

別紙4

|      |   |   |   |
|------|---|---|---|
| 報告番号 | ※ | 第 | 号 |
|------|---|---|---|

## 主 論 文 の 要 旨

### 論 文 題 目

Source analysis of non-fossil carbon in atmospheric aerosols collected at urban sites in Nagoya using carbon isotopes

名古屋市において採取された都市大気エアロゾル中非化石燃料起源炭素の炭素同位体を用いた発生源解析

氏 名 池盛文数

## 論 文 内 容 の 要 旨

大気エアロゾル、特に炭素質エアロゾルは、循環器、呼吸器、感染症、そしてアレルギー疾患など、ヒトの健康を害するため、大気汚染物質の一つとして注目されている。それらは、太陽や地球からの放射を散乱または吸収する性質を持つ。また氷結核や雲凝結核として機能することも知られている。炭素質エアロゾルは、対流圏のエアロゾルにおいて大きな割合を占める。有機炭素 (OC)、元素状炭素 (EC) および水溶性有機炭素 (WSOC) などの炭素成分の濃度は、都市、地方、山岳地域などで大きく異なる。炭素質エアロゾルの発生源や生成メカニズムは非常に複雑であり、その発生源や起源を推定することは非常に難しい。また特に、高濃度の炭素質エアロゾルをもたらす発生源や機構についての知見は、我々の健康をそれらの汚染物質から守るために非常に重要である。炭素質エアロゾルを構成する成分は複雑で、地域、季節性を持つと考えられ、気候変動やヒトへの健康影響も大きく異なると考えられる。また、発生源、化学特性などで未解明な点が多く、炭素質エアロゾルについての研究が必要である。放射性炭素 ( $^{14}\text{C}$ ) は、炭素質エアロゾルの発生源情報を得るためのトレーサーとして用いられる。 $^{14}\text{C}$  は、炭素質エアロゾルを化石燃料および非化石燃料の二つの起源に分けることができる。炭素質エアロゾルに対する、化石燃料と非化石燃料起源の寄与について理解を深めることは、炭素質エアロゾル濃度を減少させる対策を行う際に、非常に重要である。

本研究では、大気エアロゾル中の $^{14}\text{C}$ 濃度や化学成分を測定し、都市大気における炭素質エアロゾルの発生源について知見を得ることを目的とした。はじめに、名古屋において捕集した $\text{PM}_{2.5}$ 中のOC濃度に対し、シベリア森林火災で放出された炭素質エアロゾルが与える影響について議論した。2003年5月に、 $\text{PM}_{2.5}$ 中のOC濃度が高濃度で観測された。2003年5月から6月初旬における全炭素(TC)中の $^{14}\text{C}$ 濃度(47.0–68.4 percent modern carbon、以下pMC、 $n=3$ )は、2003年4月から2004年3月のそれらを除く期間の $^{14}\text{C}$ 濃度(28.3–41.9pMC、 $n=23$ )よりも明確に高かった。5月から6月初旬におけるOC/元素状炭素(EC)比(1.3–2.0、 $n=3$ )も、その他の期間におけるOC/EC比(0.79–1.3、 $n=23$ )より高かった。さらに、OC濃度も5月から6月初旬に高濃度(5.8–9.4  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、 $n=3$ )であった(年平均は $4.9 \pm 2.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ )。これらの結果は、5月から6月初旬に名古屋で観測されたOC高濃度の原因が、非化石燃料起源炭素(non-FC)であることを示している。さらに、後方流跡線解析により、大規模な森林火災が生じていた東シベリアを通過した気塊が、名古屋に到達していたことがわかった。一方、6月中旬以降、名古屋に到達する気塊は東シベリアを通過せず、また、観測された $\text{PM}_{2.5}$ 中の $^{14}\text{C}$ およびOC濃度は、5月から6月初旬の値より低下した。これらの結果から、シベリア森林火災により放出されたnon-FCが名古屋に輸送され、名古屋で観測された $\text{PM}_{2.5}$ 中 $^{14}\text{C}$ およびOCの高濃度を引き起こしたと結論付けた。

続いて、植物燃焼や植物から放出される炭素質エアロゾルについて、都市における季節変動や発生源を評価するため、名古屋で捕集した全浮遊粒子状物質試料のOC、EC、 $^{14}\text{C}$ およびレボグルコサン濃度を測定した。春(56.4 pMC)や夏–初秋(57.4 pMC)における $^{14}\text{C}$ 濃度は、晩秋–冬(47.1 pMC)に比べ高濃度であった。特に4月における $^{14}\text{C}$ 濃度は、花粉の影響により観測期間で最も高濃度(約70 pMC)であった。レボグルコサン濃度は明確な季節変動を示し、国内の報告例と同じく、晩秋–冬において他の季節よりも高濃度であった。またレボグルコサン濃度は、 $^{14}\text{C}$ 濃度より算出したTC中の非化石燃料起源炭素( $\text{TC}_{\text{nf}}$ )濃度と、晩秋–冬において強い相関を示した。さらに、 $\text{TC}_{\text{nf}}$ 濃度から二つの起源、植物燃焼起源炭素( $\text{TC}_{\text{bb}}$ )および、 $\text{TC}_{\text{bb}}$ 以外の生物起源炭素( $\text{TC}_{\text{bio}}$ )の濃度を推計した。 $\text{TC}_{\text{nf}}$ およびTC濃度に対する $\text{TC}_{\text{bb}}$ 濃度の寄与は、晩秋–冬において高かった。 $\text{TC}_{\text{bio}}$ 濃度はすべての季節において $\text{TC}_{\text{bb}}$ 濃度より高濃度であった。 $\text{TC}_{\text{bio}}$ の発生源は、春に花粉、夏に植物起源の二次生成エアロゾルの寄与が大きいなど、季節により大きく異なると考えられた。また、TCの高濃度期間に対する $\text{TC}_{\text{bb}}$ および $\text{TC}_{\text{bio}}$ 濃度の寄与が、季節によって大きく異なることが明らかになった。

以上の研究結果から、都市大気における炭素質エアロゾルの非化石燃料起源炭素に関して、(1)シベリア森林火災で放出された炭素質エアロゾルが、炭素成分濃度の上昇に大きく寄与すること、(2)非化石燃料起源の炭素の発生源が、季節によって大きく異なることが明らかとなった。特に非化石燃料起源炭素について、国内の知見は乏しいため、本研究で得られた結果は、 $\text{PM}_{2.5}$ などの粒子状物質の削減対策に大きく貢献できる。