

論文審査の結果の要旨

氏名 宮本千尋

エアロゾルとは大気中に浮遊する微粒子であり、地球表層に様々な影響を及ぼす。そのひとつとしてエアロゾルによる地球の冷却効果が挙げられるが、その効果の見積りには大きな不確実性が残っている。特にその中の硫酸エアロゾルは雲凝結核 (CCN) として作用し、生成した雲が太陽光を散乱することで間接的冷却効果を示す。しかし、CCN の効果を左右する硫酸エアロゾルの化学種を定量的に明らかにした例は少ない。特に東アジア地域は鉱物粒子だけでなく、硫酸エアロゾルの前駆物質である二酸化硫黄の排出量も全球的に高い地域であり、同地域でのエアロゾル観測から硫酸エアロゾルの化学種や鉱物粒子中のカルサイトとの反応を見積もることは重要である。宮本氏は、実試料に含まれる硫酸塩の化学種を X 線吸収微細構造法等を駆使して同定し、吸湿性の異なる各硫酸塩の全硫酸に占める割合を直接かつ定量的に解明し、その CCN への効果を見積もることで多くの成果を挙げた。本論文は 6 章からなる。

第 1 章は全体のイントロダクションである。エアロゾルの概説やその気候への影響について紹介した後、本研究で着目した硫酸エアロゾルの気候影響、特に間接的冷却効果における重要性を説明している。続いて鉱物粒子との反応による硫酸エアロゾルの特性の変化、主な研究対象地である東アジア地域の特徴について紹介されている。さらに、本論文で主要な手法である X 線吸収微細構造 (XAFS) 法について紹介され、本論文全体を通しての目的がまとめられている。

第 2 章では東広島で採取したエアロゾル試料の分析結果について述べられている。本章の結果から吸湿性が低く雲凝結核としての作用が小さいと考えられる石膏の存在が確認された。また、春の黄砂の飛来時に石膏の割合が増加することが示された。このように、エアロゾル中の硫酸塩化学種を同定し、吸湿性の異なる硫酸塩の割合の季節変化を調べた研究例はほとんどないため、これは重要な研究成果の一つと言える。

第 3 章では、黄砂の発生源付近と、黄砂の輸送経路上に位置する中国東部の都市でそれぞれ採取したエアロゾルのカルシウム化学種の分析から得られた研究成果が述べられている。試料に X 線を照射した時に発生する蛍光 X 線を検出する蛍光法とオージェ電子および二次電子を検出する転換電子収量法を適用し、それぞれの信号の脱出深度の違いを利用して粒子全体と表面の化学種を明らかにしている。これより、大気輸送中に黄砂中のカルサイトの反応により石膏が粒子表面で形成されていることが個別粒子の直接分析から確認された。

第 4 章では、グリーンランド南東部で掘削された氷床コア中に捕捉されている個々の粒子のカルシウムの化学種を分析した成果が述べられている。コア中の粒子の分析の結果、1987 年以前に比べそれ以降では石膏の割合が大きく、カルサイトの割合は小さくなっており、石膏の増加は中国の二酸化硫黄の排出量の増加傾向と類似していた。このことから、グリーンランド氷床中に捕捉された粒子中のカルシウム化学種は中国由来の二酸化硫黄の排出量の変化を反映していることが示唆された。このように氷床コア中の粒子に XAFS 法を適用し化学種を調べた研究例はほとんどなく、新規性が高い。

第 5 章で扱った能登半島で採取したエアロゾルの分析から、黄砂の影響が大きい春には石膏が粒子中で形成されることにより硫酸エアロゾル全体の最大 30% (年平均約 10%) に相当する吸湿性の硫酸エアロゾルが減少し、硫酸エアロゾルの CCN 作用

への影響の大きさが示唆された。また、同試料の硫黄同位体比等の結果から、硫酸エアロゾルの起源と大気輸送中の反応の効果について議論している。また本論文は、排出源の特徴を有する微量金属元素と、硫酸エアロゾルの硫黄同位体比を組み合わせた考察を初めて実施した研究例となっている。

第 6 章では、これらの成果に基づいて、東アジア地域の鉱物粒子との反応で石膏が形成されることにより CCN と作用しうる吸湿性の硫酸エアロゾルが減少する効果が全球の放射強制力にどの程度影響するかを概算している。その結果から、硫酸エアロゾルの化学種を考慮することで、その間接的冷却効果のより正確な評価につながる事が示された。

これらの成果は、環境化学における重要な業績であると判断されたため、審査員全員一致で本論文は博士論文として合格であると判定した。なお、本論文第 2 章及び第 3 章は、Sakata、Yamakawa、Kurusu、Takahashi らとの共同研究による成果も含まれ、彼らを共著とした学術論文が出版されているが、論文提出者が主体となって研究を行っており、本人の寄与が十分であると判断された。

以上の理由により、本論文は地球惑星科学の発展に寄与するものと認め、博士(理学)の学位に値するものと認める。