

博士論文審査結果の概要

申請者氏名	齊 藤 勝 美			
審査委員長	職 名	教授	氏 名	永淵 修
論文題目	山岳地域における大気中浮遊粒子の特徴に関する研究			
論文内容の要旨				
<p>本論文は、近年、大気汚染物質の中で大きな社会問題にもなっている浮遊粒子状物質に関する先駆的な研究をまとめたものである。このような大気汚染物質は、化石燃料の燃焼に代表される人為発生源のほか、海塩粒子、土壌由来粒子などの自然的発生源もあり、さらにガス状物質が物理・化学変化により生成する粒子（二次生成粒子）もあり、非常に複雑である。また、こうした発生源に加えて、黄砂のような自由大気層を長距離輸送されてくる汚染物質もある。このように多様な発生源をもつ大気中浮遊粒子状物質について、工場地帯や都市地域における汚染度合や長距離輸送で運搬される汚染物質の影響の程度を評価するには、人為的発生源の直接的な影響を受けにくく、しかも長距離輸送されてくる汚染物質も捉えることのできる山岳地域での観測は不可欠である。このような状況に鑑み、都市地域における大気中浮遊粒子状物質を評価するための基本情報を得ることおよび大陸から日本に長距離輸送されてくる大気汚染物質を評価することを目的に、山岳地域を対象に①大気中浮遊粒子の元素成分の特徴とその経時変化、②樹氷、新雪中に含まれている不溶解性成分（粒子）及び溶解性成分の化学的成分と粒子の形態、粒子特徴、③粒径サイズ別大気中浮遊粒子の化学・物理的特徴、④植物の葉の成長に伴う葉内元素組成の変化、葉の付着粒子の特徴などを把握する研究を行い、それらをまとめたものである。</p> <p>論文は6章によって構成され、それぞれの章の概要は次のようになる。</p> <p>第1章は、序論として、研究の背景—大気汚染物質としてのガス状、粒状物質に関する環境行政の歴史から始まり、現在問題になっている粒子状物質、特に微小粒子状物質の問題点について言及し、粒子状物質に含まれる成分分析による評価方法を提案している。</p> <p>第2章では、大気中浮遊粒子状物質の元素成分の特徴と経時変化について、著者のフィ</p>				

ールドである森吉山で観測を行い、その結果を解析している。分析法に PIXE 分析を用いることで少ない試料量で且つ高感度で多元素を同時に計測し、その解析を行っている。

第 3 章では、冬季の森吉山で樹氷と雪を採取し、樹氷・雪に含まれる粒子状の物質中に SEM を用いて多くの化石燃料燃焼粒子を見出した。これらの粒子は石炭燃焼系の粒子であり、大陸からの長距離越境輸送の指標となることを見出した。

第 4 章では、森吉山において、大気中浮遊粒子の粒径サイズ別の特徴を検討し、冬季および夏季の粒子から 23 元素が定量され、冬季、夏季とも Si 主体の無機系の粒子が大部分であった。特に冬季は森吉山の卓越風の検討からその起源は中国大陸であると結論付けられた。

第 5 章では、白神山地のブナの葉の成長と葉内元素組成そしてその付着粒子について検討した。その結果、葉内の部位によって蓄積される元素が異なった。このことから、植物生態系に及ぼす大気環境の影響を検討する上で重要な情報を提供するのみならず、植物の元素吸収・代謝機能を検討する上で重要な糸口になることが分かった。

第 6 章は 2~5 章を踏まえて、山岳地帯における大気中浮遊粒子について、物理・化学的性質を明らかにし、大陸から日本に輸送される大気汚染物質、特に浮遊粒子の実態を捉えた。2000 年代後半から黄砂を中心とした大陸からの日本へ長距離輸送される大気汚染物質が危惧され、実際に大気環境濃度に対する影響度合いは国内発生源より大陸からの長距離輸送されてくる汚染物質の方が大きいことがわかってきた。

得られた成果は、例えば 2013 年冬季の北京における PM 問題に端を発した数か国に及ぶ長距離越境輸送の現象に対する政策決定に大いに役に立つ情報を発信している。

論文の審査結果

本論文は、最近の大気環境基準を達成していない代表の粒子状物質に早くから注目し、そのバックグラウンド地域（山岳地域）における粒子状物質の観測を行ってきた。当時、日本には山岳部でのこのような観測を行っている研究者は非常に少なく、都市部の観測のみで大気環境を議論することが多かった。現在でも、国内で観測される PM_{2.5} の大陸由来の寄与率が明確になっていないことを考えるとその先駆性がうかがえる。

研究を開始した 2000 年当時の粒子状物質の成分分析は、イオン成分が中心であったが、斎藤氏は元素成分の情報を得るには微量量に対応した多元素同時分析手法が最適と考え、化学的な前処理をせずに分析可能な粒子線励起 X 線（Particle Induced X-ray Emission: PIXE）法に着目し、定量法（Nuclepore-Br 法）の開発など分析手法の開発を行った。この Nuclepore-Br 法は、PIXE 分析の定量法として国際エネルギー機関（IEA）が認定している。また、バッテリー駆動タイプのポンプで、大気中浮遊粒子を PM₁₀, PM_{2.5}, PM_{1.0} に分級するサンプラーを開発し、世界で初めて山岳地域において冬季と夏季に >PM₁₀, PM_{10-2.5}, PM_{2.5-1.0}, <PM_{1.0} の粒子を捕集してイオン・元素成分、粒子の形態観察を行った。その成果は、国際シンポジウムで高い評価を得、*Atmospheric Research*, 89, 324-329, 2008 に掲載されている。さらに、植物の葉の成長に伴う葉内元素組成の変化、葉の付着粒子の特徴などを把握するために行った Micro-PIXE による葉の元素マップ測定に関して

は、Micro-PIXE の技術を樹木の葉に世界で初めて応用した例である。このように、斎藤氏は、無電源地帯での粒子状物質の採取方法の開発、さらに最新の分析機器を用いた分析法を開発し、山岳地域における粒子状物質の観測、分析に新たな手法を持ち込み、今まで得られなかったデータを取得し、解析を行っている。

これら開発した観測手法、分析法を用いて、樹氷・雪の分析から大陸から輸送される化石燃料燃焼由来の粒子を明らかにした。また、同一地点の樹氷と雪を比較した時、濃度のみならず、組成比が異なることを明らかにし、これらメディア中成分の起源の違いを明らかにした。また、植物の葉に付着する粒子状物質による植物影響についても言及している。

これらの成果は現在、大気汚染物質の中で特に問題になっている粒子状物質の起源解析に非常に有意義な情報を発信するものであり、環境政策に効果的に使用され、環境保全に寄与できるものであると確信する。

なお、本学位申請論文の骨子は下記の学術雑誌に 5 編の論文として発表されている。

本学位論文に関する主要論文（審査付論文）

1. K. Saitoh, K. Sera and T. Shirai: Characterization of atmospheric aerosol particles in a mountainous region in northern Japan, *Atmospheric Research*, 89, 324-329, 2008.
2. K. Saitoh, H. Kodama, K. Sera, K. Yoshimura and O. Nagafuchi: Chemical components in rime on Mt. Moriyoshi in Northern Japan, *Int. J. Pixe*, 15, 211-219, 2005.
3. 齊藤勝美: 世界遺産白神山地における大気環境調査—大気環境中ガス状物質濃度とブナの葉の成長に伴う葉内元素組成の変化—, *大気環境学会誌*, 38, 145-161, 2003.
4. K. Satoh, H. Imaseki, M. Yukawa and O. Nagafuchi: Application of micro-PIXE in atmospheric environmental science research: Elemental map of leaves, *Int. J. PIXE*, 12, 231-236, 2002.
5. K. Saitoh, K. Sera and K. Hirano: Characterization of total suspended particulate(TSP) in a mountainous region in northern Japan, *Int. J. PIXE*, 11, 11-19, 2001.

以上により本論文は博士（環境科学）の学位論文として価値あるものと認められた。2015年7月28日に論文内容の事項についての口頭試問と英文和訳による学力試験を実施し、本研究科博士後期課程修了者と同等以上の学力を有することを確認した。以上を併せて、学位論文審査委員会は博士学位論文審査および最終試験ならびに学力確認の結果を「合格」と認めた。