

## 論 文 要 旨

### 論 文 題 目

沖縄辺戸で採取した大気エアロゾル中の化学成分と  
放射性炭素 ( $^{14}\text{C}$ ) に関する研究  
(Characterization of chemical components and radiocarbon analysis  
in the atmospheric aerosols collected at Cape Hedo, Okinawa, Japan)

本研究は、沖縄本島北端に位置する国立環境研究所の辺戸岬大気・エアロゾル観測ステーション(NIES-CHAAMS)で採取した大気エアロゾル中の水溶性化学成分および金属成分について長期観測を行い、主要な化学成分の挙動に影響を与える環境因子を探求し、さらに大気エアロゾル中の黒色炭素 (BC) と有機炭素 (OC) の放射性炭素 ( $^{14}\text{C}$ ) 測定により、炭素成分の起源を定量的に評価することを目的とした。

エアロゾルの水溶性抽出液中に過塩素酸イオン ( $\text{ClO}_4^-$ ) を世界で初めて検出した。後方流跡線解析の結果より、 $\text{ClO}_4^-$  が検出されたエアロゾルの多くは東アジア地域から飛来し、特に黄砂飛来時には最高濃度を示すことが明らかとなった。今後、エアロゾル中の  $\text{ClO}_4^-$  の観測、および東アジア地域からの越境汚染について、研究の必要性を示めた。

次に、沖縄に飛来した大気エアロゾルに含まれる黒色炭素 (BC) と有機炭素 (OC) の放射性炭素 ( $^{14}\text{C}$ ) 測定により、東アジアから長距離輸送されたエアロゾル中の炭素成分の起源を世界で初めて定量的に評価した。BCとOCのbiomass/biofuel起源については、非黄砂期間のbiomass/biofuel割合 (BC:59.8%とOC:87.4%) より、黄砂期間のbiomass/biofuel割合 (BC:39.3%とOC:62.0%) のほうが非常に小さいことから、黄砂期間にFossil起源の強い影響を受けていることを示し、黄砂期間のBC濃度の増加は、Fossil起源の増加によるものであった。

さらに、大気エアロゾル中の水溶性化学成分および金属成分について長期観測をした結果、最近5年間で、エアロゾル粒子と自然起源物質が減少傾向にあるにも関わらず、人為汚染物質は増加傾向であった。季節変動は、アジア大陸から飛来する気団の支配率によって強く影響され各測定物質の濃度は増加していた。

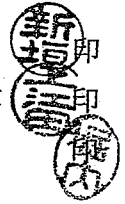
氏 名 半田 大士

2012年 2月 16日

琉球大学大学院  
理工学研究科長 殿

論文審査委員

主査 氏名 新垣 雄光  
副査 氏名 上江田 捷博  
副査 氏名 堀内 敬三



学位 (博士) 論文審査及び最終試験の終了報告書

学位 (博士) の申請に対し、学位論文の審査及び最終試験を終了したので、下記のとおり報告します。

記

申請者	専攻名 海洋環境学 氏名 半田 大士 学籍番号 <span style="background-color: black; color: black;">XXXXXXXXXX</span>	
指導教員名	新垣 雄光	
成績評価	学位論文 <input checked="" type="radio"/> 合格 <input type="radio"/> 不合格	最終試験 <input checked="" type="radio"/> 合格 <input type="radio"/> 不合格
論文題目	沖縄辺戸で採取した大気エアロゾル中の化学成分と放射性炭素 ( $^{14}\text{C}$ ) に関する研究	
<p>審査要旨 (2000字以内)</p> <p>近年、日本における大気汚染物質についての研究は、ローカル由来の汚染物質に加え、越境汚染物質がクローズアップされている。越境大気汚染物質による影響を評価するためには、人間活動に影響されやすい化学物質に対して、長期的な計測をローカル汚染の影響が小さい地点で実施する必要がある。沖縄は、大規模な工業地帯がなく、夏季は主に海洋性の清浄気団に覆われることからバックグラウンドとしての観測ができ、冬季は主に大陸性の気団に支配されることからアジア大陸由来の越境汚染物質の観測ができるため大気観測に適した場所である。</p> <p>そこで、当該研究では、新しい汚染物質として注目されている過塩素酸イオンの挙動解明、放射性炭素測定を利用した化石燃料起源の有機物に関する研究、さらに、沖縄辺戸におけるエアロゾルの長期観測に基づく越境汚染物質の経年変化について、研究を行っている。</p>		

(次頁へ続く)

まず、過塩素酸イオン ( $\text{ClO}_4^-$ ) は、米国で近年研究され始め、世界的にも急速に注目されつつある新しい環境汚染物質の一つである。体内に取り込まれると、甲状腺から吸収されるヨウ素の取り込みを妨害し、脳の発達障害を引き起こす。特に、乳幼児への影響が懸念されている。当該研究では、沖縄の大気エアロゾル中に含まれる  $\text{ClO}_4^-$  イオンの定量を行い、沖縄特有の大気環境や、気象条件、越境汚染や人為的要因などとの関連を報告している。辺戸岬で採取したエアロゾル中の  $\text{ClO}_4^-$  イオン濃度の挙動と後方流跡線解析の関係から、東アジア大陸から気団が沖縄に到達した際に高濃度を示すことが明らかにされた。また、大気汚染物質の指標である非海塩性硫酸イオン (nss-sulfate) とは  $r^2=0.55$  と比較的強い相関が見られたことから、化石燃料の燃焼に由来する物質と共に、 $\text{ClO}_4^-$  イオンが東アジア大陸から長距離輸送されてきたことが示唆されている。

次に、沖縄に飛来した大気エアロゾルに含まれる黒色炭素 (BC) と有機炭素 (OC) の放射性炭素 ( $^{14}\text{C}$ ) 測定により、東アジアから長距離輸送されたエアロゾル中の炭素成分の起源を評価している。放射性炭素の半減期は、約 5700 年であるため、化石燃料中の  $^{14}\text{C}$  は皆無に等しい。BC と OC の biomass/biofuel 起源については、非黄砂期間の biomass/biofuel 割合 (BC:59.8% と OC:87.4%) より、黄砂期間の biomass/biofuel 割合 (BC:39.3% と OC:62.0%) のほうが非常に小さいことから、黄砂期間に Fossil 起源の強い影響を受けていることを示し、黄砂期間の BC 濃度の増加は、Fossil 起源の増加によるものとの結論が得られている。また、biomass 起源の OC が定常的に存在することから、未知の海洋性有機化合物が気体から固体へと変わる二次生成有機エアロゾルの可能性も示唆される興味深い結果が得られている。

さらに、大気エアロゾル中の水溶性化学成分および金属成分について沖縄島辺戸で長期観測をした結果、最近 5 年間で、エアロゾル粒子と自然起源物質は減少傾向にあるにも関わらず、人為汚染物質は増加傾向であることが明らかとなった。季節変動は、アジア大陸から飛来する気団の支配率によって強く影響され、各測定物質の濃度は増加していることも明らかとなっている。また、硝酸イオンが毎年増加傾向にあること、それに対して、nss-sulfate は 2007 年をピークに減少傾向にあることが明らかとなり、東アジアにおけるエネルギー利用方法や環境汚染対策が変化してきていることが明らかとなった。

本博士論文の研究結果より、これまで越境汚染物質として計測されてこなかった環境汚染物質の挙動が明らかとなった。また、放射性炭素測定を行った結果、自動車等の化石燃料燃焼由来の有機物を定量的に評価できることが明らかになった。さらに、長期観測の結果から東アジアでのエネルギー利用の変化を化学的に示すことができた。当該研究成果の一部は、国際学術雑誌で発表しており、国際的に認められる水準にあると判断できる。

以上により、博士の学位論文および参考論文として提出された 2 編の査読付き学術論文、さらに、平成 24 年 2 月 15 日 (水) に理系複合棟 207 教室で行われた博士論文の研究課題についての口頭発表による最終試験を厳正に審査した結果、全員一致で申請のあった博士論文が博士の学位論文として十分な内容を持つものであることを認め、最終試験も合格と判定した。