

平成 21 年 6 月 5 日現在

研究種目：基盤研究 (C)

研究期間：2007～2008

課題番号：19510018

研究課題名 (和文) 東アジアのダスト堆積物中の磁性ナノ粒子

研究課題名 (英文) Magnetic nano-particles from dust deposits in East Asia

研究代表者

福間 浩司 (FUKUMA KOJI)

同志社大学・理工学部・准教授

研究者番号：80315291

研究成果の概要：

中国沿岸部や韓国などの東アジアの湿潤地域では、アジア大陸内部からダストが間断なく供給されると同時に、過去から現在まで人類が継続的に活動してきた痕跡が数多く残されており、人類の活動と気候変動の影響を研究するための理想的なフィールドである。中国沿岸域や韓国の旧石器遺跡のダスト堆積物について交流磁化率や磁気ヒステリシス特性の測定を行い、磁性ナノ粒子の種類・含有量・粒径分布を求めた。乾燥地域のダスト堆積物との比較から、従来の磁気測定では解明できなかった湿潤地域の気候と磁性ナノ粒子の対応関係を明らかにすることができた。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007 年度	2,700,000	810,000	3,510,000
2008 年度	900,000	270,000	1,170,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,600,000	1,080,000	4,680,000

研究分野：環境磁気学

科研費の分科・細目：環境学・環境動態解析

キーワード：環境変動，気候変動，環境磁気学

## 1. 研究開始当初の背景

ダストは亜熱帯や中緯度の大陸内部に分布する乾燥地帯から間断なく供給され、陸上だけでなく海洋にも風によって供給され堆積を続けている。陸上のダスト堆積物は海洋に広く分布する海底堆積物と並んで、人類が過去数十万年に経験してきた気候変動の広域的かつ連続的な記録を得るために欠かすことのできない研究対象である。ダスト堆積物は汎世界的に分布するが、最も広い大陸であるアジ

ア大陸の内部にはタクラマカン砂漠などの中緯度砂漠が数多く存在し、偏西風によってダストが輸送され、アジア大陸の東側、すなわち東アジアはダスト堆積物が世界で最も顕著に発達している地域である。とりわけ、中国沿岸部や韓国などの東アジアの湿潤地域は、アジア大陸内部からダストが間断なく供給され堆積しているだけでなく、過去から現在まで人類が継続的に活動してきたことが多くの

痕跡から証拠づけられている地域であり、人類の活動への気候変動の影響を研究するための理想的なフィールドである。

## 2. 研究の目的

磁気的方法は中国内陸部の黄土高原のダスト堆積物の年代決定にブレークスルーの役割を果たしただけでなく、ダスト堆積物の土壌化の指標を与えることにより黄土高原の過去の気温・降水量推定において大きな研究成果を挙げてきた。海洋堆積物では微化石や炭酸カルシウム中の同位体の分析が気候変動の記録を得るために有効であるが、これらの方法が適用できないダスト堆積物においては磁気的方法は他の方法が取って代わることができない重要性をもっている。しかしながら、中国沿岸部や韓国などの降水量が多い地域に堆積したダストでは土壌化に伴いナノメートルサイズの磁性微粒子が大量に生成しており、気候変動の記録を得るには黄土高原で用いられた帯磁率などの測定だけでは十分でない。この研究ではダスト堆積物中の磁性ナノ粒子の粒径分布を求める測定ならびに解析方法を確立し、東アジア湿潤地域の気候変動の記録を得ることを目的とする。

## 3. 研究の方法

ダスト堆積物に生成する磁性ナノ粒子は超常磁性～単磁区と呼ばれる磁気構造をもつ鉄の酸化物である。これらの磁性ナノ粒子は粒径に対して磁気的性質がもっとも鋭敏に変化する領域にあたり、その粒径に対する依存性についてはこれまで詳細な定式化がなされている。中でも交流磁化率は温度や交流磁場の周波数に対して極めて規則的に変化することがわかっており、交流磁化率の温度・周波数依存性を測定すれば粒径分布を導き出すことが期待できる。測定される交流磁化率の値は様々な粒径のナノ粒子からたたみ込み (convolution) 積分されたものであり、交流磁化率から粒径分布を表す平均、分散といったパラメータを求めるには deconvolution を使ったデータ解析法を確立する必要がある。

中国沿岸部や韓国の様々な地点からダスト堆積物由来の現世および過去の土壌を採取し、その交流磁化率から磁性ナノ粒子の粒径分布を求め、過去の土壌の粒径分布から気候変動を明らかにする。

## 4. 研究成果

韓国の全谷里遺跡のダスト堆積物に含まれる超常磁性から単磁区の粒径分布を交流磁化率測定により推定した。全谷里遺跡のダスト堆積物は中国黄土高原の黄土-古土壌に対比できるシーケンスを示す。Bartington社の磁化率計で測定した質量磁化率の値は黄土高原とほぼ同じで黄土-古土壌に対応して変動するのに対して、磁化率の周波数依存性は黄土、古土壌を問わず約10%の高く一定した値を示す。超伝導磁化率計 MPMS で交流磁化率の温度・周波数依存性を測定し、in-phase 成分と out-of-phase 成分に分けて粒径分布を推定した。磁性鉱物の種類を決めるため、熱磁気天秤によってキュリー点を求め、MPMS を使い Verwey 転移の有無を調べた。マグネタイトのキュリー点 (~580°C) が顕著に見られるが例外なくマグヘマイトの存在を示す 350-400°C の kink が見られる。Verwey 転移は黄土、古土壌ともに見られず、部分的にマグヘマイト化されたマグネタイトが主たる磁性鉱物である。MPMS を用いて 300 K で測定した質量磁化率は、Bartington 社製の磁化率計で測定した値とほぼ一致する。また、磁化率は周波数の対数に対して直線的に変化し、Bartington 社製による測定と同様に黄土、古土壌によらず 10% 前後の高い値を示す。20~300 K のいずれの温度においても、交流磁化率の振幅の値は明瞭な周波数依存性を示し、out-of-phase 成分は in-phase 成分の数%に達する。一方、温度に対して in-phase 成分は、20~300 K の間でブロードなピークを示すか単調に増加する。全谷里遺跡のダスト堆積物は黄土、古土壌によらず超常磁性～単磁区のマグネタイト/マグヘマイトが含まれるが、その粒径分布が広いために磁化率の周波数依存性は 10% 前後のほぼ一定の値をもつ。

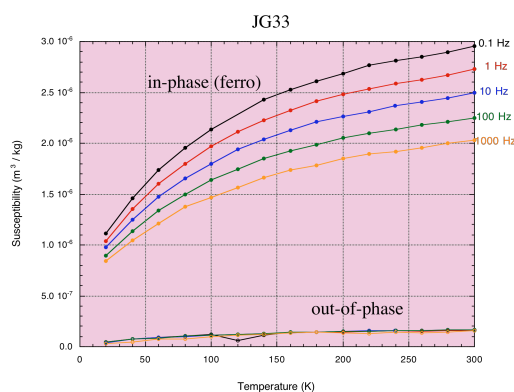


図1 韓国・全谷里遺跡におけるダスト堆積物の交流磁化率の温度依存性

中国の南京郊外に位置する旧石器遺跡で

ある和尚敦遺跡から得られたダスト堆積物の磁気ヒステリシス測定を詳細に行い、ヒステリシスパラメータから磁性ナノ粒子の粒径と種類の変化を求めた。寒冷期においては単に土壌化による磁性ナノ粒子の生成が抑制されるだけでなく、磁鉄鉱の選択的な溶脱が進み、磁性鉱物の総量が減少し赤鉄鉱の相対的な比率が高くなることがわかった。逆に温暖期においては磁鉄鉱や赤磁鉄鉱に加えて赤鉄鉱が土壌化により生成し、色調だけでなく磁気的性質にも顕れることがわかった。このことは、磁気ヒステリシス測定により、通常の磁化率の測定だけでは明らかにすることのできない詳細な気候変動を復元できる可能性を示している。ダスト堆積物においては従来のように気候のプロキシとして磁化率を担う磁鉄鉱/赤磁鉄鉱のナノ粒子の土壌中での生成のみを考えるのではなく、赤鉄鉱などの他の磁性鉱物の存在や磁鉄鉱/赤磁鉄鉱のナノ粒子が生成した後に溶脱などの過程が働くことも考慮して気候変動を復元する必要があることが明らかになった。

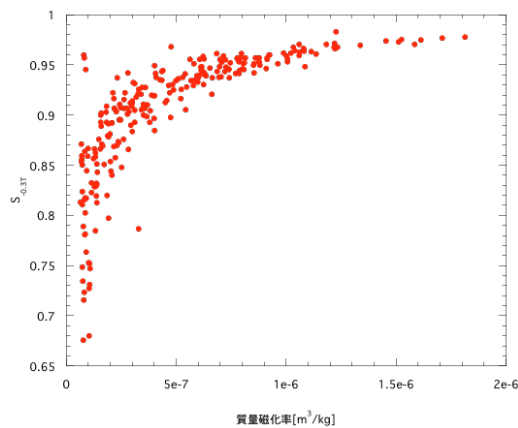


図2 中国・和尚敦遺跡におけるダスト堆積物の磁化率とS比の関係

## 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4件)

- ① Akira Yoshiasa, Kazumasa Sugiyama, Shunsuke Sakai, Hiroshi Isobe, Daisuke Sakamoto, Ken'ichi Ota, Hiroshi Arima, and Humihiko Takei, Synthesis of Single Crystal  $(\text{Mg}_{1-x}\text{Fe}_x)_{1-\delta}\text{O}$  ( $x=0.001-1.00$ ) Solid-solution and Electrical Conduction mechanism at High Temperature and Pressure, *Journal of Crystal Growth*, 311, 974-977, 2009, 査読有
- ② Tadao Nishiyama, Aiko Tominaga and Hiroshi Isobe, From an initial transient to

a steady-state in metamorphic reactions: an experimental approach in the system dolomite-quartz- $\text{H}_2\text{O}$ , *Island Arc*, 16, 16-27 2007, 査読有

③ Akira Hayashida, Mohammed Ali, Yoshiki Kuniko, Hiroyuki Kitagawa, Masayuki Torii, and Keiji Takemura, Environmental magnetic record and paleosecular variation data for the last 40 kyrs from the Lake Biwa sediments, Central Japan, *Earth Planets Space*, 59, 807-814, 2007, 査読有

④ Akira Hayashida, So Hattori, Hirokuni Oda, Diagenetic modification of magnetic properties observed in a piston core (MD01-2407) from the Oki Ridge, Japan Sea, *Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology* 247, 65-73, 2007, 査読有

[学会発表] (計22件)

① Miwako Yoshizawa and Hiroshi Isobe, Experimental Reproduction of Martian Soil by Alteration of the Synthetic Martian Basalt Under Hydrothermal Conditions with Sulfuric acid and  $\text{CO}_2$ , American Geophysical Union Fall Meeting, 2008/12/18, San Francisco, USA

② Hiroshi Isobe and Miwako Yoshizawa, Formation Sequences of Iron Minerals in the Acidic Alteration Products and Variation of Hydrothermal Fluid Conditions, American Geophysical Union Fall Meeting, 2008/12/15, San Francisco, USA

③ Hiroko Ozaki and Hiroshi Isobe, Compositional Variations and Homogenization Kinetics of Serpentine in Hydrous Alteration Processes of Carbonaceous Chondrite Parent Body: An Experimental Study Under Reducing Conditions, American Geophysical Union Fall Meeting, 2008/12/15, San Francisco, USA

④ 福間浩司, 磯部博志, 枕状溶岩の表面から内部にかけてのテリエ法における振舞いの変化, 地球電磁気・地球惑星圏学会, 2008/10/09, 仙台

⑤ 大賀正博, 福間浩司, 磯部博志, 海洋底変成作用の古地磁気強度への影響, 地球電磁気・地球惑星圏学会, 2008/10/09, 仙台

⑥ 磯部博志, 強酸性熱水変質生成物の成層構造と熱水流体変動, 日本鉱物科学会年会, 2008/9/22, 秋田

⑦ Nishiyama, Tadao, Yuguchi, Takashi and Hiroshi Isobe, Diffusion-controlled melting in the granitic systems at  $800-900^\circ\text{C}$  and  $100-200\text{ MPa}$ , The 33rd

International Geological Congress, 2008/08/14, Oslo, Norway,

⑧ R. Noguchi, K. Murata, A. Tsuchiyama, H. Isobe, H. Chihara T. Nakamura, and T. Noguch, Hydrothermal alteration experiments of synthetic amorphous silicates with CI chondritic composition in the systems with and without FeO. Meteoritical Society Meeting, 2008/07/29, Matsue

⑨ Koji Fukuma, Surface-interior variation of paleointensity results from submarine pillow basalts, International Rock Magnetic Conference 2008, 2008/6/5, Cargese, France

⑩ Akira Hayashida and Koji Fukuma, Magnetic Properties of Eolian Deposits in Korea: Chronological and Paleoenvironmental Implications, Asia Oceania Geosciences Society Annual General Meeting, 2008/6/3, Busan, Korea

⑪ 野口遼, 村田敬介, 土山明, 磯部博志, 中村智樹, 野口高明, 茅原弘毅, CI コンドライト組成をもった非晶質ケイ酸塩の水質変成実験:鉄を含まない系と含む系, 地球惑星科学連合大会, 2008/5/29, 千葉

⑫ Tadao Nishiyama; Takashi Yuguchi and Hiroshi Isobe, Diffusion - controlled melting in granitic systems II : modeling with two moving boundaries in the binary eutectic systems. 地球惑星科学連合大会, 2008/5/26, 千葉

⑬ 大賀正博, 安田雅彦, 林田明, 福間浩司. 小玉一人, 地球深部探査船「ちきゅう」慣熟航海 (CK05-04 Leg 2) で採取された水圧ピストンコア試料の初期磁化率異方性, 日本地球惑星科学連合大会, 2008/5/26, 千葉

⑭ Takashi Yuguchi, Tadao Nishiyama and Hiroshi Isobe, Diffusion - controlled melting in granitic systems I : experimental results, 地球惑星科学連合大会, 2008/5/26, 千葉

⑮ 磯部博志, 熱水合成希土類フッ素炭酸塩鉱物の組成と結晶化学, 地球惑星科学連合大会, 2008/5/25, 千葉

⑯ Koji Fukuma, Sedimentary paleointensity records by the suspension method from Pacific deep-sea sediments, American Geophysical Union Fall Meeting, 2007/12/17, San Francisco, USA

⑰ N. Kitda, N. Inoue, K. Takemura, F. Masuda, A. Hayashida, T. Tabata, Stratigraphy around Kansai International Airport reconstruction of the

Plio-Pleistocene Osaka Group in the southern Osaka Basin, American Geophysical Union Fall Meeting, 2007/12/16, San Francisco

⑱ 井上直人, 黄昭姫, 林田明, 松藤和人, BAE Kidong, 韓国全谷里における比抵抗調査 -3-, 日本第四紀学会大会, 2007/9/10, 神戸

⑲ 林竜馬, 高原光, 檀原徹, 吉川周作, 井内美郎, 林田明, 竹村恵二, 琵琶湖, 神吉盆地, 黒田低地の花粉分析結果からみる近畿地方における最終間氷期以降の植生変遷, 日本花粉学会, 2007/9/2, 倉敷

⑳ 浅井健司, 福間浩司, 林田明, 中国長江下流域に分布する風成堆積物の磁気特性と気候変動との対応, 日本地球惑星科学連合大会, 2007/5/23, 千葉

㉑ 橋本亮太郎, 林田明, 公文富士夫, 長野市に分布する更新世後期の湖成堆積物(高野層)の環境磁気学的研究, 日本地球惑星科学連合大会, 2007/5/23, 千葉

㉒ 福間浩司, 枕状溶岩における表面-内部の磁気的性質の変化, 日本地球惑星科学連合大会, 2007/5/22, 千葉

[図書] (計1件)

林田明, 福間浩司, 横尾頼子, 浅井健司, 楊振宇, 東アジアの風成堆積物の磁気特性-古地磁気編年と環境復元をめざして-, pp. 57-66, 東アジアのレスー古土壌と旧石器編年, 雄山閣, 2008

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

福間 浩司 (FUKUMA KOJI)  
同志社大学・理工学部・准教授  
研究者番号: 80315291

### (2) 研究分担者

磯部 博志 (ISOBE HIROSHI)  
熊本大学・大学院自然科学研究科・准教授  
研究者番号: 80311869  
林田 明 (HAYASHIDA AKIRA)  
同志社大学・理工学部・教授  
研究者番号: 30164974

### (3) 連携研究者

なし