

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 12 日現在

機関番号：10101

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2011～2014

課題番号：23681001

研究課題名(和文) 南北両極の氷床コアに含まれるエアロゾル組成を用いた氷期間氷期の大気化学環境の解読

研究課題名(英文) Past atmospheric characteristics of glacial and interglacial periods reconstructed from aerosol compositions preserved in bipolar ice cores.

研究代表者

飯塚 芳徳 (Iizuka, Yoshinori)

北海道大学・低温科学研究所・助教

研究者番号：40370043

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,600,000円

研究成果の概要(和文)：アイスコアに保存されている水溶性エアロゾルを微粒子1粒ごとに観察する手法を世界に先駆けて開発し、南極で採取されたドームふじアイスコアに含まれる硫酸塩エアロゾルを測定した。その結果、過去30万年間の氷期-間氷期サイクルにおいて、硫酸塩フラックスと気温の間に逆相関がみられた。この事実は、硫酸塩フラックスが大きい時代は、エアロゾルの間接効果が気温低下をもたらしていることを示唆する。最終氷期最盛期(約2万年前)から現在の間氷期(現在～約1万年前の温暖期)への気温変動のうち、硫酸塩エアロゾルの間接効果による寄与は最大で5℃と見積られ、硫酸塩エアロゾルが氷期-間氷期の気温変動に寄与したことを解明した。

研究成果の概要(英文)：Sulphate aerosols, particularly micron-sized particles of sulphate salt and sulphate-adhered dust, can act as cloud condensation nuclei, leading to increased solar scattering. Evidence for sulphate-climate coupling in the current era has not been found, but may be revealed in the long-term sulphate record from polar ice cores. Melted ice-core samples have previously provided only sulphate-ion concentrations, which may be due to sulphuric acid. We present profiles of sulphate-salt fluxes over the past 300,000 years from the Dome Fuji ice core in inland Antarctica. Results show the sulphate-salt flux correlates inversely with temperature, suggesting a climatic coupling between particulate sulphur and temperature. Although based on a model with serious uncertainties when applied to the ice core record, this analysis indicates that the glacial-to-interglacial decrease in sulphate would lessen the aerosol indirect effects on cloud albedo, leading to an Antarctic warming of 0.1 to 5.2 K.

研究分野：雪氷学

キーワード：アイスコア 古環境復元 エアロゾル 南極 北極 硫酸塩

1. 研究開始当初の背景

大気中に含まれるエアロゾルは大気の種類(汚染・酸性度など)を決め、その濃度や組成の解釈は大気汚染や地球温暖化の解釈に重要な知見を提供する。特に、過去から現在に至る連続的なエアロゾル組成や濃度の変遷特性を把握することは大気汚染や地球温暖化の将来予測に大きく貢献する。

過去から現在に至る連続的な古環境記録媒体のひとつに氷床コアがある。氷床コアは数十万年スケールの連続的な古環境記録媒体の中では唯一、過去の気体成分や水溶性エアロゾルを保存しているという長所がある。これまで、氷床コアに含まれる水溶性エアロゾル濃度は氷をクリーンな状態で融解させ、融解水に含まれるイオン濃度として解釈がされてきた。しかしながら、エアロゾル組成については上述した融解によるイオン化のために、イオン濃度から融解前の組成を推定することがこれまでの代表的な方法であった。

近年、申請者は氷を低温で融解させずに昇華蒸発させて、不揮発性(水溶性を含む)のエアロゾル粒子を効率的に集める方法を構築した(Iizuka et al., 2009)。この昇華による水溶性エアロゾルの抽出方法は、1)氷コアに含まれているエアロゾルの統計的に有意な主成分組成を提供できる世界唯一の方法であり、2)これまでエアロゾルの直接観察が困難であった、氷床表面～深さ 100m 付近に分布している雪の表面や内部に存在する微粒子の化学成分をも同定することができ、近年の雪氷中に保存されたエアロゾル組成変動を直接的に探ることができる唯一の手法(Iizuka et al., 2010)と自負している。この昇華法を応用して、数十万年スケールのエアロゾル組成を復元する段階にきている。

申請者は南極のドームふじ深層コアを用いて、過去 72 万年間のエアロゾル組成変動を抽出してきた。重要な新しい知見としては氷期間氷期スケールで水溶性エアロゾルの組成が周期的に変化することなどが成果として創出しつつあった。

他方で、組織的な若手研究者等海外派遣プログラムの一環で、北極コアを有するストックホルム大学に滞在し、今年掘削プロジェクトが終わったばかりの北極グリーンランドの NEEM 深層コアの解析に着手を始めた。グリーンランド氷床は南極氷床とは異なり近年の人為的エアロゾル汚染をよく記録していることで知られている。また、NEEM 深層コアは北極で最終間氷期(MIS5.5)以前の情報を有している初めての貴重なコアであり、このコアの存在で両極の氷期間氷期サイクル 1 周期を完全に比較できることになる。

2. 研究の目的

本研究では、不揮発性粒子の抽出方法(昇

華法)を開発したスキルを、また、南極コアで培ってきた技術・知見を、国際共同研究のもとで北極 NEEM 氷床コアに応用し、両極域の過去 15 万年間のエアロゾル組成変動を抽出する。南北両極の氷床コアから過去のエアロゾル組成という大気汚染や地球温暖化の解釈に重要で、かつ新しい環境指標を抽出して、氷期間氷期スケールの気候変動に特有な古大気環境を解読することを目的とする。申請者は近年、氷コアからエアロゾル組成の情報を抽出するという世界的に見ても極めて独創的な方法を開発し、その方法を南極ドームふじ氷床コアに適用し、南極域の古大気化学変遷に関する多くの成果を得た。これまで南極コアで培ってきた技術・知見を今年掘削された北極グリーンランド氷床コアに応用し、両極の氷期間氷期スケールのエアロゾル組成変動を対比する。この対比は地球規模の古大気化学変遷をこれまでにない環境シグナルで再追跡することにほかならず、従来の解釈を更新する独創的な成果が期待される。

3. 研究の方法

両極のアイスコアとして、南極はドームふじ氷床コアを、北極はグリーンランド NEEM コアを用いた。2010 年～2013 年、スウェーデン・ストックホルム大学に滞在し、同大学に保管されている NEEM コアに含まれている不揮発性粒子を昇華法により抽出した。昇華法とは、エアークンプレッサー、エアードライヤーを用いて露点温度の低い乾燥空気を作り出し、乾燥空気を強制的にフィルター上の氷コアに送り込み、水溶性エアロゾル粒子が固体で存在できる -50 以下の低温状態で氷を昇華蒸発させる。南極ドームふじコアについては過去 30 万年間を約 1 万年分解能、最終退氷期を約 500 年分解能で分析した。北極 NEEM コアについては過去 15 万年間を約 3000 年分解能で分析した。

1 試料につき数百個以上の微粒子の元素組成を SEM-EDS を用いて分析した。近い年代のアイスコアに含まれるイオン濃度・ダスト濃度・同位体比などを用い、得られた成果をエアロゾルに関する知識の豊富なストックホルム大学の共同研究者など国内外の研究者で得られたエアロゾル組成の結果を解析し、気候区分ごとの大気環境の特徴を解読した。

4. 研究成果

4.1. 過去 30 万年間の南極ドームふじコア

過去 30 万年間の硫酸イオンおよび硫酸塩エアロゾルのフラックスと、気温の指標(酸素同位体比)の間の相関に明らかな違いが見いだされた。従来の指標であった硫酸イオンのフラックスは気温と相関がないのに対して、固体の硫酸塩エアロゾルのフラックスには負の相関がみられた。すなわ

ち、海洋生物（植物プランクトン）に由来する硫酸エアロゾルと気温変動にはカップリングは認められないにもかかわらず、硫酸エアロゾルから生成される硫酸塩エアロゾルと気温変動には明確なカップリングがあることを示している。寒冷期に硫酸塩エアロゾルが多いという結果は、硫酸塩エアロゾルが寒冷化を増幅していること（正のフィードバック）を示唆している。この結果は、CLAW 仮説が提唱する、寒冷化に伴って硫酸エアロゾルが少なくなることで、寒冷化を抑制するというプロセスが成り立っていないことを示している。

なぜ硫酸イオンのフラックスに変動が無いのに、硫酸塩エアロゾルのフラックスが気温と明らかな負の相関をもつのかについて考察した。少なくとも、気温が高い間氷期は、硫酸塩エアロゾルの生成量は、大気中の海塩の量に依存する。そのため、大気中に放出される海塩の量が増加することが、硫酸塩エアロゾルの生成量増加のカギと考えられる。すなわち、負の相関は、CLAW 仮説が想定するような生物系と物理系の相互作用の結果ではなく、海塩の量という大気海洋物理学的な作用の結果と考えることができる。

過去 30 万年間の硫酸塩フラックスと気温の逆相関は、硫酸塩フラックスが大きいときにエアロゾルの間接効果による負の放射強制力が強まり、硫酸塩が気温低下に寄与していることを示唆する。南極で約 8 の変化と考えられている最終氷期最盛期（約 2 万年前）から現在の間氷期（現在～約 1 万年前の温暖期）にかけての気温変動のうち、硫酸塩エアロゾルの間接効果による寄与は概算で 0.1～5 と見積られた。

主な成果は Iizuka et al., 2012 にまとめられている。

4.2. 最終退氷期の南極ドームふじコア

ドームふじの水溶性微粒子の主な成分は、 Na_2SO_4 , CaSO_4 , NaCl であった。最終氷期最盛期では CaSO_4 と NaCl の割合が高く、完新世では Na_2SO_4 の割合が高い。

南極では退氷期を通して、 CaSO_4 , Na_2SO_4 の割合が高かったことから、大気中での硫酸塩化が促進していると考えられる。最終退氷期前半（寒冷期）の南極内陸で CaSO_4 と NaCl の割合が高かったのは、大陸起源物質 (Ca^{2+}) の供給量が多かったため、大陸起源物質の硫酸塩化 (CaSO_4) が海塩 (Na^+) の硫酸塩化 (Na_2SO_4) よりも促進していたことが原因であると考えられる。退氷期後半（温暖期）に Na_2SO_4 の割合が増加したのは、大陸起源物質の供給量が減少したため、海塩の硫酸塩化が促進したことが原因であると考えられる。

一つの最終退氷期に着目すると、硫酸塩フラックスと気温の逆相関はより明瞭になった。個々の退氷期ごとで逆相関の係数が

異なっている可能性が指摘できる。

主な成果は Oyabu et al., 2014 にまとめられている。

4.3. 過去 15 万年間の北極 NEEM コア

NEEM の水溶性微粒子の主な成分は、 Na_2SO_4 , NaCl , CaSO_4 , CaCO_3 であった。最終氷期最盛期では CaCO_3 と CaSO_4 と NaCl の割合が高く、完新世では NaCl と Na_2SO_4 の割合が高い。

グリーンランドでは退氷期を通して、 NaCl と CaCO_3 の割合が高かったことから、南極内陸と比べて大陸起源物質 (Ca^{2+}) や海塩 (Na^+) の硫酸塩化 (CaSO_4 , Na_2SO_4) が抑制されていたと考えられる。最終氷期最盛期は大陸起源物質や海塩濃度が硫酸濃度に対して高い傾向があり、硫酸が不足していたこと、完新世は海塩と硫酸の季節変動が異なることが、硫酸塩化抑制の原因として考えられる。

新しくイオン推定法を考案し、水溶性塩微粒子濃度を定量化した CaCO_3 , CaSO_4 , NaCl および Na_2SO_4 フラックスの絶対値はグリーンランドの方が南極よりも高かった。最終氷期最盛期と完新世の差を調べたところ、 Ca 塩 (CaCO_3 , CaSO_4) は南北両極間で違いがみられた一方、 Na 塩 (NaCl , Na_2SO_4) は両極間の違いはみられなかった。

南極内陸とグリーンランドの硫酸塩エアロゾルフラックスは供給源も輸送経路も全く異なるにも関わらず、気温と数千年スケールの有意な負の相関があることがわかった。硫酸塩は雲の凝結核となって地球を寒冷化させる効果があると考えられている。硫酸塩エアロゾルは、最終退氷期の気温を上昇に関わる因子の一つである可能性が考えられる。

主な成果は Oyabu, 2014 (学位論文) にまとめられており、同様の内容を Journal of Geophysical Research 誌に投稿中である。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 10 件)

代表的なもの

1) Oyabu, Ikumi; Iizuka, Yoshinori; Uemura, Ryu; et al., Chemical compositions of sulfate and chloride salts over the last termination reconstructed from the Dome Fuji ice core, inland Antarctica, Journal of Geophysical Research-Atmospheres Volume: 119 Issue: 24 Pages: 14045-14058 Published: 2014 DOI: 10.1002/2014jd022030 (査読あり)

2) Dahl-Jensen, D.; Albert, M. R.; Aldahan, A.; et al., Eemian interglacial reconstructed from a

Greenland folded ice core, Nature Volume: 493 Issue: 7433 Pages: 489-494 Published: JAN 24 2013, DOI: 10.1038/nature11789(査読あり;著者 68 人中 20 番目)

3) Iizuka, Yoshinori; Delmonte, Barbara; Oyabu, Ikumi; et al., Sulphate and chloride aerosols during Holocene and last glacial periods preserved in the Talos Dome Ice Core, a peripheral region of Antarctica, Tellus Series B-Chemical and Physical Meteorology Volume: 65 Published: 2013, DOI: 10.3402/tellusb.v65i0.20197(査読あり)

4) Iizuka, Yoshinori; Uemura, Ryu; Motoyama, Hideaki; et al., Sulphate-climate coupling over the past 300,000 years in inland Antarctica, Nature Volume: 490 Issue: 7418 Pages: 81-84 Published: OCT 4 2012, DOI: 10.1038/nature11359(査読あり)

5) Iizuka, Yoshinori; Tsuchimoto, Akira; Hoshina, Yu; et al., The rates of sea salt sulfatization in the atmosphere and surface snow of inland Antarctica, Journal of Geophysical Research-Atmospheres Volume: 117 Published: FEB 28 2012, DOI: 10.1029/2011JD016378(査読あり)

6) Y. Iizuka, H. Ohno, T. Sakurai, S. Horikawa, and T. Hondoh, Chemical compounds of water-soluble impurities in Dome Fuji ice core. Physics of Ice core Record 2, ed. T. Hondoh, 273-285, 2010(査読あり)

7) Iizuka, Yoshinori; Miura, Hideki; Iwasaki, Shogo; et al., Evidence of past migration of the ice divide between the Shirase and Soya drainage basins derived from chemical characteristics of the marginal ice in the Soya drainage basin, East Antarctica, Journal of Glaciology Volume: 56 Issue: 197 Pages: 395-404 Published: 2010 (査読あり)

〔学会発表〕(計 30 件)

代表的なもの

1) Y. Iizuka 「Sulphate-climate coupling over the past 300,000 years in inland Antarctica」, 『Hokkaido University – University of Bremen Joint Seminar』, Bremen, Germany, (1, December, 2014).

2) Oyabu, I., Y. Iizuka, M. Fukui, and M. Hansson, Chemical compositions of past soluble aerosols over a glacial-interglacial cycle reconstructed from Greenland NEEM ice core, 『Hokkaido University – University of

Bremen Joint Seminar』, Bremen, Germany, (1, December, 2014).

3) 飯塚 芳徳「南極内陸における過去 30 万年の硫酸塩エアロゾルと気温の関係」,九州シンクロトロン光研究センター合同シンポジウム「基礎科学・基礎研究からのイノベーション創出を目指して」,佐賀県鳥栖市(佐賀県立九州シンクロトロン光研究センター)2014年8月5日[招待講演]

4) Oyabu, I., Y. Iizuka, M. Fukui, and M. Hansson, Chemical compositions of non-volatile particles in NEEM ice core over the last 120,000 years, 『NEEM Symposium 2014』, Copenhagen, Denmark, (22 April, 2014).

5) 飯塚 芳徳, 植村 立, 本山秀明 (4 名省略), 南極内陸における過去 30 万年の硫酸塩エアロゾルと気温のカップリング, 日本地球惑星科学連合 2013 年大会, 千葉・幕張・幕張メッセ(20130523)[招待講演]

6) Oyabu, I., Y. Iizuka, T. Karlin, M. Fukui, T. Hondoh, D. Leuenberge, H. Fischer, S. Schupbach, G. Gfeller, R. Mulvaney and M. Hansson, 「Chemical compositions of soluble aerosols around the last termination in the NEEM (Greenland) ice core」, 『goldschmidt 2013』, Florence, Italy, (29 August, 2013).

7) Oyabu, I., Y. Iizuka, T. Karlin, M. Fukui, T. Hondoh, D. Leuenberge, H. Fischer, S. Schupbach, G. Gfeller, R. Mulvaney and M. Hansson, 「Chemical compositions of soluble aerosols around the last termination in the NEEM (Greenland) ice core」, 『EGU General Assembly 2013』, Austria, Vienna, (23 April, 2013).

8) Oyabu, I., Y. Iizuka, T. Karlin, M. Fukui, T. Hondoh and M. Hansson, 「Chemical compositions of soluble aerosols around the last termination in the NEEM (Greenland) ice core」, 『Third International Symposium on the Arctic Research』, National Institute of Polar Research, Tokyo, Japan, (23 January, 2013).

9) Oyabu, I., Y. Iizuka, T. Sakurai, T. Suzuki, T. Miyake, M. Hirabayashi, H. Motoyama, T. Hondoh, 「Chemical compositions of soluble aerosols around the Termination 1 in the Dome Fuji ice core」, 『International Partnerships in Ice Core Sciences First Open Science Conference』, Presqu'île de Giens, Cote d'Azur, France, (1 October, 2012).

10) Yoshinori Iizuka, Margareta Hansson, Ikumi Oyabu, Torbjörn Karlin and Kumiko

Goto-Azuma, Chemical compounds of past soluble aerosols preserved in the NEEM and Dome Fuji ice cores, EGU General Assembly 2012, Vienna, Austria, 2012/4/22-27

11) Oyabu, I., Y. Iizuka, T. Sakurai, T. Suzuki, T. Miyake, M. Hirabayashi, H. Motoyama, T. Hondoh, 「Chemical composition of soluble particles around the Termination 1 in the Dome Fuji ice core」, EGU General Assembly 2012, Vienna, Austria (22-27 April, 2012).

〔図書〕(計 1 件)

アイスコア－地球環境のタイムカプセル－
編著者：藤井理行・本山秀明 出版社：成
山堂書店 ISBN：9784425570119 2011
年

〔産業財産権〕

○出願状況(計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

○取得状況(計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

飯塚 芳徳 (IIZUKA YOSHINORI)

北海道大学低温科学研究所・助教

研究者番号：40370043