

令和元年6月24日現在

機関番号：62611

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15H01731

研究課題名(和文)南極氷床コア中ダストのマルチパラメータ分析による氷期・間氷期の気候・環境変動解読

研究課題名(英文)Glacial-interglacial changes in climate and environment studied by multi-parameter analyses of ice-core dust

研究代表者

東 久美子 (Goto-Azuma, Kumiko)

国立極地研究所・研究教育系・教授

研究者番号：80202620

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 35,500,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、気候・環境変動と深い関わりを持つ鉱物ダストの特性を表わすマルチパラメータを高精度で分析する手法を開発し、これを用いて南極ドームふじ氷床コアに含まれるダストを分析した。最終氷期～完新世初期を通じてダストのフラックスとCO₂濃度の相関が高かったことや、最終氷期の寒冷期に鉱物起源のジプサムが増加した可能性が高いことなどを示した。また、完新世においてダストが多様な発生源からドームふじに飛来したこと、溶存態と粒子態の割合が元素によって異なることなどが分かった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

ダストは放射強制力に影響を及ぼすとともに、氷床・氷河や海上に堆積して雪氷面のアルベドを低下させ、融解を促進するため、気候・環境変動や海面変動と深い関わりを持っている。また、CO₂濃度の変動とも深い関わりを持っていると考えられ、本研究で得られたダストの特性、動態、時間変動、CO₂変動との関係に関する知見は、CO₂の変動や気候変動のメカニズムの解明や将来予測の高精度化に大きく貢献することが期待される。

研究成果の概要(英文)：We have developed cutting-edge techniques to perform multi-parameter analyses of mineral dust deposited onto the Antarctic ice sheet. Using these methods, we have analyzed mineral dust in Dome Fuji deep ice core. High resolution and accurate analyses using our CFA (Continuous Flow Analysis) system show that dust flux and CO₂ concentration were highly correlated throughout the last deglacial period. Detailed analyses of the ion data suggest that continental gypsum might be an important source of non-sea-salt sulfate during cold glacial periods. We have found that dust originates from different sources during Holocene and that different elements show different ratios of particulate and soluble fractions of dust.

研究分野：雪氷学、古気候学

キーワード：南極氷床コア ダスト マルチパラメータ 氷期・間氷期 気候・環境変動

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

大気中の鉱物ダスト(以後、ダストと呼ぶ)は日射を遮ったり、雲の凝結核として作用することで、放射強制力に影響を及ぼす。氷床・氷河や海氷上に堆積したダストは、雪氷面のアルベドを低下させ、融解を促進する。海洋に降下したダストは、光合成を行なう植物プランクトンの活動に不可欠な鉄の供給源として重要であり、大気中のCO₂の変動とも関係している可能性が高い。南極氷床コア中のダストは、CO₂の吸収・放出源として重要な、南大洋に降下するダストと同じ発生源から輸送されたものと考えられ、その特性や動態の解明は、CO₂変動・気候変動のメカニズム解明に不可欠である。

ダストが放射強制力や気候に及ぼす影響を評価するには、ダストの濃度、フラックス、粒径分布、鉱物組成や、それらの変動を正確に把握する必要がある。日本の南極観測隊が南極ドームふじで掘削した氷床コアや、欧州が南極ドームCで掘削した氷床コアから、過去70~80万年を通じてダストのフラックスが南極の気温と負の相関を示し、間氷期に低く、氷期に高かったことが知られていたが、従来の研究で報告された濃度とフラックスは、測定方法の不確実性に起因する、予想以上に大きな誤差を含むため、定量的な議論が困難であった。誤差の大きい従来の研究から導かれた結論を検証するには、ダストを高精度で分析する必要がある。

南大洋のように栄養塩が豊富であるにも関わらず、鉄の欠乏により海洋基礎生産が低い海域では、鉄の供給が増えると海洋基礎生産が増加する可能性が高い。南極の氷床コアから、CO₂濃度が低下した氷期にダストが増加したことが分かったため、「南大洋では、氷期にダストが増加して鉄濃度が高くなったことで海洋基礎生産が増えた。そのため大気中のCO₂が海洋に大量に

吸収され、CO₂濃度が減少した」とする「Martinの鉄仮説」(1990)が提唱され、注目を集めた。しかし、氷期におけるCO₂濃度減少についてはダスト以外の要因も提唱されている。ドームC氷床コアの研究グループは、退氷期から完新世にかけてのダストフラックスの減少とCO₂増加のタイミングを比較し、ダストフラックスの減少が概ね終了してからもCO₂濃度が増加し続けることから、CO₂変動に対するダストの寄与は退氷期の前半のみに限定されると結論づけた。しかし、ダストの寄与が大きいという説も依然として主張されており、決着がつかない。

2. 研究の目的

本研究では、ダストの放射強制力や海洋への溶存性、更にはダストと気候・環境変動の相互作用を推定するため、氷床コアに含まれるダストの特性を表わすマルチパラメータ(濃度、粒子の形状、粒径分布、化学組成、鉱物組成等)を高精度で分析するため、最先端の分析技術を開発及び最適化し、それらの技術を用いて南極ドームふじ氷床コアの分析を行う。マルチパラメータ分析から得られる情報は、ダストが気候変動に及ぼす影響の解明に不可欠であるだけでなく、ダストの発生源推定や、発生源となる地域の環境変動(植生、乾燥度、水循環の変動など)及び大気循環の変動を理解する上でも必要である。本研究では退氷期から完新世初期にかけての気候・環境変動を中心として研究を行う。

3. 研究の方法

(1) 国立極地研究所で開発した氷床コア連続融解・分析(Continuous Flow Analysis、略してCFA)システムを用いて南極のドームふじで掘削された氷床コアを分析するため、CFAシステムを構成する四重極型ICP質量分析計及びレーザー遮蔽式微粒子分析計を用いた分析方法を確立し、分析条件を最適化する。

(2) 本研究ではダスト粒子の分析のため、CFAシステムを構成するレーザー遮蔽式微粒子分析計による連続融解分析を行うとともに、融解水をフラクション・コレクターでサンプル瓶に自動分取した試料を、レーザー散乱式微粒子分析計とコールター式微粒子分析計によって分析する。分析に先立って、各装置の特徴を明らかにし、高精度のキャリブレーションを行う。

(3) 走査型電子顕微鏡(SEM)及びSEMに付属するエネルギー分散型X線分析装置(EDS)を用いて鉱物ダスト粒子の形態、粒径、元素組成を分析する。

(4) 上記の分析方法で取得したデータに加えて、ドームふじコアのイオン分析データを用いて、過去のダストの変動と気候・環境変動との関わりを考察する。

4. 研究成果

(1) CFAシステムを構成する四重極型ICP質量分析計及びレーザー遮蔽式微粒子分析計による高時間分解能・連続融解分析法を確立した。完新世の氷にはダストが極微量しか含まれないため、既存の分析計・分析方法では高精度の分析ができない。本研究ではCFAシステムを構成する部品からのコンタミネーションを抑える工夫を行うとともに、ICP質量分析計の分析条件の最適化を行うことで、極微量の元素を分析することを可能にした。レーザー遮蔽式微粒子分析

計についてはデータ取得・解析プログラムを自作することで、測定できる最小粒径を 1.5 μm から 1 μm 程度まで下げることができ、ダストの濃度と粒径について高精度のキャリブレーションを行うことができた。図 1 に完新世～最終退氷期に対応する深度のダストの分析結果を示すが、従来の分析結果に比べ、低濃度のダストを高精度・高時間分解能で分析できた。一方、退氷期～氷期の氷は高濃度のダストを含み、分析計の測定可能粒子数を超えてしまうため、氷床コアの融解水を超純水で希釈しながら CFA システムで分析する方法を開発し、高濃度のダストの分析も可能にした。

(2) 低濃度のダストを高精度・高時間分解能で分析できた結果、最終退氷期～完新世初期にかけて、 CO_2 濃度とダスト濃度が非常に良い相関を示すことが分かった。これは、退氷期の前期だけでなく、後期においてもダストが CO_2 濃度に影響を与えていた可能性が高いことを示唆する。他の退氷期においても同様の解析をする必要がある。

(3) CFA を構成する ICP 質量分析計を用い、ダストに含まれる成分である Fe、Al、Ca、Na、Mg、K を高精度・高時間分解能で分析した。その結果、ICP 質量分析計のシグナルのバックグラウンドの上に、鋭いスパイク状のピークが重なって見られる元素があった。フラクション・コレクターで分取した試料を濾過し、溶存態と粒子態に分けて分析し、CFA のデータと比較したところ、バックグラウンド濃度を形成するのが溶存態で、スパイク的に出現するピークを形成するのが粒子態であることが分かった。これにより、CFA によって溶存態と粒子態を分離した高時間分解能分析を実施することができた。図 2 に分析結果の一例を示す。Al と Fe は粒子態が多く、CFA データに高濃度のスパイクが多数見られた。Na と Mg は大部分が溶存態であった。Ca と K は殆どが溶存態であったが、ところどころにスパイク状の高濃度が見られ、粒子態由来の成分が存在することが分かった。今後、ダスト由来の元素について、溶存態と粒子態の割合等を定量解析し、南大洋に飛来するダストが CO_2 濃度に及ぼす影響を見積もる必要がある。

(4) 完新世でダスト濃度の異なる試料を SEM で観察した。鉱物の粒径はどのサンプルも平均 1 μm 前後と小さく、粒径分布にも大きな違いは見られなかったことから、いずれも主に遠方から輸送されたものだと考えられる。次に EDS を用いた表面化学組成分析の結果から、Si を含むケイ酸塩鉱物が卓越していること、その組成はダスト濃度によって大きく異なることが分かった。高濃度期は Na および K に乏しい非アルカリ岩に由来する鉱物が多く含まれるのに対し、

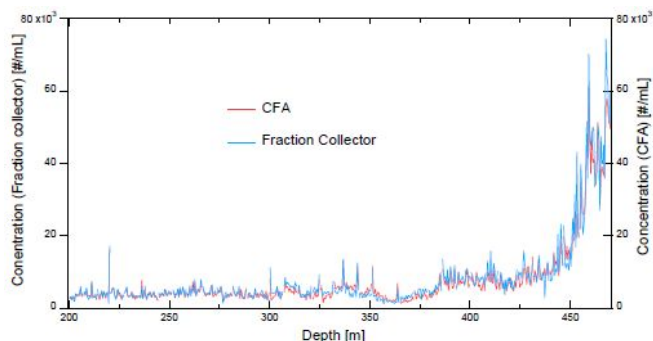


図 1 レーザー遮蔽式微粒子分析計 (CFA) 及びコレクター式微粒子分析計 (Fraction collector) によるダストの数濃度分析結果の比較。1 ~ 12 μm の粒子の濃度の 50 cm 平均値。

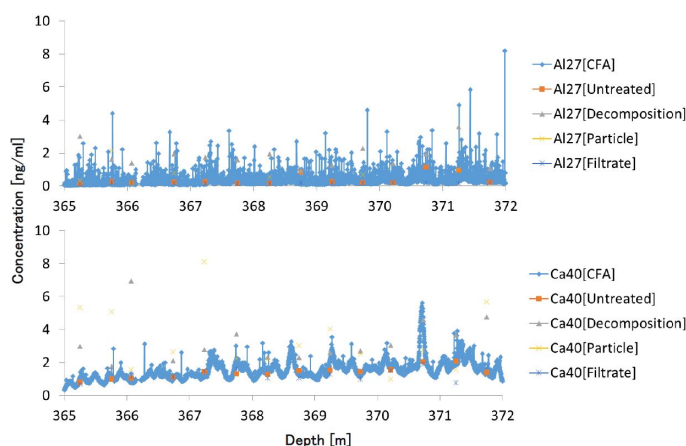


図 2 CFA に接続した ICP 質量分析計 (ICPMS) による分析結果 [CFA] とフラクション・コレクターで採取した試料を異なる処理法で分析した結果の比較。[Untreated] はフラクション・コレクター (FC) により分取した試料を ICPMS で測定したもの。[Decomposition] は FC 分注試料を酸分解して ICPMS で測定したもの。[Particle] は FC 分注試料を 0.2 μm フィルターにより濾過し、粒子のみを酸分解して ICPMS で測定したもの。[Filtrate] は FC 分注試料を 0.2 μm フィルターによりろ過し、ろ液を ICPMS で測定したもの。

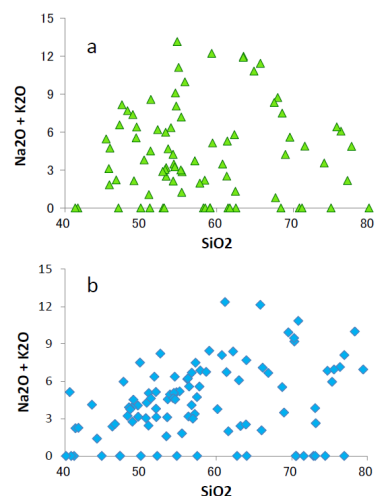


図 3 完新世のダスト低濃度期 (a) と高濃度期 (b) の化学組成の比較。

低濃度期はそれに加えて両元素が豊富なアルカリ岩由来の鉱物も含まれていることが示唆された(図3)。更に、SiO₂含有量を比較すると、高濃度試料にはSiO₂を豊富に含む花崗岩や流紋岩由来の鉱物が多く含まれるのに対し、低濃度試料にはSiO₂が少ない玄武岩や安山岩由来の鉱物が多かく含まれていた。これらのことから、ダスト濃度の高い時期と低い時期で異なる地質起源から鉱物が供給されていたと考えられる。先行研究との比較の結果、高濃度試料は南米およびニュージーランドや南極半島の火山岩に、低濃度試料はそれに加えて西南極に多く分布する火山の特徴に比較的近い特徴を示しており、このような起源から鉱物が供給されていた可能性が示唆された。このように、完新世においてもダストは多様な起源を持つことが明らかになった。

(5) ドームふじコアのイオンデータを詳細に解析し、以下の新しい知見を得た。従来、非海塩性硫酸イオン(nssSO₄²⁻)は植物プランクトンが生成する硫化ジメチル(DMS)が起源であると考えられていたが、氷期の寒冷期には、かなりの部分が鉱物起源のジブサムである可能性が高いことを示した。鉱物起源のnssSO₄²⁻を差し引くことで、DMS起源のnssSO₄²⁻フラックスを推定し、フラックスが氷期には間氷期の1/3~1/4程度に減少していた可能性が高いことを示した。従来は、DMS起源の硫酸エアロゾルのフラックスが氷期-間氷期サイクルを通じてほぼ一定であったと考えられていたが、従来の説が誤りである可能性が高く、DMS起源の硫酸エアロゾルのフラックスが気温と正の相関を示すことを示唆する。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計 17件)

Goto-Azuma, K., Hirabayashi, M., Motoyama, H., Miyake, T., Kuramoto, T., Uemura, R., Igarashi, M., Iizuka, Y., Sakurai, T., Horikawa, S., Suzuki, K., Suzuki, T., Fujita, K., Kondo, Y., Hattori, S., Fujii, Y.: Reduced marine phytoplankton sulphur emissions in the Southern Ocean during the past seven glacials. *Nature Communications* (accepted), 2019. 査読有

Buizert, C., Sigl, M., Severi, M., Markle, B. R., Wettstein, J. J., McConnell, J. R., Pedro, J., Sodemann, H., Goto-Azuma, K., Kawamura, K., Fujita, S., Motoyama, H., Hirabayashi, M., Uemura, R., Stenni, B., Parrenin, F., Feng, H., Fudge, T. J., Steig, E. J.: Abrupt ice age shifts in Southern westerlies and Antarctic climate forced from the north. *Nature*, 563, 681-685, DOI: 10.1038/s41586-018-0727-5, 2018. 査読有

Uemura, R., Motoyama, H., Masson-Delmotte, V., Jouzel, J., Kawamura, K., Goto-Azuma, K., Fujita, S., Kuramoto, T., Hirabayashi, M., Miyake, T., Ohno, H., Fujita, K., Abe-Ouchi, A., Iizuka, Y., Horikawa, S., Igarashi, M., Suzuki, K., Suzuki, T., Fujii, Y.: Asynchrony between Antarctic temperature and CO₂ associated with obliquity over the past 720,000 years. *Nature Communications*, 9 (1), art. no. 961, doi:10.1038/s41467-018-03328-3, 2018. 査読有

Dome Fuji Ice Core Project: Kawamura, K., Abe-Ouchi, A., Motoyama, H., Ageta, Y., Aoki, S., Azuma, N., Fujii, Y., Fujita, K., Fujita, S., Fukui, K., Furukawa, T., Furusaki, A., Goto-Azuma, K., Greve, R., Hirabayashi, M., 他49名: State dependence of climatic instability over the past 720,000 years from Antarctic ice cores and climate modeling, *Science Advances*, 3 (2), art. no. e1600446, 2017. 査読有

平林幹啓: 連続融解・分析装置による雪氷コアの分析. *化学と教育*, 265, 338-339, 2017. 査読有

Uemura, R., Masaka, K., Fukui, K., Iizuka, Y., Hirabayashi, M., Motoyama, H.: Sulfur isotopic composition of surface snow along a latitudinal transect in East Antarctica. *Geophys. Res. Lett.* 43, 5878-5885, DOI: 10.1002/2016GL069482, 2016. 査読有

Dallmayr, R., Goto-Azuma, K., Astrid Kjær, H., Azuma, N., Takata, M., Schüpbach, S., Hirabayashi, M.: A High-Resolution Continuous Flow Analysis System for Polar Ice Cores. *Bulletin of Glaciological Research*, 11-20, doi: 10.5331/bgr.16R03, 2016. 査読有

Sakurai, T., Ohno, H., Motoyama, H., Uchida, T.: Micro-droplets containing sulfate in the Dome Fuji deep ice core, Antarctica: findings using micro-Raman spectroscopy.

〔学会発表〕(計 64 件)

平林幹啓, 尾形純, 東久美子, 鹿籠康行, ICP 質量分析計を接続した連続融解分析装置による多元素同時定量. 雪氷研究大会 (2018・札幌), 2018 年.

平林幹啓, 尾形純, 東久美子, 鹿籠康行, ICP 質量分析計を接続した連続融解分析装置による雪氷コアの分析. 日本分析化学会第 67 年会, 2018 年.

平林幹啓, 東久美子, Remi Dallmayr, 尾形純, 塚川佳美, 北村享太郎, 川村賢二, 連続融解・分析装置による雪氷コアの分析, 日本分析化学会 66 年会, 2017 年.

Goto-Azuma, K., Hirabayashi, M., Ogata, J., Kitamura, K., Kawamura, k., Ogawa-Tsukagawa, Y., Dallmayr, R., Nakazawa, F., Fukuda, K., Arai, M., Fujita, S., Motoyama, H., High resolution analyses of the Dome Fuji deep ice-core using a Continuous Flow Analysis (CFA) System. Japan Geoscience Union Meeting, 2017 年.

Goto-Azuma, K., Nakazawa, F., Hirabayashi, M., Ogata, J., Ogawa-Tsukagawa, Y., Fukuda, K., Calibration of micro-particle analysers for ice core studies. EGU General Assembly 2017, 2017 年.

Goto-Azuma, K., Hirabayashi, M., Motoyama, H., Variability of size distribution and shape of dust particles in polar snow and ice, XIX INQUA 2015, 2015 年.

〔その他〕

ホームページ等

ドームふじアイスコアコンソーシアム

<http://polaris.nipr.ac.jp/~icc/NC/htdocs/>

6 . 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名：平林 幹啓

ローマ字氏名：Hirabayashi, Motohiro

所属研究機関名：国立極地研究所

部局名：気水圏研究グループ

職名：特任助手

研究者番号(8桁)：20399356

研究分担者氏名：本山 秀明

ローマ字氏名：Hideaki, Motoyama

所属研究機関名：国立極地研究所

部局名：気水圏研究グループ

職名：教授

研究者番号(8桁)：20210099

研究分担者氏名：永塚 尚子

ローマ字氏名：Nagatsuka, Naoko

所属研究機関名：国立極地研究所

部局名：気水圏研究グループ

職名：日本学術振興会特別研究員

研究者番号(8桁)：30733208

研究分担者氏名：櫻井俊光(平成 27 年度のみ)

ローマ字氏名：Sakurai, Toshimitsu

所属研究機関名：国立研究開発法人土木研究所寒地土木研究所

部局名：寒地道路研究グループ雪氷チーム

職名：研究員

研究者番号(8桁)：00581810