



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	Chemical compositions of past soluble aerosols reconstructed from Greenland and Antarctic ice cores [an abstract of dissertation and a summary of dissertation review]
Author(s)	大藪, 幾美
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(環境科学)
Dissertation Number	甲第11789号
Issue Date	2015-03-25
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/59337
Rights(URL)	https://creativecommons.org/licenses/by-nc-sa/2.1/jp/
Type	doctoral thesis
File Information	Ikumi_Oyabu_abstract.pdf, 論文内容の要旨



学 位 論 文 内 容 の 要 旨

博士（環境科学）

氏 名 大藪 幾美

学 位 論 文 題 名

Chemical compositions of past soluble aerosols

reconstructed from Greenland and Antarctic ice cores

（南極及びグリーンランド氷床コアから復元した過去の水溶性エアロゾルの化学組成）

極域氷床コアは過去数十万年間の大気エアロゾルを保存している優れた古気候記録媒体である。エアロゾルは気候に影響を与える因子の一つであり、氷コアに記録された過去のエアロゾルと気温の関係解明は、将来の気候変動を予測する際に重要な知見を提供する。氷コアに保存された水溶性エアロゾルは、融解処理後のイオン濃度を用いて議論されてきた。例えば、南北両極氷床コアの主な陽イオンは Na^+ と Ca^{2+} であり、これらは海塩(NaCl)や、大陸の石灰岩(CaCO_3)・石膏(CaSO_4)などを起源とする。過去数十万年間で最大の気温変動は氷期-間氷期変動であるが、氷期では大陸起源エアロゾルの寄与が、間氷期では海塩起源エアロゾルの寄与が大きい。これらのエアロゾルは、大気中で硫酸(H_2SO_4)と反応して硫酸塩(Na_2SO_4 , CaSO_4)を生成するが、融解処理の際にイオン化するため、氷コアに保存されていた水溶性エアロゾルの化学形態はこれまで推測の域を出なかった。過去の大気化学環境をより正しく理解するために、過去のエアロゾルの化学形態を明らかにする必要がある。そこで本研究では、最終退氷期の気温上昇に対する南極とグリーンランドそれぞれの主要水溶性エアロゾルの変動特性を解読し、最終退氷期の水溶性エアロゾルと気温と関係性を評価することを目的として、南極及びグリーンランド氷床コアに保存されている水溶性微粒子の化学形態を調べた。

最終退氷期(最終氷期最盛期から完新世の気温上昇期；25,000–10,000年前)の、南極内陸Dome Fuji(DF)およびDome C(DC)氷床コアと、最終間氷期から完新世(約130,000–9000年前)のグリーンランドNEEM氷床コアから、氷試料を融解せず揮発成分のみを低温で昇華させる手法(昇華法)を用いて、不揮発性(不溶性+水溶性)微粒子を抽出した。抽出した微粒子の化学成分分析には走査型電子顕微鏡エネルギー分散型X線分析装置と顕微ラマン分光器を用いた。

南極内陸氷床コア(DF・DC)の水溶性微粒子の主な成分は、 Na_2SO_4 , CaSO_4 , NaCl であった。最終退氷期の3成分の比率と濃度はDFとDCで若干の地域差が見られるが、気候ステージごとの傾向は両者ともよく似ていた。最終退氷期前半では CaSO_4 と NaCl の

割合が高く、最終退氷期後半では Na_2SO_4 の割合が高かった。NEEM氷床コア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 CaSO_4 、 CaCO_3 および NaCl の割合が高く、完新世では NaCl と Na_2SO_4 の割合が高かった。

南極内陸の水溶性エアロゾルの変動は大陸起源物質(CaCO_3)の供給量が主な原因であると考えられる。最終退氷期前半は大陸起源物質の硫酸化(CaSO_4)が促進し、海塩(NaCl)の硫酸化(Na_2SO_4)が抑制されていた。そのため CaSO_4 と NaCl の割合が高かった。退氷期後半は大陸起源物質の供給量が減少し、海塩の硫酸化が促進した。そのため Na_2SO_4 の割合が高かった。グリーンランドにおける水溶性エアロゾルの変動も大陸起源物質の供給量が主な原因であると考えられる。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く硫酸が不足していた。そのため、大陸起源物質や海塩の硫酸化が十分に起きず、 CaCO_3 と NaCl の割合が高かった。完新世は大陸起源物質の供給量が減少し海塩の硫酸化が促進したため Na_2SO_4 の割合が高かった。しかし、海塩と硫酸の季節変動の違いやなどにより、海塩の一部は硫酸化されなかった。そのため NaCl の割合も高かった。

イオン濃度から推定した水溶性塩の濃度や、昇華法による微粒子の化学成分分析から得られた水溶性塩の組成比を用い、最終退氷期におけるDF、DCおよびNEEM氷床コア中の硫酸塩フラックスを推定した。NEEMの硫酸塩フラックスはNEEMの気温に、南極(DF&DC)の硫酸塩フラックスは南極(DF&DC)の気温にそれぞれ対応しており、各サイトの気温と硫酸塩フラックス間には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。硫酸塩の化学形態や供給源、輸送経路はグリーンランドと南極でそれぞれ異なるが、硫酸塩の変動は両極ともに、硫酸の主な起源である海洋生物活動ではなく、最終退氷期の気温変動を駆動していた海洋や大気循環の物理的な変化に起因すると考えられる。硫酸塩エアロゾルは、吸湿性が高く硫酸よりも粒径が大きいことから、雲の凝結核となり地球を寒冷化させる効果(エアロゾルの間接効果)をもつと考えられている。最終退氷期は、硫酸塩の減少に伴う間接効果の減少によって寒冷化の効果が弱まり、硫酸塩エアロゾルが両極の温暖化に寄与していた可能性がある。

本研究によって、第四紀最大級の気候変遷期である最終退氷期の南極およびグリーンランド氷床コアにおける主な水溶性微粒子の化学組成が包括的に解読された。また、南北両極における硫酸塩エアロゾルが最終退氷期の気温変動と負の相関関係にあることが示唆された。これらの成果は、従来のイオン濃度を用いた氷コア中の水溶性エアロゾルの議論からは得られなかった新しい知見であり、氷コア記録の解釈や気候変動に対する水溶性エアロゾルの役割の解明に対し、重要な知見を提供したといえる。