

[様式 8-1 [課程博士]]

2021年2月9日

人間環境学研究科長 殿

博士學位論文審査結果報告

論文題目 : Atmospheric concentration and deposition of cosmogenic ^7Be and airborne ^{210}Pb in Osaka Japan and identification of major chemical composition with size distributions of aerosols including air pollutants as the carrier of ^7Be .

申請者 : NOITHONG PANNIPA (ノイトン パンニパー)

学歴 : 2013年4月 タイ国 Chulalongkorn 大学大学院 工学研究科

原子力工学専攻 修士課程入学

2016年3月 同上修了

2018年4月 大阪産業大学大学院 人間環境学研究科

人間環境学専攻博士後期課程進学

2021年3月 同上修了見込み

審査委員 : 大阪産業大学大学院人間環境学研究科 人間環境学専攻

裕 隆太



審査委員 : 大阪産業大学大学院人間環境学研究科 人間環境学専攻

濱崎 竜英



審査委員 : 大阪産業大学大学院人間環境学研究科 人間環境学専攻

吉川 耕司



審査委員 : 信州大学学術研究院教育学系

村松 久和



[様式 9-1]

学 位 論 文 内 容 の 要 旨

学位申請者 氏 名 Noithong Pannipa

論文題目 Atmospheric concentration and deposition of cosmogenic ^7Be and airborne ^{210}Pb in Osaka Japan and identification of major chemical composition with size distributions of aerosols including air pollutants as the carrier of ^7Be .

(申請者が提出した論文要旨 [様式 11] と同文であるため、記載を省略する)

審査委員 [主査] 碓 隆太



ABSTRACT

This study aimed to understand the behaviour of cosmogenic airborne ^7Be and airborne ^{210}Pb , and the relationship between the particle size distribution and major chemical composition of aerosols attached by ^7Be . Air dust samples, total deposition samples, and aerosol size distribution were collected at the rooftop of building No. 16, Osaka Sangyo University located in Daito, Osaka, Japan (34.71°N , 135.64°E ; the height above ground level was 31 m).

Air dust samples in near-surface air were collected weekly. The seasonal ^{210}Pb and ^7Be concentrations were determined from January 8, 2018 to December 31, 2020. The average monthly concentration of ^7Be ranged from 2.15 ± 0.28 to 8.84 ± 0.62 mBq/m^3 , and the average value was 5.04 ± 1.12 mBq/m^3 . The average monthly concentration of ^{210}Pb ranged from 0.43 ± 0.17 to 1.93 ± 0.02 mBq/m^3 , and the average value was 0.78 ± 0.30 mBq/m^3 . Despite their different origins and distribution throughout the atmosphere, they presented the same seasonal variation. Furthermore, there was a tendency for a maximum during the spring and autumn season, and a minimum during summer. The variation in concentration showed a strong correlation between ^{210}Pb and ^7Be ($\text{CC} = 0.72$). The seasonal pattern from the ^7Be concentration showed good agreement with the long-term study (15 years) at Sakai, Osaka, which was reported by Megumi et al. (2000). To understand the seasonal pattern of ^{210}Pb and ^7Be , the factors causing the variation were analysed. For ^7Be , the results showed a medium correlation for the total suspended particle (TSP) ($\text{CC} = 0.53$) and percentage of the relative humidity (%RH) ($\text{CC} = -0.40$), a weak correlation in precipitation ($\text{CC} = 0.32$) and particulate matter (PM) 2.5 ($\text{CC} = 0.32$), very weak in the sunspot number ($\text{CC} = -0.17$), and neutron flux from the cosmic rays ($\text{CC} = 0.02$). For ^{210}Pb , the results showed a strong correlation in TSP ($\text{CC} = 0.63$), and a weak correlation in pressure ($\text{CC} = -0.27$), wind speed ($\text{CC} = -0.25$), precipitation ($\text{CC} = 0.25$) and %RH ($\text{CC} = -0.23$), and very weak PM 2.5 ($\text{CC} = 0.12$). Although the local meteorological factors were necessary to understand the seasonal pattern of ^7Be and ^{210}Pb , the results showed almost a weak

correlation. Thus, the transportation processes of ^7Be and ^{210}Pb were investigated on a global scale. The air mass motions were estimated by using the NOAA HYSPLIT model, and the meteorological data sets from the Global Data Assimilation System (GDAS) to simulate the backward air mass trajectories. ^7Be was produced in the upper atmosphere; the heights were the troposphere where the long-range transportation of aerosols (2,000 m and 6,000 m) occurred, and the border between the troposphere and the stratosphere (20,000 m), which was the level of ^7Be production. Moreover, ^7Be was continuously produced in the lower stratosphere (70%) and upper troposphere (30%), as reported by Yoshimori (2005). The origin of ^{210}Pb came from the ground; the heights were 500 m, 1000 m, and 1,500 m, respectively, which were the atmospheric turbulence that strongly influenced the meteorology and dispersion. In summer, both ^7Be and ^{210}Pb showed an air mass almost passing over the Pacific Ocean, or lower latitudes that carried the low atmospheric concentration level. In winter, spring, and autumn, the air mass almost passed over the continent, or higher latitudes, which the origin of the air mass transported from Eastern and Northern China, and the far eastern part of Russia carried the high atmospheric concentration level.

Monthly deposition samples, including rain and atmospheric deposition, were collected from November 2019 to October 2020. The annual total depositions of ^7Be and ^{210}Pb were $1655 \pm 26 \text{ Bq/m}^2$ and $273 \pm 7 \text{ Bq/m}^2$, respectively. A very strong correlation between precipitation and total deposition of ^7Be ($CC = 0.88$) and ^{210}Pb ($CC = 0.85$) was observed. The annual deposition pattern of the total ^7Be and ^{210}Pb deposition showed a high level in March, July, and October. The ^7Be deposition pattern at Sakai, which was a long-term study, showed a spring peak pattern. The results of the current study showed a different pattern with Sakai because this study period was only for one year, and high precipitation was found in March, July, and October. Therefore, for the long-term study, the spring peak was expected in the area. The wet deposition was the main deposition in ^7Be (79.07 %) and ^{210}Pb (67.87%). Thus, high precipitation could increase the ^7Be and ^{210}Pb deposition of air by wash out.

In this study, the relationship between the size distribution of the ^7Be aerosol particles in the surface air and Particulate Matter's (PM) major chemical composition were analysed in size distributions to investigate the PM's main inorganic species in the atmospheric aerosol particles as a carrier of ^7Be . The main inorganic species of the PM were nitrate (NO_3^-), ammonium (NH_4^+), sulfate (SO_4^{2-}), and sea salt, which represented a 1:1 ratio of sodium ion (Na^+) and chloride ion (Cl^-). Every two weeks from June 6, 2020, to August 28, 2020, and in December 2020, aerosol size distributions were collected, and the aerosols were classified into 12 sizes ranging from 0.06 to 12.01 μm . The activity size distribution of the ^7Be -aerosols peaked in the 0.33 ~ 0.55 μm size range. The mass size distribution of NH_4^+ and SO_4^{2-} peaked in the 0.33 ~ 0.55 μm size range, NO_3^- peaked in the 2.20 ~ 3.90 μm size range, and Na^+ and Cl^- peaked in the 1.20 ~ 2.20 μm size range. For the inorganic species, the diameter of aerosol particles in summer was smaller than in winter because summer had lower humidity than winter. High relative humidity conditions resulted in an increased particle size of the atmospheric aerosols that were removed from the atmosphere by the influence of gravity. The dominant ionic species were SO_4^{2-} among anions and NH_4^+ among cations, and their mass median aerodynamic diameter (MMAD) was $0.63 \pm 0.15 \mu\text{m}$ and $0.61 \pm 0.15 \mu\text{m}$, respectively, which was almost identical to the activity median aerodynamic diameter (AMAD) of ^7Be activity size distribution (AMAD = $0.63 \pm 0.15 \mu\text{m}$). For the variation of the inorganic species and the variation of ^7Be , it was found that only SO_4^{2-} had good agreement with the variation of the ^7Be activity. SO_4^{2-} is an anthropogenic product produced by burning fossil fuels from the Asian continent, especially China. Thus, SO_4^{2-} would be the potential medium for ^7Be , and this inorganic species could be traced and predicted based on the behaviour of ^7Be .

Keywords

^7Be concentration, ^{210}Pb concentration, ^7Be deposition, ^{210}Pb deposition, seasonal variation, meteorological parameter, back trajectory, air mass origins, sulphate

[様式 9-2]

学位論文結果の要旨

学位申請者 氏名 Noithong Pannipa

論文題目 Atmospheric concentration and deposition of cosmogenic ^7Be and airborne ^{210}Pb in Osaka Japan and identification of major chemical composition with size distributions of aerosols including air pollutants as the carrier of ^7Be .

本論文は、大気エアロゾル及び雨水に含まれる ^7Be 及び ^{210}Pb とそのキャリアとなるイオン成分に関する研究結果をとりまとめたものであり、得られた成果は[様式 9-2 学位論文審査結果の要旨]で示した通りである。

学位申請者は、2018年4月に大阪産業大学大学院人間環境学研究科人間環境学専攻博士後期課程に入学し、研究を進めた結果、一定の研究成果を得たとして2020年12月1日に学位論文草稿とともに予備審査願の提出に至った。これを受けて、予備審査委員会の設置が2020年12月8日の研究科委員会で報告され、予備審査が行われた結果、同年12月24日に「学位論文審査委員会の審査に値すると認める」との予備審査結果報告書が提出された。

これに伴い、翌年1月7日には学位論文審査願が必要書類一式とともに提出され、同年1月12日の研究科委員会において、裕隆太、濱崎竜英、吉川耕司、信州大学・村松久和を審査委員とする審査委員会が設置された。

その後、2月8日に開催された学位論文公聴会において、研究成果の発表を行っている。

審査においては、まず、「人間環境学研究科博士[人間環境学]の学位授与基準に関する申し合わせ」にもとづき、様式 2「論文目録」に記載された参考論文が学術論文の篇数に関する基準を満たしているかを確認した。なお、篇数換算については「人間環境学研究科担当教員の審査基準の適用に関する申し合わせ」を準用することに合意した。その結果、権威ある学会誌等に第一筆者として2篇以上の審査付学術論文が掲載されており、うち1篇はまだ審査中であり、2篇の高エネルギー加速器研究機構(KEK)の論集は0.8篇として換算することとなるが、目録に記載された他の論文の換算篇数を加算すれば、2.6篇となり、基準を満たすことが確認された。

次に論文本編について審査を行った。本研究は、[様式 9-2 学位論文審査結果の要旨]に記述した通り、学術上、大気エアロゾル及び雨水に極微量存在する宇宙線生成核種 ^7Be (半減期 53 日)と併せ、天然放射性核種ラドンの娘核種 ^{210}Pb (半減期 22年)を、大気エアロゾルは毎週約3年間、雨水は毎月約1年間採取し、大気エアロゾルは、春・秋の二山ピークを確認し、各種要因パラメー

タ(中性子、黒点、降水量、湿度、総(大気)浮遊粒子状物質(全エアロゾル:TSP))との相関解析を行い、これら2核種間及び TSP との相関を認め、米国海洋大気庁の粒子軌道モデルを用い、二山ピークの起源を明らかにした。一方、雨水に関しては春～夏の二山ピークを認め、湿性沈着が ^7Be 及び ^{210}Pb 共に全沈着量の約 8 割を占めることを確認した。特に大気エアロゾルに関して、粒径別の分級捕集を最終年に 2 週間ごとに行い、エアロゾル粒子中の ^7Be 及び、クロマトグラフィーによる主要な陽イオン、陰イオンの粒径分布を測定し、 ^7Be の輸送を主に担っているのは、 SO_4^{2-} 及び NH_4^+ を含むエアロゾル粒子であることを認めた。一方、季節変化測定も考慮すると、主要な“運び手”は、 SO_4^{2-} を含むエアロゾル粒子であることを明らかにし、 ^7Be 核種の大気環境動態トレーサーとしての有用性を示唆し、気団変動や環境汚染物質等の挙動の類推も可能となる意味でも実際上寄与するところが大きいと認められる。ただし、予備審査および公聴会において、申請者の独自性及び測定技術の改良点をより明確にし、粒径別分級測定は、まだ夏の採取試料のみの結果に限定されるため、冬及び年間を通じた長期測定で確認する必要がある一方、大気エアロゾル測定に関しては3年間のデータを有効に活用した多変量解析が望まれる点、参考文献に関する記述を研究進展の過程を読み取れる形態とすること、等の指摘を受けており、申請者は、これにもとづき学位論文公表に向けて鋭意修正を進めているところである。もとより審査においては、審査願とともに提出された論文をもとに判断を行っており、その結果、上述のような改善の余地は存在するものの、学位論文の水準を満たしているとみなすことができた。

以上のことから、学位論文審査委員会は、本申請について学位を授与できると判断する。

審査委員〔主査〕

裕 隆太

