

氏 名	朴 延 鎬 パク ジョン ホ
学位(専攻分野)	博 士 (工 学)
学 位 記 番 号	工 博 第 1573 号
学位授与の日付	平 成 9 年 3 月 24 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	工 学 研 究 科 衛 生 工 学 専 攻
学 位 論 文 題 目	大気エアロゾル粒子の物理・化学的性状とその沈着特性に関する研究

論文調査委員	(主 査) 教 授 笠原三紀夫	教 授 寺 島 泰	教 授 高 木 興 一
--------	--------------------	-----------	-------------

論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、大気エアロゾル粒子の環境影響や環境保全・改善策を策定する上で、基本的要件となる大気エアロゾル粒子の物理・化学的性状やその動態，ならびに大気からの除去過程としての乾性・湿性沈着機構に関し検討した研究成果をまとめたもので，8章と付録から成っている。

第1章は序論であり，本研究の背景，目的および概要について述べている。

第2章では，日本および韓国における粒子状物質による大気汚染の推移と酸性粒子による降水の酸性化状況についてまとめ，また粒子状物質の発生源とその性状特性および粒子状物質の大気中での挙動，乾性・湿性沈着除去に関する既往の研究をレビューしている。

第3章では，本研究で中心的な測定手段として用いた微量元素分析法としての荷重粒子励起X線放射(PIXE)分析法に関する基礎的検討結果について述べている。PIXE用混合標準試料を新たに作製してPIXE分析のための検量法を提案し，作製した混合標準試料が検量に効率的に使用可能であることを示している。また，大気エアロゾル粒子や雨水試料を分析するためのPIXE分析・測定条件やPIXEスペクトル解析法を確立し，本分析・測定条件下での各元素の分析精度ならびに検出限界を明らかにしている。

第4章では，大気エアロゾル粒子の物理・化学的性状とその変動に関する検討結果について述べている。各種環境，気象条件下で大気エアロゾル粒子を分級捕集し，不溶性・水溶性成分に分離後元素濃度を測定することにより，大気エアロゾル粒子の物理・化学的性状とその変動を調べ，大気エアロゾル粒子の粒度分布は粒径が2 μm 付近を谷とした二山型分布として表され，一方各元素の粒度分布は元素ごとに異なり，粗大または微小粒子域にピークをもつ一山型分布または二山型分布として表されること，Fe, Si, Tiの多くは不溶性，S, Ca, Znは水溶性成分として存在していること，冬期高濃度時にはZn, Pb, V, Sなど主として人為起源元素の濃度が増大すること，などを明らかにしている。なお，分級測定値から，より確からしい粒度分布を決定するためのデータ処理法としての非線形反復法についても論じている。

第5章では，大気エアロゾル粒子の乾性沈着に関する検討結果について述べている。大気エアロゾル粒

子を粒度別に採取すると同時に、乾性沈着物質を採取・定量し、両者の化学物質収支を定量的に評価することにより、大気エアロゾル粒子の元素別沈着速度を決定している。元素別の沈着速度は、Fe の0.93 cm/s から Ca の3.2 cm/s の範囲にあること、硫酸塩やアンモニウム塩については、粒子状物質ばかりでなくガス状物質の沈着も大きいことを明らかにしている。

第6章では、大気エアロゾル粒子の降水洗浄に関する検討結果について述べている。雨水を採取するとともに、降雨の前、中、後に大気エアロゾル粒子を粗大・微小粒子別に捕集し、これら雨水、エアロゾル中の化学成分を分析することにより、雨による大気エアロゾル粒子の粒度別洗浄特性を調べ、一般に雨水中の各元素濃度は、降雨開始直後に最大値となり、以後降水量0.5 mm 程度まで急速に減少し、その後は徐々に減少する傾向となることを示し、降雨初期においては washout 機構が支配的な洗浄機構であることを明らかにしている。また、主として土壌に起源をもつ Fe, Si, Ti は雨水中で不溶性成分比率が高く、逆に S はほぼすべてが水溶性成分として存在していること、さらにまた、降雨に伴う粗大粒子の濃度減少は微小粒子のそれより大きく、粒径の大きい粒子ほど降雨により洗浄されやすいことを明らかにしている。

第7章では、降水による大気エアロゾル粒子の washout 過程をモデル化し、大気エアロゾル粒子中および雨水中の元素濃度、イオン成分濃度を推定することにより洗浄特性を理論的に検討した結果について述べている。降雨強度が大きくなるほど洗浄効果が大きく、特にその傾向は初期降水において著しいこと、また洗浄効果はエアロゾル粒子の粒径に大きく依存し、粒径が3 μm 以上の粗大粒子が洗浄に大きく寄与していることを示し、washout による洗浄特性を把握するためには初期降雨の特性を詳細に検討する必要があることを指摘している。また、大気エアロゾル中および雨水中の各元素の実測濃度値を基にした収支式より、新たに定義した降雨の有効高度を求め、元素別粒子の高度分布や洗浄機構について論じている。

第8章は結論であり、本研究で得られた研究成果をまとめるとともに、今後の課題を提示している。

論文審査の結果の要旨

本論文は、大気エアロゾル粒子の環境影響や環境保全・改善策を策定する上で基本的要件となる大気エアロゾル粒子の物理・化学的性状特性やその変動、ならびに大気からの除去過程としての乾性・湿性沈着機構を解明することを目的としたもので、得られた主な結果は以下のとおりである。

- 1) 微量多元素同時分析法としての PIXE 法の検量に、効率的に使用可能な混合標準試料を新たに作製し、また本研究で確立した大気エアロゾルや雨水試料の分析条件下での分析精度および検出限界を明らかにした。
- 2) 粒径、化学組成、濃度、溶解性など大気エアロゾル粒子の性状を総合的にとらえ、各種気象・環境条件下で測定し、粒子の発生過程や季節的要因と粒子の物理・化学的性状特性との関係を明らかにし、化学組成別の粒度分布は、発生過程に応じた3つのタイプに分類できることを示した。
- 3) 各種気象・環境条件下で乾性沈着量を求め、大気エアロゾル粒子の元素別沈着速度を決定することにより、乾性除去機構を定量的に評価した。元素別沈着速度は0.93 cm/s ~ 3.2 cm/s の範囲にあり、硫酸塩などについてはガス状物質の沈着も大きいことを示した。

4) 雨水中に取り込まれる大気汚染物質濃度は、降雨開始直後に最大となり、以後降水量0.5 mm 程度まで急速に減少することを示し、降雨初期においては washout 機構が支配的洗浄機構であることを明らかにした。また、washout 過程をモデル化したシミュレーション計算より、降雨洗浄に及ぼす雨滴条件やエアロゾル粒子性状の影響を調べ、実験結果とよく対応していることを示した。

以上、要するに本論文は、大気エアロゾル粒子の物理・化学的性状とその変動特性を明らかにし、大気エアロゾル粒子の環境影響を評価するために不可欠な多くの基礎的知見を得、また大気中からのエアロゾル粒子の沈着除去機構を解明したもので、得られた成果は学術上、實際上寄与するところが少なくない。よって本論文は博士(工学)の学位論文として価値あるものと認める。また、平成8年12月19日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。