

学 位 論 文 題 名

Dimethylsulfide in the northern North Pacific

(北部北太平洋における硫化ジメチル)

学位論文内容の要旨

大気エアロゾルは、地球規模の気候と大気化学において重要な役割を果たしている。海洋生物がつくる硫化ジメチル（DMS）は、海面から逃散し大気中で硫酸塩エアロゾルになる。最近、DMS に関する研究が活発になってきたが、北部北太平洋における研究例は少ない。北部北太平洋は、海洋の生態系や一次生産の海域や季節による変動が大きく、自由対流圏を通しての人為的汚染を受けやすい。本研究では、北部北太平洋において、海域や季節ごとの海水と大気中の DMS の分布を観測し、その分布を決定している要因を明らかにした。

夏にベーリング海を含む北部北太平洋（研究船「白鳳丸」による KH97-2 航海（1997 年 7 月～9 月））において、海洋表層（0–100 m）の DMS 分布を調べた。その結果、西部では海表面に向かって単調に増加していたのに対し、東部（Stn. P）では亜表層（約 20 m 深）にピークを持つ分布を示した。また、表面海水中の DMS/Chl-a は、西部よりも東部で高い値を示した。そこで、植物プランクトンの種組成の指標として補助色素、従属栄養細菌による DMSP の海水からの除去速度の指標として細菌生産速度（BP）を調べた。その結果、真光層内の DMS/Chl-a は、珪藻類の指標である Fucoxanthin/Chl-a と負の相関があった。これは、DMS/Chl-a の変動が珪藻類の占有率に強く依存していたことを意味する。また、BP は DMS 濃度と正の相関があった。これは、BP が海水からの DMSP の除去速度よりも、DMSP の酵素分解による DMS 生成を表していたことを示唆する。次に、大気境界層中の DMS 濃度と大気エアロゾル中のメタンスルホン酸（MSA）と非海塩起源の硫酸塩（nss-SO₄²⁻）の濃度分布を調べた。その結果、表面海水中の DMS 濃度に東西差がなかったにもかかわらず、大気中の DMS 濃度は西部から東部に向かって増加していた。観測された風速から、この経度分布は気体交換速度の違いに起因することがわかった。しかし、ベーリング海における DMS の高濃度は、気体交換速度の違いでは説明できなかった。北部北太平洋に比べベーリング海では、DMS の酸化速度が遅い、境界層の高さが低い、鉛直対流が不活発という可能性が示唆された。また、MSA 濃度は、前駆体である DMS と同じような分布を示した。一方、nss-SO₄²⁻濃度は、Rn-222 の娘各種（Ra-A, B, C）と同様に、陸から近いほど高濃度だった。これは、陸（特に

アジア大陸)からの人為起源硫黄の影響を示唆する。また、ベーリング海で MSA/nss-SO_4^{2-} が高かった。これは、低温ほど MSA の生成率が高い、ベーリングに比べて北部北太平洋の方が人為起源の nss-SO_4^{2-} のインプットが大きいという可能性を示唆する。

さらに、冬の北西部北太平洋(研究船「みらい」による MR98-K01 航海(1998 年 11–12 月))において、海水中と大気中の DMS を測定した。その結果、表面海水中の Chl-a 濃度は夏の約 2/3 であったのに対し、表面海水中の DMS 濃度は夏の約 1/6、大気境界層中の DMS 濃度は夏の約 1/10 であった。これは、海洋の植物プランクトンの存在量や海表面からの DMS フラックスが減少したことよりも、海水の鉛直混合や大気の大気鉛直対流が活発になったことが主な原因だと考えられる。また、大気 DMS 濃度が、風速の変動に伴い、周期的(数日毎)に変動していることを観測した。この変動は、風速の増加に伴い海表面からの DMS フラックスが増加する効果だけではなく、風速の増加に伴う大気の大気鉛直対流の活発化も考慮しなくては説明できなかった。

学位論文審査の要旨

主 査	教 授	角 皆 静 男
副 査	教 授	乗 木 新一郎
副 査	教 授	河 村 公 隆
副 査	助教授	田 中 教 幸
副 査	助教授	中 塚 武
副 査	助教授	松 永 捷 司 (名古屋大学大学院環境学研究科)
副 査	教 授	楊 桂 朋 (青島大学)

学 位 論 文 題 名

Dimethylsulfide in the northern North Pacific

(北部北太平洋における硫化ジメチル)

大気中のエアロゾルは、地球規模の気候と大気化学において重要な役割を果たしている。海洋生物がつくる揮発性のイオウ化合物、硫化ジメチル (DMS) は、海洋表面から洋上大気へと逃散し、硫酸塩エアロゾルになる。北部北太平洋は、海洋の生態系や一次生産の海域や季節による変動が大きく、大気を通しての人為的汚染の影響が大きいと考えられているが、これまで北部北太平洋における DMS 研究はあまり行われていなかった。そこで本研究では、北部北太平洋を研究海域に選び、夏と冬における海水と大気中の DMS を観測し、その分布を決定している要因を明らかにした。

本論文は全3章で構成されており、第1章では、夏の海洋表層における DMS の分布を、影響を及ぼすと考えられる生物学的因子との関係を調べることで評価した。海洋表層における DMS の鉛直分布は、西部では海洋表面から単調に減少していたのに対し、東部では約 20 m 深にピークを持つ分布を示した。また、表面海水中における植物色素との比 (DMS/Chl-a) は、西部よりも東部で高かった。そこで、植物プランクトンの種組成の指標として補助色素、従属栄養細菌による DMSP (DMS の前駆体) の海水からの除去速度の指標として細菌生産速度 (BP) との関係を調べた。その結果、有光層内における DMS/Chl-a は、Fucoxanthin/Chl-a と負の相関があった。これは、DMS/Chl-a の変動が珪藻類の占有率に強く依存していたことを示唆する。また、BP は DMS 濃度と正の相関があった。これは、BP が海水からの DMSP の除去速度よりも、DMSP の酵素

分解による DMS 生成を表していたことを示唆する。これらの結果は、北部北太平洋における海洋生態系の東西差と密接に関連したものであり、生物地球化学、海洋生態学的に重要な知見である。

第 2 章では、夏の洋上大気中における DMS の分布を、海洋表面からの DMS の供給量と、DMS の酸化生成物であるメタンスルホン酸 (MSA) と非海塩起源の硫酸塩 (nss-SO_4^{2-}) との関係を調べることで評価した。DMS 濃度は、表面海水中の東西差はなかったが、大気中では西から東へ増加していた。これは、東の方で風が強かったためであると考えられる。しかし、ベーリング海大気で高濃度になる原因としては、酸化速度が遅い、境界層の高さが低い、鉛直対流が不活発という可能性が残った。また、MSA は DMS に似た分布であったが、 nss-SO_4^{2-} は、陸起源の気塊の指標であるラドン (Rn-222) 濃度と同様に、陸から近いほど高濃度で、人為起源硫黄の影響が示された。これらの結果は、先進国が集中する北半球中緯度域において、人間活動による自然環境への負荷の大きさを示すものであり、地球規模の気候変動を考える上で重要な知見である。

第 3 章では、冬の洋上大気中における DMS の短期変動と低濃度を、洋上境界層 (MBL) における DMS の収支モデルから評価した。観測された DMS の数日おきの変動は、低気圧の通過に伴う風速の変動とよく一致していた。しかし、この短期変動は、風速の変動に伴う海洋表面からの DMS 供給量の増減だけでは説明できなかった。これは、低気圧通過に伴う風速の増加が、海洋表面からの DMS 逃散量の増加と共に、自由対流圏との交換速度の増加を導くことを示唆する。さらに、冬に鉛直対流が活発になることで、より多くの DMS が自由対流圏に輸送され、洋上大気中の DMS 濃度が、海洋表面からの DMS 供給量から予測されるよりも低くなることを示唆する。これらの結果は、冬に低気圧の活動が活発になる北部北太平洋において、DMS のように海洋表面から揮発する化合物の自由対流圏への輸送と密接に関連したものであり、大気物理化学的に重要な知見である。

以上のように、本研究は DMS を研究対象にしたものではあるが、得られた知見は、生物地球化学、海洋生態学、大気物理化学などに及び、さらに地球規模の気候変動に対する人間活動の影響も示唆したものである。

審査員一同は、これらの成果を評価し、大学院課程における取得単位なども併せて、申請者が博士 (地球環境科学) の学位を受けるに十分な資格を有するものと判定した。