

氏 名	かじ の みず お 梶 野 瑞 王
学位(専攻分野)	博 士 (理 学)
学位記番号	理 博 第 2880 号
学位授与の日付	平成 17 年 3 月 23 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
研究科・専攻	理学研究科地球惑星科学専攻
学位論文題目	火山性硫酸エアロゾル増加に伴う大気質変化と環境酸性化 ——東アジアにおける三宅島火山噴火の影響——

論文調査委員 (主査) 教授 植田 洋 匡 教授 木田 秀 次 助教授 石川 裕 彦

### 論 文 内 容 の 要 旨

三宅島火山は、2000年7月噴火開始以来1年間で  $9\text{TgSO}_2/\text{yr}$  の二酸化硫黄を放出している。この放出量は、中国全土からの人為起源放出量の約半分、日本全土からの人為起源放出量の約10倍に相当し、噴火開始期にはアジア全域からの人為起源放出量に匹敵した。本研究は、この二酸化硫黄が大気中で酸化されて生成した硫酸エアロゾルが、極東アジア域の大気質、環境に及ぼす様々な影響を調べたものである。本研究では、硫酸エアロゾルの生成がガス状アンモニアのエアロゾル相への取り込み、硝酸、塩酸イオンのエアロゾル相からの追い出し、追い出されたガス状硝酸、塩酸イオンの地表沈着の増大を促すことを地上観測と数値モデルから見出し、硫黄酸化物による直接的環境酸性化と硝酸、塩酸等揮発性成分による二次的な環境酸性化を詳細に調べたものである。

本研究では、数値モデルとして領域規模オイラー型エアロゾル輸送モデル Mssp の構築と、地上観測として八方尾根酸性雨測定所におけるガス・エアロゾル・降水の観測を実施している。モデル構築では、揮発性物質のガス-エアロゾル分配(熱力学平衡)、雲粒、雨滴への揮発性成分の溶解、エアロゾルの衝突併合の計算を気象モデルとの結合により可能にしている。観測では、エアロゾルの短時間サンプリングにより、捕集中の揮発性成分の蒸散を抑え、ガス-エアロゾル分配を正確に測定している。

次に、三宅島火山の噴火影響の観測データ解析から、噴火前後で、年平均の二酸化硫黄ガス濃度は  $0.4\text{ppb}$  から  $1.5\text{ppb}$  まで、硫酸エアロゾル濃度は  $2.5\mu\text{g}/\text{m}^3$  から  $3.8\mu\text{g}/\text{m}^3$  まで上昇し、硫酸エアロゾルの生成速度は  $1\%/\text{hr}$  であることを示している。数値モデルからは、三宅島起源のエアロゾルは強酸性 ( $\text{pH}=0$ 前後) になり、そのなかで硫酸イオンの8割が硫酸水素イオンの形で存在することをはじめに見出した。また、三宅島起源の硫酸エアロゾルは、冬季北西季節風により大部分が太平洋に輸送されるが、その他の季節には日本列島、ユーラシア大陸に輸送されて、火山起源硫酸は八方尾根では人為起源硫酸とほぼ等量に達し、極東アジア域では同オーダー存在すること、噴火による降水  $\text{pH}$  の低下は日本海側で  $0.1-0.3$ 、太平洋側で  $0.3-1.0$  程度に達することを示している。この  $\text{pH}$  の低下は黄砂による降水の中和作用を相殺する大きさである。

また、火山噴火に伴って生じる、人為起源硝酸や塩酸による二次的な酸性化現象を初めて見出し、その効果を数値モデルを用いて評価している。火山性気塊では、硫酸エアロゾルが過剰に存在するため、揮発性の硝酸、塩酸イオンはほぼ100%気相に追い出されること、ガス状硝酸、塩酸の沈着速度は硝酸塩、塩酸塩のそれに比べて数オーダー速く、従って、追い出された硝酸や塩酸が二次的な環境酸性化(噴火による間接的な環境酸性化効果)を促すことを示すとともに、この間接効果による酸性沈着増加量は、噴火による硫酸沈着増加量と同程度の値(7-210%)に達し、直接的酸性化とともに重要な役割を果たすことを示している。

## 論文審査の結果の要旨

急速な工業発展に伴うアジアでの人為起源大気汚染物質放出量は、欧米からの放出量を凌ぎ世界最大になった。2000年7月噴火を開始した三宅火山の二酸化硫黄放出量は、中国全土からの人為起源放出量の約半分、日本全土からの人為起源放出量の10倍に相当する。本研究は、この放出量の増加がもたらす大気質変化を観測と数値モデルを用いて詳細に調べることにより、将来起こるであろう環境酸性化を予見しようとしたものである。

本研究では、火山起源二酸化硫黄が大気中で酸化されて硫酸エアロゾルになる過程を八方尾根での観測と数値モデルを用いて追跡し、二酸化硫黄、硫酸エアロゾルの極東アジア域への移流と、乱流拡散による地表への乾性沈着、雲物理・降水過程による湿性沈着を調べて、硫黄成分による直接的な環境酸性化を見積もっており、火山噴火の影響をアジア全域について定量的に示した点で評価できる。

そのなかで、過剰な硫酸イオンの生成がエアロゾルを強酸性にすること、そのため硫酸イオンの大半が硫酸水素イオンの形で存在することを示した。これは従来分析されていた陽イオンと陰イオンのバランスが汚染大気中では成立しない根拠を定量的に与えたものとして評価できる。

本研究の最大のポイントは、エアロゾル中の過剰の硫酸イオンが、アンモニアガスのエアロゾル相への取り込み、硝酸、塩酸イオンのエアロゾル相からの追い出し、追い出されたガス状硝酸、塩酸イオンの地表沈着の増大を促すというメカニズムをはじめで見出したところにある。このメカニズムにより生じる二次的な環境酸性化が硫黄酸化物による直接的環境酸性化に匹敵することを示している。この成果は、東アジアの環境酸性化の将来予測シナリオとして重要である。すなわち、硫黄酸化物の大量排出に伴う直接的な環境酸性化の他に、将来のモータリゼーションや廃棄物処理による窒素酸化物や塩酸のもたらす直接環境酸性化と硫黄酸化物の大量排出との相乗効果としての二次的環境酸性化が起こることを予知するものとして重要な貢献である。

これら一連の観測と数値モデルによる研究は、申請者の力量の高さを立証するものである。また、気象学と大気環境科学を結ぶ領域の発展に寄与するものであり、高く評価できる。よって、本論文は博士（理学）の学位論文として価値あるものと認める。また、論文内容とそれに関連した事項について口頭試問を行った結果、合格と認めた。