

氏名・(本籍)	ヤマモト ニウ ヤ 山本 裕哉 (広島県)
学位の種類	博士 (理学)
学位記番号	甲第理103号
学位授与の日付	平成27年3月20日
学位授与の要件	学位規程第4条第3項該当(課程博士)
学位論文題目	日本列島降下物中の石英の起源とその変動
論文審査委員	主査 教授 豊田 新 副査 教授 蜷川 清隆 教授 西戸 裕嗣 教授 兵藤 博信 名誉教授 山下 栄次 五十嵐康人 (気象研究所・室長)

論文内容の要旨

申請者氏名 山本 裕哉

日本列島降下物中の石英の起源とその変動

風送塵とは強風によって発生したダストのことである。その風送塵の元であるダストの中で最も多量に含まれているのは地表面の土粒子であり、土粒子は植生が少なく乾燥している地域で舞い上がりやすいので乾燥した地域で風送塵が発生しやすい。風送塵の主な発生源としてはアフリカのサハラ砂漠や中国西北部のタクラマカン砂漠やモンゴル南部のゴビ砂漠などがあり特に東アジアで発生するものを黄砂と言われている。

黄砂は偏西風に乗って、中国・韓国・日本をはじめ、アメリカやヨーロッパまで運ばれる。上空を運搬される風成塵は、雲の形成に関与し環境に大きな影響を与える。一方、地表に降下した風成塵は農作物に被害を与え、また呼吸器疾患などの健康被害を及ぼすなど、人類の活動にも影響を与えている。このように環境やわれわれの生活に多岐にわたって深く関与する風成塵であるが陸上、湖底、海底に長い年月をかけて堆積した風成塵は、過去の地球環境、地表の乾燥度、風の強さやその経路がどのように変動したのかを記録する重要な媒体である。これらのことから風送堆積物やエアロゾル、大気降下物などを用いる様々な研究は重要である。

大気降下物やエアロゾルを対象とした研究としては堆積物の粒径を用いたものや化学組成を手法としたもの (Zhang et al., 1996)、ESR を用いたもの (Toyoda and Naruse 2002)、酸素同位体比を用いたもの (Clayton et al., 1972)、ストロンチウム安定同位体を用いたもの (矢吹他, 2002) や ^{137}Cs や ^{90}Sr などの放射性同位元素などを用いたもの (Igarashi et al., 2009) 石英の ESR 信号や結晶化度を用いたもの (Nagashima et al., 2011) などがある。これらの中でも石英を用いた研究は堆積物全体の起源や物質移動を議論する上で有用である。それは石英が地殻を構成する主な造岩鉱物の一つであるので石英の起源を議論することは堆積物全体の起源や物質移動を議論することになるからである。そうして今まで石英の起源を求めるために酸素同位体が用いられてきた。特に Clayton et al. (1972) では太

平洋のコア試料の石英の酸素同位体比が調べられ、その結果、酸素同位体の分布はハワイ付近から日本近海にかけて 16~18‰を示し、この値が Rex et al. (1969) の日本の雨の中の対流圏のダストに含まれる石英の酸素同位体比の値 16.2‰の値と同じような値を示すことからハワイ付近から日本近海にかけての海底堆積物の石英に風成塵の寄与があると結論されている。またこの結論に基づいて Kawahata et al., (2000) や Mizota et al., (1985) では、測定された海底堆積物中の石英中の酸素同位体比を用いて、堆積物への風送塵の寄与が議論されている。しかし Clayton et al. (1972) で議論された酸素同位体比を持つ風送塵は中国大陸から運ばれてきたものであることは確かだと思われるが起源地との関連は実際に研究した例はない。つまり酸素同位体比からでは風送塵がどこに起源を持つか知ることができない。一方電子スピン共鳴によって求められる石英の酸素空孔量が石英の起源を求めるために有効であると示された。ESR を用いた研究では、風成塵の起源と思われる中国黄土の石英の生成年代が古く、日本の石英の生成年代が新しいため日本列島起源の物が多く含まれていない場合、風成塵の石英中の ESR 信号強度は起源である中国大陸の基盤岩の近い値をとる。このことを利用して最終氷期における日本陸上の堆積物中の風成塵の石英の ESR 信号は酸素空孔と年代の相関から求められている (Toyoda and Hattori, 2000)。これを用いて Toyoda and Naruse, (2002) によると MIS2 の日本の風成塵の起源は 3 つに分けられると議論されている。その後、石英中の酸素空孔量に加え、石英の結晶化度が同様に指標として有効であることが示され、これらの指標を用いて、Sun et al. (2007) では中国・モンゴルの主な砂漠・砂漠周辺域の石英が調べられた。そしてこの二つの指標によってそれぞれタクラマカン砂漠、ゴビ砂漠とテンゲル砂漠、グルバンテュンギョト砂漠が特徴づけられた。その後 Nagashima et al. (2011) では過去 3 万年から 6 万年の日本海堆積物のコア試料の中の石英が分析された。そのほとんどの日本海堆積物の酸素空孔量と結晶化度の値はタクラマカン砂漠とゴビ砂漠との間に分布する。これは、日本海に過去 6~3 万年間にわたって堆積した粗粒石英がタクラマカン砂漠とゴビ砂漠から供給される石英の混合であることを示唆すると議論された。したがって、酸素空孔量の値が大きければ、ゴビ砂漠の寄与が大きく、酸素空孔量の値が小さいとタクラマカン砂漠の寄与が大きいことがわかった。

一方、近現代の日本への大気降下物については、春のエアロゾル中の⁹⁰Sr と¹³⁷Cs の比が年とともに増加していることが報告されている。これは、ストロンチウムより水に溶けやすいセシウムが浸潤して

いた深い堆積層まで乾燥化がすすみ深い層から飛来するセシウムが増えているからであり、それは最近の風送塵の起源地が以前とは異なっておりそれが起源地の乾燥化と関連している可能性があるとして Igarashi et al. (2009) で議論されている。

本研究では Igarashi et al. (2009) の結果を踏まえて近年の日本に飛来する風送塵の起源地の変動が日本で採取される降下物に反映されているか酸素空孔量と結晶化度を用いて調べた。そしてその前段階として風送塵の起源と考えられる中国の各砂漠を ESR で得られる石英の不純物中心の信号強度でも区別できるかと降下物を ESR で測定するにあたり適した試料処理の方法を調べた。

降下物中の石英中の酸素空孔量を正確に測定するための試料処理の最適な条件については、酢酸から、クエン酸ナトリウム、炭酸水素ナトリウム、ハイドロサルファイドナトリウム混合液、過酸化水素、ケイフッ化水素酸までの試料処理を行えば問題なく酸素空孔量の値が求められる事が分かった。特にケイフッ化水素酸による試料処理することが重要であることがわかった。

不純物中心と酸素空孔量を用いて中国の砂漠を特徴化については、Ti 中心と Ge 中心が信号が検出できず、Al 中心の信号も砂漠同士で値の差が小さく不純物中心を用いたのでは新たな指標として中国の各砂漠の特徴化するには至らなかった。

1964 年からの秋田、福岡、米子の各地方気象台で採取された大気降下物中に含まれる石英の酸素空孔量と結晶化度を調べた。降下物の起源地の年変動を定量的に議論することはできなかったが、以下の 3 つのことがわかった。

- ①: 酸素空孔量の粒径依存性を調べた結果、秋田、福岡ともに細粒のものほど中国起源の風送塵を多く含んでいるといえることが分かった。
- ②: 酸素空孔量の年変化を調べたところ、米子と福岡については黄砂の観測日数に関連して酸素空孔量が増え、秋田は中国のダストストームの発生回数に関連して酸素空孔量が年々減少しているように見という結果が得られた。したがって秋田では米子、福岡と降下物の運搬の様相が異なっている可能性があり、秋田に関しては黄砂以外の運搬方法がある可能性が考えられる。
- ③: 降下物中の石英の酸素空孔量と結晶化度の値は、タクラマカン砂漠のみの寄与では説明できない。タクラマカン砂漠と現地の成分の他にゴビ砂漠の寄与があると考えられる。

本研究では現地性の寄与が大きく定量的な議論ができなかった。定量的な議論をできるようにするためには現地性の影響を少なくする必要がある。酸素空孔量の粒径依存性では秋田、福岡ともに細粒のほうが風送塵を多く含んでいることがわかったので本研究で調べた粒径 ($<16\mu\text{m}$) より細かい粒径で分析することにより現地性成分の影響の少ない結果が得られるのではないかと考えられる。また本研究では秋田と米子、福岡の降下物しか用いなかったが、米子から秋田の間の地点の降下物を測定できればどの地点から風送塵の運搬の様相が異なっているのかが分かる可能性がある。

発 表 論 文

- Y. Yamamoto, S. Toyoda, K. Nagashima, Y. Igarashi and R. Tada (2013) Investigation of the temporal change of the sources of Aeolian dust delivered to East Asia using electron spin resonance signals in quartz, *Geochronometria*, 40(4), 355-359. DOI 10.2478/s13386-013-0121-x
- Y. Yamamoto, S. Toyoda, K. Nagasima, Y. Igarashi, and R. Tada (2010) The grain size influence of the E_1' centre observed in quartz of atmospheric deposition at two Japanese cities, *Geochronometria*, 37, 9-12. DOI:10.2478/v10003-010-0024-2.
- 山本裕哉・豊田新・磯崎裕子・Youbin Sun・多田隆治・長島佳菜・谷篤史 (2009) 石英中の不純物中心の ESR 信号を用いた風送塵起源地の分別の可能性、ESR 応用計測、第 25 巻 2009 年 3 月、pp 7-12

審査結果の要旨

起源となる母岩の年代を反映する石英中の酸素空孔量を電子スピン共鳴（ESR）によって定量して、風送堆積物の起源地の変動を検出する試みは、気候変動との関連について、酸素同位体ステージ1と2との差異や、過去30万年の海洋コア中の堆積物についての議論に成功している。本論文は、その手法を、将来につながる気候変動として興味の持たれる最近数十年の日本列島への降下物について初めて応用した。

試料処理方法の得られる数値への影響を調べるという基礎的な実験を行った。そして、起源地と考えられる中国の砂漠の試料を分析し、有効と思われる指標を、文献と合わせて確認した上で日本列島への近現代の降下物を分析した。

福岡及び米子への降下物については、石英中の酸素空孔量と、黄砂の観測日数との間に相関が見出された。一方、秋田への降下物については黄砂の観測日数との相関は見られなかったが、徐々に低下する傾向が観測され、ダストストームの発生日数の減少との相関が示唆された。このように西日本と東北日本とで飛来するダストの運搬のモードに差異が見られたという結果は、中国から日本へのダストの運搬を議論する上で非常に興味深い結果であり、学位論文として価値があると認められる。

本研究では、各気象台で長年にわたって採取された細粒の降下物の試料を粒径で区分した上で石英を抽出し、電子スピン共鳴（ESR）及びX線回折という分析手法を用いて分析を行った。粒径で区分するために用いたストークス法を自ら試みて習熟し、また石英の抽出の化学的な操作にも効率的に行えるよう工夫を加えた。そして分析法に関する基礎的な知識を身につけ、分析手法にも習熟した。分析対象である降下物の研究についての文献調査を行い、必要な英文の文献を読み、関連した過去の研究内容をまとめ、論点を整理した。分析結果を整理し、結論を導き、英語による学会発表や英文誌への論文発表を行った。

また、これらの点をすべて整理した上で、順序立てて学位論文を執筆し、公聴会において発表を行い、質問に対する受け答えを適切に行うことができた。

以上のことを認めて、最終試験に合格と判断し、学位を授与するのにふさわしいと認める。