

論文審査の結果の要旨

氏名 笹川 基樹

論文題目：北部北太平洋における海霧の化学的特徴と発生・除去機構

本論文は緒言、観測及び分析、結果と考察、結語の4章からなっている。

大気中の物質の除去機構としては乾性沈着と湿性沈着があり、微小粒子 ($d < 0.1 \mu\text{m}$) を効果的に除去するのは湿性沈着である。微小粒子は発生源から長距離輸送されやすいので、湿性沈着は外洋域における海洋表層への物質の供給機構としても重要な役割を果たすと考えられる。北部北太平洋では夏季に、海霧が広範囲・高頻度に発生することが知られている。降雨と同様に海霧もエアロソルを取り込み、海洋境界層下部のエアロソル化学成分の挙動に大きな影響を与えることが予想される。更に霧粒に取り込まれた化学成分が海洋表層へ供給され、海洋生態環境へも影響を与える可能性がある。今まで海霧の化学成分に関する研究は限られたものしかなく、海霧発生時におけるエアロソルの挙動を観測した例はほとんど無い。本研究では、日本海・オホーツク海・北西部北太平洋・ベーリング海・北東部北太平洋において夏季に行われた4回の観測航海(1998年~2001年)によって海霧を採取し、その化学的特徴を明らかにした。また海霧の発生機構・海霧によるエアロソルの除去機構を解明し、更に海霧と降雨の除去機構の差異を明らかにした。

海霧の化学組成は海塩成分の占める割合が大きいが、非海塩成分の割合も最大で50%近くとなり無視できないものであった。非海塩成分の中では nss-SO_4^{2-} と H^+ がどの海域でも主要成分であった。海洋生物起源であるメタンスルホン酸(MSA: CH_3SO_3^-) は2%以下と微量成分だったが、オホーツク海や日本海では比較的高濃度になる傾向を示した。これは海洋生物起源の H_2SO_4 も同時に海霧に取り込まれたことを示唆している。日本海と北西部北太平洋では NO_3^- の占める割合が顕著に高くなることもあり、外洋上でも海霧への人為起源物質の混入が予想される。一方 nss-Ca^{2+} はほとんど含まれず、海霧による鉱物粒子の取り込みはなかった。どの海域でも pH4 前後の酸性霧が観測された。海霧は HNO_3 よりも H_2SO_4 によって酸性化していたが、日本海では人為起源と考えられる HNO_3 による寄与の方が大きかった。オホーツク海では海洋生物起源の H_2SO_4 が海霧の酸性化に寄与していたが、陸域からの中和成分 (NH_3 ,

CaCO₃) の輸送が少なかったことも pH が低くなった要因であった。

海塩粒子との比較で見積もると、nss-SO₄²⁻粒子 (H₂SO₄, (NH₄)₂SO₄, (NH₄)HSO₄) の約 40 %が霧粒の凝結核になった。一方で海洋大気中では海塩粒子と内部混合して存在する NO₃⁻は、海塩粒子と共にすべて霧粒の凝結核になることが示唆された。また海霧発生時には、粒径が大きなエアロソルほど粒子数の減少率が大きくなる傾向を示した。すべての海霧発生イベントで粒径 0.50 μm 以上の粒子数が海霧発生後に減少していた。相対湿度が 100 %を超えた時の粒子の成長粒径を考慮すると、海霧発生前(相対湿度 90 %)に粒径が 0.20 μm より大きいエアロソルが優先的に霧の凝結核になったことが示唆される。また相対湿度 90 %で粒径 0.20 μm の(NH₄)HSO₄粒子の臨界過飽和度は約 0.1 %であり、霧発生時の最大過飽和度の報告値とも一致している。鉱物粒子は海霧に取り込まれていなかったため、霧発生時に減少した粗大粒子は海塩粒子である。海霧発生時は初めに海塩粒子が凝結核となるが、その数密度は低いので相対湿度の上昇は止まらず、相対湿度が 100.1 %に上がるまでに、水蒸気が nss-SO₄²⁻粒子 ((NH₄)₂SO₄, (NH₄)HSO₄, H₂SO₄) の一部 (40%)に凝結して海霧となったことが明らかになった。海塩粒子が臨界過飽和度を下げたため nss-SO₄²⁻粒子が 40 %しか活性化しなかったと考えられる。

ある一つの海霧が出現した期間に採取された霧水試料中の Na⁺濃度の変化に一定の傾向はなかったが、陸上に起源を持つ NO₃⁻・nss-SO₄²⁻・NH₄⁺の濃度は、海霧が発生してからの時間に伴い減少した。これは大気中のエアロソルが霧粒に取り込まれ、海表面へ除去されたためと考えられる。また、この 3 成分の中で NO₃⁻は特に除去されやすかった。NO₃⁻は海塩粒子と共に海霧発生時にほぼすべて霧粒にまで成長し、海表面へ降下したと考えられる。陸域の霧の観測からは、他の 2 成分より NO₃⁻は除去されにくいと報告されている。海洋大気中では NH₃ ガスの濃度が低く NO₃⁻が粗大領域に存在しているために、陸域とは全く異なった除去機構の存在していることが明らかになった。

なお、本論文の内容は筆頭著者として英文による国際雑誌に二報、公表されているが、論文提出者が主体となって執筆したもので、論文提出者の寄与が十分であることと判断する。

したがって、博士(理学)を授与できると認める。