

論文審査の結果の要旨

氏名 大木 淳之

この論文は直接、間接的な作用により気候に影響を及ぼすとされるエアロゾルの生成、除去などの物質循環過程に関する研究であり、1997～2002年に大都市(東京)及び海洋上(西部北太平洋)で実施した大気エアロソル観測データに基づく解析的な研究である。主な研究成果は次の3点にまとめられる。

(1) 微小粒子中 Na^+ 起源の同定による人為起源物質量の推定

環境に影響を与える酸性ガスなどを吸着除去するなど、大気化学過程中で重要な役割を演じる海塩粒子について、その指標となる Na^+ 量に、どれだけの人為起源 Na^+ が含まれるかを、 K^+/Na^+ 比から推定する手法を開発した。その手法を用いた解析から、北太平洋の中緯度域では微小粒子 Na^+ に対して 8～13% が人為起源であることを推定するなど、新たな知見をもたらした。また、大気中に放出された Na^+ の除去プロセスにおける塩素損失量の算出には、 NaCl 起源別の塩素損失量を用いる必要があることを始めて指摘した (*Atmospheric Environment*, 35 (2002) 4367-4374 に掲載)。このように、微小粒子中の人為起源 Na^+ の寄与率を定量評価することにより、海洋大気中の微小粒子に及ぼす人為起源物質の影響を定量的に評価する一つの手法を確立した。

(2) 海洋高生産域における生物起源 SO_4^{2-} の特徴と雲核としての役割に関する考察

夏季において広域的に海霧が発生する北太平洋の中～高緯度域 (>42 N) では、霧生成に関与する凝結核の起源について不明な点が多い。本論文では、1998年の高生産時期(夏季)に西部北太平洋～オホーツク海～日本海で実施した観測データの解析から、この海域では海洋生物起源の硫黄酸化物が、霧の凝結核の大半を占めることを明らかにした。さらに、その凝結核は、通常霧発生時の湿度条件では雲核にはならず、エアロゾルの吸湿、膨潤の過程を経ながら、徐々に雲核となる粒子数が

増加することで、この海域に定常的に雲核を供給し続けているという可能性を示した。このことは、同種の海域における霧生成メカニズムについて、生物起源硫黄化合物が重要な役割を果たしている可能性を指摘したものである(Journal of Oceanography に投稿中)。

(3) 鉍物粒子と酸性ガスの反応特性

鉍物粒子表面が吸湿性の物質(NO_3^- や SO_4^{2-})で覆われると、その光学特性や吸湿特性を変え、物質循環や粒子の気候への影響に変化が生じる可能性がある。本論文では、観測データに基づき、鉍物粒子と反応した NO_3^- や SO_4^{2-} の量を評価することで、これらの成分の大気中からの除去プロセスに関する考察を実施した。その結果、これまで一般的に言われてきたよりも、 SO_4^{2-} の反応性ははるかに低く、 NO_3^- との反応が重要であることを示した。このことを実験的に追証するため、黄砂試料と都市大気中の酸性ガスを直接反応させる実験を行った。その結果、 SO_2 の反応性は NO_2 、 HNO_3 や HCl よりも明らかに低く、黄砂と反応した酸性物質として NO_3^- と Cl^- が合計で88%を占める一方、 SO_4^{2-} は12%に留まることを示した。これらの特性は、相対湿度にはあまり依存しない。従って、従来のダスト輸送モデルで相対湿度が上昇すると SO_2 の反応性が急激に上昇するとして各種計算がなされてきたことに対し、その仮定に誤りがある可能性を指摘したことになる。つまり、鉍物粒子と反応する SO_4^{2-} 量を過大評価していたとの指摘である。今後、東アジアにおいては SO_x 、 NO_x の排出量が増加することが予想されており、その環境への影響を評価する上で重要な鉍物粒子の役割について、定量的な評価を行った意義は大きい。

以上のような結果は、大気中におけるエアロゾルに関わる物質循環やその気候学的な影響に関する研究において重要な知見を与えるものであり、この分野の発展に大きく寄与したと判断できる。

なお、本論文の一部は植松光夫氏他との共同研究であるが、論文提出者が主体になって研究を行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

したがって、博士(理学)の学位を授与できると認める。