

論文審査の結果の要旨および担当者

報告番号	※	第	号
------	---	---	---

氏 名 周 瑞辰 (ZHOU Ruichen)

論 文 題 目 Sources of urban organic aerosol and their relationship with hygroscopicity: Insights from fractionation analysis

(都市有機エアロゾルの起源およびその吸湿性との関係：分画分析に基づく知見)

論文審査担当者

主 査 名古屋大学宇宙地球環境研究所 教 授 持田 陸宏

副 査 名古屋大学大学院環境学研究科 教 授 長田 和雄

副 査 名古屋大学宇宙地球環境研究所 准教授 長濱 智生

副 査 名古屋大学高等研究院 助 教 大畑 祥

論文審査の結果の要旨

別紙 1-2

大気に浮遊するエアロゾルは、高濃度で存在することで人の健康に悪影響をもたらし、また、雲凝結核としての働きなどにより地球の気候に関与している。都市はエアロゾルの重要な発生域であり、都市エアロゾルの濃度を規定する要因や環境に関わる性状を把握することは、エアロゾルの健康・気候影響を知る上で重要である。このエアロゾルを構成する様々な物質のうち、有機物の濃度を規定している要因やその性状に関する知見は乏しく、エアロゾルの環境影響評価における課題として残されている。本論文は、北京で採取された大気エアロゾル試料に含まれる有機物（有機エアロゾル）を分画して化学構造と吸湿性を解析することで、都市エアロゾルに含まれる有機画分（有機物群）の起源と、その一つであるフミン様物質（HULIS）の吸湿性と起源の関係を論じたものである。

本論文では、2012年4月から2013年3月までに採取された北京のエアロゾル試料から得た3つの有機画分（高極性水溶性有機物（HP-WSOM）、HULIS、非水溶性有機物（WISOM））を微粒子化してエアロゾル質量分析を行った結果に基づき、有機エアロゾル全体に占める抽出画分の割合（炭素換算で合わせて $81\pm 24\%$ ）や、それらの画分の大気濃度の季節性を示した。そして、抽出画分に対するエアロゾル質量分析や赤外分光分析に基づき、酸素／炭素比などの化学構造の特徴を明らかにした。さらに、得られた質量スペクトルを特定のスペクトル（因子プロファイル）の線形結合で表す Positive Matrix Factorization（PMF）解析により、各有機画分に対して、有機エアロゾルの起源と関わる PMF 因子を得た。その結果、各画分がそれぞれ特徴的な主要起源を持ち、HP-WSOM が高次酸化有機物、HULIS が調理・バイオマス燃焼起源有機物と低次酸化有機物、WISOM が化石燃焼由来有機物に支配されていることを示した。PMF 因子が測定対象分子の部分的な構造と結びついているという、エアロゾル質量分析の解析手法に関する示唆も得た。

また、上記のエアロゾル試料から得られた HULIS 画分の一部の試料に対して吸湿性測定用タンデム微分型電気移動度分析器を用いた吸湿成長度の測定を行い、その吸湿性パラメータの値を得た。そして、吸湿性パラメータと HULIS の酸素／炭素比の間に正の相関関係があることを示した。さらに、HULIS のエアロゾル質量スペクトルから得た PMF 因子と吸湿性パラメータ (κ) の関係について重回帰分析を行い、それぞれの PMF 因子に対応する κ を推定することで、大気中の変質過程に関係する因子が高い κ 値と結びついているなど、HULIS の起源と吸湿性の関係について知見を得た。

大気有機エアロゾルのその場質量分析と PMF 解析により、有機エアロゾルの起源に関する知見が蓄積されつつある一方、これまで、どの様な有機物群がどのような起源を持つのかという点についての知見は限られていた。本論文では、有機エアロゾルの化学的な分画と、統計的な解析（PMF 解析）による仮想的な分別を組み合わせることで、化学構造の特徴が異なる複数の有機物群の起源について独自性の高い知見を得ることに成功している。また、有機エアロゾルの性状はその起源と結びついていると考えられ、本論文では、HULIS の吸湿性を対象に起源との関係を示し、吸湿性の予測・表現に向けて重要な成果を得ている。これらの成果は、エアロゾルの起源が大気中の有機エアロゾルの化学構造を規定し、さらにその化学構造が特性を規定するという、一連の関係の解明に重要な貢献を果たすものである。

以上のように、本論文は北京の都市大気エアロゾルに含まれる有機画分の化学構造の解析と、HULIS の吸湿成長の解析に基づき、有機エアロゾルの起源について独自性の高い成果を得ているほか、有機エアロゾルの吸湿性を予測・表現する上で価値の高い知見を得ており、大気エアロゾルの学術分野に対する貢献は大きい。よって、本論文の提出者である周瑞辰氏は、博士（理学）の学位を授与される資格があると判定した。