuko Omori<sup>1</sup>, Hiroshi Tanimoto<sup>2</sup>, Satoshi Inomata<sup>2</sup>, Sachiko Okamoto<sup>2</sup>, Yuzo Miyazaki<sup>3</sup>, Jun Nishioka<sup>3</sup>

1. 筑波大学、2. 国立環境研究所、3. 北海道大学

1. University of Tsukuba, 2. National Institute for Environmental Studies, 3. Hokkaido University

A variety of volatile organic compounds (VOCs), including dimethylsulfide (DMS), isoprene and acetone, are emitted from the ocean to the atmosphere, and have strong influence on photochemical oxidation and aerosol formation. Since these marine VOCs are originated from microbial metabolisms of phytoplankton and bacteria, the VOC concentrations in seawater show seasonal and latitudinal variations associated with microbial activity and taxonomy as well as ocean physics. However, it has been largely unknown whether the variations of VOCs in seawater due to microbial activity affect the variations and distributions of VOCs in the air.

In order to examine the linkage between biological activities and VOCs dynamics both in the ocean and atmosphere, we made observations of spatial and temporal variations of VOCs during KH-15-1 cruise by R/V *Hakuho Maru* on March 2015 in the Oyashio region, western subarctic Pacific. The VOCs concentrations in the surface seawater and the overlying atmosphere were continuously measured by Proton Transfer Reaction-Mass Spectrometry during the cruise.

Phytoplankton (measured as Chl. *a* concentrations) gradually increased from the beginning to end of March. This seems a sign of springtime phytoplankton bloom in the Oyashio region. With the increase in Chl. *a*, the concentrations of several microbiologically produced VOCs (i.e., DMS, methanethiol, acetone, isoprene, acetaldehyde and propene) in the surface seawater increased. The VOCs concentrations in the air did not show clear increase except for DMS. The DMS concentration in the air showed positive correlation with that in the seawater, suggesting that marine organisms (i.e., phytoplankton) contributed to the increase of DMS concentrations in the air.

キーワード：揮発性有機化合物、親潮域、海洋-大気間フラックス

Keywords: volatile organic compounds, Oyashio region, Sea-Air flux

## 春季植物プランクトン増殖における大気有機エアロゾルと海洋表層水とのリンケージ

### Linkages between atmospheric organic aerosols and surface seawater during phytoplankton blooms in spring

\*宮崎 雄三<sup>1</sup>、持田 陸宏<sup>2</sup>、川名 華織<sup>1,2,3</sup>、立花 英里<sup>1</sup>、鏡味 沙良<sup>2</sup>、大森 裕子<sup>4,5</sup>、谷本 浩志<sup>4</sup>、山下 洋平<sup>6</sup>、鈴木 光次<sup>6</sup>、西岡 純<sup>1</sup>

\*Yuzo Miyazaki<sup>1</sup>, Michihiro Mochida<sup>2</sup>, Kaori Kawana<sup>1,2,3</sup>, Eri Tachibana<sup>1</sup>, Sara Kagami<sup>2</sup>, Yuko Omori<sup>4,5</sup>, Hiroshi Tanimoto<sup>4</sup>, Youhei Yamashita<sup>6</sup>, Koji Suzuki<sup>6</sup>, Jun Nishioka<sup>1</sup>

1. 北海道大学低温科学研究所、2. 名古屋大学、3. 東京大学、4. 国立環境研究所、5. 筑波大学、6. 北海道大学大学院地球環境

1. Institute of Low Temperature Science, Hokkaido Univ., 2. Nagoya Univ., 3. Univ. of Tokyo, 4. National Institute for Environmental Studies, 5. Univ. of Tsukuba, 6. Graduate School of Env. Sci., Hokkaido Univ.

海洋表層微生物を起源とする大気エアロゾルの生成・成長は、雲粒生成等を通して地球の放射収支や生物地球化学的な物質循環に影響を与える。海洋大気エアロゾルについては硫酸塩の他に、植物プランクトンや溶存有機物など海洋微生物に由来する有機物が多く存在することが近年の研究で明らかになっている。現在の気候モデルでは、一般に海洋大気の大気有機エアロゾル量を表層海水中のクロロフィルa濃度と海洋表面風速の関数として表現している。しかしながら、海洋大気エアロゾル中の有機物量はクロロフィルaだけでは再現できないことが洋上現場観測の結果から示唆されており、海洋大気有機エアロゾルの起源や生成を制御する因子（海洋表層微生物の種類・量・活動度など）やその雲粒生成能については、理解が極めて不十分である。海洋表面から大気に放出される有機エアロゾル量は海水における粒子態・溶存態などの形態や微生物の種類・活動度を反映すると予測されるが、表層海水中の有機物と直接関連付けた大気エアロゾルのデータは極めて限られており、気候モデル等で海洋大気の大気有機エアロゾル生成量を正確に表現するには至っていない。

本研究は2015年3月6日-26日（春季植物プランクトン増殖前）の親潮・沿岸親潮における学術研究船白鳳丸を用いた観測研究（KH15-1）において、表層海水中の微生物とその代謝物による有機物の変動を包括的かつ系統的に捉え、大気中の有機物と直接比較することで、有機エアロゾル生成に対する海洋表層の微生物活動の寄与を明らかにすることを目的とした。粒径別に取得したエアロゾルサンプルの組成分析結果から、サブミクロン粒子の平均質量割合は有機炭素が最も多い（~40%）ことが明らかになり、水溶性有機炭素

（WSOC）の安定炭素同位体比（ $\delta^{13}\text{C}_{\text{WSOC}}$ ）の測定結果から、エアロゾル有機物の大部分が海洋表層水の溶存態有機炭素（DOC）および粒子態有機炭素（POC）に起因することが示唆された。本発表では研究航海における大気観測の概要紹介とともに、海洋表層起源の有機物の質量割合が支配的なサブミクロン粒子について（1）三次元蛍光分析による海洋表層起源WSOCの特徴づけと表層海水中のDOCとの比較、（2）珪藻ブルームの発達過程に伴うPOCとの関係等について議論する。

キーワード：大気有機エアロゾル、植物プランクトンブルーム、大気-海洋間地球化学

Keywords: Atmospheric organic aerosols, Phytoplankton bloom, Biogeochemical linkage between atmosphere and ocean

# 春季の北部北太平洋における海洋エアロゾルの粒径分布および雲凝結核活性

## Number-size distribution and cloud condensation nuclei (CCN) activity of marine aerosol over the northern North Pacific in spring

\*川名 華織<sup>1,2</sup>、持田 陸宏<sup>1</sup>、宮崎 雄三<sup>3</sup>、鏡味 沙良<sup>1</sup>

\*Kaori Kawana<sup>1,2</sup>, Michihiro Mochida<sup>1</sup>, Yuzo Miyazaki<sup>3</sup>, Sara Kagami<sup>1</sup>

1. 名古屋大学大学院環境学研究科、2. 東京大学大学院総合文化研究科、3. 北海道大学低温科学研究所

1. Graduate School of Environmental Studies, Nagoya University, 2. Graduate School of Arts and Sciences, the University of Tokyo, 3. Institute of Low Temperature Science, Hokkaido University

大気中のエアロゾルは太陽放射を吸収・散乱する事によって直接的に、また雲凝結核 (CCN) として作用し雲形成に関与することによって間接的に気候に影響する。雲の形成を通じたエアロゾルの放射影響の見積もりは不確実性が高く、大気エアロゾルに含まれるCCNの特徴の解明は、全球の気候を考える上で重要である。海洋域におけるエアロゾルの発生源としては、海水の飛沫としての一次放出や揮発性気体に由来する二次生成が考えられる。春季には海洋生物活動の活発化にともなう海洋生物起源有機物を含む一次・二次粒子の生成放出がエアロゾルやCCNの数濃度の特徴に関与している可能性がある。本研究では、春季の北部北太平洋において大気エアロゾルの船舶観測を行い、大気エアロゾルの数濃度と粒径分布、CCNの数濃度とその活性度を調べた。

大気観測は2015年3月6日から26日までの21日間、研究船白鳳丸で実施された。甲板に設置されたサイクロン (50%カットオフ径: 2.5 マイクロメートル) を通じてエアロゾル粒子を研究室内の測定装置に取り込み、走査式モビリティパーティクルサイザを用いて5分ごとにエアロゾル粒径分布を測定した。また、走査式モビリティCCN分析システムを用い、20分ごとに3つの過飽和度 (0.1%, 0.2%, 0.6% SS) を切り替えて、1時間ごとに3つの過飽和度における粒径別のエアロゾル粒子数に占めるCCNの個数割合 (CCN効率スペクトル) を測定した。

エアロゾルの個数粒径分布は平均的に二山分布を示し、その特徴から、観測されたエアロゾルは粒子個数濃度が低く累積モード (粒径100 nm以上) に極大をもつもの、粒子個数濃度が高くエイトケンモード (粒径100 nm以下) に極大をもつもの、エイトケン・累積モード共に極大をもつものに分類された。後方流跡線解析による空気塊の経路の解析により、清浄な海洋エアロゾルの存在に加えて、陸域からの輸送が粒径分布に影響している可能性が示された。CCN効率スペクトルから算出された吸湿性パラメータは、無機塩を豊富に含む清浄な海洋大気エアロゾルの文献値よりも低く、陸域より流入した、あるいは海洋からの有機物の存在がエアロゾル粒子のCCN活性を低下させた可能性が示唆された。一方、エアロゾル粒子およびCCNの数濃度は、清浄な海洋大気エアロゾルの文献値よりも高い期間が多い。これらのデータは、今後、CCN数濃度に対する生物起源有機物の寄与や、この濃度に対する物理的因子 (粒径分布、個数濃度) ・化学的因子 (化学組成、吸湿性) の寄与を調べる上で役立つと期待される。

## 太平洋南北縦断観測で得られた海洋大気エアロゾルの粒径分布と雲凝結核能

### Size distributions and CCN activities of marine aerosols obtained in the longitudinal observation over the Pacific Ocean

\*岩本 洋子<sup>1</sup>、三木 裕介<sup>2</sup>、横山 慎太郎<sup>2</sup>、三浦 和彦<sup>2</sup>、植松 光夫<sup>3</sup>、古谷 浩志<sup>4</sup>

\*Yoko Iwamoto<sup>1</sup>, Yusuke Miki<sup>2</sup>, Shintaro Yokoyama<sup>2</sup>, Kazuhiko Miura<sup>2</sup>, Mitsuo Uematsu<sup>3</sup>, Hiroshi Furutani<sup>4</sup>

1. 広島大学 生物圏科学研究科、2. 東京理科大学大学院 物理学専攻、3. 東京大学 大気海洋研究所、4. 大阪大学 科学機器リノベーション・工作支援センター

1. Graduate School of Biosphere Science, Hiroshima University, 2. Graduate School of Science, Tokyo University of Science, 3. Atmosphere and Ocean Research Institute, the University of Tokyo, 4. Center for Scientific Instrument Renovation and Manufacturing Support, Osaka University

Atmospheric aerosols play an important role in controlling radiative properties and lifetime of clouds by acting as cloud condensation nuclei (CCN). Given that the ocean covers about 70% of the Earth's surface, oceanic aerosols contribute significantly to the CCN budget in the marine environment. Marine particulate organics and precursor gases generated by marine biota may affect concentrations, size and chemical composition of the oceanic aerosols. Thus, it is important to understand the relationship between marine primary productivity and aerosol properties related to CCN activities over the open ocean. In this study, size distributions and CCN activities of aerosols over the Pacific Ocean are characterized, and factors controlling the spatial variation of the aerosol characteristics are discussed.

Atmospheric measurements were conducted during R/V Hakuho-maru KH-13-7 and leg 2 of KH-14-3 cruises. Ambient air was sampled continuously through the inlets via silicon tubing and then dried with a diffusion dryer. The dried air samples were introduced to a scanning mobility particle sizer to measure number size distributions of the ambient aerosols. CCN concentrations were measured with a continuous flow thermal gradient CCN counter during the leg 2 of KH-14-3. Concentrations of atmospheric trace gases (O<sub>3</sub> and CO) and radon daughters, those can be tracers for land-origin and/or anthropogenic air masses, were also measured continuously along the cruise tracks.

The aerosol number concentrations varied from <math><100</math> to <math>3000\text{ cm}^{-3}</math> and the spatial variations could not be explained only by the transport of land-origin air masses. This result suggests that it is necessary to consider the supply of marine origin material to the atmosphere. The aerosol number size distributions showed bimodal with a gap around 100 nm in diameter, which is characteristic of clean maritime air, in most of the oceanic region. The Aitken mode (diameter less than 100 nm) contributed greatly to the number of aerosols in the regions where the influence of land-origin air masses were small, indicating that the regions were suitable for the condensation and growth of fresh particles. Actually, a few typical events of new particle formation were observed in the South Pacific. In the arctic region, a spontaneous enhancement of aerosols with diameter around 100 nm was observed. Because there were not major anthropogenic sources of pollutants around the arctic region, the enhanced particles might be come from biogenic sources. Analysis based on CCN activation ratio suggests that these increased fine particles were rich in organics.

