

論文 / 著書情報
 Article / Book Information

題目(和文)	硫化カルボニルの対流圏動態に関する硫黄安定同位体研究
Title(English)	Stable sulfur isotope study on the tropospheric cycle of carbonyl sulfide
著者(和文)	亀崎和輝
Author(English)	Kazuki Kamezaki
出典(和文)	学位:博士(理学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第11249号, 授与年月日:2019年9月20日, 学位の種別:課程博士, 審査員:吉田 尚弘,大河内 美奈,原 正彦,山田 桂太,関根 康人
Citation(English)	Degree:Doctor (Science), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第11249号, Conferred date:2019/9/20, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	審査の要旨
Type(English)	Exam Summary

論文審査の要旨及び審査員

報告番号	甲第	号	学位申請者氏名	亀崎 和輝	
論文審査 審査員		氏名	職名	氏名	職名
	主査	吉田 尚弘	教授	関根 康人	教授
	審査員	大河内 美奈	教授		
		原 正彦	教授		
		山田 桂太	准教授		

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は「Stable sulfur isotope study on the tropospheric cycle of carbonyl sulfide (硫化カルボニルの対流圏動態に関する硫黄安定同位体研究)」と題し、英文で書かれ、5章よりなっている。

第1章「General introduction」では、硫化カルボニル(OCS)の動態解析の重要性を述べている。将来の気候変動を正確に予測するためには、最も科学的理解度の低いエアロゾルによる地球の冷却効果に加え、二酸化炭素(CO₂)濃度上昇の将来予測において不確実な炭素収支を正確に把握する必要がある。OCSは対流圏で最も豊富に存在する大気硫黄化合物(約500 ppt)であり、光合成により吸収される炭素量(GPP)のトレーサーや非火山性の成層圏硫酸エアロゾルの主たる硫黄源として炭素収支やエアロゾルによる地球の冷却効果に関わる重要な物質である。しかし、OCS自体の対流圏動態に不明点が多いため、OCSの成層圏硫酸エアロゾルへの硫黄供給量の推定や、OCSを用いた全球レベルの一次生産量の評価は不確実であった。対流圏における各OCS消失過程に伴う硫黄同位体分別係数($\delta^{34}\text{S}$ 値)の決定、および大気中OCSの $\delta^{34}\text{S}$ 値の観測を行うことで、大気中OCSの動態を硫黄安定同位体比解析で明らかにするという本研究の目的を述べている。

第2章「Determination of sulfur isotopic fractionation constants of carbonyl sulfide during degradation」では、土壌および植物によるOCS分解時の $\delta^{34}\text{S}$ 値を明らかにすることを試みている。OCSの大気化学反応時の $\delta^{34}\text{S}$ 値はすでに求められている。しかし、OCSの主たる消失源である土壌や植物によるOCS吸収時の $\delta^{34}\text{S}$ 値は報告されていない。そこで、土壌によるOCS分解時の $\delta^{34}\text{S}$ 値を決定するために、土壌から単離されたOCS分解能を有する微生物を用いて培養実験を行い、OCS分解に伴うOCSの濃度とその $\delta^{34}\text{S}$ 値を測定している。微生物を培養した実験系での実験の結果、OCSの濃度は時間とともに減少した一方で、OCSの $\delta^{34}\text{S}$ 値は微生物による分解に伴って増加することを見出した。このことはOC³⁴Sに比べてOC³²Sが速く分解されていることを示す。OCSの濃度とその $\delta^{34}\text{S}$ 値に基づいて、 $\delta^{34}\text{S}$ 値を決定するためにレイリーの同位体分別モデルを適用している。微生物によるOCS分解時に決定した $\delta^{34}\text{S}$ 値は-2%から-4%の範囲であった。また、植物によるOCS分解時の $\delta^{34}\text{S}$ 値についても議論している。

第3章「Development of large-volume air sample system for measuring $^{34}\text{S}/^{32}\text{S}$ isotope ratio of carbonyl sulfide」では、大気中OCSの $\delta^{34}\text{S}$ 値を観測するためにフィールドに運ぶことが可能なOCSの捕集濃縮装置の開発を行っている。OCSの $\delta^{34}\text{S}$ 値を測定するためには8 nmol程度の試料量が必要となる。これは500 pptのバックグラウンド大気では400 L程度となる。しかし、400 Lの大気を採取し大容量の容器を持ち運ぶことは現実的ではない。そこで、OCSと同様に大気中に微量に存在するハロカーボンの捕集濃縮法を参考に、OCS捕集濃縮装置を開発している。フィールドに持ち運びでき、高い流速で最大500 Lの大気からOCSを分離・濃縮できるものとなっている。また、同時に捕集されるCO₂などと分離するためにOCS精製法を開発している。開発した装置を用いて、春季の横浜では大気中OCSの $\delta^{34}\text{S}$ 値が $10.5 \pm 0.4\%$ であることを報告している。

第4章「Observation of latitude distribution of sulfur isotope ratios for carbonyl sulfide in Japan」では、開発したOCS捕集装置を実際の観測に用いてOCS濃度が世界中で最も高い中国近海のOCSの起源を特定することと、ミッシングソースの特定・GPPの定量・成層圏硫酸エアロゾルへのOCSの寄与率の推定のためにバックグラウンドOCSの $\delta^{34}\text{S}$ 値を明らかにすることを試みている。日本の南部から北部でOCS濃度と $\delta^{34}\text{S}$ 値を測定し、キーリングプロットで解析した結果、中国南部で観測される高いOCS濃度の要因は人為起源のOCSであることを明らかにしている。これによって人間活動が大気中OCSの動態に大きな影響を与えていることが初めて観測的に明らかになったと言える。また、北海道小樽市などで観測された $\delta^{34}\text{S}$ 値をバックグラウンド値と仮定して、ミッシングソースの特定・GPPの定量・成層圏硫酸エアロゾルへのOCSの寄与率の推定を行っている。

第5章「Conclusions and perspectives」では、本研究のまとめと今後の展望を述べている。本研究では、 $\delta^{34}\text{S}$ 値が対流圏OCSの動態解析に有用であることを示している。今後も様々な場所や季節で観測をすることで、対流圏OCSの動態を明らかにし、OCSのグローバルレベルのOCSミッシングソースを特定できると考えられる。また、3次元化学輸送モデルにOCS濃度だけでなく $\delta^{34}\text{S}$ 値を制約条件として加えることで、OCSの空間的分布を明らかにし高精度なGPPの定量・成層圏硫酸エアロゾルへのOCSの寄与率の推定ができると提案している。

以上要するに、本論文は、大気中OCSの硫黄同位体比測定法の開発を行い、模擬実験による硫黄同位体分別係数を決定し、実際の大気環境に応用して得られた $\delta^{34}\text{S}$ の観測値から、対流圏OCSの起源とプロセスを解明したもので、理學上貢献するところが大きい。よって本論文は博士(理学)の学位論文として十分な価値があるものと認められる。

注意:「論文審査の要旨及び審査員」は、東工大リサーチリポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。