

— 総 説 —

熱帯・亜熱帯貧栄養海域における新生産の評価*

塩崎 拓平[†]・武田 重信[†]・古谷 研[†]

要 旨

熱帯・亜熱帯貧栄養海域は全海洋の約6割を占め、その広大さのため同海域の新生産を把握することは海洋の物質循環を考える上で重要である。同海域の新生産を駆動する窒素源は、系外からの硝酸塩供給、窒素固定、大気からの窒素化合物降下の大きく3つに分けられる。このうち硝酸塩起源の新生産は、冬季混合層以浅の硝化によって過大評価される可能性が近年指摘されるようになってきた。本稿では熱帯・亜熱帯貧栄養海域の新生産に関わる過程について整理し、そこから見えてきた今後の新生産研究の課題を提示することを目的とした。熱帯・亜熱帯貧栄養海域の有光層内への窒素供給には、従来考えられていた渦拡散による硝酸塩供給に加えて、時空間スケールの異なる複数の過程が寄与している。そのため、同海域の新生産量を把握するためには、各過程の時空間変動に見合った観測データの蓄積が重要である。

キーワード：新生産，硝酸塩供給，窒素固定，大気由来の窒素，硝化

1. はじめに

海洋基礎生産はその栄養塩供給源の違いにより、大きく新生産と再生産に分けられる (Dugdale and Goring, 1967)。海洋学における栄養塩とは窒素、リン、珪素の3つの元素の無機塩を指すが、Dugdale and Goring (1967) は窒素の動態により新生産と再生産を定義している。これは、窒素が植物プランクトン細胞の主要な構成成分であり、また炭素やリンとの組成比がほぼ一定かつ大部分の海洋で基礎生産を律速している、という考えからきており、本論文でもその考えに従う。すなわち新生産は系外から供給される窒素源によって起こる生産であり、再生産は系内で循環している窒素源によって起こる生産であると定義される。こ

こで系とは基礎生産過程に関与する生態系のことを指す。系内外への物質の輸送量を考える場合には、新生産は系内で正味に起こる生産であることから、基礎生産量そのものよりも重要である。Eppley and Peterson (1979) は、定常状態では新生産は移出生産とバランスするとし、正味の海洋における二酸化炭素吸収量となると考えている。

1980年代前半まで、外洋域、特に貧栄養外洋域における新生産の窒素源は、冬季に鉛直混合する海域を除くと、有光層下部から渦拡散によって供給される硝酸塩が主であると考えられてきた。McCarthy and Carpenter (1983) は、定常状態を仮定すると、渦拡散による硝酸の供給以外の窒素源(窒素固定、大気からの窒素化合物供給)は、渦拡散による硝酸の供給の1%以下であり、ほとんど無視できると試算していた。しかしながらその同時期及びそれ以降、地球化学的手法で新生産を見積もると、貧栄養海域の新生産の窒素源は渦拡散による

* 2008年12月10日受理；2009年3月24日受理

著作権：日本海洋学会，2009

[†] 東京大学大学院農学生命科学研究科

〒113-8657 東京都文京区弥生 1-1-1

e-mail address : ashio@mail.ecc.u-tokyo.ac.jp

硝酸の供給過程だけでは説明つかないことが指摘されるようになった (Jenkins, 1982; Jenkins and Goldman, 1985; Jenkins, 1988; Emerson *et al.*, 1997)。Jenkins (1988) はサルガッソー海において混合層内の ^3He のアノマリーから下層から有光層への硝酸塩供給速度を見積もり、渦拡散によって見積もられる供給速度 ($0.01\text{--}0.05 \text{ mol N m}^{-2} \text{ y}^{-1}$) よりも一桁以上 ($0.6\pm 0.2 \text{ mol N m}^{-2} \text{ y}^{-1}$) 大きくなることを示し、渦拡散以外の硝酸塩供給過程が存在した可能性を示唆している。

近年、地球化学的手法による見積もりや新しい観測技術の開発、時空間的に密な観測によって、貧栄養海域の新生産の窒素源として考えられる各プロセス (硝酸塩供給、窒素固定、大気由来の窒素) の再評価が行われるようになってきた (例えば; Michaels *et al.*, 1993; Gruber and Sarmiento, 1997; Lipschultz *et al.*, 2002)。また硝酸塩起源の新生産の過大評価につながるとされる有光層付近の硝化についても、その寄与が無視できないことが指摘されるようになった (例えば; Ward *et al.*, 1989; Dore and Karl, 1996; Martin and Pondaven, 2006; Yool *et al.*, 2007; Clark *et al.*, 2008)。このように、プロセスそれぞれで再評価及び新生産における役割が論じられ、その結果、各プロセスの新生産における役割についての見解が変化してきた。本稿では新生産に関わるプロセスの現在の知見についてまとめ、そこから見えてきた今後の研究課題を提示する。

2. 系外からの硝酸塩供給

窒素ガスを除くと、硝酸塩は他の窒素の化学形態に比べて海水中において最も安定で、最も多く存在する (Wada and Hattori, 1991)。下層から系内へ供給される無機態窒素はそのほとんどが硝酸塩であり、そのため硝酸塩を用いた生産は新生産とみなされ、Dugdale and Goering (1967) は $^{15}\text{NO}_3^-$ の取り込み速度から、下層からの硝酸塩供給による新生産を見積もることができるとした。1988年から2003年までIGBPのコアプロジェクトの一つとして実施された全球海洋フラックス合同研究計画 (JGOFS: Joint Global Ocean Flux Study) においても、 $^{15}\text{NO}_3^-$ の取り込み速度によって硝酸塩起源の新生産を見積もることが標準プロトコルとして採

用された (Knap *et al.*, 1993)。しかしながら $^{15}\text{NO}_3^-$ を用いた新生産の見積もりには次のような問題がある (例えば; Allen *et al.*, 1996; Falkowski *et al.*, 2003)。
 ①貧栄養海域では環境中の硝酸塩濃度が非常に低いため、培養実験で添加する $^{15}\text{NO}_3^-$ 量は取り込み速度を促進してしまい過大評価となる。
 ②有光層内に存在する硝酸塩の一部が硝化過程によって生じた場合、再生産が含まれることになるので硝酸塩取り込み速度は新生産にはならない。さらに培養中に硝化が行われていると、培養時間が長い場合、硝化過程によって生じた硝酸塩によって硝酸塩中の ^{15}N 比が低くなる、すなわち同位体希釈が起こる可能性がある。
 ③培養中に取り込んだ $^{15}\text{NO}_3^-$ が DO^{15}N として排出される。①については濃度段階を変えた硝酸塩を添加し、その取り込みを Michaelis-Menten の式に当てはめる、いわゆる kinetics 実験による解決法が提案されている (Harrison *et al.*, 1996; Kanda *et al.*, 2003)。②についての詳細は5節で述べるが、近年、冬季混合層以浅で起こる硝化が有光層の硝酸塩濃度に大きく影響していることが明らかになり (例えば; Ward *et al.*, 1989; Dore and Karl, 1996; Martin and Pondaven, 2006; Yool *et al.*, 2007; Clark *et al.*, 2008)、硝酸塩取り込み速度によって新生産を見積もる際、硝化過程を補正する必要があると考えられるようになってきている。③については培養中に取り込まれた $^{15}\text{NO}_3^-$ の大部分が DO^{15}N として排出されることが知られている (例えば; Bronk *et al.*, 1994; Ward and Bronk, 2001; Bronk, 2002)。Bronk *et al.* (1994) は実際に培養中に取り込まれた硝酸塩の総取り込み速度 (gross uptake rate) から DON の排出速度を差し引いたものを純取り込み速度 (net uptake rate) と呼び、硝酸塩取り込み速度は純取り込み速度を測定していることを示した。Ward and Bronk (2001) は南カリフォルニア湾において3時間の培養で取り込んだ硝酸塩の3%からほぼ100%がDONとして排出されたと報告している。以上の問題を考慮すると、 $^{15}\text{NO}_3^-$ の取り込み速度は新生産を見積もっていることにはならないという見解が現在のところ一般的になっている (例えば; Rees *et al.*, 2006; Kanda, 2008)。

系外からの硝酸塩供給は一般的に有光層への硝酸塩供給と解釈されている (Williams and Follows, 2003)。

しかしながら系の境界となる層の設定深度によっては硝化の影響が無視できないことが、近年、Martin and Pondaven (2006) によって指摘された (詳細は 5 節で述べる)。そのため有光層に供給される硝酸塩がすべて新生産の窒素源になるとは限らない可能性がでてきているが、この節では境界層の議論は行わず、現在報告されている有光層への硝酸塩供給過程についてまとめるにとどめる。また流量の大きな河川では栄養塩供給が沖合にまでおよび、外洋域の基礎生産が高くなることが知られており (例えば; Subramaniam *et al.*, 2008; Isobe and Matsuno, 2008), 河川水の影響は外洋域に及ぶと考えられる。しかしながら、どの程度影響するかについては知見が乏しく、これからの研究課題となっていることから、本稿では貧栄養海域に議論を集中させ、河川からの窒素供給については触れない。

2.1. 渦拡散

1980年代前半までは、貧栄養海域における有光層への硝酸塩供給過程として、冬季に鉛直混合する海域を除くと、有光層下部からの渦拡散が主であると考えられていた (McCarthy and Carpenter, 1983)。定常状態を仮定すると渦拡散による硝酸塩供給速度 F は次式のように表すことができる。

$$F = K_z \frac{dNO_3^-}{dz} \quad (2.1)$$

K_z は渦拡散係数、 dNO_3^-/dz は硝酸塩の鉛直方向の濃度勾配である。これまでのところ K_z は化学トレーサー法、もしくは水平流速擾乱の鉛直シアアの計測から見積もることが一般的となっている。化学トレーサー法では、 SF_6 のように化学的に不活性でバックグランド濃度が低い物質を人為的に散布し、その拡散の程度から K_z を見積もる (Ledwell *et al.*, 1993; Watson and Ledwell, 2000)。Ledwell *et al.* (1993) は外洋域において初めて大規模で長期間にわたる SF_6 の散布実験を行った。その結果、 K_z は観測平均で $1.1 \pm 0.2 \times 10^{-5} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ となったと報告している。一方、鉛直シアアの計測には、一般に乱流微細構造観測装置が用いられるが (Lewis *et al.*, 1986; Lueck *et al.*, 2002; Wolk *et al.*, 2002)、ADCP による計測も試みられている (Planas *et*

al., 1999)。鉛直シアアから乱流エネルギー散逸率 ϵ が求められ、 K_z は ϵ とブラントパイサラ振動数 N から見積もられる (Eq. 2.2; Osborn, 1980; Matsuno *et al.*, 2006)。

$$K_z = 0.2 \frac{\epsilon}{N^2} \quad (2.2)$$

Lewis *et al.* (1986) は大西洋貧栄養海域における乱流微細構造観測装置を用いた繰り返し観測から 100–400 m までの K_z の平均は $3.7 \times 10^{-5} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ であり、そこから見積もられる硝酸塩供給量は $140 \mu\text{mol N m}^{-2} \text{ d}^{-1}$ であったと報告している。これまでの研究により、成層化した海域では一般に K_z は $10^{-5} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ のオーダーになると考えられている (Lewis *et al.*, 1986; Ledwell *et al.*, 1993; Capone *et al.*, 2005)。

2.2. 冬季混合

冬季混合は、冬季の風応力の増加及び冷却による水塊の浮力の低下によって起こる (Marshall and Schott, 1999)。亜熱帯域においては、夏季は強い成層のため下層からの栄養塩の供給は制限されているが、冬季は海水の冷却によって混合層深度が深くなり、下層から栄養塩が有光層に供給されることで、植物プランクトン現存量が増加することが古くから知られていた (Menzel and Ryther, 1960, 1961)。しかしながら、冬季混合によって引き起こされる新生産については 1990年代になるまであまり注目されていなかった。冬季混合による硝酸塩供給過程は、現在、ブルーム前後の酸素濃度の見かけの上昇 (Michaels *et al.*, 1994)、冬季混合期と夏季成層期との間の硝酸塩濃度の見かけの低下 (Michaels *et al.*, 1994; Wang *et al.*, 2006)、冬季混合期中の硝酸塩取り込み速度 (Lipschultz, 2001) 及び物理モデル (Williams *et al.*, 2000) によって見積もられている。物理モデルによる見積もりでは、冬季混合過程による硝酸塩の供給は、冬季混合層深度が深い極域に向かうにつれ大きくなり、北大西洋の熱帯域から極域では $0\text{--}1.4 \text{ mol N m}^{-2} \text{ y}^{-1}$ の範囲になると推定されている (Williams *et al.*, 2000)。

2.3. 海盆スケールのエクマン輸送

エクマン輸送とは風応力によって生じる水塊の移動のことを指す。海盆スケールで見ると、亜寒帯循環は低気圧渦であるため水塊は水平方向に発散し、湧昇して栄養塩躍層が浅くなる。一方、亜熱帯循環は高気圧渦であり収束循環になっている。亜熱帯循環内では鉛直的には密度躍層が深くなるとともに栄養塩躍層も深くなっており硝酸塩濃度が枯渇状態にあるが、その北辺では亜寒帯からの硝酸塩の水平輸送がある (Fig. 1)。このような硝酸塩供給過程に初めて着目したのは Williams and Follows (1998) である。彼らは、衛星で観測すると北大西洋亜熱帯域の北辺が中心部に比べて基礎生産が高いことを指摘し、この原因は亜寒帯から亜熱帯に流入する栄養塩の高い水が原因であるとした。彼らが物理モデルでこのエクマン輸送量を見積もったところ $0.03\text{--}0.06 \text{ mol N m}^{-2} \text{ y}^{-1}$ の硝酸塩が北大西洋亜熱帯域北辺に供給されていることがわかった。これは同海域の鉛直渦拡散による下層からの硝酸塩供給量 ($0.01\text{--}0.05 \text{ mol N m}^{-2} \text{ y}^{-1}$; Jenkins, 1988) と同等の供給量である。

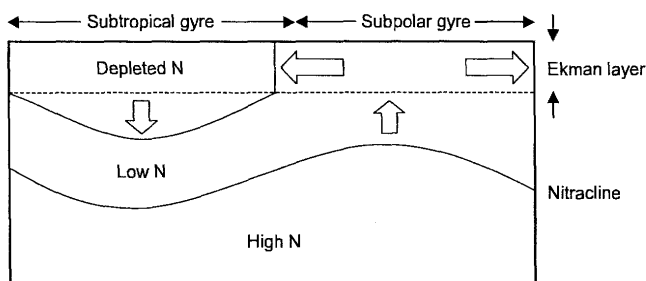


Fig. 1. Basin-scale Ekman volume flux modified from Fig. 2.9a of Williams and Follows (2003).

さらにエクマン輸送による硝酸塩供給過程としては赤道湧昇や沿岸湧昇、強風による鉛直混合及び湧昇があるが、本節では貧栄養海域を中心に議論を進めるため赤道湧昇や沿岸湧昇については触れない。強風による鉛直混合については次に述べる。

2.4. 強風による鉛直混合及び湧昇

風応力による鉛直混合及び湧昇に伴う硝酸塩の有光層への供給過程についてはこれまで認識されてはいたが (Eppley and Renger, 1988; Marra *et al.*, 1990), 非定常性の強い現象であったため観測が困難であり、定量化には問題があった。しかしながら、近年、衛星リモートセンシングによって、特にハリケーンのような熱帯低気圧通過後のクロロフィル *a* 量または基礎生産量の増加が観測されるようになり (例えば; Babin *et al.*, 2004; Walker *et al.*, 2005), 熱帯低気圧が海域の硝酸塩供給にどの程度寄与するのを見積もる試みが始まっている (例えば; Lin *et al.*, 2003; Siswanto *et al.*, 2007)。熱帯低気圧通過後の基礎生産量の増加には、熱帯低気圧の最大風速と通過速度 (Babin *et al.*, 2004), 及び浅海域の海底深度 (Siswanto *et al.*, 2007) に関係していることが示唆されている。Siswanto *et al.* (2007) は 1998 年から 2004 年までに東シナ海を通過した 13 の台風通過後の基礎生産力の増加量と上記 3 パラメータとの関係式を導き出し、それを用いて 1980 年から 2004 年までに東シナ海を通過した 70 の台風による基礎生産力の増加量とそこから推定される硝酸塩供給量の見積もりを行っている。彼らによると台風によって生じる硝酸塩供給は、夏季から秋にかけての植物プランクトンによる硝酸塩取り込み量の 0.4%–39.7% に相当する。

全球規模の 20 m s^{-1} 以上の風速の頻出海域について、近年、Sampe and Xie (2007) が QuikSCAT 衛星を用いた観測により明らかにしている。彼らは 1999–2006 年の 7 年間の風データの解析から、強風の頻出海域は亜寒帯では夏季と冬季とで著しく異なるが、熱帯・亜熱帯域の強風の出現頻度は、夏季のフィリピン海周辺海域 (2–3%) を除いて概ね低いこと (<1%) を報告している。西部北大西洋ではハリケーンが存在が知られているが、観測期間中の出現頻度が少なかったことから強風の頻出海域としては顕著にはならなかった。熱帯低気圧の発達には海水温が大きく影響している (Price *et al.*, 1981)。地球温暖化による海水温の上昇が熱帯低気圧の出現頻度及び強度を高める可能性があることが指摘されており (Emanuel, 2005; Elsner *et al.*, 2008), それに伴い熱帯低気圧による硝酸塩供給量も今後増す

可能性が考えられる。

2.5. 中規模渦

1980年代に地球化学的手法で見積もった新生産量と鉛直渦拡散による上方への硝酸塩供給量との間に大きな差が認められることが指摘されてから (Jenkins, 1982; Jenkins and Goldman, 1985; Jenkins, 1988), その差を補填する硝酸塩供給過程の一つとして中規模渦が注目された (例えば; Falkowski *et al.*, 1991; McGillicuddy and Robinson, 1997; McGillicuddy *et al.*, 1998; Oschlies and Garçon, 1998)。McGillicuddy *et al.* (1998) は中規模渦による硝酸塩の供給について次のような概念モデルを提案した。すなわち、渦によって硝酸塩躍層が有光層に引き上げられると、引き上げられた硝酸塩は正味の供給となり基礎生産に利用されるが、その渦に隣接するような形で硝酸塩躍層を引き下げる渦が生じ、そこでは生産が生じない、というものである。彼らはサルガッソー海において係留系を用いた中規模渦の観測を行い、そこから得られた栄養塩躍層の変位と Topex/Poseidon によって得られた海面高度の関係から中規模渦による硝酸塩供給速度を見積もったところ $0.19 \text{ mol N m}^{-2} \text{ y}^{-1}$ となり、中規模渦がサルガッソー海において硝酸塩供給源としての寄与が極めて高い可能性があることを示した。一方、中規模渦による硝酸塩供給量は全海洋で一様ではないと考えられている。Oschlies and Garçon (1998) は渦解像大循環モデルに生態系モデルと海面高度データを組み合わせた数値シミュレーション結果から、北大西洋において、渦運動エネルギーが海域によって異なることを示した。すなわち、ガルフストリームと北大西洋海流、メキシコ湾内、赤道域で高く、亜熱帯循環中心部及び東部北大西洋で低い。そして、それに伴い渦による硝酸塩供給量も、渦運動エネルギーが高い海域で高くなるが、亜熱帯循環中心部のような渦運動エネルギーが低い海域では $0.01 \text{ mol N m}^{-2} \text{ y}^{-1}$ 以下と極めて低くなることを示した。

中規模渦はその物理的特長から少なくとも3種類(低気圧渦, 高気圧渦, モード水渦)に分けられる (Fig. 2) (McGillicuddy *et al.*, 1999)。モード水渦は、高気圧渦と同様に主水温躍層が深く、北半球では右回りの

渦となり、海面高度も高い渦であるが、季節躍層が浅くなっており、そのためその存在によって基礎生産が促進されると考えられている。Siegel *et al.* (1999) は Topex/Poseidon と ERS (European Remote Sensing Satellite) を統合した海面高度データを用い、サルガッソー海における低気圧渦による硝酸塩供給量を $0.18 \text{ mol N m}^{-2} \text{ y}^{-1}$ と試算し、また同海域の定点観測点 BATS (以下, Sta. BATS) において得られた栄養塩及び物理データを用い、モード水渦による硝酸塩供給量を $0.06 \text{ mol N m}^{-2} \text{ y}^{-1}$ と試算している。

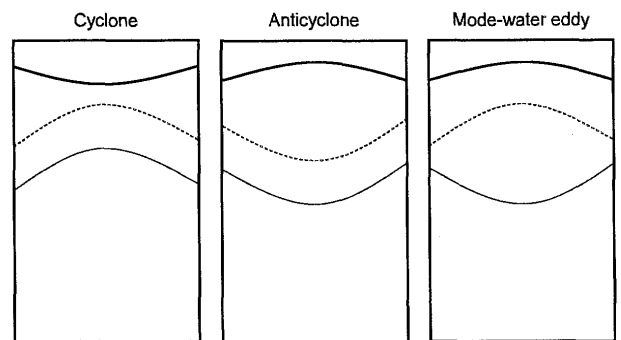


Fig. 2. Three types of mesoscale eddies modified from Fig. 4 of McGillicuddy *et al.* (1999). Bold-, dot-, and normal-line indicates the sea surface, the seasonal thermocline, and the main thermocline, respectively.

海面高度からの中規模渦による硝酸塩供給量の見積もりには、低気圧渦によって持ち上げられた高栄養塩水塊は100%の効率で消費されると仮定されている (McGillicuddy *et al.*, 1998; Siegel *et al.*, 1999)。しかし Martin and Pondaven (2003) は中規模渦の挙動について、波動のようにある点で水塊が一時的に上下するような線形の振る舞いをするもの (Siegel *et al.*, 1999) と、渦内部に同一の水塊が保持される非線形の振る舞いをするもの (Richardson, 1993) があることを指摘し、モデル実験により、線形挙動をする中規模渦による硝酸塩供給が必ずしも生産には結びつかないことを示した。そのため線形挙動をする中規模渦が存在すると海面高度データからの硝酸塩供給量の見積もりが過大評価となる可能性がある。

近年、中規模渦が引き起こす物理・光学環境の擾乱

とそれに伴うプランクトン群集の応答、中規模渦内の物質循環及び移出過程、微量元素及びガスの挙動を明らかにすることを目的に、大西洋 (EDDIES) 及び太平洋 (E-Flux) で大規模な観測プロジェクトが展開された (McGillicuddy *et al.*, 2007; Benitez-Nelson *et al.*, 2007; Benitez-Nelson and McGillicuddy, 2008)。その結果、EDDIES では低気圧渦とモード水渦の両方で植物プランクトンのブルームが観察されたが、それぞれの渦でプランクトン群集の応答が異なることが明らかになった。そしてこの原因が、風と渦との相互作用によって、低気圧渦ではブルームが弱化する方向に、モード水渦では強化する方向に物理場が変化するためであることが示された (McGillicuddy *et al.*, 2007)。また E-Flux では低気圧渦は基礎生産を高めるが、それによって生じた炭素や窒素は渦上層で再循環していることが明らかになり、低気圧渦による基礎生産の増加は必ずしも炭素及び窒素の下方への物質の輸送に結びつかないことが示された。しかしその一方で、低気圧渦によって生じる珪藻のブルームによって珪素は下方に輸送されることが示され、それに伴いブルーム発生から渦内の珪藻の現存量が次第に減少していくことが明らかになった (Benitez-Nelson *et al.*, 2007)。これらの結果は、中規模渦という現象の複雑性を示すものである。中規模渦による新生産の定量化のためには渦の種類や渦発生からの経過時間に注意を払う必要がある。

2.6. 珪藻マット

Rhizosolenia 属の大型珪藻が貧栄養海域でマット状 (*Rhizosolenia* マット) に凝集することは古くから知られていたが (Carpenter *et al.*, 1977), *Rhizosolenia* マットが有光層に硝酸塩を供給している可能性が示唆されたのは 1990 年代に入ってからである。Villareal *et al.* (1993) は東部北太平洋亜熱帯域に出現する *Rhizosolenia* マットについて、スキューバダイビングによる目視観察、細胞内硝酸塩濃度及び細胞内硝酸塩の同位体比測定を行い、沈降する細胞に比べて上昇する細胞内の硝酸塩濃度は有意に高く、その細胞内硝酸塩の $\delta^{15}\text{N}$ 値が下層の硝酸塩のそれに近かったことから、*Rhizosolenia* マットが下層から硝酸塩を有光層に供給している可能性を指摘した。このとき彼らが試算した *Rhizosolenia* マット

による硝酸塩供給量は $38.2 \mu\text{mol N m}^{-2} \text{d}^{-1}$ と渦拡散 ($140 \mu\text{mol N m}^{-2} \text{d}^{-1}$; Lewis *et al.*, 1986) より低く、極めてわずかであったが、近年 VPR (Video Plankton Recorder) による *Rhizosolenia* マット観測法によって、この硝酸塩供給量は上方修正されている (Villareal *et al.*, 1999)。Villareal *et al.* (1999) は、それまでのスキューバダイビングによる観測では観測深度の限界 (~20 m まで) や 1 cm 以下のマットの見落としがあったとしており、VPR による観測から *Rhizosolenia* マットによる硝酸塩供給量は最大で $171 \mu\text{mol N m}^{-2} \text{d}^{-1}$ であると報告している。

現在のところ、*Rhizosolenia* マットは東部北太平洋以外ではほとんど観測されていないが (Villareal *et al.*, 1999), サルガッソー海では *Rhizosolenia* 以外の藻類が硝酸塩を上方輸送していることも示唆されている (Villareal and Lipschultz, 1995)。また、*Rhizosolenia* を含む大型珪藻はフロント域で凝集しやすいことが知られており (Yoder *et al.*, 1994), 各大洋のフロント域の堆積物には大型珪藻の凝集物が確認されている (Kemp *et al.*, 2006)。以上を考慮すると、東部北太平洋以外にもこのような硝酸塩の上方輸送の過程が存在する可能性がある。

2.7. その他

上記以外にもいくつか硝酸塩供給過程が報告されている。Uz *et al.* (2001) 及び Cipollini *et al.* (2001) は衛星データの解析から、中規模渦 (~100 km) よりも大きいスケール (~1000 km) で高クロロフィル *a* 水塊が西進していることを見出し、その西進速度はロスビー波 (プラネタリー波) のそれに匹敵することを示した。この高クロロフィル *a* 水塊は中規模渦と同じメカニズム (McGillicuddy *et al.*, 1998) による 1,000 km スケールの硝酸塩の供給が原因である可能性がある (Uz *et al.*, 2001), この過程による硝酸塩供給量がどの程度であるのかについては不明である。

また、順圧潮流と陸棚外縁の海底地形構造との相互作用によって内部波が生じることが知られているが (Huthnance, 1989), その内部波の擾乱による硝酸塩供給が原因と見られるクロロフィル *a* 濃度の増加が陸棚外縁に

おいてしばしば観察されている (Holligan *et al.*, 1985; Sharples *et al.*, 2001, 2007)。Sharples *et al.* (2001) が北東部ニュージーランドの陸棚外縁で内部波による硝酸塩供給量を見積もったところ $12 \text{ mmol N m}^{-2} \text{ d}^{-1}$ となったと報告している。また Sharples *et al.* (2007) がケルト海において同様の方法で内部波による硝酸塩供給量を見積もったところ小潮時と大潮時で供給量が大きく異なり、それぞれ平均で 1.3, $3.5 \text{ mmol N m}^{-2} \text{ d}^{-1}$ となったと報告している。これらは渦拡散による硝酸塩供給量 ($140 \mu\text{mol N m}^{-2} \text{ d}^{-1}$; Lewis *et al.*, 1986) に比べて極めて高く、陸棚外縁域では無視できない過程である。

3. 窒素固定

窒素固定は水中に存在する窒素ガスを還元してアンモニアを合成する過程である。窒素ガスは窒素原子が 3 本の共有結合で結合しており、化学的に非常に安定で、窒素固定を行えるのは窒素ガス還元酵素 (ニトロゲナーゼ) を持つ一部の原核生物に限られる。古くから最もよく知られた海洋の窒素固定生物は *Trichodesmium* 属 (以下, *Trichodesmium*) のシアノバクテリアである。*Trichodesmium* は主に熱帯・亜熱帯の貧栄養海域に生息し (Carpenter and Romans, 1991; Capone *et al.*, 1997), しばしばブルームを形成することが知られている (例えば; Karl *et al.*, 1992)。また *Trichodesmium* より生物量は少ないが、同じく熱帯・亜熱帯の貧栄養海域において *Rhizosolenia* 属, *Hemiaulus* 属などの珪藻に共生する *Richelia intracellularis* (以下, *Richelia*) も窒素固定を行う (Mague *et al.*, 1974; Villareal, 1992)。

Trichodesmium のブルームから窒素固定活性が初めて検出されたのは 1960 年代の初頭であり (Dugdale *et al.*, 1961), 1980 年代まで、窒素固定は新生産としては寄与が小さいと考えられてきた (例; McCarthy and Carpenter, 1983)。しかし、1990 年代に入り、窒素固定量に大きな上方修正が加えられるようになった。Carpenter and Romans (1991) は過小評価していた原因として *Trichodesmium* の採取方法を挙げ、それまでの採取方法では *Trichodesmium* の大きなコロニーを見逃してしまっていた可能性を指摘した。また Lip-

schultz and Owens (1996) は、それまでに報告されているデータを基に大西洋における *Trichodesmium* による窒素固定速度を再計算した結果、それまで報告されていた大西洋全体の窒素固定量 ($0.94 \times 10^{11} \text{ mol N y}^{-1}$; Carpenter, 1983) より約 10 倍高い ($10.9 \times 10^{11} \text{ mol N y}^{-1}$) 可能性を指摘した。さらに Gruber and Sarmiento (1997) は硝酸塩とリン酸塩の存在比 (N^*) から大西洋における窒素固定量を試算し、Lipschultz and Owens (1996) が見積もった窒素固定量よりさらに約 2 倍高い値 ($20 \times 10^{11} \text{ mol N y}^{-1}$) を見積もっている。この Lipschultz and Owens (1996) と Gruber and Sarmiento (1997) の見積もりの差は、①Carpenter and Romans (1991) によって提案された *Trichodesmium* のネット採取法でも *Trichodesmium* を捕集し損ねている (Davis and McGillicuddy, 2006), ②近年発見されたピコ・ナノプランクトンサイズの窒素固定生物 (Zehr *et al.*, 2001) による寄与が大きい (Montoya *et al.*, 2004) ことが可能性として考えられる。Davis and McGillicuddy (2006) は同海域において VPR による *Trichodesmium* の現存量の観測を行い、そこから求めた窒素固定量が、海盆スケールの平均で、ネット採集によるものより 2.7-5.0 倍高いことを報告している。一方、Zehr *et al.* (2001) は北太平洋亜熱帯域の定点観測点 ALOHA (以下, Sta. ALOHA) において $0.2-10 \mu\text{m}$ のピコ・ナノプランクトンサイズの単細胞生物が、*nifH* で代表されるニトロゲナーゼ遺伝子を持ち、顕著な窒素固定活性を有する可能性を報告した。そして Montoya *et al.* (2004) はアラフラ海及び東部北太平洋の貧栄養海域において、ピコ・ナノプランクトンサイズの窒素固定生物が *Trichodesmium* に匹敵するか、もしくはそれ以上の窒素固定活性をもつことを示している。ピコ・ナノプランクトンサイズの窒素固定生物の生理生態ははまだ未知の部分が多いが、窒素固定の制限要素とそこから推測される窒素固定生物の分布及び窒素固定活性は、主に *Trichodesmium* を中心とした研究から徐々に明らかになりつつある。ここでは窒素固定の制限要素について最近の知見をまとめる。

3.1. 窒素固定の制限要素

3.1.1. 鉄

鉄は二トログエナーゼを構成する主要金属の一つであり、そのため窒素固定を行うためには他の窒素源を用いるよりも過剰に鉄が必要となる (Raven, 1988; Kustka *et al.*, 2002, 2003)。Kustka *et al.* (2003) は、*Trichodesmium* が窒素固定を行う場合はアンモニアを窒素源とする場合より約 5 倍鉄を要求すると報告している。外洋域の表層への鉄供給は大気からのダスト降下の主であるが、砂漠地帯などの供給源から遠くなるに従い沈着量は減少する (Jickells *et al.*, 2005)。そのため、外洋域の表層は通常、鉄濃度が低いと考えられており、鉄が海洋窒素固定を最も制限している要因であるとする説が多い (Falkowski, 1997; Berman-Frank *et al.*, 2001; Karl *et al.*, 2002)。

窒素固定生物が鉄制限状態であるか否かは、①細胞内の Fe : C 比と増殖速度、②鉄添加による窒素固定活性及び増殖応答、のいずれかの方法で評価されるのが一般的である (Kustka *et al.*, 2002)。①については、*Trichodesmium* の培養株 (IMS 101 株) を用いた実験において、細胞内 Fe : C 比が 38–48 $\mu\text{mol} : \text{mol}$ で増殖速度が 0.1 d^{-1} (至適増殖速度付近) となることがわかっている (Berman-Frank *et al.*, 2001; Kustka *et al.*, 2003)。言い換えると、*Trichodesmium* の増殖に必要な細胞内 Fe : C 比は 38–48 $\mu\text{mol} : \text{mol}$ であり、この比以下であれば *Trichodesmium* は鉄制限を受け、この比以上であれば鉄制限を受けていないことになる (Kustka *et al.*, 2002)。これまで報告されている実海域 (オーストラリア北海岸、カリブ海、北大西洋熱帯・亜熱帯域) の *Trichodesmium* の細胞 Fe : C 比は 20 $\mu\text{mol} : \text{mol}$ から $>500 \mu\text{mol} : \text{mol}$ であり、そのほとんどで細胞内 Fe : C 比 38–48 $\mu\text{mol} : \text{mol}$ を超えている (Kustka *et al.*, 2002 [その他文献を含む])。このことから *Trichodesmium* はほとんどの場合、鉄制限を受けていないと考えられるが、Kustka *et al.* (2002) は、i) 天然種は培養株よりも鉄を多く要求する、ii) 天然種の高い細胞 Fe : C 比は細胞表面に吸着した鉄も含む可能性を挙げている。そのため実海域の窒素固定生物の細胞 Fe : C 比から鉄制限か否かを判断するには未だ課題が残されているのが

現状である。

一方、②の研究は、ほとんどの海域において窒素固定は鉄制限であることを示している (Paerl *et al.*, 1994; Berman-Frank *et al.*, 2001; Kustka *et al.*, 2002)。これまで、ダスト降下後に *Trichodesmium* の現存量が増加した例がいくつか報告されている (例えば、Orcutt *et al.*, 2001; Lenes *et al.*, 2001; Ramos *et al.*, 2005)。Orcutt *et al.* (2001) は Sta. BATS において 2 年半にわたる *Trichodesmium* の現存量及びダスト降下量の時系列観測を行い、*Trichodesmium* の現存量には顕著な季節変化があり、現存量増加時はダスト降下量の増加時と一致したと報告している。また、Lenes *et al.* (2001) はフロリダ半島西岸でダスト降下後の溶存鉄濃度 ($\sim 16 \text{ nmol kg}^{-1}$) がダスト降下前 ($0.1\text{--}0.5 \text{ nmol kg}^{-1}$) に比べて 1–2 桁のオーダーで高くなった現象を捉え、それに伴い *Trichodesmium* の現存量が 100 倍程度増加したと報告している。また Paerl *et al.* (1994) はノースカロライナ沖のガルフストリーム内において、採取した *Trichodesmium* に人為的に FeEDTA を添加 ($1 \mu\text{M}$) したところ、コントロールに比べて顕著に窒素固定活性が増加したことを報告している。しかしながら以上で示した事例は、ダスト降下量が高いすべての貧栄養海域において窒素固定活性が高いという結論を導くものではない。Wu *et al.* (2003) は、南シナ海ではダスト降下量が多い、すなわち粒子状鉄濃度が高い、のにも関わらず、他のダスト降下量の高い海域に比べて *Trichodesmium* の現存量が低いまま維持されていたと報告している。窒素固定はリンによっても制限される可能性がこれまでの研究で示唆されている (詳細は次項で述べる) が、Wuらはリン添加実験の結果から南シナ海ではリンは律速要因ではなかったことを確認している。Wu *et al.* (2003) は高い粒子状鉄濃度に比べて溶存鉄濃度が低かったことから、南シナ海では粒子状鉄を溶解し生物利用を可能とする有機配位子が不足している可能性を指摘した。植物プランクトンは鉄を取り込む際、溶存鉄しか利用することができない。溶存鉄は海水中で様々な形態で存在しているが、そのほとんどが鉄イオンと鉄有機配位子が錯形成した有機錯体鉄として存在している (近藤, 2007)。鉄有機配位子はバクテリア由来のシデロフォア、植物プランクトン由来のポルフィリン化合物、

またフミン酸やフルボ酸等の腐食物質があると考えられており(近藤, 2007), 真核および原核植物プランクトンの間で鉄有機配位子の種類により取り込み能が異なることが知られている(Hutchins *et al.*, 1999)。特に *Trichodesmium* については, 有機錯体鉄のうちポルフィリン化合物よりシデロフォアを取り込みやすいことが近年 Achilles *et al.* (2003) によって示された。このため鉄有機配位子の種類及びその存在の有無が窒素固定を制御する可能性がある。しかしながら窒素固定活性と鉄濃度の関係について鉄の存在形態にまで言及した研究例は極めて少ない。

以上で述べた窒素固定の鉄制限についての知見はほぼ全て *Trichodesmium* を用いた研究から得られたものである。*Trichodesmium* 以外の窒素固定生物の鉄依存性については, 現在のところ Berman-Frank *et al.* (2007) によって報告されているのみである。Berman-Frank *et al.* (2007) は *Trichodesmium* (IMS 101 株), 単細胞性ナノシアノバクテリア *Cyanothece* sp. (WH 8904 株), 淡水性の窒素固定生物 *Anabaena flos aqua* (UTEX 2557 株) の窒素固定活性における鉄依存性について調べたところ, 鉄(FeCl_3)濃度 $0.004\text{--}4\ \mu\text{M}$ の範囲において *Trichodesmium* は鉄濃度により 85% も窒素固定活性が減少したが, *Cyanothece* や *Anabaena* は *Trichodesmium* ほど鉄依存性を示さなかったと報告している。特に *Cyanothece* については上記の鉄濃度範囲においては窒素固定活性の有意な違いは認められなかった。このような種ごとの鉄依存性の違いは, 窒素固定生物の地理分布を決める要因となる可能性がある。

3.1.2. リン

窒素固定は窒素源として N_2 を利用し, 同時に一定の割合で海中のリンを利用する。 N_2 は大気からの供給により常に十分量存在するが, リン酸塩はその供給源が主に中深層からの湧昇または拡散のみとなっている(Tyrrell, 1999; Karl, 2007)。そのため窒素固定が活発な海域はリン酸塩が相対的に不足している, もしくは不足していく可能性がある(Wu *et al.*, 2000)。Wu *et al.* (2000) は西部北大西洋と中部北太平洋亜熱帯域の表面水のリン酸塩濃度を比較して, 西部北大西洋のリン

酸塩濃度は $0.2\text{--}1.0\ \text{nM}$ 程度であり, 中部北太平洋亜熱帯域に比べて1桁から2桁ほど低いことを示し, これは西部北大西洋はダスト供給量が多く鉄が十分量存在しており, それゆえ窒素固定が盛んになった結果生じたという説を発表している。その後, Sañudo-Wilhelmy *et al.* (2001) が中部北大西洋熱帯・亜熱帯域における *Trichodesmium* の細胞内 N:P 比を報告しているが, それぞれの海域で 51, 21 とレッドフィールド比 (16) を大きく上回っており, リンが窒素に対して相対的に不足していることが示された。彼らはそのときの Fe:C 比は $36\ \mu\text{mol}:\text{mol}$ であり, 鉄不足ではなかったとしている。また, Dyhrman *et al.* (2002) は *Trichodesmium* のリン律速状態を分子診断する方法を開発し, それを西部北大西洋に分布する *Trichodesmium* に適用して, リン律速状態であったと報告した。以上の研究により同海域の *Trichodesmium* がリン律速の状態にあることが認められている。

Moutin *et al.* (2005) は西部南太平洋亜熱帯域において *Trichodesmium* の現存量, リン酸塩の現場濃度及び回転速度の季節変動を調査し, *Trichodesmium* の現存量がリン酸塩濃度に支配されている可能性を指摘した。彼らは *Trichodesmium* を用いたリン酸塩取り込み実験と上記の観測データから同海域の *Trichodesmium* の増殖にはリン酸塩濃度が最低でも $9\ \text{nM}$ 必要であり, それ以下であれば増殖しないという仮説を提示している。また Dore *et al.* (2008) は北太平洋の窒素固定がリンによって制御されている可能性を指摘している。彼らは大型の窒素固定生物, すなわち *Trichodesmium* や珪藻類に共生した *Richelia* 及び珪藻のブルームがハワイ島北東部において頻繁に観測されているのに対して 160°W 以西ではブルームが観測されていないことを示した。そして, これまでにハワイ島北東部で報告されている表面のリン酸塩, 鉄濃度や栄養塩躍層深度から, 西部及び東部北太平洋はどちらも窒素固定者にとっては鉄制限ではないとし, それよりもリン酸塩の栄養塩躍層が西部北太平洋で東部よりも深いことを指摘し, ハワイ島北東部において発生するブルームは主に下層からのリン酸塩の供給によるもので, 西部北太平洋では窒素固定はリン律速となっている可能性が高いとした。さらに Kitajima *et al.* (2009) は西部北太平洋で冬季と夏

季にリン酸塩濃度と窒素固定活性の観測を行い、亜熱帯域においては冬季に比べて夏季のリン酸塩濃度がナノモルレベルで見ても枯渇状態にあり (3 nM)、一方、窒素固定活性は冬季に比べて夏季のほうが低くなっていたことから、同海域夏季の窒素固定がリン律速になっている可能性を示している。

上記の議論はリン酸塩濃度に関するものだが、*Trichodesmium* はリン酸塩だけでなく、溶存有機リン (以下、DOP) も利用することができることが知られている (Mulholland *et al.*, 2002; Dyhrman *et al.*, 2006)。貧栄養海域では DOP は全溶存リンのほとんどを占める (70–98%) ことから (Suzumura and Ingall, 2004)、窒素固定者の DOP 利用能はリン律速か否かを定める重要な要素になると考えられるが、現在のところ、実海域の DOP の存在形態と窒素固定者の DOP 利用能との関係についてはほとんどわかっていない。さらに、海域によっては窒素固定がリンと鉄両方に制限を受けることが報告されており (Mills *et al.*, 2004)、リンと鉄どちらが制限要因になるかについては単純ではない。

3.1.3. その他

0°C 付近の寒帯域の土壌 (Fogg and Stewart, 1968) から水温 90°C の熱水噴出孔 (Mehta and Baross, 2006) まで様々な温度帯から窒素固定生物が知られているが、*Trichodesmium* は水温 20°C 以上の海域でのみしか窒素固定活性をもたない (Capone *et al.*, 1997)。Breitbarth *et al.* (2007) は培養株 (IMS 101 株) を用いた実験から、*Trichodesmium* は水温 20°C から 34°C の範囲でのみ増殖しうることを示した。なぜ *Trichodesmium* が高水温域でしか窒素固定活性をもたないのかについては Staal *et al.* (2003) によって理論的考察が与えられている。窒素固定を担うニトロゲナーゼ酵素は酸素によって不活性になる (Berman-Frank *et al.*, 2003)。そのため窒素固定生物にとって、酸素発生機能をもたない異化細胞、すなわちヘテロシストを持つことは生存戦略的に有利と考えられるが、ヘテロシストを持つのは低温の汽水域や淡水域に存在する窒素固定生物 (例えば、*Nodularia*, *Anabaena*) 及び珪藻に共生する *Richelia* に限られ、*Trichodesmium* はヘテロシストを持たない。

Staal *et al.* (2003) は、ヘテロシストを包む糖脂質は水温が上昇すると酸素フラックスを抑制せず、一方で *Trichodesmium* は高水温域でのみ呼吸速度が速くなることを示した。換言すると、ヘテロシストは高水温域では機能せず、また *Trichodesmium* は高水温域でのみ酸素からニトロゲナーゼを保護している可能性を示すものであり、*Nodularia* や *Anabaena* は高水温域では見られず、一方で *Trichodesmium* は高水温域で卓越しやすいことに説明がつく。ピコ・ナノプランクトンサイズの窒素固定生物の温度依存性については現在のところ不明な点が多いが、水温 19°C 程度の温帯域でもそれらは窒素固定ができることが近年 Needoba *et al.* (2007) によって示されており、同様に熱帯・亜熱帯域においても広く分布していることを考慮すると (Church *et al.*, 2008; Langlois *et al.*, 2008)、*Trichodesmium* よりも広い温度帯で存在しうる可能性が高い。

ニトロゲナーゼ活性はアンモニア及び硝酸塩によっても制限を受けることが知られている (Smith and Gallon, 1999; Mulholland *et al.*, 2001; Holl and Montoya, 2005)。このうち海洋窒素固定の窒素阻害に関する研究は現在のところ、*Trichodesmium* による窒素固定活性の硝酸塩阻害を対象としたものに限られている (Mulholland *et al.*, 2001; Holl and Montoya, 2005)。Holl and Montoya (2005) は *Trichodesmium* IMS 101 株の連続培養系において窒素固定活性の硝酸塩による阻害効果を調査し、硝酸 0.5–20 μM の添加濃度範囲全てで阻害が見られたと報告している。彼らの実験では窒素固定活性の阻害効果は硝酸塩濃度約 10 μM で飽和となったが、これはコントロールの窒素固定活性の 30% に相当し、窒素固定活性は完全には阻害されなかった。一方で Mulholland *et al.* (2001) は天然の *Trichodesmium* 及び培養株 (NIBB 1067 株) を用いて、硝酸塩やアンモニア、アミノ酸を添加したところ数時間の培養では 1 μM 加えても窒素固定活性は阻害されず、10 μM の添加でようやく阻害効果が見られたと報告している。Holl and Montoya (2005) と Mulholland *et al.* (2001) のそれぞれが報告している窒素固定活性を阻害する硝酸塩濃度の違いについては、今のところ明確な説明はない。しかしながら硝酸塩やアンモニア、アミノ酸などの窒素栄養塩濃度がマイクロモルレベルあるいはそれ以上

にならなければ *Trichodesmium* による窒素固定活性が阻害されない可能性は高い。*Trichodesmium* が生息する熱帯・亜熱帯貧栄養海域では表層の窒素栄養塩濃度が極めて低く、マイクロモルレベルになることはほとんどない (Lipschultz *et al.*, 2002)。故に偶発的な窒素栄養塩の供給によって窒素固定活性が阻害されることは稀であると言える。

3.2. 窒素固定の新生産への寄与

1990年代に入り全海洋の窒素固定量が既往値よりも高い可能性が指摘されるようになり (Lipschultz and Owens, 1996; Gruber and Sarmiento, 1997), いくつかの海域で新生産における窒素固定の寄与の評価が行われるようになった。Karl *et al.* (1997) は Sta. ALOHA において *Trichodesmium* の現存量や溶存態及び粒子態物質の N:P 比, セジメントトラップで捕集された沈降粒子の窒素安定同位体比の観測結果から, 同海域の新生産における窒素固定の新生産への寄与は約 50%程度であると試算した。また Capone *et al.* (2005) は西部北大西洋熱帯・亜熱帯域において, *Trichodesmium* による窒素固定量が鉛直渦拡散による硝酸塩供給量に対し 50–180%あったと報告している。さらに彼らは懸濁粒子の窒素安定同位体比の観測結果から, 同海域の窒素固定の新生産への寄与は 36–68%を占めると試算した。

バルト海のような汽水性, 低温域の海域 (例えば, Ohlendieck *et al.*, 2007) を除いて, 窒素固定は主に熱帯・亜熱帯の貧栄養域で行われている。しかしながらその程度は季節 (Dore *et al.*, 2002; Garcia *et al.*, 2007; Grabowski *et al.*, 2008) 及び海域 (Staal *et al.*, 2007; Chen *et al.*, 2008; Raimbault and Garcia, 2008; Hashihama *et al.*, 2009; Shiozaki *et al.*, 2009) によって異なると考えられている。Hashihama *et al.* (2009) は西部北太平洋のリン酸塩がナノモルレベルで見ても極めて低い (<10 nM) ことを見出し, またモデルによりシミュレーションされたダスト降下量がアジア大陸に近いほど高かったことから, 西部北太平洋におけるリン酸塩の枯渇は, 高いダスト供給によって窒素固定が活発になっていたことが原因である可能性を示した。また Shiozaki *et al.* (2009) は西部北太平洋熱帯・亜熱帯域において, 窒素固定活性と硝酸塩取り込み速度, モ

デルによるダスト降下量の結果から, ダスト降下量の多い海域と窒素固定活性の高い海域がほぼ一致していることを示し, 一方で硝酸塩取り込み速度は貧栄養海域内でほぼ一定であったことから, 同海域の窒素固定の新生産への寄与は季節によるダスト降下量の変化によって大きく変化する可能性を示している。以上により, 熱帯・亜熱帯貧栄養海域における窒素固定の新生産への寄与は極めて大きいことが明らかであるが, 窒素固定による新生産の見積もりには季節差及び海域差に注意を払う必要がある。

4. 大気からの窒素化合物降下

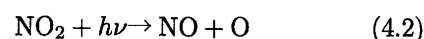
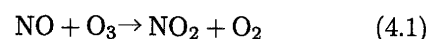
大気から海洋への窒素化合物供給を考える場合, 大気中窒素化合物の発生源とそこからの距離及び位置関係が重要となる。これは, 大気中に排出された窒素化合物が大気の循環過程で輸送され, その途中で他の物質と反応し, 降水や重力落下などで除去されるからである。ここではまず窒素化合物の排出源と輸送中の反応過程, 降下過程について簡単にまとめ, その後, 海洋への大気からの窒素化合物供給の重要性について考察する。

4.1. 排出源と反応過程

大気中の無機態窒素は一般に窒素酸化物とアンモニア態窒素に分けて考えられる。これはそれぞれの排出源が大きく異なることが起因している。現在, 窒素酸化物, アンモニア態窒素ともに約 8 割が人為起源であると考えられており (Duce *et al.*, 2008), 主な排出源は, それぞれ化石燃料の燃焼, 農業活動とされている (Galloway *et al.*, 2004)。

窒素酸化物の初期反応過程, エアロゾルの形成過程についてはそれぞれ近藤 (2002), Raes *et al.* (2000) に詳しいので, ここでは簡単に整理する。

大部分の窒素酸化物は NO として大気中に排出, あるいは生成される。NO は対流圏オゾンと反応して NO₂ に酸化されるが, NO₂ は可視光で光解離して NO に戻る。



これらの反応は数分間の時定数で平衡状態になるので、NOとNO₂は、まとめてNO_xと定義されている。対流圏内ではNO₂はOHラジカルと反応し、数時間から数日でHNO₃に変換される。



この反応はNO_xの消失過程ともなる。この反応は比較的遅いため、窒素酸化物は沈着まで比較的長距離輸送されることになる (Spokes and Jickells, 2005)。HNO₃は水溶性が高いため、降水によって大気中から速やかに除去されるが、海上に存在すると海塩粒子と反応して (例えば; $\text{HNO}_3 + \text{NaCl} \rightarrow \text{NaNO}_3 + \text{HCl}$)、粗大粒子 (coarse aerosols [$>1 \mu\text{m}$]) を形成する。海上では80%以上のNO₃⁻エアロゾルが1 μm 以上の粗大粒子として存在する (Spokes *et al.*, 2000)。

アンモニア態窒素の主な排出源は農業活動である。アンモニア態窒素はNH₃として家畜の糞尿や肥料などから発生し、H₂SO₄、またはHClやHNO₃などの酸性ガスと反応し粒子化する。NH₄⁺エアロゾルは一般に微小粒子 (fine aerosols [$<1 \mu\text{m}$]) として存在することが多い。またNH₃は海洋表層から排出されることも知られているが (Quinn *et al.*, 1988, 1996)、その大半は再び海洋に沈着すると考えられている (Galloway *et al.*, 2004)。

さらに大気由来の窒素化合物には、無機態窒素だけではなく、有機態窒素も存在することが近年明らかになってきた (Cornell *et al.*, 1995, 2003)。有機態窒素として現在、脂肪族アミド、溶存遊離アミノ酸、尿素などの様々な化合物が知られているが、観測例が少ないためそれぞれの排出源及び反応過程は不明な点が多い (Cornell *et al.*, 2003)。しかしながら降水中の全窒素の約30%は有機態窒素が占めることが知られており、大気からの窒素化合物供給における寄与は大きいとされている (Duce *et al.*, 2008)。

4.2. 大気からの降下過程

大気からの降下は大きく乾性沈着 (dry deposition) と湿性沈着 (wet deposition) の2つに分けられる。乾性沈着は主に重力落下によって物質が大気中から除去される過程、湿性沈着は主に降水によって物質が大気中

から除去される過程を指す。乾性沈着フラックス (F_p) は、乾性沈着速度 (V_d) と大気中の粒子濃度 (C_{Pa}) の関数として一般に下式で表される。

$$F_p = V_d \cdot C_{Pa} \quad (4.4)$$

ここで V_d は粒子の大きさによって異なることが知られており、一般に、1 μm 未満のエアロゾル粒子は0.1 cm s^{-1} 、1 μm 以上の海塩粒子を含まない鉱物粒子は1.0 cm s^{-1} 、1 μm 以上の海塩粒子は3.0 cm s^{-1} 、という値がよく使われる (Duce *et al.*, 1991)。また同様に、湿性沈着フラックス (F_r) は、降水量 (P) と降水中の物質濃度 (C_r) の関数として下式で表される。

$$F_r = P \cdot C_r \quad (4.5)$$

湿性沈着の過程では、雨滴の落下による衝突によって空気中の粒子が除去される過程を含む。この除去過程はスキャベンジと呼ばれ、粒子によってその除去率 (スキャベンジング比 [$S = C_r/C_{Pa}$]) が異なることが知られている。スキャベンジを考慮した湿性沈着フラックスは

$$F_r = P \cdot S \cdot C_{Pa} \cdot \rho^{-1} \quad (4.6)$$

と表される。ここで ρ は空気の密度 (1.2 kg m^{-3}) である。スキャベンジング比は200–2,000の範囲に収まると考えられている (Duce *et al.*, 1991)。

4.3. 大気由来窒素化合物の新生産への寄与

大気から降下する窒素化合物が外洋域 (特に貧栄養海域) の新生産に寄与するか否かについては、これまでいくつかの説があった。Knap *et al.* (1986) がサルガッソー海バミューダ島において1982年から1984年にかけて降水中の硝酸塩およびアンモニウム塩を測定したところ、平均の降下量 (硝酸塩+アンモニウム塩) は30 $\mu\text{mol N m}^{-2} \text{ d}^{-1}$ となった。彼らは他の窒素源との比較を行い、大気からの窒素化合物供給量はサルガッソー海では重要ではないと結論した。しかしながら、その後、貧栄養海域への大気からの窒素化合物供給は、年平均値よりむしろ偶発的に発生する窒素含有量の高い降水現象が重要であるという説が発表された (Owens *et al.*, 1992)。Owens *et al.* (1992) は同じバミューダ島において1980年4月から1989年8月までの約9年間の降水

中の硝酸塩、アンモニウム塩のデータを解析し、観測した降水の回数のうち約20%が見積もった新生産の最小値 ($216 \mu\text{mol N m}^{-2} \text{d}^{-1}$) の100%を満たす窒素供給を行っており、約40%が新生産の最小値の半分を満たしていたと報告している。このOwensらの説を支持するような報告がGlover *et al.* (1988) によってなされている。GloverらはKnap *et al.* (1986) が観測を行った同じサルガッソー海において、25 m以浅の硝酸塩濃度が過去同海域で観測された値より一桁高いこと (21–27 nM) を観測し、6日間の観測中に *Synechococcus* の表層ブルームの終結と共に、硝酸塩濃度が数ナノモルまで減少したと報告している。Gloverらは同海域での偶発的な大気由来の窒素化合物供給が *Synechococcus* のブルームを引き起こしている可能性を示唆した。サルガッソー海におけるこの論争はMichaels *et al.* (1993) によって総括され、一応の決着がついたように思われる。Michaelsらは1988年10月から1991年6月まで、同海域に位置するSta. BATSにおいて、一か月おきに漂流型セジメントトラップによる観測を行い、移出生産 (\approx 新生産) を測定するとともに、その結果とバミューダ島で観測された同期間の降水中の硝酸塩、アンモニウム塩の測定結果を比較した。Michaelsらは、観測した降水の回数のうちわずか7%が移出生産の100%を満たす窒素供給を担い、また移出生産の半分を満たす降水の回数は全体の14%にすぎなかったと報告しており、Owens *et al.* (1992) が過大評価していたことを示した。また大気由来の窒素化合物供給を年平均すると移出生産の5.8%を占めるにすぎず、Knap *et al.* (1986) が結論したのと同様に、大気由来の窒素化合物供給量は同海域においては重要ではないと結論した。さらにMichaelsらは降水が水塊構造にどのような影響を与えるかのシミュレーション実験を行い、同海域の平均風速 (5 m s^{-1}) の場合、降水は24時間で水深10 m程度までしか広がらず、風速が 15 m s^{-1} の場合でも24時間で水深25 mまでしか広がらないという結果を報告している。この結果は、降水がごく表層の生物群集のみに影響を与えることを示唆しており、Glover *et al.* (1988) が観測した *Synechococcus* の短期表層ブルームが降水の影響であった可能性が高いことを示している。Michaelsらが導き出した結論は現在でも支持されている (Jickells, 2006)。

Jickells (2006) はMichaelsらの結果を踏まえ、現在のところ他の外洋の貧栄養海域においても降水は窒素供給源としては、寄与は小さいと総括した。

現在、全球規模の大気由来の窒素化合物降下量が化学輸送モデルを用いて見積もられている (例えば; Galloway *et al.*, 2004; Krishnamurthy *et al.*, 2007; Duce *et al.*, 2008)。それぞれのモデルで共通しているのは、南北アメリカの人口密集地帯やヨーロッパ、西アフリカ、インド、中国、日本付近で沈着量が多く、排出源の付近で大部分が沈着していることである。また偏西風やジェット気流などの影響を受け、北半球では発生源から風下に向けて広い範囲で高い沈着量がみられている。Galloway *et al.* (2004) の見積もりによると、1990年代の北大西洋、北太平洋の窒素沈着量はそれぞれ、11.9, 12.1 Tg N y^{-1} であり、北大西洋は周囲を人間活動が活発な地域に囲まれているため、北太平洋に比べ面積は半分以下にも関わらず、沈着量はほぼ同じとなる。単位面積辺りの窒素沈着量が、北大西洋は北太平洋に比べ高いということは古くから知られており (例えば; Duce, 1986)、この窒素沈着量の差が現在の海洋表層の栄養塩のN:P比にも影響しているという説も提示されている (Fanning, 1989)。

4.4. 大気由来の窒素化合物供給量の時間的推移

1913年に食糧増産の要求からHaber-Bosch法が開発され、それ以降、窒素ガスと水素ガスから人工的にアンモニアが製造されるようになり、また近代化に伴い化石燃料の燃焼量が増大し、その結果、窒素化合物の大気への排出量は年々増加傾向にある (Galloway *et al.*, 2004)。Duce *et al.* (2008) による試算によると、人間活動による反応性窒素、すなわち硝酸態窒素、アンモニウム態窒素及び有機体窒素のうち反応性に富んだものの放出量は、1860年 (10 Tg N y^{-1}) に比べると2000年 (91 Tg N y^{-1}) は約9倍増加しており、それに伴い海洋への反応性窒素の沈着量も1860年 (20 Tg N y^{-1}) から2000年 (67 Tg N y^{-1}) までに約3倍増加している。この増加傾向は今後も続くと考えられ、2030年には人間活動による反応性窒素の排出量は2000年 (91 Tg N y^{-1}) に比べて約1.2倍の113 Tg N y^{-1} となり、海洋への沈着量も2000年 (67 Tg N y^{-1}) から2030年 (77

Tg N y⁻¹) までに 10 Tg N y⁻¹ 増加すると見積もられている。そして特に、東南アジア、ベンガル湾、アラビア海及び西アフリカ沖など発展途上国付近の沈着量が高まる可能性が高いことが指摘されている。

現在、発展途上国の経済成長は著しく、Akimoto (2003) によると、1980 年以降、北アメリカやヨーロッパの NO_x 排出量はほぼ一定、あるいはむしろヨーロッパは 1990 年以降減少傾向にあるが、アジア諸国からの NO_x 排出量は急速に増え続け、現在では北アメリカやヨーロッパを上回るほどになっている。人間活動によって、大気中の反応性窒素の量は確実に増加の一途にある。これは今後、人間活動が地球の窒素循環図を変えてしまう、もしくは変えつつある可能性があることを意味する。Pahlow and Riebesell (2000) は、北大西洋深層において 1960 年代から 1990 年代にかけて N:P 比が増加していることを指摘し、この原因として、人間活動による反応性窒素の排出量の増加とそれに伴う海洋への窒素沈着量の増加を挙げている。海洋への沈着量は特に貧栄養海域で増加しており (Duce *et al.*, 2008)、現在は大気由来の窒素化合物は新生産にほとんど寄与しないとされているが、今後の人間活動によっては大気由来の窒素化合物供給も新生産の窒素源として考慮に入れなければならない可能性がある。

5. 硝化

硝化は微生物によってアンモニアから硝酸塩に酸化される過程の総称であり、アンモニアから亜硝酸塩、亜硝酸塩から硝酸塩への二過程で反応に寄与する生物が異なる。海洋での硝化に関する研究はこれまで主に、沿岸域や酸素極小層 (oxygen minimum zone; 以下, OMZ) での窒素除去過程の評価 (McCarthy *et al.*, 1984; Codispoti and Christensen, 1985; Lipschultz *et al.*, 1986, 1990)、や海洋の N₂O の発生源とその発生量 (Nevison *et al.*, 2003)、外洋域における第一亜硝酸極大 (primary nitrite maximum; 以下, PNM) の形成要因 (Wada and Hattori, 1971, 1972; Olson, 1981a; Lomas and Lipschultz, 2006) の文脈で議論されてきた。Dugdale and Goering (1967) は硝化によって生産された硝酸塩は再生栄養塩とみなし、その硝酸塩を用いた生産は再生生

産となると定義していたが、硝化は光によって阻害されることが古くから知られていたため (例えば; Olson, 1981b)、表層付近の硝化は新生産の見積もりの際には無視されるのが通例であった。換言すれば、硝酸塩起源の生産はすべて新生産となると仮定されていた。しかしながら近年、主に有光層下部で行われる硝化が有光層における硝酸塩の存在量に与える影響についての評価が進み、その結果、硝酸塩起源の新生産の見積もりにおいて硝化が無視できないことが明らかとなってきた (Ward *et al.*, 1989; Dore and Karl, 1996; Martin and Pondaven, 2006; Yool *et al.*, 2007; Clark *et al.*, 2008)。現在のところ、外洋域において一般に硝化速度はアンモニア酸化、亜硝酸酸化ともに有光層内では極めて低いがゼロではなく (Raimbault *et al.*, 1999; Clark *et al.*, 2008)、また有光層下部 (~1% 光量層) において極大をもつと考えられている (Codispoti and Christensen, 1985)。有光層及び有光層下部の硝化速度の観測は現在のところ極めて少ない。しかしながら硝化自体の研究は古く、これまでいくつかの総説にまとめられている (例えば; Kaplan, 1983; Ward, 2002)。ここでは特に有光層及び有光層下部の硝化に関わる事項について、その現状をまとめる。

5.1. 硝化に寄与する生物

海洋から初めてアンモニア酸化細菌 (ammonia-oxidizing bacteria; 以下, AOB) が単離されてから (Watson, 1965)、近年まで、硝化過程は Proteobacteria 門, Nitrospira 門に属する真正細菌によってのみ行われていると考えられていた (Ward *et al.*, 2007)。特に AOB は β -, γ -Proteobacteria 綱に、また亜硝酸酸化細菌 (nitrite-oxidizing bacteria; 以下, NOB) は α -, β -, γ -Proteobacteria 綱及び Nitrospira 門に属することが知られている (Ward, 2002; Ward *et al.*, 2007)。ところが 2000 年代に入り、古細菌もアンモニア酸化能力をもつ (ammonia-oxidizing archaea; 以下, AOA) ことが示された (Könneke *et al.*, 2005; Francis *et al.*, 2005; Wuchter *et al.*, 2006)。古細菌は、それまで海洋に普遍的に存在することが知られ (DeLong *et al.*, 1992; Fuhrman *et al.*, 1992)、その現存量は Crenarchaeota 門だけ (1.3×10^{28} cells) で全ピコプランクトン細胞数の

20%ほども占めるという試算もなされていたが (Karner *et al.*, 2001), その代謝機能についてはほとんどわかっていなかった。Könneke *et al.* (2005) は海洋性古細菌を初めて単離し, その種 (*Nitrosopumilus maritimus*) がアンモニア酸化に関与するアンモニアモノオキシゲナーゼ遺伝子 (*amoA*, *amoB*, *amoC*) をもち, 事実, アンモニア酸化することを示した。また Francis *et al.* (2005) は古細菌由来の *amoA* が有光層下部や貧酸素水塊, 沿岸域や河口域の堆積物中に遍在することを示し, AOA が普遍的に存在している可能性を示した。さらに Wuchter *et al.* (2006) は北大西洋において Crenarchaeota 門の古細菌がアンモニア酸化を行うことを示した。彼らは同海域において古細菌の *amoA* 遺伝子コピー数が真正細菌の *amoA* 遺伝子コピー数に比べ 1-3 桁多かったと報告している。現存量においても Crenarchaeota 門の古細菌は AOB (微生物群集の <0.1% [Ward, 2002]) に比べて圧倒的に多いため, 現在, 古細菌は海洋における主要なアンモニア酸化生物であると考えられている (Francis *et al.*, 2007)。今のところ, 亜硝酸酸化古細菌 (nitrite-oxidizing archaea; 以下, NOA) の存在は知られていない。しかしながら Ward *et al.* (2007) は, AOA の存在量が極めて大きいこと, 大部分の海洋において亜硝酸塩の蓄積が見られないこと, を考えると NOA も相当量存在する可能性があるとしている。

5.2. 硝化の制限要素

5.2.1. 光

硝化速度は一般に表面で低く有光層下部で極大を持つ。これは光阻害の影響が大きいためであるとされており (例えば; Olson, 1981a, Ward, 1985), 光は基質濃度と並んで硝化を制限する最も重要な要素の一つであると考えられている (Ward, 2002)。Guerrero and Jones (1996) は培養株を用いた実験により, AOB 及び NOB が光阻害において光強度及び光波長依存性があり, またアンモニア酸化の場合はアンモニア濃度が高いと光阻害が緩和されることを示した。AOA の光応答は現在のところ明らかになっていないが, 天然群集のアンモニア酸化速度に光阻害の影響が見られること, Crenarchaeota 門の古細菌は有光層以深に多く見られること (Karner

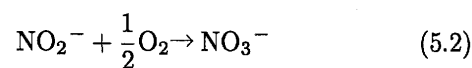
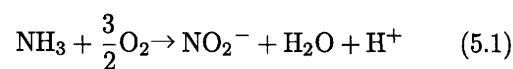
et al., 2001) を考慮すると, AOA も同様に光阻害を受ける可能性が高いと考えられている (Ward *et al.*, 2007)。

5.2.2. 基質濃度

ほとんどすべての硝化生物は化学合成無機栄養生物であり, AOA と AOB, NOB はそれぞれアンモニア, 亜硝酸塩をエネルギー源としている。AOB, NOB の培養株を用いた実験では, 基質濃度の半飽和定数は極めて高い値 (2-2,000 μM) が報告されているが (Kaplan, 1983 [その他文献を含む]), 天然群集における半飽和定数は非常に低い (<0.1 μM) ことが示唆されている (Olson, 1981a)。Ward (1985) は天然群集のアンモニア酸化速度と現場のアンモニア濃度に有意な正の相関があったことを報告しており, 光阻害の影響がなくなる有光層下部においては植物プランクトンによるアンモニア取り込みに対し資源の競合が起こっている可能性が高いことを示唆している。AOA は基質濃度依存性についても現在のところ明らかになっていないが, 古細菌の *amoA* 遺伝子コピー数がアンモニア濃度の高い水塊とほぼ一致して高いこと (Beman *et al.*, 2008), 天然群集の半飽和定数が非常に低い可能性が高いこと (Olson, 1981a) から, 基質濃度依存性は高いと考えられる。

5.2.3. 酸素

AOB, NOB のアンモニア酸化過程, 亜硝酸酸化過程は要約すると下記の反応で表される (Ward, 2002)。



硝化が行われるためには酸素が必要である。Goreau *et al.* (1980) は AOB である *Nitrosomonas sp.* の培養株を用いた実験から酸素濃度が低くなるにつれアンモニア酸化速度が低下したと報告している。しかしながら, Goreau *et al.* (1980) は同時に, カルチャーフラスコのヘッドスペースの酸素濃度が 1% (0.37 mg L^{-1}) のとき *Nitrosomonas sp.* は最も成長速度が速かったと報

告している。これと同様の傾向が他の種でも報告されており(例えば; Carlucci and McNally, 1969), 一般的に AOB, NOB は低酸素状態をより好むと考えられている(Ward, 2002)。また AOB の多くは低酸素状態で、温室効果ガスとなる N_2O を生じることから(Goreau *et al.*, 1980; Casciotti and Ward., 2005), 海洋においては硝化が N_2O の主な発生源であると考えられている(Nevison *et al.*, 2003)。AOA については好気性であることが知られているが(Könneke *et al.*, 2005), 酸素依存性についてはわかっていないのが現状である。しかしながら OMZ で現存量が極大を示すことから(Beman *et al.*, 2008), 低酸素にも適応可能であると考えられる。また近年, AOA も酸化窒素レダクターゼ(*nor*)を持つことが報告されていることから(Hallam *et al.*, 2006), N_2O の生産に関わっている可能性がある。

5.3. 硝化が硝酸塩起源の新生産に及ぼす影響

系外からの硝酸塩供給が新生産となるには, 次の二つの仮定が必要となる(Martin and Pondaven, 2006)。
①系外と系内を分ける境界層以浅への硝酸塩の純供給量と硝酸塩取り込み速度が等しくなる。この場合, 系内における硝酸塩の発生源はない。
②対象の時間スケール内では系外に沈降した物質が分解され硝酸塩として系内に戻ることはない。硝化は通常有光層下部に極大を持つ。そのため一年で硝酸塩起源の新生産を考えた場合, 冬季混合による硝酸塩供給が顕著な海域では, 夏季に有光層下部で硝化によって再生された硝酸塩が冬季の混合によって表層に再供給され生産に使われる可能性がある。Martin and Pondaven (2006) は Sta. BATS において観測された生物・物理・化学データと, それまで各海域で報告されている硝化速度を統合して生態系モデルを構築し, 一年間で硝化によって生じる硝酸塩からの生産を見積もった。その結果, 200 m 以浅に存在する硝酸塩の半分以上がアンモニア硝化から生じる可能性を示唆された。彼らはタイムスケールが一年の場合, 境界層は冬季混合層深度とするのがもっとも適切であると提案している。また Yool *et al.* (2007) は Martin and Pondaven (2006) の考えを拡張して, 全球規模でのシミュレーションを行った結果, 植物プランクトンに取り込まれる硝酸塩の約半分は硝化によるも

のであり, また貧栄養海域では約 7 割の硝酸塩が硝化によるものである可能性を示した。

実海域における培養実験によっても硝化が硝酸塩起源の新生産に及ぼす影響の評価が行われている。Dore and Karl (1996) は Sta. ALOHA において 100–175 m の硝化速度を測定し, その結果, 硝化によって生成される硝酸塩+亜硝酸塩量は同取り込み量の 47–142% に相当していたと報告している。また McCarthy *et al.* (1999) はアラビア海において $^{15}NO_3^-$ の取り込み速度とアンモニア酸化速度を表面から 0.1% 光量層まで同時に測定した結果, 硝化による寄与は 30–150% あったと報告している。同様の観測を Raimbault *et al.* (1999) は中部太平洋熱帯・亜熱帯域で 1% 光量層まで行い, 硝化による寄与は 20–100% あったと報告している。また Fernández *et al.* (2005) は北大西洋亜熱帯域において一年にわたって $^{15}NO_3^-$ と $^{15}NH_4^+$ の取り込み速度 ($\rho_{NO_3^-}$, $\rho_{NH_4^+}$) とアンモニア酸化速度 (ρ_{NIT}) を同時に測定し, 次のような硝化を考慮した *f*-ratio を提案しており, 従来の *f*-ratio に比べて 20–30% 低くなったと報告している。

$$f = \frac{\rho_{NO_3^-} - \rho_{NIT}}{\rho_{NO_3^-} + \rho_{NH_4^+}} \quad (5.3)$$

以上の実海域における観測からも, 硝化が硝酸塩起源の新生産に与える影響が無視できないものであることが明らかとなってきている。

6. まとめ

本稿ではここまで, 熱帯・亜熱帯貧栄養海域において報告されている新生産に関わる過程について整理し, 各過程の重要性について議論した。その結果, 有光層内への窒素供給には, 従来考えられていた渦拡散による硝酸塩の供給だけではなく, 暴風による鉛直混合や中規模渦, 窒素固定など時空間スケールの異なる複数の過程が寄与していること, 冬季混合層以浅の硝化を硝酸塩起源の新生産の見積もりの際には補正しなければならないこと, が明らかになった(Fig. 3)。現在のところ, 渦拡散や冬季混合, 強風による鉛直混合, 海盆スケールのエクマン輸送による硝酸塩供給過程や, 大気由来の窒素化合物供給についてはある程度時空間スケールの変動を把握できるようになっている。一方, 中

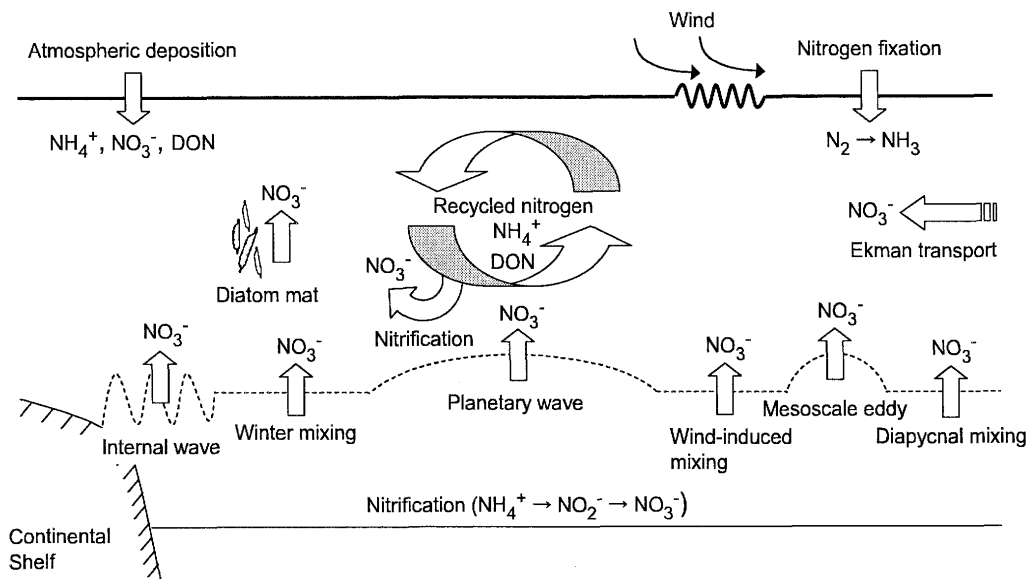


Fig. 3. Conceptual diagram of sources of new production and related processes. Bold-, broken-, and normal-line indicate the sea surface, the depth of the base of the euphotic zone, and the maximum winter depth of the mixed layer, respectively.

規模渦や珪藻マットの鉛直移動、プラネタリー波、内部波のような硝酸塩供給や窒素固定、硝化は時空間変動が詳細に調べられていないのが現状である。では我々はどうして新生産の全体像を把握すればよいだろうか？

まず新生産を見積もる際、どのような時空間スケールを設定するのが極めて重要な問題となる。なぜなら新生産はある時間単位、空間単位あたりに外部から供給された窒素源によって起こる生産と定義されているからである (Dugdale and Goering, 1967)。時間スケールが長い場合、表層の DIC の濃度収支 (Lee, 2001) や有光層下部の溶存酸素消費速度 (Jenkins, 1982) のような地球化学的手法を用いた新生産の見積もりが有効となる可能性がある。しかしながら現状では、これまで述べてきたようにこれらの方法で得られた結果を直接測定から検証できていない。では直接測定でこれまでに挙げた個々の過程を見積もることができるかということ、偶発現象を含む時空間スケールの異なる複数の現象を同時に捉えることは極めて困難である。しかし、新生産を、下層もしくは水平輸送による硝酸塩供給によるものと窒素固定、大気由来のもの、という 3 つに大き

く分けると次のような直接測定による見積もりが可能である。すなわち、貧栄養海域の有光層への硝酸塩供給過程は様々であるが、取り込まれた硝酸塩が直接生産につながると考えられるため、系内の総硝酸塩取り込み量は系外からの硝酸塩供給によって生じる生産量と系内での硝化による硝酸塩供給によって生じる生産量とを足し合わせたものであると考えることができる。そのため硝酸塩起源の新生産は総硝酸塩取り込み速度と硝化速度の同時測定によって見積もりが可能となる。従って、全新生産は総硝酸塩取り込み速度と硝化速度、窒素固定速度、大気からの窒素化合物供給速度を同時に測定することによって見積もることができる。しかしながらこのような培養実験に基づく方法はタイムスケールが 24 時間程度と短く、実海域における現象をスナップショットでしか捉えられない。すなわち、有光層内への硝酸塩供給過程として、渦拡散やエクマン輸送によるもの以外の偶発的な供給過程 (例えば、強風による鉛直混合や中規模渦) は見過ごしてしまう可能性が大きい。また窒素固定 (Dore *et al.*, 2002; Garcia *et al.*, 2007; Grabowski *et al.*, 2008) や硝化 (O'Mullan and Ward, 2005) の活性には季節変化がみられることから、

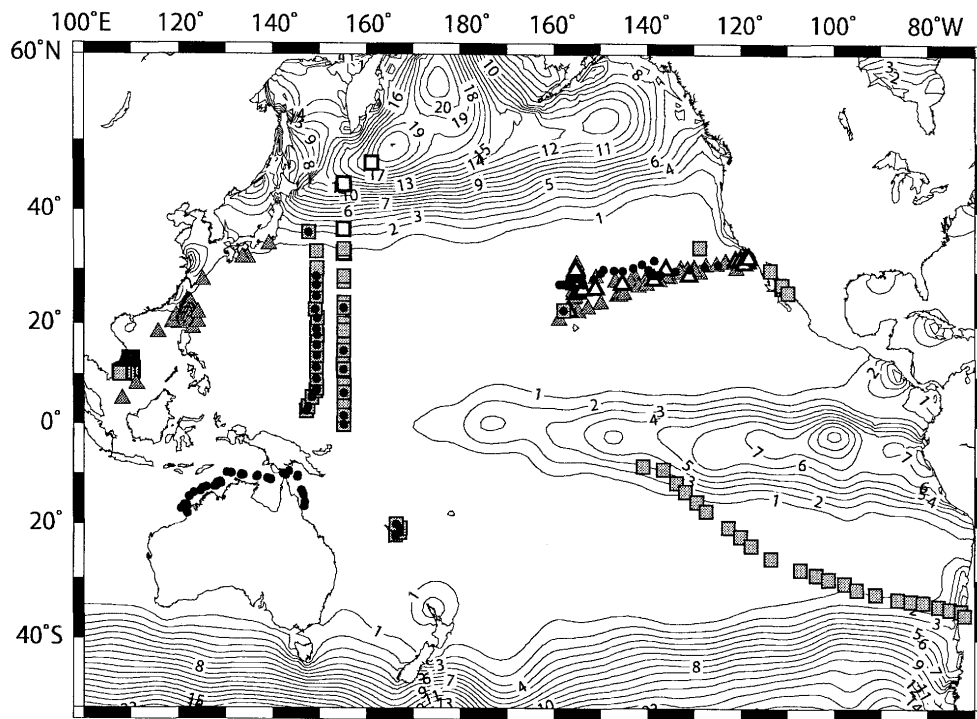


Fig. 4. Locations of N_2 -fixation-rates measurements of the whole water (square), $>10 \mu m$ (triangle), and $<10 \mu m$ fraction (circle) in the Pacific Ocean and its marginal seas. Open symbols denote that no N_2 fixation activities were observed. Data from Mague *et al.* (1974, 1977), Gundersen *et al.* (1976), Saino (1977), Dore *et al.* (2002), Montoya *et al.* (2004), Voss *et al.* (2006), Needoba *et al.* (2007), Garcia *et al.* (2007), White *et al.* (2007), Chen *et al.* (2008), Elskens *et al.* (2008), Raimbault and Garcia (2008), Grabowski *et al.* (2008), Kitajima *et al.* (2009), and Shiozaki *et al.* (2009). Background contour indicates nitrate concentrations in the surface waters. Nitrate data was obtained from World Ocean Atlas 2005 (http://www.nodc.noaa.gov/OC5/WOA05/pr_woa05.html).

年複数回の観測なしには新生産量の年平均像を捉えることができない。さらに空間変動についても、熱帯・亜熱帯域で上記の過程が一様ではないことは、前章で述べてきたように明白である。

従って、今後は各現象の時空間変動に見合った観測データを蓄積し、これら各パラメータの主要な制御要因を明らかにすることが、熱帯・亜熱帯域の新生産の全体像を把握する上での大きな課題となる。現在のところ、有光層内の純硝酸塩取り込み速度についてはJGOFS時代に時系列観測点やその他の世界各地で多くのデータが取られ、それを元に表層の硝酸塩の純取り込み量を表現する特定の海域モデル(例えば; Aufdenkampe *et al.*, 2001; Kanda *et al.*, 2003)から全球モデル(Laws

et al., 2000)まで提案されており、それぞれ実測値をよく再現できることが示されている。しかしながら、総硝酸塩取り込み速度については測定例が少なく、植物プランクトンが取り込んだ硝酸塩の一部をDONとして排出する過程を制御する要因についての知見が未だ乏しいこともあって(Bronk, 2002)、モデル化には至っていない。さらに、窒素固定と硝化については、現在報告されている観測データからモデル化の試みがいくつかなされているが(Lee *et al.*, 2002; Moore *et al.*, 2004, 2006; Deutsch *et al.*, 2001, 2007; Yool *et al.*, 2007)、それぞれ実海域での観測が極めて少ないため、モデル計算結果の妥当性について十分な検証が行われていない。一例として、これまでに太平洋及びその縁辺海で窒

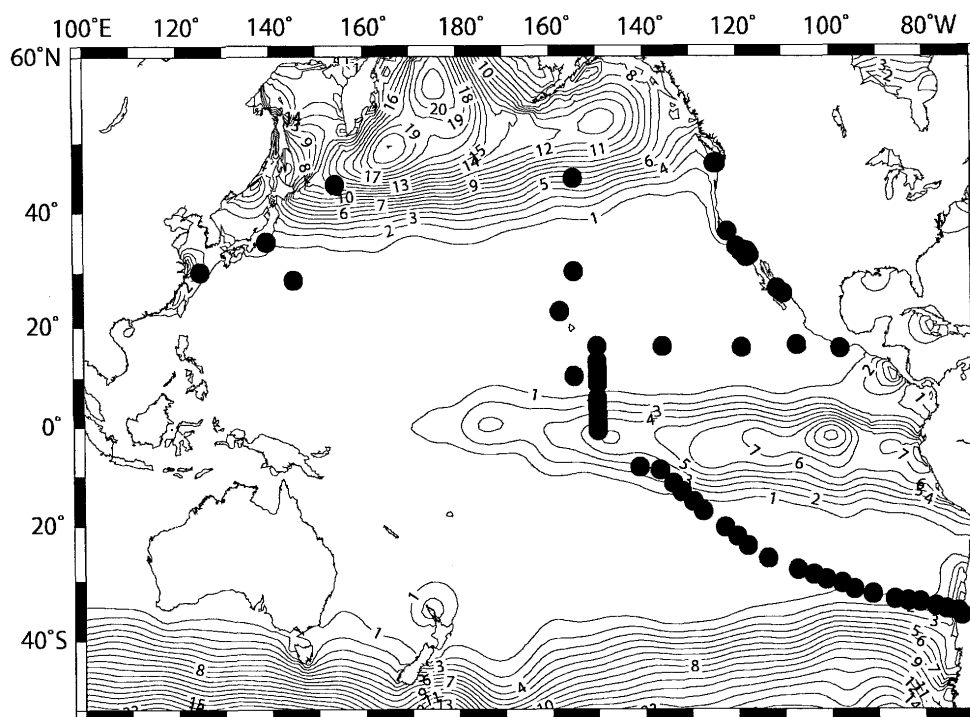


Fig. 5. Locations of near-surface-nitrification-rates measurements in the Pacific Ocean and its marginal seas. Data from Wada and Hattori (1971), Miyazaki *et al.* (1973, 1975), Olson (1981a), Ward (1987), Ward *et al.* (1984, 1989), Dore and Karl (1996), Raimbault *et al.* (1999), Sutka *et al.* (2004), O'Mullan and Ward (2005), Beman *et al.* (2008), Raimbault and Garcia (2008).

素固定速度及び冬季混合層以浅の硝化速度が報告されている観測点について、Fig. 4とFig. 5にそれぞれ示す。窒素固定と硝化のいずれにおいても中西部太平洋の観測密度が低いことがわかる。また東部太平洋においても、ハワイ島東部海域における窒素固定観測以外は、空間的な観測密度が極めて低いことがわかる。次に時間的な観測密度についてみると、年間を通した時系列観測が行われている海域は、窒素固定ではSta. ALOHA (Dore *et al.*, 2002; Grabowski *et al.*, 2008)とニューカレドニア島沖 (Garcia *et al.*, 2007)、硝化ではモンレー湾のみ (O'Mullan and Ward, 2005)となっている。窒素固定については、特に西部北太平洋は年間のダスト降下量が東部北太平洋に比べて高くなっているため、窒素固定のダスト応答が注目されている海域であるが (Jickells *et al.*, 2005)、同海域の窒素固定量及びその季節変化についての知見は未だ十分では

ないのが現状である。

新生産量は、セジメントトラップや ^{234}Th による沈降粒子フラックスからも見積もられている (Ittekkot *et al.*, 1996; Buesseler *et al.*, 2006)。この見積もりは、移出生産は定常状態では、あるいは十分に長い時間スケールでは新生産と等しくなるという仮定に基づいている (Eppley and Peterson, 1979)。しかしながら、これまで新生産量のほうが移出生産量に比べ常に高くなるという報告が世界各海域でなされている (Murray *et al.*, 1989; Charette *et al.*, 1999; Dunne *et al.*, 2000; Kawakami and Honda, 2007)。Kawakami and Honda (2007)は移出生産量の見積もりという立場からこの原因として、溶存有機物が移出生産量の見積もりから欠けていること、新生産と移出生産量の見積もりの時間スケールが異なることによって水平移流の効果が生じること、動物プランクトンの鉛直移動という能動的な

物質輸送過程があること、を挙げている。一方、本研究から新生産の見積もりは、従来の純硝酸塩取り込み量の評価だけでは不十分であり、DONの排出や窒素固定、硝化を考慮に入れなければならないことが明らかになった。新生産と移出生産が等しいという仮説を基にこれまで海洋の物質循環は論じられてきた(例えば; Eppley and Peterson, 1979; Laws *et al.*, 2000)。しかしながら実測によって、その仮説が確認された例がないのが現状である。新生産と移出生産それぞれの見積もりの問題点が明らかになった今、その仮説を検証し、海洋の物質循環に関わる基本的な概念を確かなものにする必要がある。

また純硝酸塩取り込み量を海色情報を用いて見積もる試みが、衛星リモートセンシング技術の開発後の早い時期から行われている(Sathyendranath *et al.*, 1991; Goes *et al.*, 2000; Turk *et al.* 2001)。この方法は、水温やクロロフィルなどの衛星データから経験式を用いて純硝酸塩取り込み量を算出する間接法である。そのため総硝酸塩取り込み速度と硝化の測定によって求めた硝酸塩起源の新生産量と、衛星データで得られるパラメータの間に関係式を導くことができれば、衛星データから硝酸塩起源の新生産の見積もりが可能になる。一方、窒素固定については、*Trichodesmium*の光学特性が他の植物プランクトンと比べて特徴的な点を利用して(Subramaniam *et al.*, 1999a, b)、衛星データで得られるいくつかの波長の輝度値から *Trichodesmium* の生物量と分布を検出する試みが近年行われている(Subramaniam *et al.*, 2002; Westberry and Siegel, 2006)。今後窒素固定速度の実測が進めば、既存のモデルとその他の海色データ、窒素固定速度の現場データから新たなモデルを構築し、衛星データから窒素固定量の空間分布が把握できるようになる可能性がある。

化石燃料の燃焼や森林破壊などの土地利用の変化に伴う大気への二酸化炭素の排出量の増加によって、現在地球上の炭素循環が変化しつつある(Falkowski *et al.*, 2000; Feely *et al.*, 2004; Sabine *et al.*, 2004)。また窒素循環についても人間活動の影響を受けて変化し始めているとの指摘が近年なされている(Pahlow and Riebesell, 2000; Gruber and Galloway, 2008; Duce *et al.*, 2008)。これは炭素循環と連動した生物学的な窒素循

環の変化に伴うものに加えて、Haber-Bosch法が開発されてから地球上で人為起源の反応性窒素が増加したことによるものである。大気中の二酸化炭素濃度の増加に伴う海洋物質循環への影響については古くから研究が進められており(野崎, 1994; IPCC, 2007)、科学的知見が集積されてきている。一方、人間活動に伴う窒素循環の変化については、本研究から明らかになったように、新生産に寄与する過程が近年になってようやく出揃ってきた段階であり、現状把握がまだできていない。そのため、海洋生態系がどのような応答をするのかについては、予測するのは困難な状況にある。近年、人間活動の影響による乾燥地帯の拡大や気候変化による早魃の増加によって、陸起源のダストの海洋への降下量が増大しているという報告が世界各海域でなされている(Prospero and Lamb, 2003; McConnell *et al.*, 2007)。熱帯・亜熱帯貧栄養海域における窒素固定活性が鉄欠乏によって制限を受けている可能性を考慮すると、同海域へのダスト降下量の増加によって窒素固定量も増加傾向にあっても不思議ではない。今後は本研究で挙げた新生産に関わる過程の観測密度を高めていくとともに、長期スケールの個々の過程の変動についても明らかにしていく必要がある。

謝 辞

査読者からいただいた有用なコメントに感謝する。本研究は日本学術振興会科学研究費補助金(18067006, 1903005)の助成を受けた。

References

- Achilles, K. M., T. M. Church, S. W. Wilhelm, G. W. Luther III, and D. A. Hutchins (2003): Bioavailability of iron to *Trichodesmium* colonies in the western subtropical Atlantic Ocean. *Limnol. Oceanogr.*, **48**, 2,250–2,255.
- Allen, C. B., J. Kanda, and E. A. Laws (1996): New production and photosynthetic rates within and outside a cyclonic mesoscale eddy in the North Pacific subtropical gyre. *Deep-Sea Res. I*, **43**, 917–936.
- Akimoto, H. (2003): Global air quality and pollution. *Science*, **302**, 1,716–1,719.
- Aufdenkampe, A. K., J. J. McCarthy, M. Rodier, C. Navarette, J. Dunne, and J. W. Murray, (2001): Esti-

- mation of new production in the tropical Pacific. *Glob. Biogeochem. Cycles*, **15**, 101–112.
- Babin, S. M., J. A. Carton, T. D. Dickey, and J. D. Wiggert (2004): Satellite evidence of hurricane-induced phytoplankton blooms in an oceanic desert. *J. Geophys. Res.*, **109**, doi:10.1029/2003JC001938.
- Beman, J. M., B. N. Popp, and C. A. Francis (2008): Molecular and biogeochemical evidence for ammonia oxidation by marine Crenarchaeota in the Gulf of California. *The ISME Journal*, **2**, 429–441.
- Benitez-Nelson, C. R., R. R. Bidigare, T. D. Dickey, R. Landry, C. L. Leonard, S. L. Brown, F. Nencioli, Y. M. Rii, K. Maiti, J. W. Becker, T. S. Bibby, W. Black, W.-J. Cai, C. A. Carlson, F. Chen, V. S. Kuwahara, C. Mahaffey, M. McAndrew, P. D. Quay, M. S. Rappe, K. E. Selph, M. P. Simmons, and E. J. Yang (2007): Mesoscale eddies drive increased silica export in the subtropical Pacific Ocean. *Science*, **316**, 1,017–1,021.
- Benitez-Nelson, C. R. and D. J. McGillicuddy Jr (2008): Mesoscale physical-biological-biogeochemical linkages in the open ocean: An introduction to the results of the E-Flux and EDDIES programs. *Deep-Sea Res. II*, **55**, 1,133–1,138.
- Berman-Frank, I., J. T. Cullen, Y. Shaked, R. M. Sherrell, and P. G. Falkowski (2001): Iron availability, cellular iron quotas, and nitrogen fixation in *Trichodesmium*. *Limnol. Oceanogr.*, **46**, 1,249–1,260.
- Berman-Frank, I., P. Lundgren, and P. G. Falkowski (2003): Nitrogen fixation and photosynthetic oxygen evolution in cyanobacteria. *Res. Microbiol.*, **154**, 157–164.
- Berman-Frank, I., A. Quigg, Z. V. Finkel, A. J. Irwin, and L. Haramaty (2007): Nitrogen-fixation strategies and Fe requirements in cyanobacteria. *Limnol. Oceanogr.*, **52**, 2,260–2,269.
- Breitbarth, E., A. Oschlies, and J. LaRoche (2007): Physiological constraints on the global distribution of *Trichodesmium*—effect of temperature on diazotrophy. *Biogeosciences*, **4**, 53–61.
- Bronk, D. A., P. M. Gilbert, and B. B. Ward (1994): Nitrogen uptake, dissolved organic nitrogen release, and new production. *Science*, **265**, 1,843–1,846.
- Bronk, D. A. (2002): Chapter 5, Dynamics of DON, p. 153–247. In *Biogeochemistry of Marine Dissolved Organic Matter*, edited by D. A. Hansell and C. A. Carlson, Elsevier Science, USA.
- Buesseler, K. O., C. R. Benitez-Nelson, S. B. Moran, A. Burd, M. Charette, J. K. Cochran, L. Copplola, N. S. Fisher, S. W. Fowler, W. D. Gardner, L. D. Guo, Ö. Gustafsson, C. Lamborg, P. Masque, J. C. Miquel, U. Passow, P. H. Santschi, N. Savoye, G. Stewart, and T. Trull (2006): An assessment of particulate organic carbon to thorium-234 ratios in the ocean and their impact on the application of ^{234}Th as a POC flux proxy. *Mar. Chem.*, **100**, 213–233.
- Capone, D. G., J. P. Zehr, H. W. Paerl, B. Bergman, and E. J. Carpenter (1997): *Trichodesmium*, a globally significant marine cyanobacterium. *Science*, **276**, 1,221–1,229.
- Capone, D. G., J. A. Burns, J. P. Montoya, A. Subramaniam, C. Mahaffey, T. Gunderson, A. F. Michaels, and E. J. Carpenter (2005): Nitrogen fixation by *Trichodesmium* spp.: An important source of new nitrogen to the tropical and subtropical North Atlantic Ocean. *Glob. Biogeochem. Cycles*, **19**, doi:10.1029/2004GB002331.
- Carlucci, A. F. and P. M. McNally (1969): Nitrification by marine bacteria in low concentrations of substrate and oxygen. *Limnol. Oceanogr.*, **14**, 736–739.
- Carpenter, E. J., G. R. Harbison, L. P. Madin, N. R. Swanberg, D. C. Biggs, E. M. Hulburt, V. L. McAlister, and J. J. McCarthy (1977): *Rhizosolenia* mats. *Limnol. Oceanogr.*, **22**, 739–741.
- Carpenter, E. J. (1983): Nitrogen fixation by marine *Oscillatoria* (*Trichodesmium*) in the world's Oceans, p. 65–103. In *Nitrogen in the Marine Environment*, edited by E. J. Carpenter and D. G. Capone, Academic Press, New York.
- Carpenter, E. J. and K. Romans (1991): Major role of the cyanobacterium *Trichodesmium* in nutrient cycling in the North Atlantic Ocean. *Science*, **254**, 1,356–1,358.
- Casciotti, K. L. and B. B. Ward (2005): Phylogenetic analysis of nitric oxide reductase gene homologues from aerobic ammonia-oxidizing bacteria. *FEMS Microbiol. Ecol.*, **52**, 197–205.
- Clark, D. R., A. P. Rees, and I. Joint (2008): Ammonium regeneration and nitrification rates in the oligotrophic Atlantic Ocean: Implications for new production estimates. *Limnol. Oceanogr.*, **53**, 52–62.
- Charette, M. A., S. B. Moran, and J. K. B. Bishop (1999): ^{234}Th as a tracer of particulate organic carbon export in the subarctic northeast Pacific Ocean. *Deep-Sea Res. II*, **46**, 2,833–2,861.
- Chen, Y.-L. L., H.-Y. Chen, S.-H. Tuo, and K. Ohki (2008): Seasonal dynamics of new production from *Trichodesmium* N_2 fixation and nitrate uptake in the upstream Kuroshio and South China Sea basin. *Limnol. Oceanogr.*, **53**, 1,705–1,721.
- Church, M. J., K. M. Björkman, D. M. Karl, M. A. Saito, and J. P. Zehr (2008): Regional distributions of nitrogen-fixing bacteria in the Pacific Ocean. *Limnol. Oceanogr.*, **53**, 63–77.
- Cipollini, P., D. Cromwell, P. G. Challenor, and S. Raffaglio (2001): Rossby waves detected in global ocean colour data. *Geophys. Res. Lett.*, **28**, 323–326.

- Codispoti, L. A. and J. P. Christensen (1985): Nitrification, denitrification and nitrous oxide cycling in the eastern tropical South Pacific Ocean. *Mar. Chem.*, **16**, 277–300.
- Cornell, S., A. Rendell, and T. Jickells (1995): Atmospheric inputs of dissolved organic nitrogen to the ocean. *Nature*, **376**, 243–246.
- Cornell, S. E., T. D. Jickells, J. N. Cape, A. P. Rowland, and R. A. Duce (2003): Organic nitrogen deposition on land and coastal environments: a review of methods and data. *Atmos. Environ.*, **37**, 2,173–2,191.
- Davis, C. S. and D. J. McGillicuddy Jr (2006): Transatlantic abundance of the N₂-fixing colonial cyanobacterium *Trichodesmium*, **312**, 1,517–1,520.
- DeLong, E. F (1992): Archaea in coastal marine environments. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA.*, **89**, 5,685–5,689.
- Deutsch, C., N. Gruber, R. M. Key, and J. L. Sarmiento (2001): Denitrification and N₂ fixation in the Pacific Ocean. *Glob. Biogeochem. Cycles*, **15**, 483–506.
- Deutsch, C., J. L. Sarmiento, D. M. Sigman, N. Gruber, and J. P. Dunne (2007): Spatial coupling of nitrogen inputs and losses in the ocean. *Nature*, **445**, 163–167.
- Dore, J. E. and D. M. Karl (1996): Nitrification in the euphotic zone as a source for nitrite, nitrate and nitrous oxide at Station ALOHA. *Limnol. Oceanogr.*, **41**, 1,619–1,628.
- Dore, J. E., J. R. Brum, L. M. Tupas, and D. M. Karl (2002): Seasonal and interannual variability in sources of nitrogen supporting export in the oligotrophic subtropical North Pacific Ocean. *Limnol. Oceanogr.*, **47**, 1,595–1,607.
- Dore, J. E., R. M. Letelier, M. J. Church, R. Lukas, and D. M. Karl (2008): Summer phytoplankton blooms in the oligotrophic North Pacific Subtropical Gyre: Historical perspective and recent observations. *Progr. Oceanogr.*, **76**, 2–38.
- Duce, R. A. (1986): The impact of atmospheric nitrogen, phosphorus, and iron species on marine biological productivity, p. 497–529. In *The role of air-sea exchange in geochemical cycling*, edited by P. Buat-Menard, D. Reidel. Pub. Co., France.
- Duce, R. A., P. S. Liss, J. T. Merrill, E. L. Atlas, P. Buat-Menard, B. B. Hicks, J. M. Miller, J. M. Prospero, R. Arimoto, T. M. Church, W. Ellis, J. N. Galloway, L. Hansen, T. D. Jickells, A. H. Knap, K. H. Reinhardt, B. Schneider, A. Soudine, J. J. Tokos, S. Tsunogai, R. Wollast, and M. Zhou (1991): The atmospheric input of trace species to the world ocean. *Glob. Biogeochem. Cycles*, **5**, 193–259.
- Duce, R. A., J. LaRoche, K. Altieri, K. R. Arrigo, A. R. Baker, D. G. Capone, S. Cornell, F. Dentener, J. Galloway, R. S. Ganeshram, R. J. Geider, T. Jickells, M. M. Kuypers, R. Langlois, P. S. Liss, S. M. Liu, J. J. Middelburg, C. M. Moore, S. Nickovic, A. Oschlies, T. Pedersen, J. Prospero, R. Schlitzer, S. Seitzinger, L. L. Sorensen, M. Uematsu, O. Ulloa, M. Voss, B. Ward, and L. Zamora (2008): Impacts of atmospheric anthropogenic nitrogen on the open ocean. *Science*, **320**, 893–897.
- Dugdale, R. C., D. W. Menzel, J. H. Ryther (1961): Nitrogen fixation in the Sargasso Sea. *Deep-Sea Res.*, **7**, 298–300.
- Dugdale, R. C. and J. J. Goering (1967): Uptake of new and regenerated forms of nitrogen in primary productivity. *Limnol. Oceanogr.*, **12**, 196–206.
- Dunne, J. P., J. W. Murray, M. Rodier, and D. A. Hansell (2000): Export flux in the western and central equatorial Pacific: zonal and temporal variability. *Deep-Sea Res. I*, **47**, 901–936.
- Dyhrman, S. T., E. A. Webb, D. M. Anderson, J. W. Moffett, and J. B. Waterbury (2002): Cell-specific detection of phosphorus stress in *Trichodesmium* from the Western North Atlantic. *Limnol. Oceanogr.*, **47**, 1,832–1,836.
- Dyhrman, S. T., P. D. Chappell, S. T. Haley, J. W. Moffett, E. D. Orchard, J. B. Waterbury, and E. A. Webb (2006): Phosphonate utilization by the globally important marine diazotroph *Trichodesmium*. *Nature*, **439**, 68–71.
- Elskens, M., N. Brion, K. Buesseler, B. A. S. Van Mooy, P. Boyd, F. Dehairs, N. Savoye, and W. Baeyens (2008): Primary, new and export production in the NW Pacific subarctic gyre during the vertigo K2 experiments. *Deep-Sea Res. II*, **55**, 1,594–1,604.
- Elsner, J. B., J. P. Kossin, and T. H. Jagger (2008): The increasing intensity of the strongest tropical cyclones. *Nature*, **455**, 92–95.
- Emanuel, K. (2005): Increasing destructiveness of tropical cyclones over the past 30 years. *Nature*, **436**, 686–688.
- Emerson, S., P. Quay, D. Karl, C. Winn, L. Tupas, and M. Landry (1997): Experimental determination of the organic carbon flux from open-ocean surface waters. *Nature*, **389**, 951–954.
- Eppley, R. W. and B. J. Peterson (1979): Particulate organic matter flux and planktonic new production in the deep ocean. *Nature*, **282**, 677–680.
- Eppley, R. W. and E. H. Renger (1988): Nanomolar increase in surface layer nitrate concentration following a small wind event. *Deep-Sea Res.*, **35**, 1,119–1,125.
- Falkowski, P. G., D. Ziemann, Z. Kolber, and P. K. Bienfang (1991): Role of eddy pumping in enhancing primary production in the ocean. *Nature*, **352**, 55–58.

- Falkowski, P. G. (1997): Evolution of the nitrogen cycle and its influence on the biological sequestration of CO₂ in the ocean. *Nature*, **387**, 272–275.
- Falkowski, P. G., R. J. Scholes, E. Boyle, J. Canadell, D. Canfield, J. Elser, N. Gruber, K. Hibbard, P. Högberg, S. Linder, F. T. Mackenzie, B. Moore III, T. Pedersen, Y. Rosenthal, S. Seitzinger, V. Smetacek, and W. Steffen (2000): The global carbon cycle: A test of our knowledge of Earth as a system. *Science*, **290**, 291–296.
- Falkowski, P. G., E. A. Laws, R. T. Barber, and J. W. Murray (2003): Phytoplankton and their role in primary, new, and export production, p. 99–121. In *Ocean Biogeochemistry*, edited by M. J. R. Fasham, Springer, New York.
- Fanning, K. A. (1989): Influence of atmospheric pollution on nutrient limitation in the ocean. *Nature*, **339**, 460–463.
- Feely, R. A., C. L. Sabine, K. Lee, W. Berelson, J. Kleypas, V. J. Fabry, and F. J. Millero (2004): Impact of anthropogenic CO₂ on the CaCO₃ system in the oceans. *Science*, **305**, 362–366.
- Fernández, C., P. Raimbault, N. Garcia, and P. Rimelin (2005): An estimation of annual new production and carbon fluxes in the northeast Atlantic Ocean during 2001. *J. Geophys. Res.*, **110**, doi:10.1029/2004JC002616.
- Fogg, G. E. and W. D. P. Stewart (1968): *In situ* determination of biological nitrogen fixation in Antarctica. *Br. Antarct. Surv. Bull.*, **15**, 1968.
- Francis, C. A., K. J. Roberts, J. M. Beman, A. E. Santoro, and B. B. Oakley (2005): Ubiquity and diversity of ammonia-oxidizing Archaea in water columns and sediments of the ocean. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, **102**, 14,683–14,688.
- Francis, C. A., J. M. Beman, and M. M. M. Kuypers (2007): New processes and players in the nitrogen cycle: the microbial ecology of anaerobic and archaeal ammonia oxidation. *The ISME Journal*, **1**, 19–27.
- Fuhrman, J. A., K. McCallum, and A. A. Davis (1992): Novel major archaeobacterial group from marine plankton. *Nature*, **356**, 148–149.
- Galloway, J. N., F. J. Dentener, D. G. Capone, E. W. Boyer, R. W. Howarth, S. P. Seitzinger, G. P. Asner, C. C. Cleveland, P. A. Green, E. A. Holland, D. M. Karl, A. F. Michaels, J. H. Porter, A. R. Townsend, and C. J. Vörösmarty (2004): Nitrogen cycles: Past, Present, and future. *Biogeochemistry*, **70**, 153–226.
- Garcia, N., P. Raimbault, and V. Sandroni (2007): Seasonal nitrogen fixation and primary production in the South west Pacific: nanoplankton diazotrophy and transfer of nitrogen to picoplankton organisms, *Mar. Ecol. Progr. Ser.*, **343**, 25–33.
- Glover, H. E., B. B. Prezelin, L. Campbell, M. Wyman, and C. Garside (1988): A nitrate-dependent *Synechococcus* bloom in surface Sargasso Sea water. *Nature*, **331**, 161–163.
- Goes, J. I., T. Saino, H. Oaku, J. Ishizaka, C. S. Wong, and Y. Nojiri (2000): Basin scale estimates of Sea Surface Nitrate and New Production from remotely sensed Sea Surface Temperature and Chlorophyll. *Geophys. Res. Lett.*, **27**, 1,263–1,266.
- Goreau, T. J., W. A. Kaplan, S. C. Wofsy, M. B. McElroy, F. W. Valois, and S. W. Watson (1980): Production of NO₂⁻ and N₂O by nitrifying bacteria at reduced concentrations of oxygen. *Appl. Environ. Microbiol.*, **40**, 526–532.
- Grabowski, M. N. W., M. J. Church, and D. M. Karl (2008): Nitrogen fixation rates and controls at Stn ALOHA. *Aquat. Microb. Ecol.*, **52**, 175–183.
- Gruber, N. and J. L. Sarmiento (1997): Global patterns of marine nitrogen fixation and denitrification. *Glob. Biogeochem. Cycles*, **11**, 235–266.
- Gruber, N. and J. N. Galloway (2008) An Earth-system perspective of the global nitrogen cycle. *Nature*, **451**, 293–296.
- Guerrero, M. A. and R. D. Jones (1996): Photoinhibition of marine nitrifying bacteria. *I. Wavelength-dependent response Mar. Ecol. Progr. Ser.*, **141**, 183–192.
- Gundersen, K. R., J. S. Corbin, C. L. Hanson, M. L. Hanson, R. B. Hanson, D. J. Russell, A. Stollar, and O. Yamada (1976): Structure and biological dynamics of oligotrophic ocean photic zone off Hawaiian-Islands. *Pacif. Sci.*, **30**, 45–68.
- Hallam, S. J., T. J. Mincer, C. Schleper, C. M. Preston, K. Roberts, P. M. Richardson, and E. F. DeLong (2006): Pathways of carbon assimilation and ammonia oxidation suggested by environmental genomic analysis of marine *Crenarchaeota*. *PLoS Biol.*, **4**, 520–536.
- Harrison, W. G., L. R. Harris, and B. D. Irwin (1996): The kinetics of nitrogen utilization in the oceanic mixed layer: Nitrate and ammonium interactions at nanomolar concentrations. *Limnol. Oceanogr.*, **41**, 16–32.
- Hashihama, F., K. Furuya, S. Kitajima, S. Takeda, T. Takemura, and J. Kanda (2009): Macro-scale exhaustion of surface phosphate by dinitrogen fixation in the western North Pacific. *Geophys. Res. Lett.*, **36**, doi:10.1029/2008GL036866.
- Holl, C. M. and J. P. Montoya (2005): Interactions between nitrate uptake and nitrogen fixation in continuous cultures of the marine diazotroph *Trichodesmium* (Cyanobacteria). *J. Phycol.*, **41**, 1,178–1,183.
- Holligan, P. M., R. D. Pingree, and G. T. Mardell (1985) Oceanic solitons, nutrient pulses and phytoplankton growth. *Nature*, **314**, 348–350.

- Hutchins, D. A., A. E. Witter, A. Butler, and G. W. Luther III (1999): Competition among marine phytoplankton for different chelated iron species. *Nature*, **400**, 858–861.
- Huthnance, J. M. (1989): Internal tides and waves near the continental shelf edge. *Geophys. Astrophys. Fluid.*, **48**, 81–106.
- Isobe, A. and T. Matsuno (2008): Long-distance nutrient-transport process in the Changjiang river plume on the East China Sea shelf in summer. *J. Geophys. Res.*, **113**, doi:10.1029/2007JC004248.
- IPCC (2007): Climate Change 2007 -The Physical Science Basis-, Cambridge University Press.
- Ittekkot, V., P. Schafer, S. Honjo, and P. J. Depetris (1996): *Particle Flux in the Ocean*, John Wiley & Sons Ltd, England.
- Jenkins, W. J. (1982): Oxygen utilization rates in North Atlantic subtropical gyre and primary production in oligotrophic systems. *Nature*, **300**, 246–248.
- Jenkins, W. J. and J. C. Goldman (1985): Seasonal oxygen cycling and primary production in the Sargasso Sea. *J. Mar. Res.*, **43**, 465–491.
- Jenkins, W. J. (1988): Nitrate flux into the euphotic zone near Bermuda. *Nature*, **331**, 521–523.
- Jickells, T. D., Z. S. An, K. K. Andersen, A. R. Baker, G. Bergametti, N. Brooks, J. J. Cao, P. W. Boyd, R. A. Duce, K. A. Hunter, H. Kawahata, N. Kubilay, J. LaRoche, P. S. Liss, N. Mahowald, J. M. Prospero, A. J. Ridgwell, I. Tegen, and R. Torres (2005): Global iron connections between desert dust, ocean biogeochemistry, and Climate. *Science*, **308**, 67–71.
- Jickells, T. D. (2006) The role of air-sea exchange in the marine nitrogen cycle. *Biogeosciences*, **3**, 271–280.
- Kanda, J., T. Itoh, D. Ishikawa, and Y. Watanabe (2003): Environmental controls of nitrate uptake in the East China Sea. *Deep-Sea Res. II*, **50**, 403–422.
- Kanda, J. (2008): Vertical profiles of nitrate uptake obtained from *in situ* ¹⁵N incubation experiments in the western North Pacific. *J. Mar. Syst.*, **71**, 63–78.
- Kaplan, W. A. (1983): Nitrification, p. 139–190. In *Nitrogen in the Marine Environment*, edited by E. J. Carpenter and D. G. Capone, Academic Press, New York.
- Karl, D. M., R. Letelier, D. V. Rebel, D. F. Bird, and C. D. Winn (1992): *Trichodesmium* blooms and new nitrogen in the North Pacific gyre, p. 219–237. In *Marine Pelagic Cyanobacteria: Trichodesmium and other diazotrophs*, edited by E. J. Carpenter, D. G. Capone and J. G. Rueter, Kluwer Academic Publishers, The Netherlands.
- Karl, D. M., R. Letelier, L. Tupas, J. Dore, J. Christian, and D. Hebel (1997): The role of nitrogen fixation in biogeochemical cycling in the subtropical North Pacific Ocean. *Nature*, **388**, 533–538.
- Karl, D. M. (1999): A sea of change: biogeochemical variability in the North Pacific Subtropical Gyre. *Ecosystems*, **2**, 181–214.
- Karl, D. M., A. Michaels, B. Bergman, D. Capone, E. Carpenter, R. Letelier, F. Lipschultz, H. Paerl, D. Sigman, and L. Stal (2002): Dinitrogen fixation in the world's oceans. *Biogeochemistry*, **57/58**, 47–98.
- Karl, D. M. (2007): The marine phosphorus cycle, p. 523–539. In *Manual of Environmental Microbiology third edition*, edited by C. J. Hurst, R. L. Crawford, A. L. Mills, J. L. Garland, L. D. Stetzenbach, D. A. Lipson, ASM-Press, Washington.
- Karner, M. B., E. F. DeLong, and D. M. Karl (2001): Archaeal dominance in the mesopelagic zone of the Pacific Ocean, *Nature*, **409**, 507–510.
- Kawakami, H. and M. C. Honda (2007): Time-series observation of POC fluxes estimated from ²³⁴Th in the northwestern North Pacific (2007): *Deep-Sea Res. I*, **54**, 1,070–1,090.
- Kemp, A. E. S., R. B. Pearce, I. Grigorov, J. Rance, C. B. Lange, P. Quilty, and I. Salter (2006): Production of giant marine diatoms and their export at oceanic frontal zones: Implications for Si and C flux from stratified oceans. *Glob. Biogeochem. Cycles*, **20**, doi:10.1029/2006GB002698.
- Kitajima, S. K. Furuya, F. Hashihama, S. Takeda, and J. Kanda (2009): Latitudinal distribution of diazotrophs and their nitrogen fixation in the tropical and subtropical western North Pacific. *Limnol. Oceanogr.*, **54**, 537–547.
- 近藤 能子 (2007): 太平洋における鉄有機配位子と植物プランクトン群集の動態に関する研究. 東京大学博士論文
- 近藤 豊 (2002): 窒素酸化物, p. 75–87, In 対流圏大気の化学と地球環境, 秋元 肇・川村 公隆・中澤 高清・鷺田 伸明編, 学会出版センター, 東京.
- Könneke, M., A. E. Bernhard, J. R. de la Torre, C. B. Walker, J. B. Waterbury, and D. A. Stahl (2005): Isolation of an autotrophic ammonia-oxidizing marine archaeon. *Nature*, **437**, 543–546.
- Knap, A. H., T. Jickells, A. Pszeny, and J. Galloway (1986): Significance of atmospheric-derived nitrogen on productivity of the Sargasso Sea, *Nature*, **320**, 158–160.
- Knap, A. H., A. F. Michaels, R. L. Dow, R. J. Johnson, K. Gundersen, J. C. Sorensen, A. R. Close, F. Howse, M. Hammer, N. Bates, A. Doyle, and T. Waterhouse (1993): BATS Methods Manual. U.S. JGOFS Planning Office, Woods Hole, MA.

- Krishnamurthy, A., J. K. Moore, C. S. Zender, and C. Luo (2007): Effects of atmospheric inorganic nitrogen deposition on ocean biogeochemistry. *J. Geophys. Res.*, **112**, doi:10.1029/2006JG000334.
- Kustka, A., E. J. Carpenter, and S. A. Sañudo-Wilhelmy (2002): Iron and marine nitrogen fixation: progress and future directions. *Res. Microbiol.*, **153**, 255–262.
- Kustka, A., S. A. Sañudo-Wilhelmy, E. J. Carpenter, D. Capone, J. Burns, and W. G. Sunda (2003): Iron requirements for dinitrogen- and ammonium-supported growth in cultures of *Trichodesmium* (IMS 101): Comparison with nitrogen fixation rates and iron: carbon ratios of field populations. *Limnol. Oceanogr.*, **48**, 1,869–1,884.
- Langlois, R. J., D. Hümmer, and J. LaRoche (2008): Abundances and distributions of the dominant nifH phylotypes in the Northern Atlantic Ocean. *Appl. Environ. Microbiol.*, **74**, 1,922–1,931.
- Laws, E. A., P. G. Falkowski, W. O. Smith Jr, H. Ducklow, and J. J. McCarthy, J.J. (2000): Temperature effects on export production in the open ocean. *Glob. Biogeochem. Cycles*, **14**, 1,231–1,246.
- Ledwell, J. R., A. J. Watson, and C. S. Law (1993): Evidence for slow mixing across the pycnocline from an open-ocean tracer-release experiment. *Nature*, **364**, 701–703.
- Lee, K. (2001): Global net community production estimated from the annual cycle of surface water total dissolved inorganic carbon. *Limnol. Oceanogr.* **46**, 1,287–1,297.
- Lee, K., D. M. Karl, R. Wanninkhof, and J.-Z. Zhang (2002): Global estimates of net carbon production in the nitrate-depleted tropical and subtropical oceans. *Geophys. Res. Lett.*, **29**, doi:10.1029/2001GL014198.
- Lenes, J. M., B. P. Darrow, C. Cattrall, C. A. Heil, M. Callahan, G. A. Vargo, R. H. Byrne, J. M. Prospero, D. E. Bates, K. A. Fanning, and J. J. Walsh (2001): Iron fertilization and the *Trichodesmium* response on the West Florida shelf. *Limnol. Oceanogr.*, **46**, 1,261–1,277.
- Lewis, M. R., W. G. Harrison, N. S. Oakey, D. Hebert, and T. Platt (1986): Vertical nitrate fluxes in the oligotrophic ocean. *Science*, **234**, 870–873.
- Lin, I., T. Tiu, C.-C. Wu, G. T. F. Wong, C. Hu, Z. Chen, W.-D. Liang, Y. Yang, and K.-K. Liu (2003): New evidence for enhanced ocean primary production triggered by tropical cyclone. *Geophys. Res. Lett.*, **30**, doi:10.1029/2003GL017141.
- Lipschultz, F., S. C. Wofsy, and L. E. Fox (1986): Nitrogen metabolism of the eutrophic Delaware River ecosystem. *Limnol. Oceanogr.*, **31**, 701–716.
- Lipschultz, F., S. C. Wofsy, B. B. Ward, L. A. Codispoti, G. Friedrich, and J. W. Elkins (1990): Bacterial transformations of inorganic nitrogen in the oxygen-deficient waters of the Eastern Tropical South Pacific Ocean. *Deep-Sea Res.*, **37**, 1,513–1,541.
- Lipschultz, F. and N. J. P. Owens (1996): An assessment of nitrogen fixation as a source of nitrogen to the North Atlantic Ocean. *Biogeochemistry*, **35**, 261–274.
- Lipschultz, F. (2001): A time-series assessment of the nitrogen cycle at BATS. *Deep-Sea Res. II*, **48**, 1,897–1,924.
- Lipschultz, F., N. R. Bates, C. A. Carlson, and D. A. Hansell (2002): New production in the Sargasso Sea: History and current status. *Glob. Biogeochem. Cycles*, **16**, doi:10.1029/2000GB001319.
- Lomas, M. W. and F. Lipschultz (2006): Forming the primary nitrite maximum: Nitrifiers or phytoplankton?. *Limnol. Oceanogr.*, **51**, 2,453–2,467.
- Lueck, R. G., F. Wolk, and H. Yamazaki (2002): Oceanic velocity microstructure measurements in the 20th century. *J. Oceanogr.*, **58**, 153–174.
- Mague, T. H., N. M. Weare, and O. Holm-Hansen (1974): Nitrogen fixation in the North Pacific Ocean. *Mar. Biol.*, **24**, 109–119.
- Mague, T. H., F. C. Mague, and O. Holm-Hansen (1977): Physiology and chemical composition of nitrogen-fixing phytoplankton in the Central North Pacific Ocean. *Mar. Biol.*, **41**, 213–227.
- Marshall, J. and F. Schott (1999): Open-ocean convection: observations, theory, and models. *Rev. Geophys.*, **37**, 1–64.
- Martin, A. P. and P. Pondaven (2003): On estimates for the vertical nitrate flux due to eddy pumping. *J. Geophys. Res.*, **108**, doi:10.1029/2003JC001841.
- Martin, A. P. and P. Pondaven (2006): New primary production and nitrification in the western subtropical North Atlantic: A modeling study. *Glob. Biogeochem. Cycles*, **20**, doi:10.1029/2005GB002608.
- Matsuno, T., J.-S. Lee, M. Shimizu, S.-H. Kim, and I.-C. Pang (2006): Measurements of the turbulent energy dissipation rate ϵ and an evaluation of the dispersion process of the Changjian Diluted Water in the East China Sea. *J. Geophys. Res.*, **111**, doi:10.1029/2005JC003196.
- McCarthy, J. J. and E. J. Carpenter (1983): Nitrogen cycling in nearsurface waters of the open ocean, p. 487–512. In *Nitrogen in the Marine Environment*, edited by E. J. Carpenter and D. G. Capone, Academic Press, New York.
- McCarthy, J. J., W. Kaplan, and J. L. Nevins (1984): Sources and sinks of nitrite in the water column of

- the York River and the Chesapeake Bay. *Limnol. Oceanogr.*, **29**, 84–98.
- McCarthy, J. J., C. Garside, and J. L. Nevins (1999): Nitrogen dynamics during the Arabian Sea Northeast Monsoon. *Deep-Sea Res. I*, **46**, 1,623–1,664.
- McConnell, J.R., A. J. Arístarain, J. R. Banta, P. R. Edwards, and J. C. Simões (2007): 20th-Century doubling in dust archived in an Antarctic Peninsula ice core parallels climate change and desertification in South America. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA.*, **104**, 5,743–5,748.
- McGillicuddy Jr, D. J. and A. R. Robinson (1997): Eddy-induced nutrient supply and new production in the Sargasso Sea. *Deep-Sea Res. I*, **44**, 1,427–1,450.
- McGillicuddy Jr, D. J., A. R. Robinson, D. A. Siegel, H. W. Jannasch, R. Johnson, T. D. Dickey, J. McNeil, A. F. Michaels, and A. H. Knap (1998): Influence of mesoscale eddies on new production in the Sargasso Sea. *Nature*, **394**, 263–266.
- McGillicuddy Jr, D. J., R. Johnson, D. A. Siegel, A. F. Michaels, N. R. Bates, and A. H. Knap (1999): Mesoscale variations of biogeochemical properties in the Sargasso Sea. *J. Geophys. Res.*, **104**, 13,381–13,394.
- McGillicuddy Jr, D. J., L. A. Anderson, N. R. Bates, T. Bibby, K. O. Buesseler, C. A. Carlson, C. S. Davis, C. Ewart, P. G. Falkowski, S. A. Goldthwait, D. A. Hansell, W. J. Jenkins, R. Johnson, V. K. Kosnyrev, J. R. Ledwell, Q. P. Li, D. A. Siegel, and D. K. Steinberg (2007): Eddy/wind interactions stimulate extraordinary mid-ocean plankton blooms. *Science*, **316**, 1,021–1,026.
- Mehta, M. P. and J. A. Baross (2006): Nitrogen fixation at 92°C by a hydrothermal vent archaeon. *Science*, **314**, 1,783–1,786.
- Menzel, D. W. and J. H. Ryther (1960): The annual cycle of primary production in the Sargasso Sea off Bermuda. *Deep-Sea Res.*, **6**, 351–367.
- Menzel, D. W. and J. H. Ryther (1961): Annual variations in primary production of the Sargasso Sea off Bermuda. *Deep-Sea Res.*, **7**, 282–288.
- Michaels, A. F., D. A. Siegel, R. J. Johnson, A. H. Knap, and J. N. Galloway (1993): Episodic inputs of atmospheric nitrogen to the Sargasso Sea: contributions to new production and phytoplankton blooms. *Glob. Biogeochem. Cycles*, **7**, 339–351.
- Michaels, A. F., A. H. Knap, R. L. Dow, K. Gundersen, R. J. Johnson, J. Sorensen, A. Close, G. A. Knauer, S. E. Lohrenz, V. A. Asper, M. Tuel, and R. Bidigare (1994): Seasonal patterns of ocean biogeochemistry at the U.S. JGOFS Bermuda Atlantic Time-series Study site. *Deep-Sea Res. I*, **41**, 1,013–1,038.
- Mills, M. M., C. Ridame, M. Davey, J. LaRoche, and R. J. Geider (2004): Iron and phosphorus co-limit nitrogen fixation in the eastern tropical North Atlantic. *Nature*, **429**, 292–294.
- Miyazaki, T., E. Wada, and A. Hattori (1973): Capacities of shallow waters of Sagami Bay for oxidation and reduction of inorganic nitrogen. *Deep-Sea Res.*, **20**, 571–577.
- Miyazaki, T., E. Wada, and A. Hattori (1975): Nitrite production from ammonia and nitrate in the euphotic layer of the Western North Pacific Ocean. *Mar. Sci. Comm.*, **1**, 381–394.
- Montoya, J. P., C. M. Holl, J. P. Zehr, A. Hansen, T. A. Villareal, and D. G. Capone (2004): N₂ fixation by unicellular diazotrophs in the oligotrophic Pacific Ocean. *Nature*, **430**, 1,027–1,031.
- Moore, J. K., S. C. Doney, and K. Lindsay (2004): Upper ocean ecosystem dynamics and iron cycling in a global three-dimensional model. *Glob. Biogeochem. Cycles*, **18**, doi:10.1029/2004GB002220.
- Moore, J. K., S. C. Doney, D. M. Glover, and I. Y. Fung (2006): Iron cycling and nutrient-limitation patterns in surface waters of the World Ocean. *Deep-Sea Res. II*, **49**, 463–507.
- Moutin, T., N. Van Den Broeck, B. Beker, C. Dupouy, P. Rimmelin, and A. Le Bouteiller (2005): Phosphate availability controls *Trichodesmium* spp. Biomass in the SW Pacific Ocean. *Mar. Ecol. Progr. Ser.*, **297**, 15–21.
- Mulholland, M. R., K. Ohki, and D. G. Capone (2001): Nutrient controls on nitrogen uptake and metabolism by natural populations and cultures of *Trichodesmium* (Cyanobacteria). *J. Phycol.*, **37**, 1,001–1,009.
- Murray, J. W., J. N. Downs, S. Strom, C.-L. Wei, and H. W. Jannasch (1989): Nutrient assimilation, export production and ²³⁴Th scavenging in the eastern equatorial Pacific. *Deep-Sea Res.*, **36**, 1471–1489.
- Needoba, J. A., R. A. Foster, C. Sakamoto, J. P. Zehr, and K. S. Johnson (2007): Nitrogen fixation by unicellular diazotrophic cyanobacteria in the temperate oligotrophic North Pacific Ocean. *Limnol. Oceanogr.*, **52**, 1,317–1,327.
- Nevison, C., J. H. Butler, and J. W. Elkins (2003): Global distribution of N₂O and the ΔN₂O-AOU yield in the subsurface ocean. *Glob. Biogeochem. Cycles*, **17**, doi:10.1029/2003GB002068.
- 野崎 義行 (1994): 地球温暖化と海-炭素の循環から探る. 東京大学出版会.
- Ohlendorf, U., K. Gundersen, M. Meyerhöfer, P. Fritsche, K. Nachtigall, and B. Bergmann (2007): The significance of nitrogen fixation to new production during early summer in the Baltic Sea. *Biogeosciences*, **4**, 63–73.

- Olson, R. J. (1981a): ^{15}N tracer studies of the primary nitrite maximum. *J. Mar. Res.*, **39**, 203–226.
- Olson, R. J. (1981b): Differential photoinhibition of marine nitrifying bacteria: a possible mechanism for the formation of the primary nitrite maximum. *J. Mar. Res.*, **39**, 227–238.
- O'Mullan, G. D. and B. B. Ward (2005): Relationship of temporal and spatial variabilities of ammonia-oxidizing bacteria to nitrification rates in Monterey Bay, California. *Appl. Environ. Microbiol.*, **71**, 697–705.
- Orcutt, K. M., F. Lipschultz, K. Gundersen, R. Arimoto, A. F. Michaels, A. H. Knap, and J. R. Gallon (2001): A seasonal study of the significance of N_2 fixation by *Trichodesmium* spp. At the Bermuda Atlantic Time-series Study (BATS) site. *Deep-Sea Res. II*, **48**, 1,583–1,608.
- Osborn, T. R. (1980): Estimates of the local rate of vertical diffusion from dissipation measurements. *J. Phys. Oceanogr.*, **10**, 83–89.
- Oschlies, A. and V. Garçon (1998): Eddy-induced enhancement of primary production in a model of the North Atlantic Ocean. *Nature*, **394**, 266–269.
- Owens, N. J. P., J. N. Galloway, and R. A. Duce (1992): Episodic atmospheric nitrogen deposition to oligotrophic oceans. *Nature*, **357**, 397–399.
- Paerl, H. W., L. E. Prufert-Bebout, and C. Guo (1994): Iron-stimulated N_2 fixation and growth in natural and cultured populations of the planktonic marine cyanobacteria *Trichodesmium* spp. *Appl. Environ. Microbiol.*, **60**, 1,044–1,047.
- Pahlow, M. and U. Riebesell (2000): Temporal trends in deep ocean Redfield ratios. *Science*, **287**, 831–833.
- Planas, D., S. Agustí, C. M. Duarte, T. C. Granata, and M. Merino (1999): Nitrate uptake and diffusive nitrate supply in the Central Atlantic. *Limnol. Oceanogr.*, **44**, 116–126.
- Price, J. F. (1981): Upper Ocean Response to a Hurricane. *J. Phys. Oceanogr.*, **11**, 153–175.
- Prospero, J. M. and P. J. Lamb (2003): African droughts and dust transport to the Caribbean: climate change implications. *Science*, **302**, 1,024–1,027.
- Quinn, P. K., R. J. Charlson, and T. S. Bates (1988): Simultaneous Observations of ammonia in the atmosphere and ocean. *Nature*, **335**, 336–338.
- Quinn, P. K., K. J. Barrett, F. J. Dentener, F. Lipschultz, and K. D. Six (1996): Estimation of the air/sea exchange of ammonia for the North Atlantic basin. *Biogeochemistry*, **35**, 275–304.
- Raes, F., R. V. Dingenen, E. Vignati, J. Wilson, J.-P. Putaud, J. H. Seinfeld, and P. Adams (2000): Formation and cycling of aerosols in the global troposphere. *Atmos. Environ.*, **34**, 4,215–4,240.
- Raimbault, P., G. Slawyk, B. Boudjellal, C. Coatanoan, P. Conan, B. Coste, N. Garcia, T. Moutin, and M. Pujo-Pay (1999): Carbon and nitrogen uptake and export in the equatorial Pacific at 150°W : evidence of an efficient regenerated production cycle. *J. Geophys. Res.*, **104**, 3,341–3,356.
- Raimbault, P. and N. Garcia (2008): Evidence for efficient regenerated production and dinitrogen fixation in nitrogen-deficient waters of the South Pacific Ocean: impact on new and export production estimates. *Bio-geosciences*, **5**, 323–338.
- Ramos, A. G., A. Martel, G. A. Codd, E. Soler, J. Coca, A. Redondo, L. F. Morrison, J. S. Metcalf, A. Ojeda, S. Suarez, and M. Petit (2005): Bloom of the marine diazotrophic cyanobacterium *Trichodesmium erythraeum* in the Northwest African Upwelling. *Mar. Ecol. Progr. Ser.*, **301**, 303–305.
- Raven, J. A. (1988): The iron and molybdenum use efficiencies of plant growth with different energy, carbon and nitrogen sources. *New Phytol.*, **109**, 279–287.
- Rees, A. P., M. Woodward, and I. Joint (2006): Concentrations and uptake of nitrate and ammonium in the Atlantic Ocean between 60°N and 50°S . *Deep-Sea Res. II*, **53**, 1,649–1,665.
- Richardson, P. L. (1993): A census of eddies observed in North Atlantic SOFAR float data. *Prog. Oceanogr.*, **31**, 1–50.
- Sabine, C. L., R. A. Feely, N. Gruber, R. M. Key, K. Lee, J. L. Bullister, R. Wanninkhof, C. S. Wong, D. W. R. Wallace, B. Tilbrook, F. J. Millero, T.-H. Peng, A. Kozyr, T. Ono, and A. F. Rios (2004): The oceanic sink for anthropogenic CO_2 . *Science*, **305**, 367–371.
- Saino, T. (1977): Biological nitrogen fixation in the ocean with emphasis on the nitrogen fixing blue-green alga, *Trichodesmium*, and its significance in the nitrogen cycle in the low latitude sea areas. Ph.D. Thesis, Univ. Tokyo.
- Sampe, T. and S. P. Xie (2007): Mapping high sea winds from space: A global climatology. *Bull. Am. Meteorol. Soc.*, **88**, 1,965–1,978.
- Sañudo-Wilhelmy, S. A., A. B. Kustka, C. J. Gobler, D. A. Hutchins, M. Yang, K. Lwiza, J. Burns, D. G. Capone, J. A. Raven, and E. J. Carpenter (2001): Phosphorus limitation of nitrogen fixation by *Trichodesmium* in the central Atlantic Ocean. *Nature*, **411**, 66–69.
- Sathyendranath, S., T. Platt, E.P.W. Horne, W.G. Harrison, O. Ulloa, R. Outerbridge, and N. Hoepffner (1991): Estimation of new production in the ocean by compound remote sensing. *Nature*, **353**, 129–133.
- Sharples, J., C. M. Moore, and E. R. Abraham (2001): Internal tide dissipation, mixing, and vertical nitrate flux at the shelf edge of NE New Zealand. *J. Geophys. Res.*, **106**, 14,069–14,081.

- Sharples, J., J. F. Tweddle, J. A. M. Green, M. R. Palmer, Y.-N. Kim, A. E. Hickman, P. M. Holligan, C. M. Moore, T. P. Rippeth, J. H. Simpson, and V. Krivtsov (2007): Spring-neap modulation of internal tide mixing and vertical nitrate fluxes at a shelf edge in summer. *Limnol. Oceanogr.*, **52**, 1,735–1,747.
- Shiozaki, T., K. Furuya, T. Kodama, and S. Takeda (in press): Contribution of N₂ fixation to new production in the western North Pacific along 155°E. *Mar. Ecol. Progr. Ser.*, **377**, 19–32.
- Siegel, D. A., D. J. McGillicuddy Jr., E. A. Fields (1999): Mesoscale eddies, satellite altimetry, and new production in the Sargasso Sea. *J. Geophys. Res.*, **104**, 13,359–13,379.
- Singler, H. R. and T. A. Villareal (2005): Nitrogen inputs into the euphotic zone by vertically migrating *Rhizosolenia* mats. *J. Plank. Res.*, **27**, 545–556.
- Siswanto, E., J. Ishizaka, K. Yokouchi, K. Tanaka, and C. K. Tan (2007): Estimation of interannual and interdecadal variations of typhoon-induced primary production: A case study for the outer shelf of the East China Sea. *Geophys. Res. Lett.*, **34**, doi:10.1029/2006GL028368.
- Smith, R. J. and J. R. Gallon (1999): Nitrogen fixation, p. 129–153. In *Plant Biochemistry and Molecular Biology*, edited by P. J. Lea and R. C. Leegood, Wiley, England.
- Spokes, L. J., S. G. Yeatman, S. G. Cornell, and T. D. Jickells (2000): Nitrogen deposition to the eastern Atlantic Ocean: the importance of southeasterly flow. *Tellus*, **52B**, 37–49.
- Spokes, L. J. and T. D. Jickells (2005): Is the atmosphere really an important source of reactive nitrogen to coastal waters? *Continental Shelf Res.*, **25**, 2,022–2,035.
- Staal, M., F. J. R. Meysman, and L. J. Stal (2003): Temperature excludes N₂-fixing heterocystous cyanobacteria in the tropical oceans. *Nature*, **425**, 504–507.
- Staal, M., S. L. Hekkert, G. J. Brummer, M. Veldhuis, C. Sikkens, S. Persijn, and L. J. Stal (2007): Nitrogen fixation along a north-south transect in the east Atlantic Ocean. *Limnol. Oceanogr.*, **52**, 1,305–1,316.
- Subramaniam, A., E. J. Carpenter, D. Karentz, and P. G. Falkowski (1999a): Bio-optical properties of the marine diazotrophic cyanobacteria *Trichodesmium* spp. I. Absorption and photosynthetic action spectra. *Limnol. Oceanogr.*, **44**, 608–617.
- Subramaniam, A., E. J. Carpenter, and P. G. Falkowski (1999b): Bio-optical properties of the marine diazotrophic cyanobacteria *Trichodesmium* spp. II. A reflectance model for remote sensing. *Limnol. Oceanogr.*, **44**, 618–627.
- Subramaniam, A., C. W. Brown, R. R. Hood, E. J. Carpenter, and D. G. Capone (2002): Detecting *Trichodesmium* blooms in SeaWiFS imagery. *Deep-Sea Res. II*, **49**, 107–121.
- Subramaniam, A., P. L. Yager, E. J. Carpenter, C. Mahaffey, K. Björkman, S. Cooley, A.B. Kustka, J. P. Montoya, S. A. Sañudo-Wilhelmy, R. Shipe, and D. G. Capone (2008): Amazon River enhances diazotrophy and carbon sequestration in the tropical North Atlantic Ocean. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, **105**, 10,460–10,465.
- Sutka, R. L., N. E. Ostrom, P. H. Ostrom, and M. S. Phanikumar (2004): Stable nitrogen isotope dynamics of dissolved nitrate in a transect from the North Pacific Subtropical Gyre to the Eastern Tropical North Pacific. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **68**, 517–527.
- Suzumura, M. and E. D. Ingall (2004): Distribution and dynamics of various forms of phosphorus in seawater: insights from field observations in the Pacific Ocean and a laboratory experiment. *Deep-Sea Research I*, **51**, 1,113–1,130.
- Turk, D., M. J. McPhaden, A. J. Busalacchi, and M. R. Lewis (2001): Remotely sensed biological production in the equatorial Pacific. *Science*, **293**, 471–474.
- Tyrrell, T. (1999): The relative influences of nitrogen and phosphorus on oceanic primary production. *Nature*, **400**, 525–531.
- Uz, B. M., J. A. Yoder, and V. Osychny (2001): Pumping of nutrients to ocean surface waters by the action of propagating planetary waves. *Nature*, **409**, 597–600.
- Venrick, E. L. (1974): The distribution and significance of *Richelia intracellularis* Schmidt in the North Pacific Central Gyre. *Limnol. Oceanogr.*, **19**, 437–445.
- Villareal, T. A. (1992): Marine nitrogen-fixing diatom-cyanobacteria symbioses, p. 163–175. In *Marine Pelagic Cyanobacteria: Trichodesmium and the other Diazotrophs*, edited by E. J. Carpenter, D. G. Capone, and J. G. Rueter, Kluwer Academic Publishers, The Netherlands.
- Villareal, T. A., M. A. Altabet, and K. Culver-Rymsza (1993): Nitrogen transport by vertically migrating diatom mats in the North Pacific Ocean. *Nature*, **363**, 709–712.
- Villareal, T. A. and F. Lipschultz (1995): Internal nitrate concentrations in single cells of large phytoplankton from the Sargasso Sea. *J. Phycol.*, **31**, 689–696.
- Villareal, T. A., C. Pilskaln, M. Brzezinski, F. Lipschultz, M. Dennett, and G. B. Gardner (1999): Upward transport of oceanic nitrate by migrating diatom mats. *Nature*, **397**, 423–425.
- Voss, M., D. Bombar, N. Loick, and J. W. Dippner (2006): Riverine influence on nitrogen fixation in the upwelling

- region off Vietnam, South China Sea. *Geophys. Res. Lett.*, **33**, doi:10.1029/2005GL025569.
- Wada, E. and A. Hattori (1971): Nitrite metabolism in the euphotic layer of the central North Pacific Ocean. *Limnol. Oceanogr.*, **16**, 766–772.
- Wada, E. and A. Hattori (1972): Nitrite distribution and nitrate reduction in deep seawaters. *Deep-Sea Res.*, **19**, 123–132.
- Wada, E. and A. Hattori (1991): *Nitrogen in the sea: Forms, Abundances, and Rate Processes*. CRC Press, Florida.
- Walker, N. D., R. R. Leben, and S. Balasubramanian (2005): Hurricane-forced upwelling and chlorophyll a enhancement within cold-core cyclones in the Gulf of Mexico. *Geophys. Res. Lett.*, **32**, doi:10.1029/2005GL023716.
- Wang, X., J. R. Christian, R. Murtugudde, and A. J. Busalacchi (2006): Spatial and temporal variability in new production in the equatorial Pacific during 1980–2003: Physical and biogeochemical controls. *Deep-Sea Res. II*, **53**, 677–697.
- Ward, B. B., M. C. Talbot, and M. J. Perry (1984): Contributions of phytoplankton and nitrifying bacteria to ammonium and nitrite dynamics in coastal waters. *Continental Shelf Res.*, **3**, 383–398.
- Ward, B. B. (1985): Light and substrate concentration relationships with marine ammonium assimilation and oxidation rates. *Mar. Chem.*, **16**, 301–316.
- Ward, B. B. (1987): Nitrogen transformations in the Southern California Bight. *Deep-Sea Res.*, **34**, 785–805.
- Ward, B. B., K. A. Kilpatrick, E. H. Renger, and R. W. Eppley (1989): Biological nitrogen cycling in the nitracline. *Limnol. Oceanogr.*, **34**, 493–513.
- Ward, B. B. and D. A. Bronk (2001): Net nitrogen uptake and DON release in surface waters: importance of trophic interactions implied from size fractionation experiments. *Mar. Ecol. Progr. Ser.*, **219**, 11–24.
- Ward, B. B. (2002): Nitrification in aquatic systems, p. 2,144–2,167. In *Encyclopedia of Environmental Microbiology*, edited by D. A. Capone, Wiley, New York.
- Ward, B. B., D. G. Capone, and J. P. Zehr (2007): What's new in the nitrogen cycle? *Oceanography*, **20**, 101–109.
- Watson, S. W. (1965): Characteristics of a marine nitrifying bacterium, *Nitrosocystis oceanus* sp. N. *Limnol. Oceanogr.*, **10**, R274–R289.
- Watson, A. J. and J. M. Ledwell (2000): Oceanographic tracer release experiments using sulphur hexafluoride. *J. Geophys. Res.*, **105**, 14,325–14,337.
- Westberry, T. K. and D. A. Siegel (2006): Spatial and temporal distribution of *Trichodesmium* blooms in the world's oceans. *Glob. Biogeochem. Cycles*, **20**, doi:10.1029/2005GB002673.
- White, A. E., F. G. Prahl, R. M. Letelier, and B. N. Popp (2007): Summer surface waters in the Gulf of California: Prime habitat for biological N₂ fixation. *Glob. Biogeochem. Cycles*, **21**, doi:10.1029/2006GB002779.
- Williams, R. G. and M. J. Follows (1998): The Ekman transfer of nutrients and maintenance of new production over the North Atlantic. *Deep-Sea Res. I*, **45**, 461–489.
- Williams, R. G., A. J. McLaren, and M. J. Follows (2000): Estimating the convective supply of nitrate and implied variability in export production over the North Atlantic. *Glob. Biogeochem. Cycles*, **14**, 1,299–1,313.
- Williams, R. G. and M. J. Follows (2003): Physical transport of nutrients and the maintenance of biological production. p. 19–51. In *Ocean Biogeochemistry*, edited by M. J. R. Fasham, Springer, New York.
- Wolk, F., H. Yamazaki, L. Seuront, and R. G. Lueck (2002): A new free-fall profiler for measuring biophysical microstructure. *J. Atmos. Ocean. Tech.*, **19**, 780–793.
- Wu, J., W. Sunda, E. A. Boyle, and D. M. Karl (2000): Phosphate depletion in the western North Atlantic Ocean. *Science*, **289**, 759–762.
- Wu, J., S.-W. Chung, L.-S. Wen, K.-K. Liu, Y.-L. L. Chen, H.-Y. Chen, and D. M. Karl (2003): Dissolved inorganic phosphorus, dissolved iron, and *Trichodesmium* in the oligotrophic South China Sea. *Glob. Biogeochem. Cycles*, **17**, doi:10.1029/2002GB001924.
- Wuchter, C., B. Abbas, M. J. L. Coolen, L. Herfort, J. van Bleijswijk, P. Timmers, M. Strous, E. Teira, G. J. Herndl, J. J. Middelburg, S. Schouten, and J. S. S. Damste (2006): Archaeal nitrification in the ocean. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, **103**, 12,317–12,322.
- Yoder, J. A., S. G. Ackleson, R. T. Barber, P. Flament, and W. M. Balch (1994): A line in the sea. *Nature*, **371**, 689–692.
- Yool, A., A. P. Martin, C. Fernández, and D. R. Clark (2007): The significance of nitrification for oceanic new production. *Nature*, **447**, 999–1,002.
- Zehr, J. P., J. B. Waterbury, P. J. Turner, J. P. Montoya, E. Omeregíe, G. F. Steward, A. Hansen, and D. M. Karl (2001): Unicellular cyanobacteria fix N₂ in the subtropical North Pacific Ocean. *Nature*, **412**, 635–638.

Evaluation of new production in the tropical and subtropical oligotrophic ocean

Takuhei Shiozaki[†], Shigenobu Takeda[†], and Ken Furuya[†]

Abstract

Tropical and subtropical oligotrophic oceanic regions comprising approximately 60% of the entire ocean and new productions in this vast region is vital in understanding the oceanic biogeochemical cycles. Sources of new nitrogen include three processes; allochthonous nitrate supply into the euphotic zone, N₂ fixation, and atmospheric deposition. The present study reviewed processes related to the new production in the tropical and subtropical oligotrophic regions, and discussed future studies on the new production. The new production is controlled not only by diapycnal nitrate flux that is conventionally believed as a main source of the new production, but also by previously overlooked processes including wind-induced mixing and N₂ fixation that vary in time and space. Recent studies indicate that nitrification within and just below the euphotic zone are not negligible, and hence, the new production based on nitrate uptake tends to be overestimated. Evaluation of new production in the tropical and subtropical oligotrophic oceanic regions depends on further understanding the temporal-spatial variation of the nitrogen-input processes to the euphotic zone.

Key words: new production, nitrate supply, N₂ fixation, atmospheric deposition, nitrification

(Corresponding author's e-mail address: furuya@fs.a.u-tokyo.ac.jp)

(Received 10 December 2008; accepted 24 March 2009)

(Copyright by the Oceanographic Society of Japan, 2009)

[†] Department of Aquatic Bioscience, Graduate School of Agricultural and Life Sciences, The University of Tokyo, 1-1-1 Yayoi, Bunkyo-ku, 113-8657, Japan