

[ 別紙 2 ]

## 論文審査の結果の要旨

申請者氏名 鄭 進永

---

陸上で大気中に放出された窒素化合物は、エアロゾルあるいはガスとして大気中を輸送され海洋へと沈着する。窒素は、植物プランクトンの必須元素であり、特に窒素が枯渇する海域では、大気からの沈着(乾性・湿性沈着)が重要な供給源であることが示唆されている。陸から外洋へ飛来する大気中のエアロゾル、降水中の窒素化合物の海洋への沈着による海洋生態系への影響を定量的に評価することは、人間活動により増加している現状において極めて重要である。

本論文は、太平洋における大気エアロゾル、降水、海霧を船上で採取し、化学分析を行い、粒径分布などの船上大気観測データと併せて、海域による窒素化合物の組成や濃度の特徴を把握、その起源や除去過程を解析し、大気から海洋への窒素化合物の沈着量を見積もり、海洋生態系への大気からの寄与を議論したものである。

本論文は全 6 章からなる。第 1 章は、序章であり、大気中の反応性の高い窒素化合物の重要性と本研究の位置づけ・目的が述べられている。第 2 章には船舶観測の詳細と化学分析手法が記述されている。

第 3 章では、三陸沖におけるエアロゾル中の無機窒素化合物の測定結果から、アンモニウムイオンの 90%が微小粒子として存在し、アンモニアガスが粒子化したことを示唆した。一方、硝酸塩の 55%は粗大粒子として存在し、海洋大気中硝酸ガスが粗大粒子である海塩粒子に吸着し、硝酸ナトリウムを形成したことを示した。海洋大気では解離された硝酸ガスは海塩粒子に吸着するため、アンモニウムイオンと硝酸塩はそれぞれ違う粒径分布を示す。観測したアンモニウムイオンと硝酸塩の濃度を基に無機窒素化合物の沈着量を見積もった結果、観測されたアンモニウムイオンの平均濃度が硝酸塩の平均濃度より約 3 倍高かったにもかかわらず、アンモニウムイオンと硝酸塩の沈着量はほぼ同じであった。観測期間中に三陸沖へ沈着した無機窒素化合物は、約 0.05-1.5%の一次生物生産に寄与すると見積もられた。

第 4 章では、西部北太平洋の亜寒帯海域における夏季(6 月～8 月)に最大 50%の海霧の発生頻度率を持つ海域での研究成果である。海霧発生の時と非発生の時の粒子数濃度を比べた結果、粒径が 0.5  $\mu\text{m}$  以上の粒子が優先的に海霧の凝結核として働くことがわかった。西部北太平洋の亜寒帯海域で採取した雨水と霧水の平均 pH は、それぞれ 4.1、4.2 とほぼ同じであった。雨水と霧水の酸性度に大きく寄与した成分は、それぞれ非海塩性塩素イオンと非海塩性硫酸塩であった。

霧水中の植物プランクトンが生産するジメチルスルフィドから由来するメタンスルホン酸と非海塩硫酸塩の結果から、海霧は植物プランクトンの活動によって放出される硫黄化合物を降水より効果的に除去したことと、海霧による大気中のエアロゾルやガスの除去過程は、降水による除去過程とは異なることが示唆された。海霧の凝結核として働く硝酸ナトリウムだけではなく、硝酸ガスも海霧によって効果的に除去されたことが示唆された。西部北太平洋の亜寒帯海域における全無機化合物の全沈着量(乾性+湿性+海霧による沈着量)に対する乾性・湿性・海霧による沈着の寄与率は、それぞれ 11%、72%、17%であり、夏季に海霧による無機窒素化合物の沈着量が極めて重要であることが示唆された。

第 5 章では、南北太平洋における大気中の窒素化合物の差異を明らかにした。南北太平洋におけるアンモニウムイオンと硝酸塩は、北太平洋での濃度が南太平洋での濃度より高く、似たような濃度変化傾向を示したが、北太平洋が南太平洋より窒素化合物の陸起源の影響を強く受けていることを示した。南太平洋における大気エアロゾル中のアンモニウムイオンは、海洋生物の活動によって大気へ放出された可能性を示唆した。

南北太平洋では、湿性沈着によって太平洋へ供給される無機窒素化合物は、アンモニウムイオンが硝酸塩より重要であることが示唆された。また、南太平洋で採取した降水中のアンモニウムイオンは、メタンスルホン酸と高い相関関係を示し、この海域では海洋生物の活動によって大気へ放出されたアンモニアガスが重要な起源であることを示唆した。

南北太平洋における無機窒素化合物の海洋生態系への影響として、南北太平洋における約 0.86-1.7%の一次生物生産に寄与すると見積もられた。しかし、大気擾乱に伴う突発的な窒素化合物の沈着は短期間に多量の窒素化合物を海洋へ供給することができる。また、人為起源の窒素化合物の放出量は増加し続けている。従って海の成層化による窒素が枯渇する海域では、大気からの窒素化合物の沈着は重要な窒素の供給源であり、海洋生態系を変化させる可能性がある。

本論文では、大気から南・北太平洋への窒素化合物の沈着量を見積もるため、北緯 48 度ー南緯 55 度で得られたエアロゾル、降水、海霧試料を用いて大気から海洋への窒素供給にとって重要な反応性無機窒素化合物を測定した。海霧による海洋大気中での窒素の除去と海洋への供給の占める割合が大きく、南太平洋上での海洋生物起源の寄与の重要性を定量的に明らかにしたことは高く評価できる。また、これらの物理・化学データは、今後、大気海洋物質循環研究やモデル予測の高精度化にも不可欠なものである。

なお、本論文の第 2 章における観測と第 3 章は植松光夫教授、第 4 章と 5 章の各章は植松光夫教授、古谷浩志博士との共同研究であるが、論文提出者が主体となって研究を行ったもので、その寄与が十分であると判断できる。したがって、審査委員一同は本論文が博士(農学)の学位論文として価値あるものと認めた。