

— 2020 年度日本海洋学会賞受賞記念論文 —

微量金属による海洋一次生産の制御機構に 関する生物地球化学研究*

武田 重信[†]

要 旨

鉄などの微量金属は、窒素やリンとともに植物プランクトンにとって必須の栄養素である。海洋一次生産と微量金属の関わりを調べる上で不可欠となる植物プランクトン研究のためのクリーン技術を新たに確立し、様々な海域を対象に植物プランクトン群集の船上培養実験を行うことで、ナノモル以下の極微量濃度の鉄が植物プランクトンの増殖を促進する可能性について検証してきた。また、それらの実験における栄養塩動態の解析を通して、珪藻によるケイ素と窒素・リンの消費比率が、鉄制限の有無によって変化することを明らかにした。さらに、実海域においても中規模鉄散布実験や大気降下物質の影響を評価するための観測などを進め、微量金属による海洋一次生産の制御機構について総合的な解釈を試みた。

キーワード：植物プランクトン、微量金属、鉄、栄養塩、一次生産

1. はじめに

海洋の一次生産を担う植物プランクトンは、有機物を光合成する過程において、海水から様々な元素を獲得する。その際、炭素、窒素、リンなどとともに、鉄、マンガン、亜鉛、銅、コバルトのような微量金属も必要とされる。植物の生産量（収量）は生育に必要な諸因子中、供給割合の最少のものに支配されるという最少律は古くから知られていたが、南大洋の一次生産に関する窒素やリン以外の制限因子として鉄が不足している可能性を最初

に指摘したのは、土壌抽出液や鉄を添加して植物プランクトンの培養実験を行っていた Gran (1931) である。その後、海洋一次生産に関わる栄養素の一つとして鉄に着目した研究が積極的に行われるようになった (Menzel and Ryther, 1961 など)。しかし、多くの研究では実験操作中の鉄の混入に対する配慮が不十分であり、実験条件として設定された鉄濃度も現在報告されている海水中での一般的な値と比べて 3~5 桁高かった。

このような状況に転機が訪れたのは、微量金属の分析技術の向上に加えて、採水から分析に至る諸過程での目的元素の混入による汚染（コンタミネーション）を防止するクリーン技術が海洋化学分野で確立され、信頼できる海水中の溶存鉄濃度として nM (10^{-9} mol L⁻¹) 以下の値が報告されるようになった 1980 年代以降である (Gordon *et al.*, 1982)。そして、東部北太平洋亜寒帯

* 2024 年 5 月 8 日受領 2024 年 5 月 22 日受理
著作権：日本海洋学会, 2024 年

[†] 長崎大学大学院水産・環境科学総合研究科
〒852-8521 長崎県長崎市文教町 1-14
e-mail: s-takeda@nagasaki-u.ac.jp

域や南大洋での鉄添加培養実験 (Martin and Fitzwater, 1988; Martin *et al.*, 1990) で植物プランクトンの増殖促進作用が認められたことなどから、「最終氷期には南大洋において植物プランクトンが利用できる鉄の供給フラックスが増えたことで、生物ポンプが刺激され、大気中の二酸化炭素濃度が減少した」という Martin の鉄仮説が提示された (Martin, 1990)。そして、大気中二酸化炭素の削減方策としての海洋鉄肥沃化がクローズアップされるようになり、太平洋東部赤道域や南大洋などの高栄養塩・低クロロフィル (HNLC) 海域で中規模の鉄散布実験が実施された結果、鉄を海洋一次生産の重要な制限因子とみなすパラダイムが広く受け入れられることとなった (Boyd *et al.*, 2007)。その後も、鉄を始めとする各種の微量元素の動態と生物活動との関係性に着目した研究が、海洋学の幅広い分野で精力的に進められている。

このような海洋の生物生産ならびに物質循環との関わりを強く意識した微量元素研究が大きく発展する時代の流れの中で、筆者は海洋化学と海洋生物学の視座を組み合わせながら、植物プランクトン生産に果たす微量元素の役割についての様々な疑問に取り組んできた。本論文では、それらの研究の基盤となった実験技術と、植物プランクトンの培養実験やフィールド研究を通して得られたいくつかの知見について、概要を紹介する。

2. 植物プランクトン培養研究のためのクリーン技術

海洋化学における微量元素研究の進展には、様々な非金属性素材の利用やクリーンルームのような無塵設備の導入を含むクリーン技術が大きな役割を果たしてきた (Bruland *et al.*, 1979)。しかし、植物プランクトン培養研究では、生きた生物を扱うことによる制約に加えて、培養液の調製と滅菌、培養中の通気や温度・光環境の管理など、海洋化学では扱わない操作がある。また、培養の途中で培養海水の一部を採取して実験系内の生物・化学項目の変化を追跡することが一般的である。そこで、外洋表層における極めて低い溶存微量元素濃度を維持しながら培養実験を実施することを目的に、植物プランクトン培養研究に特化したクリーン技術の構築に取り組ん

だ (武田ら, 1992, 1994)。また、それらのクリーン技術を用いたとしても、実験器具や試薬などから予想外の汚染を受けることがあるため、実験系内の目的元素濃度の変化を適宜把握するための分析技術を開発した。

基本的なクリーン技術の一例として、培養実験に使用する器具の洗浄手順を Fig. 1 に示す。プラスチック素材によって耐酸性、耐アルカリ性、耐熱性が異なる点に留意しながら洗剤や酸溶液の種類と温度を選定し、クリーンルーム内の清浄な環境で器具の洗浄・乾燥操作を行い、使用時までポリ袋で二重に包んで保管する。このように準備したポリカーボネート製容器では、器壁から鉄の溶出がほとんど認められないだけでなく、器壁への鉄の吸着も最小限に抑えられることを確認している (Takeda and Obata, 1995)。実際の培養実験では、植物プランクトンの増殖に伴って器壁への有機物等の付着や海水 pH の上昇が起きるものの、北太平洋での 5 日間の船上培養実験の終了時において器壁から回収された鉄は、添加量に対して 1~3% であった。また、太陽光下で現場の表層水温に近い条件で培養するために、研究船のデッキに設置した海水かけ流し式水槽に培養容器を沈めて実験することも多いが、その場合、培養容器の蓋の付け根をテープでシールして蓋のネジ部分への浸水を防いだ後、ポリ袋に包んで浸漬し、回収時には培養容器の外側に付着した水分等をクリーンワイプで拭き取ってからクリーンルーム内で慎重に開封するなど、実験操作過程で発生し得る微量元素の混入要因を排除するための様々な工夫が求められる。さらに、培養海水への栄養塩等の添加に際しては、できるだけ高純度の試薬を用いるだけでなく、不純物として試薬に含まれる金属量を調べ、問題になる場合にはキレート樹脂 (精製した Chel-ex-100 など) を使ってあらかじめ除去しておく必要がある (Morel *et al.*, 1979)。

光を照射して培養する植物プランクトン研究では、透明なポリカーボネート製の容器を用いることが多い。但し、その光透過の波長特性には注意が必要である。Pyrex ガラスは波長 280 nm 付近まで光を透過するのに対して、ポリカーボネートは波長 385 nm 以下の光をほとんど透過しないことから、有機錯体鉄の光還元など紫外線による光化学反応が抑制される (Takeda and Kamatani, 1989)。テフロン FEP 製の容器は、可視光

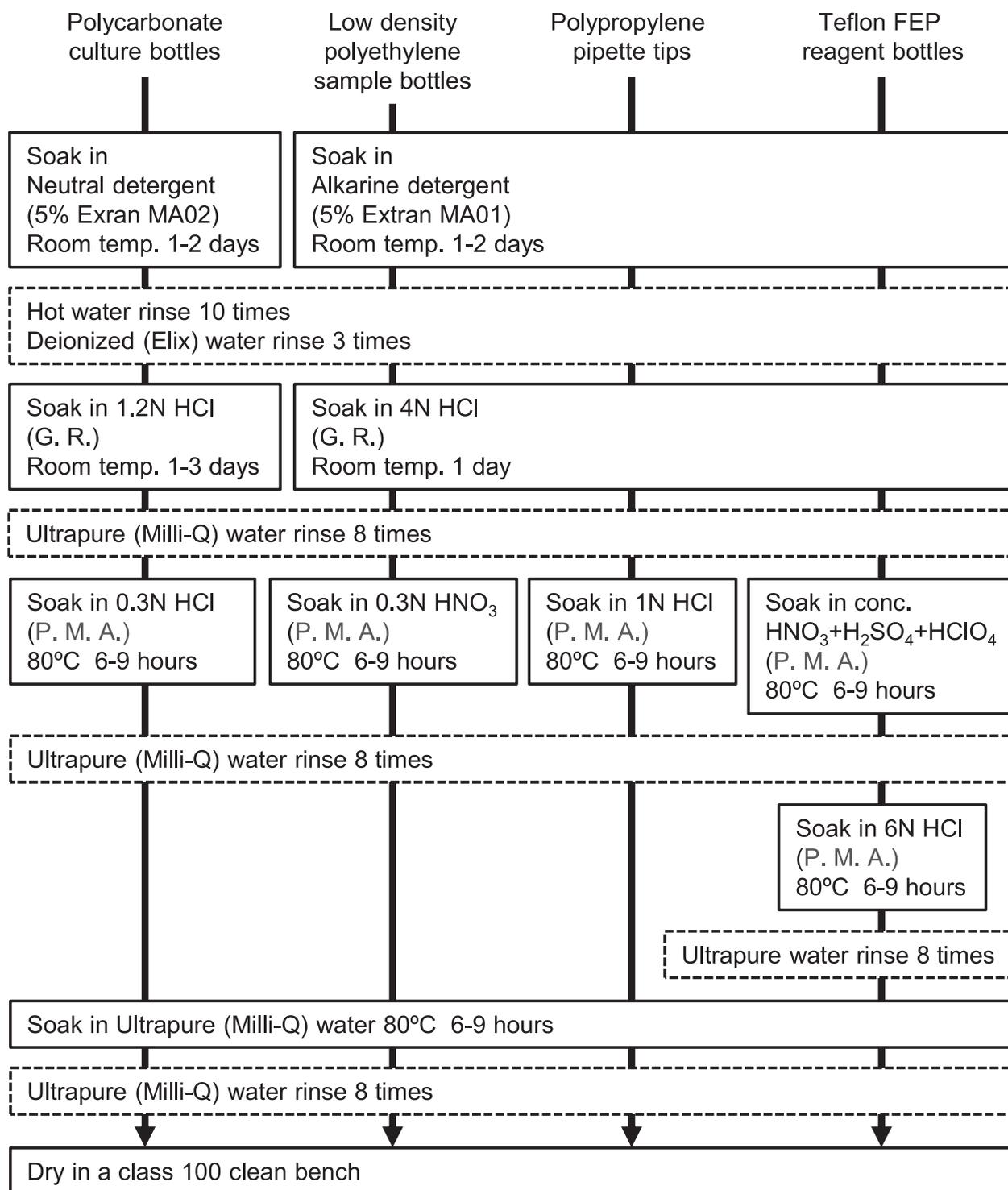


Fig. 1. Procedures for cleaning plastic labware used in phytoplankton culture experiments. G. R., guaranteed reagent; P. M. A., for poisonous metal analysis.

だけでなく紫外域の光も十分に透過し、破損し易い石英ガラスと比べて扱い易いことから、微量元素が関与する光化学反応の影響を調べるのに適している (Sato *et al.*, 2021)。

3. 微量元素に関する植物プランクトンの室内・船上培養実験

海洋植物プランクトンによる微量元素の要求量に関する室内培養実験では、培養液中の金属の化学的な存在形態(化学種)と濃度の初期条件を理論的に計算できる人工海水培地が主に用いられてきた (Morel *et al.*, 1979)。人工海水の調製には大量の塩類試薬を使用するため、試薬から不純物として混入する金属量も多くなることから、キレート樹脂を使った金属除去処理が不可欠である。このような人工海水培地には、金属イオン緩衝剤として高濃度の EDTA (エチレンジアミン四酢酸) が加えられており、培地にバックグラウンドとして含まれる鉄濃度が数 nM レベル以上と高い状態でも、生物利用可能な無機鉄イオン濃度を下げることで実験的検討を可能にしていた。その結果、植物プランクトンによる微量元素の取り込み速度および増殖速度がフリーの無機鉄イオン濃度に支配されていることなどが明らかにされてきた (Anderson and Morel, 1982 など)。但し、一部の植物プランクトンは有機錯体鉄を細胞表面で還元するなどして利用できること (Sutak *et al.*, 2020)、また、Fe(III)EDTA 錯体の光還元反応に伴って培養液中の鉄の生物利用能が高められる可能性があること (Anderson and Morel, 1982) から、EDTA を使った金属イオン緩衝系での培養実験データの解釈には注意が必要である。こうした人工海水培地の問題点を考慮して、外洋表層からクリーン採水した天然ろ過海水をキレート樹脂カラムに通して金属不純物を除去した後、精製した栄養塩類を添加する手法を用いて培地を調製し、培地中にバックグラウンドとして含まれる鉄濃度を HNLC 海域の表層水と同等の 0.04 nM にまで下げることに成功した。その結果、北太平洋と南極海から単離した外洋性植物プランクトン 17 株について、溶存鉄濃度が概ね 1 nM を下回ると増殖速度が低下することを明らかにした (Takeda, 2011; Takeda and Watanabe, 1997)。

船上培養実験においては、現場の植物プランクトン群集を含む表層海水をそのまま培養に用いることから、採水や培養操作中のコンタミネーションに配慮することが特に重要になる。HNLC 海域における培養実験では、鉄のコンタミネーションの状況について、鉄無添加の対照区(コントロール)の植物プランクトン増殖の様子からも判断することができる。Martin and Fitzwater (1988) が東部北太平洋亜寒帯域で行った培養実験では、植物プランクトン群集が実際に海洋表層で経験すると予想される溶存鉄濃度の変動幅を大きく上回る 1~10 nM の鉄添加を行い、植物プランクトンの増殖促進効果を認めたが、コントロールでもクロロフィル濃度の増加と硝酸塩濃度の減少がみられたことから、培養操作中に鉄のコンタミネーションが生じていた可能性は否定できない。それに対して、筆者の植物プランクトン培養研究のためのクリーン技術を駆使して太平洋赤道域で実施した船上培養実験では、表層の溶存鉄濃度が検出限界 (0.05 nM) 以下と極めて低い状況において、従来よりも一桁低い 0.1 nM というサブナノモルレベルの鉄添加による植物プランクトンの増殖促進を初めて明らかにし、鉄の添加濃度に応じて増殖速度が大きくなることを確認できた (Fig. 2)。そして、同様の鉄添加培養実験を南大洋や西部北太平洋などでも実施し (Takeda, 1998, 2011)、海洋表層において自然現象として生じるような溶存鉄濃度の変動が、植物プランクトン生産に大きな影響を及ぼし得ることを示した。

沿岸湧昇域など現場海水中の溶存鉄濃度が比較的高い環境において培養実験を行うこともある。その場合、微生物が産生する鉄キレート化合物であるシデロフォア (Desferrioxamine B など) を鉄に対して過剰に添加することにより、植物プランクトンが利用可能な無機鉄イオン濃度をほぼ 0 にして、植物プランクトン群集を人為的に鉄欠乏状態においたときの応答を調べることが可能である (Hutchins *et al.*, 1999; Wells, 1999)。これを応用して、東部北太平洋において 0~5 nM の 11 段階の鉄濃度条件で植物プランクトン群集の増殖速度を調べ、増殖の鉄濃度依存性が細胞サイズによって異なることも明らかにした (Takeda, 2011)。

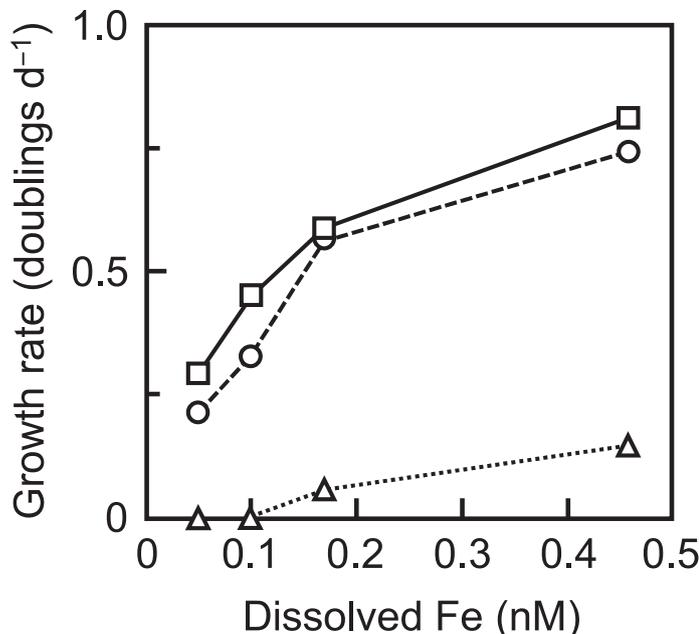


Fig. 2. Relationship between the initial dissolved iron concentration and the net growth rate of phytoplankton in three size classes (squares, $>10 \mu\text{m}$; circles, $3\text{--}10 \mu\text{m}$; triangles, $<3 \mu\text{m}$) observed during the onboard iron enrichment experiments conducted in the equatorial Pacific. Modified from Takeda and Obata (1995).

4. 珪藻の栄養塩消費比率に及ぼす鉄の影響

植物プランクトンが硝酸塩として細胞内に取り込んだ窒素をアンモニアに還元してアミノ酸合成に利用するための酵素には鉄が補因子として含まれており、鉄欠乏時には硝酸塩の利用が抑制されることから、植物プランクトンの栄養塩利用と鉄に関する従来の研究では窒素代謝に関するものが中心であった (Maldonado and Price 1996; Milligan and Harrison, 2000 など)。また、HNLC 海域の表層水に鉄を添加した場合、大きな増殖応答を示す植物プランクトンは主に珪藻であるが、珪藻細胞に含まれる炭素・窒素とケイ素の比率にはばらつきがあるものの、平均的な値は Si:C 比 0.13, Si:N 比 1.05 になることが報告されていた (Brzezinski, 1985)。そのため多くの研究では、珪藻が栄養塩を利用する際の窒素、リン、ケイ素の比率は概ね一定であると仮定され、珪藻による溶存ケイ酸の取り込みに鉄が及ぼす影響については調べられていなかった。

しかし、南大洋で実施した鉄添加培養実験の栄養塩データ解析を進める過程で、鉄無添加で植物プランクト

ンがあまり増殖していなかったコントロールにおいても溶存ケイ酸が明らかに減少していることに気づき、珪藻を主体とする植物プランクトン群集によって消費された溶存ケイ酸と硝酸塩およびリン酸塩との比率が鉄添加時と無添加時で異なることを見出した (Fig. 3)。同様の現象は太平洋赤道域と西部北太平洋亜寒帯域で実施した鉄添加培養実験のデータでも認められ、さらに南極海から単離した珪藻 2 種を用いた室内培養実験によっても確認されたことから、珪藻による栄養塩消費の Si:N 比と Si:P 比は鉄制限下で 2 倍程度大きくなるという結論に至った (Takeda, 1998)。すなわち、南大洋などの HNLC 海域では鉄が不足することによってケイ酸塩が硝酸塩よりも先に枯渇する状況を生み出し、栄養塩動態や植物プランクトン群集組成に鉄が重要な役割を果たすことが示唆された。また、カリフォルニア沿岸湧昇域でも鉄欠乏状態の植物プランクトン群集における Si:N 取り込み比の上昇が報告され (Hutchins and Bruland, 1998)、珪藻群集の栄養塩消費比率の鉄による変化は HNLC 海域以外でも起きることが示された。このような鉄濃度環境に対する珪藻の生理的応答はこれまで予想

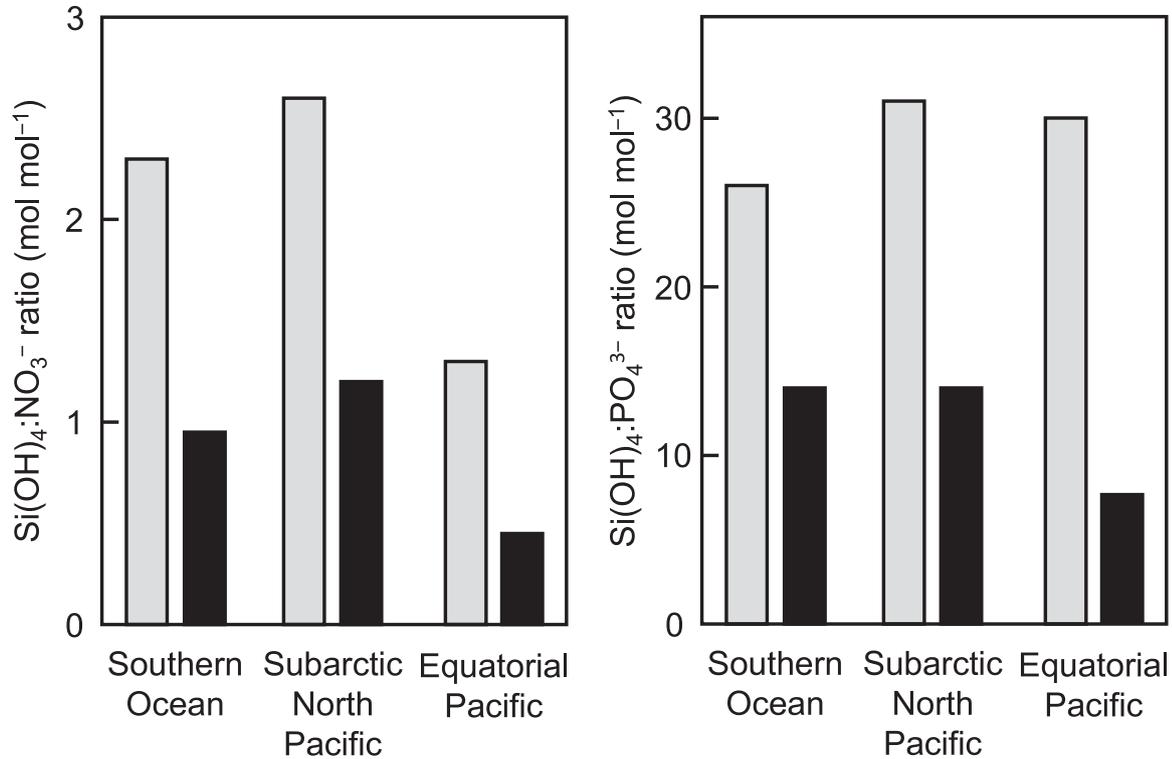


Fig. 3. Elemental ratios of nutrients consumed by the phytoplankton assemblage during the onboard iron enrichment experiments conducted in the Southern Ocean, the subarctic North Pacific, and the equatorial Pacific. Gray and black represent control (no iron addition) and iron addition, respectively. Data from Takeda (1998).

されていなかったものであり、気候変動予測のための全球的な海洋炭素循環モデルである CSM-BEC や PISCES-v2 などに、鉄欠乏による Si:C, Si:N 比の変化を表現する数式が組み込まれることとなった (Moore *et al.*, 2004; Aumont *et al.*, 2015)。

この鉄濃度環境に対する珪藻の生理的応答に関する発見は、生物体（遺骸など）の沈降によって海底に運ばれる炭素とケイ素の輸送比が表層の珪藻群集の鉄欠乏状態に応じて変化することを意味しており、海底堆積物の記録から過去の地球環境を復元する古海洋学の分野にも貢献することとなった。すなわち、氷期・間氷期における南大洋へのダスト鉄の供給量と生物ポンプによる海洋深層への炭素移送量の指標となる堆積物中の珪藻の殻（オパール）量との関係性に矛盾点がある (Mortlock *et al.*, 1991; Martin, 1992) というパラドックスの解決につながった。さらに、氷期に南大洋から余剰のケイ酸塩

が亜熱帯海域に流失して、低緯度海域の生物ポンプが活性化したという仮説 (Brzezinski *et al.*, 2002) や、湧昇海域へのパルス的な鉄供給がオパール堆積物のホットスポットを生み出すといった研究 (Pichevin *et al.*, 2014) などに波及した。

鉄の多寡が珪藻の Si:N 比や Si:P 比を変化させるメカニズムについては、増殖速度の低下により珪藻の殻が形成される期間が長くなることや、細胞サイズおよび形態の変化により、細胞表面積と体積の比が大きくなることと関係していると当初は考えられていた (武田, 2002)。その後、珪藻のゲノム解析による研究が進み、鉄制限は珪藻殻形成プロセスに関与する遺伝子のアップレギュレーションを生じることから、ケイ素の代謝は鉄と密接に関わっていることが明らかになった (Mock *et al.*, 2008)。また、珪藻の羽状目と中心目の 2 つのグループ間では、鉄供給の変化に伴う窒素栄養素の獲得と同化

の戦略に大きな違いがあることも指摘されている (Cohen *et al.*, 2017)。今後、このような遺伝子情報に基づく研究アプローチを海洋フィールドに展開することで、海洋のケイ素循環と鉄の関係性がさらに明確になると期待される。

5. 北太平洋亜寒帯域における中規模鉄散布実験

北太平洋亜寒帯域では2001年から2004年にかけて、SEEDS (Subarctic Pacific Iron Experiment for Ecosystem Dynamics Study), SERIES (Subarctic Ecosystem Response to Iron Enrichment Study), SEEDS-II と3回の中規模 (メソスケール) 鉄散布実験が実施され、供給された鉄に応答して発達した植物プランクトンブルームによる生物ポンプの効率が従来の予想よりもかなり低いことなど、様々な新知見が得られた (Tsuda *et al.*, 2003; Boyd *et al.*, 2004; Tsuda *et al.*, 2007)。いずれの実験においても、鉄が一次生産と食物網構造に強く影響することを確認したが、海域の東西や実施年によってプランクトン群集の優占種ならびに生物応答の速度と大きさが異なる結果となり、自然生態系の応答は多様であることが改めて浮き彫りになった。

西部亜寒帯域における最初の鉄散布実験 SEEDS では、連鎖群体を形成する大型珪藻が大量増殖した。東部亜寒帯域で実施した SERIES でも、小型植物プランクトンの初期ブルームに続いて、様々な珪藻種が大規模ブルームを引き起こした。それらの結果に対して、SEEDS の3年後に同じ海域で行った SEEDS-II では、1ヶ月弱の実験期間を通して植物プランクトンの生物量が他の実験と比べて非常に少なく、小型の非珪藻種が優勢であった。このような生物応答の違いを生じた要因としては、メソ動物プランクトンの生物量と捕食圧のほか、表面混合層深度、溶存鉄濃度の初期増加量、鉄の生物利用能を変化させる有機配位子の生成量、実験開始時の植物プランクトン群集組成が関与したと考えられる (Takeda, 2011)。

中規模鉄散布実験での植物プランクトン群集による溶存ケイ酸と硝酸塩の消費比率については、SEEDS と SERIES においてブルーム後半に Si:N 比が大きくなり、

現場の表層水中で硝酸塩よりも先に溶存ケイ酸が枯渇する傾向が認められた (Fig. 4)。しかし、その比率の上昇には、前述した珪藻群集の鉄欠乏状態だけでなく、植物プランクトン群集組成、植物プランクトンが利用する主な窒素源、光環境などの変化も関与している可能性がある (Takeda *et al.*, 2006)。そこで各実験で得られたデータを基に栄養塩消費比率の変動要因を詳しく検討したところ、SEEDS では大量に増殖した植物プランクトンの自己遮蔽により光利用能が低下して表層混合層内の硝酸塩の取り込みが抑制されたこと、SERIES では植物プランクトン群集が鉄欠乏ストレスを受けたこと、SEEDS-II ではメソ動物プランクトンによる活発な摂食活動で再生したアンモニウム塩の利用が進んだことが強く影響したと考えられ、それぞれ異なるメカニズムが働いていたことが分かった (Takeda, 2011)。

その他にも、3回の中規模鉄散布実験を通して、鉄供給に対するプランクトン群集の生理・生態学的な応答とブルーム形成に伴う物質循環の変化など、北太平洋亜寒帯域におけるプランクトン生産の制御機構を包括的に理解する上で有用な知見が得られた (Takeda and Tsuda, 2005; Harrison, 2006; Uematsu *et al.*, 2009)。また、観測された応答や変化に当初の予想とは違った側面が少なからず認められたことは、海洋生態系の相互作用ならびに機能に関する我々の知識のギャップと研究アプローチの弱点を強く意識させる結果となった。太平洋赤道域、南大洋、北太平洋亜寒帯域などで実施された複数の鉄散布実験により集められた膨大な知見は、総説として取りまとめられるとともに (de Baar *et al.*, 2005; Boyd *et al.*, 2007)、海洋肥沃化による大気中二酸化炭素削減方策の評価報告という形でも公表された (Wallace *et al.*, 2010; Williamson *et al.*, 2012)。このような総括を経て、HNLC 海域における中規模の鉄散布は、植物プランクトン増殖を促進し、表層水中の二酸化炭素分圧を低下させるポテンシャルを有するものの、その応答は物理・生物学的な要因に依存し、大気中二酸化炭素の削減効果は当初の見積もりの1/5~1/20に留まるという結論が導かれた。但し、これらの実験の時空間スケールは、複数年にわたる大規模な海洋鉄肥沃化に対する海洋生態系の応答を予測するには不十分で、動物プランクトン、魚類、底生生物群集などへの長期的な影響は不明なまま

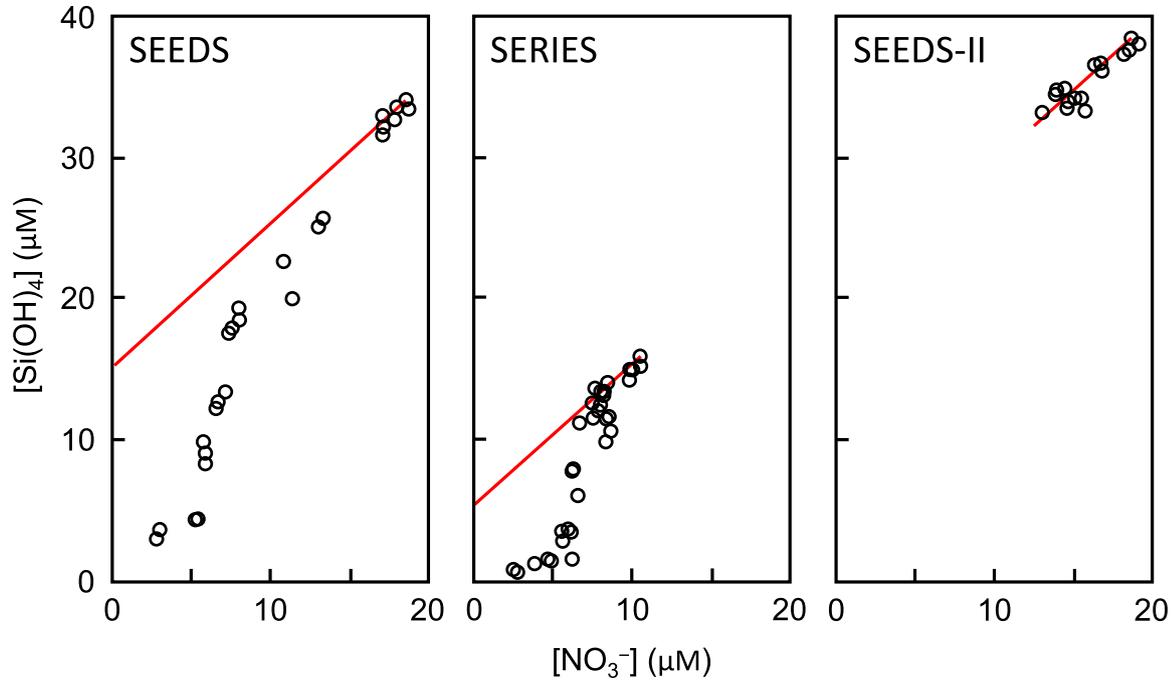


Fig. 4. Relationship between nitrate and silicic acid concentrations of the surface water inside of the iron-enriched patch measured during SEEDS, SERIES, and SEEDS-II experiments in the subarctic North Pacific. The red line indicates the change at a consumption ratio of Si/N = 1. Modified from Takeda (2011).

であり、海洋鉄肥沃化は予期しない環境影響を生じるリスクがあることが強く懸念された。このような科学的知見のギャップを埋めるため、米国の研究者が中心となって、海洋フィールド調査やモデリングに関する研究が続けられている (<http://oceaniron.org/>)。

6. 大気からの微量金属供給に対する植物プランクトン群集の応答

西部北太平洋は、黄砂など大気降下物質に由来する鉄の供給フラックスが大きい海域として知られている (Uematsu *et al.*, 1983; Jickells *et al.*, 2005)。しかし、大気降下物質が植物プランクトン生産に及ぼす影響を海洋フィールドで直接捉えた研究は限られている (Young *et al.*, 1991 など)。そこで、日本沿岸や洋上で採取した大気エアロゾルあるいは雨水を西部北太平洋の表層海水に添加する船上培養実験を実施したところ、大型植物プランクトンの増殖促進作用を確認することができた (Takeda *et al.*, 2014)。また、室内培養実験において、

珪藻の増殖速度が大気降下物質から溶出する溶存鉄濃度と相関を示すことも分かった。これらの結果や大気降下物質に含まれる微量金属の可溶性画分のデータ (Okubo *et al.*, 2013) などから、西部北太平洋に沈着する大気エアロゾルに含まれる鉄のうち 1~20% が生物に利用可能な形態で供給されていると推定された。但し、人為起源の微量金属を多く含む場合や、大気中の硝酸や硫酸との反応によってエアロゾル粒子表面が変質している場合は溶解する割合が大きく変化するため、既存データの平均値などに基づく単一の溶解率を適用することは難しい。一方、大気降下物質に含まれる銅やカドミウムなど生物毒性を示す微量金属の海洋生物への影響も懸念されている (Paytan *et al.*, 2009)。また、日本沿岸で採取された大気降下物質についても、人為起源物質の寄与が大きいマンガン、亜鉛、銅で 20~80% の高い溶解率が示されている (Okubo *et al.*, 2013)。ところが、上記の大気エアロゾル・雨水の添加船上培養実験において有害重金属に起因する植物プランクトンの増殖阻害作用は確認されなかった (Takeda *et al.*, 2014)。これらの元

素については、現時点における大気からの沈着フラックスが現場の表層海水中濃度と比べて少ないことなどから、外洋表層の植物プランクトン増殖に直接的な影響を及ぼしている可能性は小さいと推察される。

HNLC 海域である北太平洋亜寒帯域において、黄砂が多く飛来する春季は表面混合層深度がまだ深いので、黄砂由来の鉄が海洋表層に供給されたとしても光量の不足によって植物プランクトン群集が十分に増殖応答できない。それに対して、鉛直的な成層の発達した夏季に、大規模な火山噴火により洋上に拡散した火山灰が沈着して鉄が溶出すると、好適な光環境下で植物プランクトンの増殖が促進され、広範囲で植物プランクトン量が増加することがある (Hamme *et al.*, 2010)。2008 年 8 月に西部北太平洋で実施した曳航体による表層水の連続クリーン採水観測では、アリューシャン列島の Okmok 火山噴火に由来する火山灰の降下イベントに天皇海山群周辺海域で遭遇し、火山灰降下の約 4 日後に現場海域を再び通過した際に表層植物プランクトン群集の増殖が観測された (Fig. 5)。この時、表層水の溶存鉄濃度の上昇は不明瞭であったが、火山灰から溶出した鉄は速やかに生物に取り込まれて溶存鉄濃度が低く保たれていたと推察される (Takeda *et al.*, 2014)。そのため、海洋に沈着した微量元素の生物利用を検討するには、表面混合層内における粒子態鉄の挙動も合わせて把握することが重要になる。なお、火山灰は砂漠ダストなどと比べて鉄を溶出し易い性質を有することに加えて (Olgun *et al.*, 2011)、亜寒帯域では夏季に多く発生する酸性霧が火山灰粒子と反応して微量金属の可溶性画分の割合が増えている可能性も考えられる。従って、北太平洋亜寒帯域における大気からの微量金属供給に関しては、将来の気候変動に伴う黄砂の飛来時期・場所の変化とともに、周辺の火山活動や火山灰の輸送経路についても注視していく必要がある。

7. 有光層以深からの微量金属供給に対する植物プランクトン群集の応答

一次生産に不可欠な窒素・リンなどの栄養塩が表層でほぼ枯渇している外洋亜熱帯域において、有光層以深から表層に供給される栄養塩を植物プランクトンが効率良

く利用するためには、その代謝過程に関与している微量金属の存在が不可欠となる。太平洋の西経 170 度線における溶存微量金属濃度の表層 200 m 以浅における広域的な鉛直断面分布を調べたところ、鉄は亜寒帯の貧酸素層を除いて、概ね 0.1 nM 前後の低いレベルとなっており、亜熱帯海域では下層からの鉛直的な鉄供給フラックスが小さいと予想された (未公表)。また、北緯 10~35 度付近では亜表層クロロフィル極大層 (SCM) 付近で溶存鉄濃度が極小を示す場合が多いことから、有光層下部の植物プランクトン群集が下層から供給された硝酸塩などの栄養塩を利用する際に、鉄が同時に消費されている可能性が高いと考えられた。

そこで、中部北太平洋の北緯 10~50 度の 4 測点で、有光層以深 (100~200 m) から採取したろ過海水を表層 10 m および SCM の未ろ過海水と 1:1 の割合で混合し、さらに 1 nM の鉄添加実験区を設けて、現場の光量・水温を模擬したインキュベーター内で数日間培養を行い、植物プランクトン群集の増殖を調べた (Fig. 6)。その結果、SCM の植物プランクトン群集に関しては北緯 20, 35, 50 度において下層から供給される栄養塩に対して鉄が相対的に不足し易い環境となっていること、表層の植物プランクトン群集については北緯 50 度の HNLC 海域だけでなく北緯 35 度においても鉄が不足していることが明らかになった (未公表)。また、外洋性真核植物プランクトン細胞の平均的な Fe:N 比として $0.32 \text{ mmol mol}^{-1}$ の値が報告されているが (Ho *et al.*, 2003)、西経 170 度線の 200 m 層における溶存鉄と硝酸塩の比率はその 1/15~1/3 に過ぎず、植物プランクトンが硝酸塩を全て利用するのに十分な鉄が存在していないことも明らかになった。従って、中部北太平洋の亜熱帯から亜寒帯域の広い範囲で、SCM 付近の植物プランクトン群集が有光層以深から供給される溶存鉄を消費することにより、表層群集の鉄不足が強化されていると考えられた。一方、インド洋の亜熱帯域においても、亜表層の植物プランクトン群集が光量不足および鉄不足の複合的な増殖制限を受けていることが船上培養実験から明らかになり、鉄制限下で植物プランクトン細胞外への亜硝酸塩の放出が促進されて亜硝酸塩極大層の形成に寄与している可能性を指摘した (Sato *et al.*, 2022)。このような亜表層の植物プランクトン群集と微量金属の関

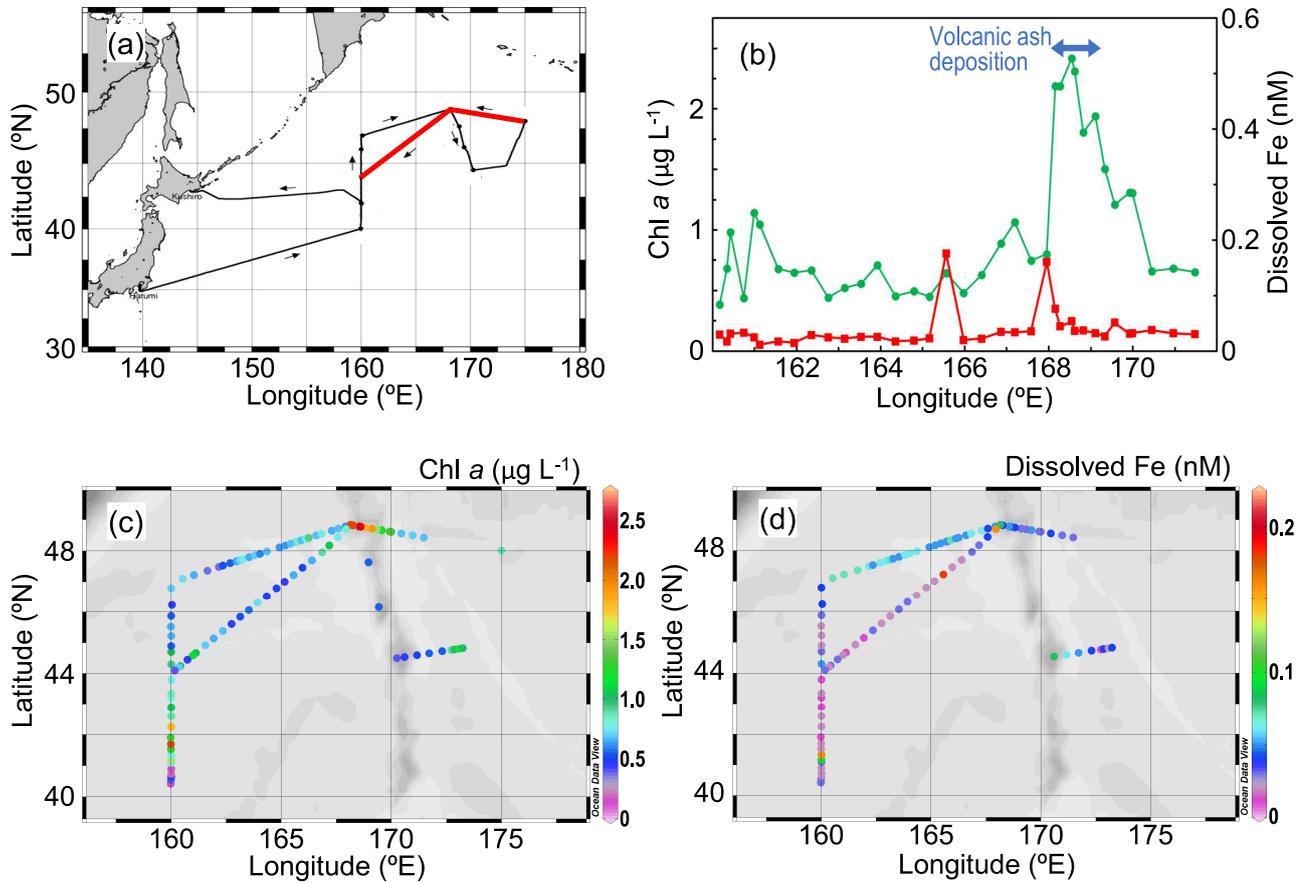


Fig. 5. Ship's track of the R/V Hakuho-Maru KH-08-2 cruise Leg 1 in the western North Pacific (a), changes in surface water chlorophyll *a* and dissolved iron concentrations along the east–west transect, indicated by the red line on the ship's track (b), and surface water horizontal distributions of chlorophyll *a* (c) and dissolved iron (d). A blue arrow indicates the area of the volcanic ash deposition. Modified from Takeda *et al.* (2014).

わりについては知見が不足しており、更なる研究の進展によって、水柱全体としての一次生産がどのようなメカニズムで制御されているのかを理解する上で有益な示唆が得られるものと期待される。

鉄以外の微量金属については、中部北太平洋亜熱帯域の亜表層で観測された鉛直分布において溶存亜鉛濃度がSCMの底部付近で大きく減少する様子が捉えられ (Fig. 7)、同様の傾向が北緯40度においても認められたことから、生物活動による溶存亜鉛の消費が示唆された。亜鉛は、光合成の二酸化炭素利用に係る炭酸脱水素酵素や、有機態リンの利用に必要なアルカリホスファターゼなどに含まれている重要な元素の一つである

(Morel and Price, 2003)。しかし、表層ならびに亜表層の植物プランクトン群集を対象に行った鉄、亜鉛、コバルトの添加培養実験において、増殖促進作用が認められたのは鉄のみであった。今後、鉄と亜鉛の共制限が起きている可能性の有無について確認する必要があるものの、植物プランクトンの微量栄養素としての鉄の重要性が改めて認識される結果となった。

8. おわりに

卒業研究として植物プランクトンと重金属の研究を始めた当初、このテーマが自分の研究人生における大きな

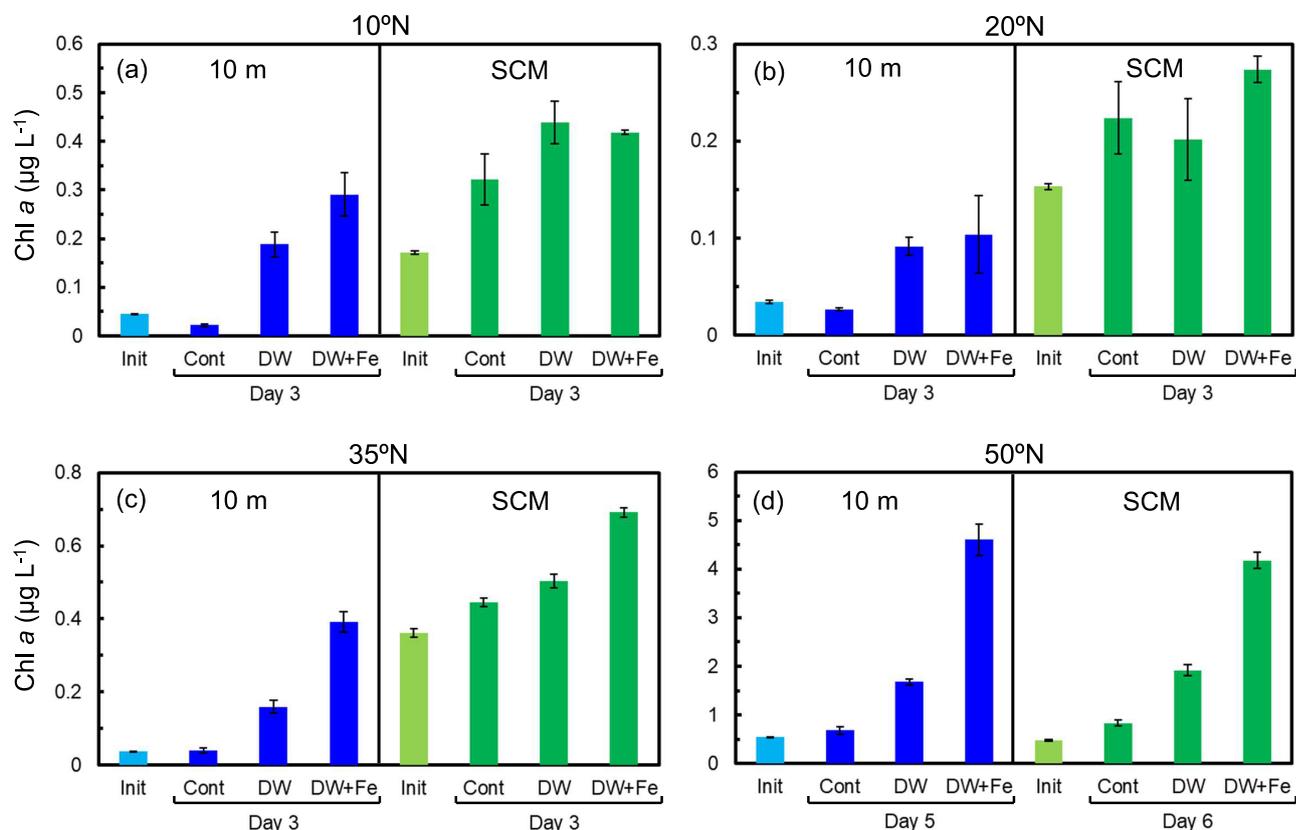


Fig. 6. Initial and final chlorophyll *a* concentrations of the surface (10 m) and subsurface chlorophyll maximum (SCM) phytoplankton assemblages at 10° N (a), 20° N (b), 35° N (c), and 50° N (d) in the central North Pacific (170° W) when deep seawater (100–200 m) and iron were added and incubated for 3–6 days. Init, initial; Cont, control; DW, addition of filtered deep seawater (1:1); DW + Fe, addition of filtered deep seawater (1:1) with 1 nM iron. Controls were treated with filtered seawater collected at 10 m or SCM instead of deep seawater. Error bars are standard deviations of triplicate incubation bottles. Data unpublished.

柱になるとは思ってもみなかった。学生の頃は船酔いがひどく、海洋フィールド研究は自分に向いていないという意識も強かった。しかし、海洋環境と生物活動に対する好奇心を持ち続けていたのが幸いだったのかもしれない。東京湾の青潮や陸上養殖システムの水質浄化に関する研究などに取り組んだ後、Martinの鉄仮説をきっかけに微量金属研究の世界に本格的に足を踏み入れることとなり、国際的な海洋鉄研究の潮流に翻弄されながらも、多くの方々に支えられて、研究を継続することができた。様々なパラメータを測定して海洋の未知なる姿を記述するのも大事であるが、独自の仮説に基づいて実験操作を加え、反応を見るのが楽しみであった。また、この分野の著名な先生から直接指導を受けることが無かった

め、試行錯誤しながら実験計画を立て、得られた結果の意味を先入観なしに自分の頭で熟考するようになり、異分野の知見を直感的に組み合わせて新たなアイデアを出す喜びも何度か味わうことができた。その間、国内外における微量金属研究は大きく発展し、SOLAS, GEOTRACES, BioGeoSCAPESなどの国際プロジェクトを通して大規模なフィールド観測やモデリング研究が精力的に進められた結果、多くのことが分かったのと同時に、相変わらず上手く説明できない事象や新たな疑問も少なからず浮かび上がってきたのではないかと思われる。それらの謎を解くことに、少しでも貢献できればと願っている。

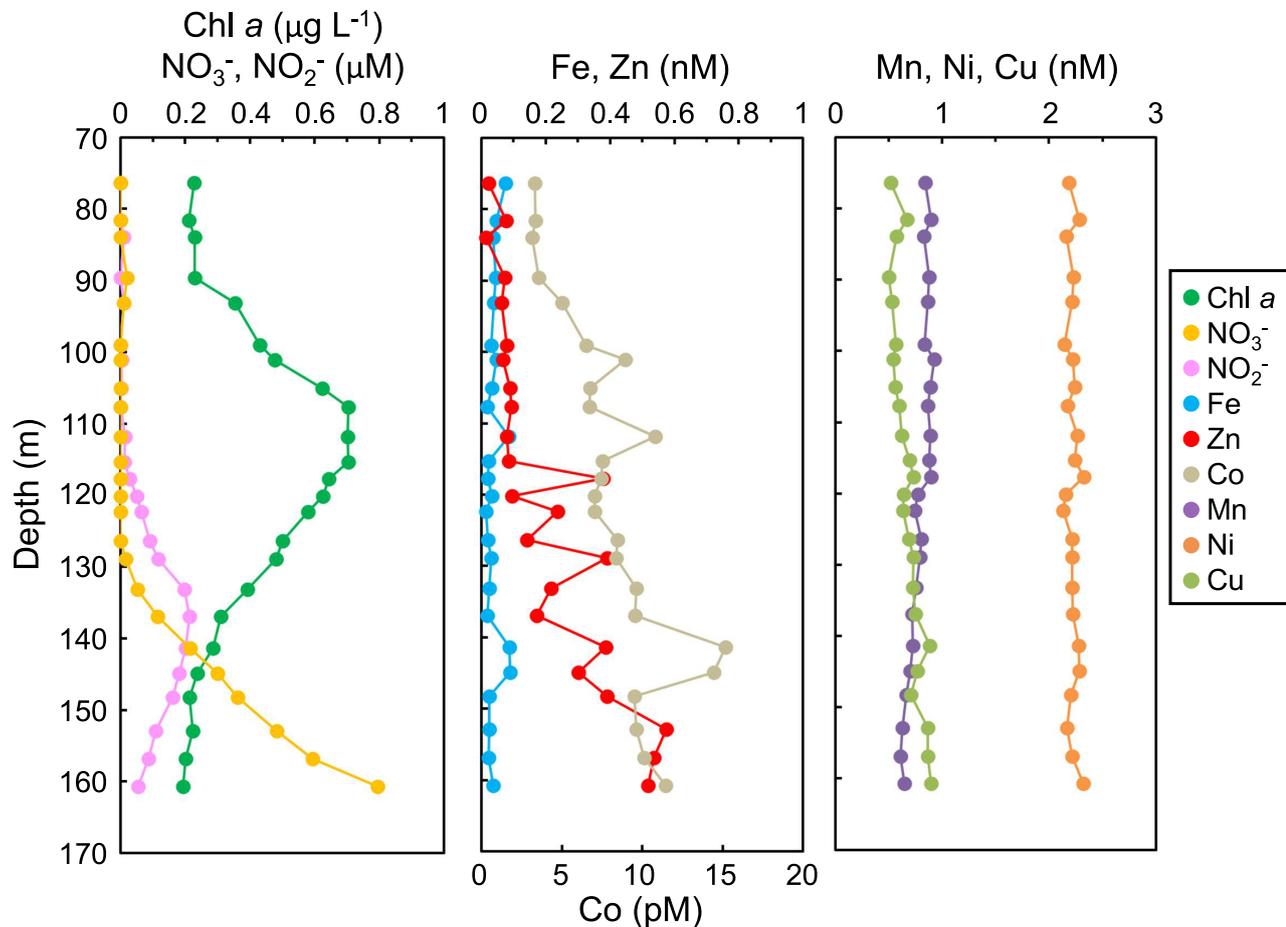


Fig. 7. Vertical distributions of chlorophyll *a*, nitrate, nitrite, and dissolved trace metals (Fe, Zn, Co, Mn, Ni, and Cu), at 23°N 180°E in the subtropical North Pacific. It should be noted that seawater samples for trace metal analysis were not UV irradiated; therefore, copper and cobalt concentrations are labile fractions that have not formed strong complexes with organic ligands. Data unpublished.

謝 辞

このたびは、栄誉ある日本海洋学会賞を頂き、身に余る光栄です。推薦頂きました賞選考委員の方々、ならびに海洋学会員の皆様に、厚く御礼申し上げます。今回評価して頂いた業績は、ご指導頂いた先生方、国内外の多くの共同研究者および学生達、そして研究船・練習船の皆様のご支援とご協力の賜物にほかなりません。特に、植物プランクトンと鉄に関する卒論テーマを与えて下さった東京水産大学海洋環境化学講座の鎌谷明善先生、禅問答のような対話を通して思考力を養って頂いた東京大学水産海洋学講座の二村義八朗先生、国際的な鉄研究

者グループに迎え入れてくれたカリフォルニア大学サンタクルーズ校（当時）の Mark Wells 氏、共同研究のカウンターパートとして支えて下さったカナダ海洋科学研究所の C.S. Wong 氏との出会いは人生の大きな転機となりました。また、数々の研究プロジェクトにおいて、高橋正征先生、植松光夫先生、古谷研先生ならびに津田敦氏、小畑元氏、西岡純氏、近藤能子氏、佐藤光秀氏らに様々な場面で助けて頂きました。改めて皆様に心より感謝申し上げます。

本研究は科研費 (JP14560143, JP14658151, JP16201003, JP 17310005, JP 18067006, JP 20310006, JP 23651017, JP 24121006, JP 26241009, JP 26550010, JP 16 K 12586,

JP17H04479, JP18H03361, JP20KK0240) の助成を受けたものです。

References

- Anderson, M. A. and F. M. M. Morel (1982): The influence of aqueous iron chemistry on the uptake of iron by the coastal diatom *Thalassiosira weissflogii*. *Limnol. Oceanogr.*, **27**, 789–813.
- Aumont, O., C. Éthé, A. Tagliabue, L. Bopp, and M. Gehlen (2015): PISCES-v2: an ocean biogeochemical model for carbon and ecosystem studies. *Geosci. Model Dev.*, **8**, 2465–2513.
- Boyd, P. W., C. S. Law, C. S. Wong, Y. Nojiri, A. Tsuda, M. Levasseur, S. Takeda, R. Rivkin, P. J. Harrison, R. Strzepek, J. Gower, R. M. McKay, E. Abraham, M. Arychuk, J. Barwell-Clarke, W. Crawford, D. Crawford, M. Hale, K. Harada, K. Johnson, H. Kiyosawa, I. Kudo, A. Marchetti, W. Miller, J. Needoba, J. Nishioka, H. Ogasawa, J. Page, M. Robert, H. Saito, A. Sastri, N. Sherry, T. Soutar, N. Sutherland, Y. Taira, F. Whitney, S. K. E. Wong, and T. Yoshimura (2004): The decline and fate of an iron-induced subarctic phytoplankton bloom. *Nature*, **428**, 549–553.
- Boyd, P. W., T. Jickells, C. S. Law, S. Blain, E. A. Boyle, K. O. Buesseler, K. H. Coale, J. J. Cullen, H. J. W. de Baar, M. Follows, M. Harvey, C. Lancelot, M. Levasseur, R. Pollard, R. B. Rivkin, J. Sarmiento, V. Schoemann, V. Smetacek, S. Takeda, A. Tsuda, S. Turner, and A. J. Watson (2007): Mesoscale iron enrichment experiments 1993–2005: Synthesis and future directions. *Science*, **315**, 612–617.
- Bruland, K. W., R. P. Franks, G. A. Knauer, and J. H. Martin (1979): Sampling and analytical methods for the determination of copper, cadmium, zinc, and nickel at the nanogram per liter level in sea water. *Anal. Chim. Acta*, **105**, 233–245.
- Brzezinski, M. A. (1985): The Si: C: N ratio of marine diatoms: Inter-specific variability and the effect of some environmental variables. *J. Phycol.*, **21**, 347–357.
- Brzezinski, M. A., C. J. Pride, V. M. Franck, D. M. Sigman, J. L. Sarmiento, K. Matsumoto, N. Gruber, G. H. Rau, and K. H. Coale (2002): A switch from Si(OH)₄ to NO₃⁻ depletion in the glacial Southern Ocean. *Geophys. Res. Lett.*, **29**, 1564, doi: 10.1029/2001GL014349.
- Cohen, N. R., K. A. Ellis, R. H. Lampe, H. McNair, B. S. Twining, M. T. Maldonado, M. A. Brzezinski, F. I. Kuzminov, K. Thamtrakoln, C. P. Till, K. W. Bruland, W. G. Sunda, S. Bargu, and A. Marchetti (2017): Diatom transcriptional and physiological responses to changes in iron bioavailability across ocean provinces. *Front. Mar. Sci.*, **4**, 360, doi: 10.3389/fmars.2017.00360.
- De Baar, H. J. W., P. W. Boyd, K. H. Coale, M. R. Landry, A. Tsuda, P. Assmy, D. C. E. Bakker, Y. Bozec, R. T. Barber, M. A. Brzezinski, K. O. Buesseler, M. Boyé, P. L. Croot, F. Gervais, M. Y. Gorbunov, P. J. Harrison, W. T. Hiscock, P. Laan, C. Lancelot, C. S. Law, M. Levasseur, A. Marchetti, F. J. Millero, J. Nishioka, Y. Nojiri, T. van Oijen, U. Riebesell, M. J. A. Rijkenberg, H. Saito, S. Takeda, K. R. Timmermans, M. J. W. Veldhuis, A. M. Waite, and C. S. Wong (2005): Synthesis of iron fertilization experiments: From the iron age in the age of enlightenment. *J. Geophys. Res.*, **110**, 1–24.
- Gran, H. H. (1931): On the conditions for the production of plankton in the sea. *Conseil Perm. Internat. pour l'Explor. de la Mer. Rapp. et Proces-Verb.*, **75**, 37–46.
- Gordon, R. M., J. H. Martin, and G. A. Knauer (1982): Iron in north-east Pacific waters. *Nature*, **299**, 611–612.
- Hamme, R. C., P. W. Webley, W. R. Crawford, F. A. Whitney, M. D. DeGrandpre, S. R. Emerson, C. C. Eriksen, K. E. Giesbrecht, J. F. R. Gower, M. T. Kavanaugh, M. A. Peña, C. L. Sabine, S. D. Batten, L. A. Coogan, D. S. Grundle, and D. Lockwood (2010): Volcanic ash fuels anomalous plankton bloom in subarctic northeast Pacific. *Geophys. Res. Lett.*, **37**, L19604, doi: 10.1029/2010GL044629.
- Harrison, P. J. (2006): SERIES (subarctic ecosystem response to iron enrichment study): A Canadian–Japanese contribution to our understanding of the iron–ocean–climate connection. *Deep-Sea Res. II*, **53**, 2006–2011.
- Ho, T.-Y., A. Quigg, Z. V. Finkel, A. J. Milligan, K. Wyman, P. G. Falkowski, and F. M. M. Morel (2003): The elemental composition of some marine phytoplankton. *J. Phycol.*, **39**, 1145–1159.
- Hutchins, D. A. and K. W. Bruland (1998): Iron-limited diatom growth and Si:N uptake ratios in a coastal upwelling regime. *Nature*, **393**, 561–564.
- Hutchins, D. A., V. M. Franck, M. A. Brzezinski, and K. W. Bruland (1999): Inducing phytoplankton iron limitation in iron-replete coastal waters with a strong chelating ligand. *Limnol. Oceanogr.*, **44**: 1009–1018.
- 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, and H. Kawahata (2005): Global iron connections between desert dust, ocean biogeochemistry, and climate. *Science*, **308**, 67–71.
- Maldonado, M. T. and N. M. Price (1996): Influence of N substrate on Fe requirements of marine centric diatoms. *Mar. Ecol. Prog. Ser.*, **141**, 161–172.
- Martin, J. H. (1990): Glacial-interglacial CO₂ change: The iron hypothesis. *Paleoceanogr.*, **5**, 1–13.
- Martin, J. H. (1992): Iron as a Limiting Factor in Oceanic Productivity, p. 123–137. In *Primary Productivity and Biogeochemical Cycles in the Sea*, edited by P. G. Falkowski, A. D. Woodhead, and K. Virviro, Springer, Boston, USA.
- Martin, J. H. and S. E. Fitzwater (1988): Iron deficiency limits phytoplankton growth in the north-east Pacific subarctic. *Nature*, **331**, 341–343.
- Martin, J. H., S. E. Fitzwater, and R. M. Gordon (1990): Iron deficiency limits phytoplankton growth in Antarctic waters. *Global Biogeochem. Cycles*, **4**, 5–12.
- Menzel, D. W. and J. H. Ryther (1961): Nutrients limiting the production of phytoplankton in the Sargasso Sea, with special reference to iron. *Deep-Sea Res.*, **7**, 276–281.
- Milligan, A. J. and P. J. Harrison (2000): Effects of non-steady-state iron limitation on nitrogen assimilatory enzymes in the marine diatom *Thalassiosira weissflogii* (Bacillariophyceae). *J. Phycol.*, **36**, 78–86.
- Mock, T., M. P. Samanta, V. Iverson, C. Berthiaume, M. Robison, K. Holtermann, C. Durkin, S. S. BonDurant, K. Richmond, M. Rodesch, T. Kallas, E. L. Huttlin, F. Cerrina, M. R. Sussman, and E. V. Armbrust (2008): Whole-genome expression profiling of the

- marine diatom *Thalassiosira pseudonana* identifies genes involved in silicon bioprocesses. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, **105**, 1579–1584.
- Moore, J. K., S. C. Doney, and K. Lindsay (2004): Upper ocean ecosystem dynamics and iron cycling in a global three - dimensional model. *Global Biogeochem. Cycles*, **18**, GB4028, doi: 10.1029/2004GB002220.
- Morel, F. M., J. G. Rueter, D. M. Anderson, and R. R. L. Guillard (1979): AQUIL: A chemically defined phytoplankton culture medium for trace metal studies. *J. Phycol.*, **15**, 135–141.
- Morel, F. M. M. and N. M. Price (2003): The biogeochemical cycles of trace metals in the oceans. *Science*, **300**, 944–947.
- Mortlock, R. A., C. D. Charles, P. N. Froelich, M. A. Zibello, J. Saltzman, J. D. Hays, and L. H. Burckle (1991): Evidence for lower productivity in the Antarctic Ocean during the last glaciation. *Nature*, **351**, 220–223.
- Okubo, A., S. Takeda, and H. Obata (2013): Atmospheric deposition of trace metals to the western North Pacific Ocean observed at coastal station in Japan. *Atmos. Res.*, **129**, 20–32.
- Olgun, N., S. Duggen, P. L. Croot, P. Delmelle, H. Dietze, U. Schacht, N. Óskarsson, C. Siebe, A. Auer, and D. Garbe-Schönberg (2011): Surface ocean iron fertilization: The role of airborne volcanic ash from subduction zone and hotspot volcanoes and related iron-fluxes into the Pacific Ocean. *Global Biogeochem. Cycles*, **25**, GB4001, doi: 10.1029/2009GB003761.
- Paytan, A., K. R. M. Mackey, Y. Chen, I. D. Lima, S. C. Doney, N. Mahowald, R. Labiosa, and A. F. Post (2009): Toxicity of atmospheric aerosols on marine phytoplankton. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, **106**, 4601–4605.
- Pichevin, L. E., R. S. Ganeshram, W. Geibert, R. Thunell, and R. Hinton (2014): Silica burial enhanced by iron limitation in oceanic upwelling margins. *Nature Geosci.*, **7**, 541–546.
- Sato, M., N. Ogata, K. H. Wong, H. Obata, and S. Takeda (2021): Photodecomposition of natural organic metal-binding ligands from deep seawater. *Mar. Chem.*, **230**, 103939, doi: 10.1016/j.marchem.2021.103939.
- Sato, M., K. Hirata, T. Shiozaki, and S. Takeda (2022): Effects of iron and light on microbial nitrogen cycles in the primary nitrite maxima of the eastern Indian Ocean. *Deep-Sea Res. I*, **185**, 103808, doi: 10.1016/j.dsr.2022.103808.
- Sutak, R., J. M. Camadro, and E. Lesuisse (2020): Iron uptake mechanisms in marine phytoplankton. *Front. Microbiol.*, **11**, 566691, doi: 10.3389/fmicb.2020.566691.
- Takeda, S. (1998): Influence of iron availability on nutrient consumption ratio of diatoms in oceanic waters. *Nature*, **393**, 774–777.
- 武田重信 (2002) : 鉄供給による植物プランクトンの栄養塩利用の制御. 日本プランクトン学会報, **49**, 21–26.
- Takeda, S. (2011): Iron and phytoplankton growth in the subarctic North Pacific. *Aqua-BioScience Monographs*, **4**, 41–93.
- Takeda, S. and A. Kamatani (1989): Photoreduction of Fe(III)-EDTA complex and its availability to the coastal diatom *Thalassiosira weissflogii*, p. 349–352. In *Red Tides: Biology, Environmental Science, and Toxicology*, edited by T. Okaichi, D. M. Anderson, and T. Nemoto, Elsevier Science Publ., New York, USA.
- 武田重信・坂口勇・新島恭二・清野通康 (1992) : 海洋性植物プランクトンを用いた CO₂ の固定 (1) 鉄など微量栄養塩の散布効果の予備的評価. 電力中央研究所研究報告, U91049, 1–55.
- 武田重信・坂口勇・新島恭二・清野通康 (1994) : 海洋性植物プランクトンを用いた CO₂ の固定 (2) 太平洋赤道域の植物プランクトン生産における鉄の役割. 電力中央研究所研究報告, U94019, 1–32.
- Takeda, S. and H. Obata (1995): Response of equatorial Pacific phytoplankton to subnanomolar Fe enrichment. *Mar. Chem.*, **50**, 219–227.
- Takeda, S. and K. Watanabe (1997): Growth response of Antarctic phytoplankton to iron enrichment. *Proc. NIPR Symp. Polar Biol.*, **10**, 14–24.
- Takeda, S. and A. Tsuda (2005): An in situ iron-enrichment experiment in the western subarctic Pacific (SEEDS): Introduction and summary. *Prog. Oceanogr.*, **64**, 95–109.
- Takeda, S., N. Yoshie, P. W. Boyd, and Y. Yamanaka, (2006): Modeling studies investigating the causes of preferential depletion of silicic acid relative to nitrate during SERIES, a mesoscale iron enrichment in the NE subarctic Pacific. *Deep-Sea Res. II*, **53**, 2297–2326.
- Takeda, S., H. Obata, A. Okubo, M. Sato, and Y. Kondo (2014): Bioavailability and biogeochemical processes of trace metals in the surface ocean, p. 163–176. In *Western Pacific Air-Sea Interaction Study*, edited by M. Uematsu, Y. Yokouchi, Y. W. Watanabe, S. Takeda, and Y. Yamanaka, TERRAPUB, Tokyo, Japan.
- Tsuda, A., S. Takeda, H. Saito, J. Nishioka, Y. Nojiri, I. Kudo, H. Kiyosawa, A. Shiomoto, K. Imai, T. Ono, A. Shimamoto, D. Tsumune, T. Yoshimura, T. Aono, A. Hinuma, M. Kinugasa, K. Suzuki, Y. Sohrin, Y. Noiri, H. Tani, Y. Deguchi, N. Tsurushima, H. Ogawa, K. Fukami, K. Kuma, and T. Saino (2003): A mesoscale iron enrichment in the western Subarctic Pacific induces a large centric diatom bloom. *Science*, **300**, 958–961.
- Tsuda, A., S. Takeda, H. Saito, J. Nishioka, I. Kudo, Y. Nojiri, K. Suzuki, M. Uematsu, M. L. Wells, D. Tsumune, T. Yoshimura, T. Aono, T. Aramaki, W. P. Cochlan, M. Hayakawa, K. Imai, T. Isada, Y. Iwamoto, W. K. Johnson, S. Kameyama, S. Kato, H. Kiyosawa, Y. Kondo, M. Levasseur, R. J. Machida, I. Nagao, F. Nakagawa, T. Nakanish, S. Nakatsuka, A. Narita, Y. Noiri, H. Obata, H. Ogawa, K. Oguma, T. Ono, T. Sakuragi, M. Sasakawa, M. Sato, A. Shimamoto, H. Takata. C. G. Trick, Y. W. Watanabe, C. S. Wong, and N. Yoshie (2007): Evidence for the grazing hypothesis: Grazing reduces phytoplankton responses of the HNLC ecosystem to iron enrichment in the western subarctic Pacific (SEEDS II). *J. Oceanogr.*, **63**, 983–994.
- Uematsu, M., R. A. Duce, J. M. Prospero, L. Chen, J. T. Merrill, and R. L. McDonald (1983): Transport of mineral aerosol from Asia Over the North Pacific Ocean. *J. Geophys. Res.*, **88**, 5343–5352.
- Uematsu, M., M. L. Wells, A. Tsuda, and H. Saito (2009): Introduction to Subarctic iron Enrichment for Ecosystem Dynamics Study II (SEEDS II). *Deep-Sea Res. II*, **56**, 2731–2732.
- Wallace, D. W. R., C. S. Law, P. W. Boyd, Y. Collos, P. Croot, K. Denman, P. J. Lam, U. Riebesell, S. Takeda, and P. Williamson (2010): Ocean fertilization. A scientific summary for policy makers, *IOC/UNESCO*, Paris (IOC/BRO/2010/2).
- Wells, M. L. (1999): Manipulating iron availability in nearshore waters. *Limnol. Oceanogr.*, **44**, 1002–1008.
- Williamson, P., D. W. Wallace, C. S. Law, P. W. Boyd, Y. Collos, P.

Croot, K. Denman, U. Riebesell, S. Takeda, and C. Vivian (2012): Ocean fertilization for geoengineering: a review of effectiveness, environmental impacts and emerging governance. *Process Saf. Environ.*, **90**, 475–488.

Young, R. W., K. L. Carder, P. R. Betzer, D. K. Costello, R. A. Duce, G. R. DiTullio, N. W. Tindale, E. A. Laws, M. Uematsu, J. T. Merrill, and R. A. Feely (1991): Atmospheric iron inputs and primary productivity: Phytoplankton responses in the North Pacific. *Global Biogeochem. Cycles*, **5**, 119–134.

Biogeochemical studies on regulation mechanisms of marine primary production by trace metals

Shigenobu Takeda[†]

Abstract

Focusing on trace metals, such as iron, as important regulators of marine primary production by phytoplankton, original researches, involving both chemical and biological oceanography, were conducted by developing trace metal clean techniques for phytoplankton culture experiments. Field observations and onboard culture experiments were conducted in major high-nutrient low-chlorophyll waters, such as the Southern Ocean, the equatorial Pacific, and the subarctic North Pacific, and it was demonstrated that sub-nanomolar levels of iron regulate phytoplankton production. In addition, by analyzing the nutrient dynamics in these experiments, it was also found that the nutrient consumption ratios (Si/N and Si/P) by diatoms, which play a central role in marine primary production, are doubled under iron deficiency. This indicates that the C/Si transport ratio to the deep ocean by phytoplankton detritus sedimentation changes in accordance with iron supply to the ocean surface. Mesoscale iron enrichment experiments in the subarctic North Pacific were conducted to test the iron limitation hypothesis at the marine ecosystem level. Consequently, many experimental results were obtained, which enabled the quantitative analysis of the impact of iron, while pointing out problems caused by a large-scale iron fertilization in the oceans. Furthermore, the effects of atmospheric depositions, such as Asian dust and volcanic ash, on marine phytoplankton production and the role of trace metals in the nitrogen cycle at the subsurface layer were also investigated. These studies have led to a comprehensive understanding of the mechanisms by which trace metals regulate marine primary production.

Key words: Phytoplankton, Trace metals, Iron, Nutrients, Primary production

(Corresponding author's e-mail address: s-takeda@nagasaki-u.ac.jp)

(Received 8 May 2024; accepted 22 May 2024)

(doi: 10.5928/kaiyou.33.3-4_31)

(Copyright by the Oceanographic Society of Japan, 2024)

[†] Graduate School of Fisheries and Environmental Sciences, Nagasaki University
Bunkyo-machi 1-14, Nagasaki-city, Nagasaki 852-8521, Japan
e-mail: s-takeda@nagasaki-u.ac.jp