

鉄化学種と安定同位体比の複合分析に基づく  
海洋大気エアロゾル中の鉄溶解性の支配要因の解明  
Investigation of the controlling factors of fractional solubility of Fe  
in marine aerosols based on Fe speciation and Fe stable isotope ratios

栗栖 美菜子<sup>1,2\*</sup>, 柏原 輝彦<sup>2</sup>, 菊池 早希子<sup>3</sup>

<sup>1</sup> 東京大学大気海洋研究所,  
〒277-8564 千葉県柏市柏の葉 5-1-5

<sup>2</sup> 海洋研究開発機構 海底資源研究プログラム,  
〒237-0061 神奈川県横須賀市夏島町 2-15,

<sup>3</sup> 海洋研究開発機構 高知コア研究所,  
〒783-8502 高知県南国市物部乙 200

Minako KURISU<sup>1,2\*</sup>, Teruhiko Kashiwabara<sup>2</sup>, and Sakiko Kikuchi<sup>3</sup>

<sup>1</sup> Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology,  
2-15 Natsushima-cho, Yokosuka, Kanagawa 237-0061, Japan

<sup>2</sup> Atmosphere and Ocean Research Institute, The University of Tokyo  
5-1-5, Kashiwanoha, Kashiwa-shi, Chiba 277-8564 Japan

<sup>3</sup> Kochi Institute for Core Sample Research, Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology  
(JAMSTEC), 200 Monobe Otsu, Nankoku city, Kochi 783-8502 Japan

## 1 はじめに

北太平洋亜寒帯域は、植物プランクトンにとって必要な主要栄養塩であるリンや窒素が豊富にあるにも関わらず、その生産性が可溶性の鉄の不足によって制限される海域である。鉄の供給不足は植物プランクトンの増殖を律速し、生物ポンプを介した炭素循環、さらには気候変動にも影響を与える。

海洋表層への主要な鉄供給源のひとつとしてエアロゾルが挙げられるが、「エアロゾル中の鉄の溶解性が何によって決まるか」は未だに議論が残る点である。可溶性鉄は生物利用性が高いと考えられるため、供給される鉄の溶解性の規定要因を明らかにすることは、エアロゾルが海洋に到達した後一次生産にどの程度影響を与えるのかを定量的に理解する上でも重要である。

エアロゾル中の鉄の溶解性を左右する要因として、①大気輸送中の化学反応、②エアロゾルの起源(主に鉱物粒子、人為的な燃焼起源)による違いが考えられている。これらは、鉄安定同位体比と鉄化学種に着目することで区別することができる。鉄安定同位体比( $\delta^{56}\text{Fe}(\text{‰})$ )は、起源の違いを反映し、エアロゾル中の燃焼起源鉄は自然起源鉄に対して 4%程度低い  $\delta^{56}\text{Fe}$  を示す(Kurisu et al., 2019)。この違いは天然の  $\delta^{56}\text{Fe}$  の範囲と比較しても大きいため、洋上のエアロゾルでも  $\delta^{56}\text{Fe}$  から鉄の起源を見分けられる。一方、鉄化学種は、大気輸送中の反応の結果を反映し、大気中で反応する酸の種類や pH によって変化する(例えば硫酸鉄やシュウ酸鉄, Takahashi et al., 2013)。両者と溶解性との関連性を同時に明らかにすることで、何がどのように鉄の溶解性を決めるのか解明できると期待される。

## 2. 研究の目的

本研究では、洋上のエアロゾル中の鉄の粒径別の化学種・安定同位体比と溶解性の関係性から、鉄の溶解性を決める主な要因を解明することを目的とした。

## 3. 研究の方法

試料は北太平洋において白鳳丸 KH-17-3 次航海(2017 年夏、図 1)で採取されたものを用いた。試料はハイボリウムエアサンプラーにカスケードインパクターを装着し、粒径を分けてフィルター上に採取した。海洋上ではエアロゾルの大気中の鉄濃度は非常に低いため、汚染に細心の注意を払う必要がある。そのためフィルターは事前に酸洗浄を行った。

鉄の化学種解析は、X 線吸収微細構造(XAFS)法を用いた。フィルター上の粒子をカプトンテープに移し、BL-9A もしくは BL-12C において蛍光法で Fe K 吸収端 XANES スペクトルを取得した。得られた試料のスペクトルを標準試料のスペクトルでフィッティングして、平均的な化学種の割合を求めた。

また、濃度については、試料を混酸分解もしくは超純水抽出し、誘導結合プラズマ質量分析計(ICPMS)で定量した。同位体比は、分解試料中の鉄を陰イオン交換樹脂で分離した上で、マルチコレクター型 ICPMS で分析を行った。

## 4. 研究成果

図 2 に各エアロゾル中の粗大粒子( $> 7.2 \mu\text{m}$ )と微小粒子( $0.49\text{-}0.95 \mu\text{m}$ )の鉄化学種別の割合をそれぞれ示した。外洋域の試料については濃度が低すぎるために質の良いスペクトルが得られなかった。粗大粒子(図 2c)はいずれも鉱物粒子や水酸化鉄が支配的であ

る一方、微小粒子中(図 2d)にはシュウ酸鉄、クエン酸鉄、硫酸鉄など、溶解性の高い化学種が最大 50% 程度含まれていることが分かった。これに対して、溶解性は微小粒子が粗大粒子よりも高く、化学種とも整合的であった(図 3a)。

同位体比と溶解性を比較した結果(図 3b)、沿岸域(東アジア、北アメリカ近海)では同位体比が低いほど溶解性が高い傾向が見られた。したがって、人為起源エアロゾルが高い鉄溶解性を示す化学種を含み、選択的に水溶性鉄として溶け出すことで、エアロゾル全体の溶解性の増加に寄与していることが示された。一方、外洋域やアラスカ湾付近では同位体比と溶解性の関連は顕著でなく、自然起源鉄が支配的であった。このことは、起源による違いでなく、自然起源鉄の大气中での変質により溶解性の増加が引き起こされたことが示唆される。海域によって異なるプロセスで溶解性が変化していることが明らかとなった。

謝辞

上記の結果は各種学会で発表を行った他、論文受理済である(Kurisu et al., 2024)。この研究は日本学術振興会科学研究費助成事業(21K17886)の助成を受けて行った。実験に際しサポートをいただいた PF スタッフの皆様感謝申し上げます。

参考文献

- [1] M. Kurisu et al., ACS Earth Sp. Chem. 3 (2019).
- [2] Y. Takahashi et al., Atmos. Chem. Phys. 13 (2013).
- [3] M. Kurisu et al., Geochim. Cosmochim. Acta 378 (2024).

成果

1. M. Kurisu, Application of Fe isotope ratios for a better understanding of the Fe cycle in the surface ocean and lower atmosphere, 8th SOLAS Open Science Conference, 2022 年 9 月 (国際学会招待講演)
2. 栗栖美菜子, 安定同位体と化学種分析を用いた大気・海洋間の鉄の供給過程に関する研究, 2025 年度日本海洋学会秋季大会 (岡田賞受賞記念講演)
3. M. Kurisu et al., Geochim. Cosmochim. Acta 378 (2024).
4. M. Kurisu et al., Atmos. Environ., 373 (2026).

\* minako-kurisu@g.ecc.u-tokyo.ac.jp

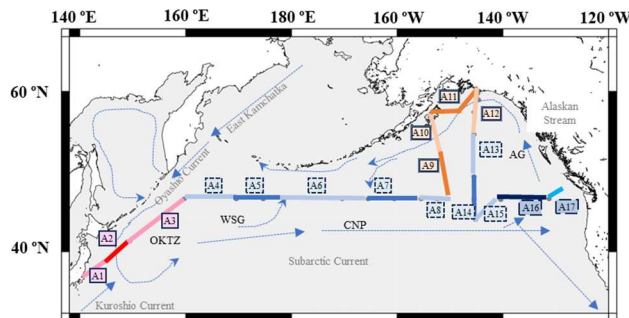


図 1. KH-17-3 次航海の航路と試料採取地点。トラックの色が図 3 のプロットに対応する。

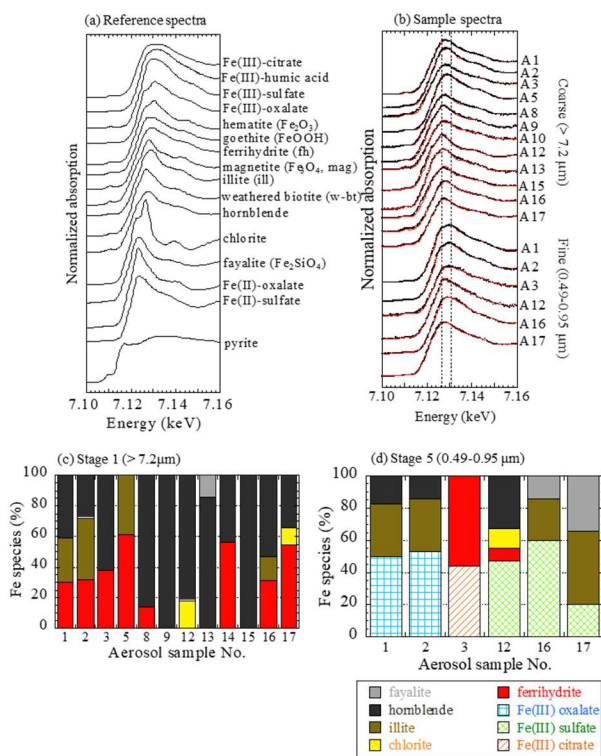


図 2. Fe K 吸収端 XANES スペクトルと、化学種フィッティングの結果。

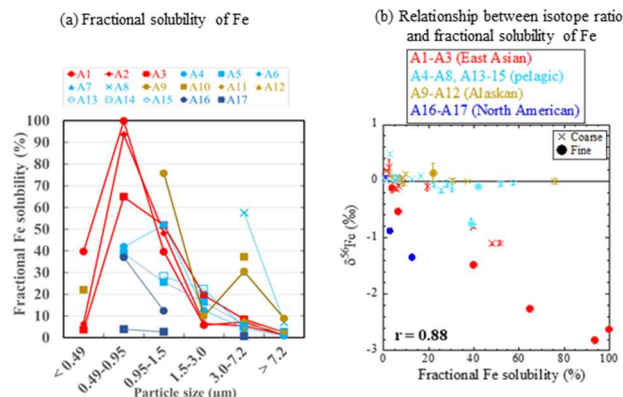


図 3. 粒径別の鉄溶解性と、鉄溶解性と同位体比の関係。