

# 論文審査の結果の要旨

氏名 桑田 幹哲

本論文は、実大気エアロゾルが持つ雲凝結核(Cloud condensation nuclei: CCN)特性に関して、各種の新しい装置の開発・手法による室内実験・実大気の観測にもとづき、詳細に調べた研究をまとめたものである。論文は5章からなり、第1章はイントロダクション、第2章では韓国済州島での観測に基づく実大気中のCCNに関する研究、第3章では都市域での不揮発性核の混合状態がCCNスペクトルに及ぼす影響に関する研究、第4章では低揮発性粒子が持つCCN特性に関する研究、そして第5章はブラックカーボンエアロゾルがCCNとして働く最小質量濃度に関する研究を記述している。

エアロゾルのCCN特性はエアロゾルの間接効果の鍵となる要素であり、地球の気候や水循環の理解のためにも、その詳細な研究が必要とされている。ケーラー理論によれば大気エアロゾルが持つ雲凝結核特性は粒径、混合状態、化学成分により決定される。しかしながら、これまでに化学成分・粒径が大気エアロゾルのCCN特性に及ぼす影響を調べた研究は数例しかなく、また混合状態がCCN特性に及ぼす影響に関しては全く研究されてこなかった。

本論文では、まず同一粒径の全エアロゾルが同一成分により構成されている場合のCCN活性化粒径に関する研究を、韓国済州島において2005年3月に行なった観測に基づいて実施した。この結果、50%の粒子が活性化する粒径をD50と定義したとき、その時間的変動は水溶性成分の成分分率の変動とよく類似していたことを発見した。これはD50が化学成分により支配されていることを示している。さらに、同時測定された化学成分から計算された活性化粒径と、測定されたD50粒径はよく相関していたものの、活性化粒径はD50よりも大きいことを見出した。この過大評価の原因としては、エアロゾル成分の粒径依存性・表面張力の低下の効果があることを示唆した。このようなCCN活性化粒径と化学組成との対応を明瞭に示した研究はほとんどなく、その学術的な意義が評価できる。

不揮発性核混合状態がCCN粒径分布に及ぼす影響は、CCN粒径分布と揮発分離型タンデムDMA(volatility tandem DMA: VTDMA)の測定を同時に行うという、新しい手法により調べた。東京の都市大気中において観測を実施したところ、粒径の増大と共に、階段状にCCN活性な粒子の割合が増大する様子が測定された。しかしその閾値よりも大きな粒径においても、CCN不活性粒子が存在した。各粒径でのCCN不活性粒子と粒子の揮発性との関係から、これらのCCN不活性粒子は低揮発性粒子より説明できることを明らかにした。

低揮発性粒子が持つCCN活性をより詳細に調べるために、揮発分離型タンデムエ

エアロゾル質量分級器 (volatility tandem aerosol particle mass analyzer: VTAPM) を開発し、DMA と組み合わせる新たな手法を導入した。有効密度測定の結果、比較的軽い粒子 (有効密度  $\sim 1 \text{ g cm}^{-3}$ ) は主に不揮発性核 (重量比で 70-80%) から構成されていることが分かった。さらに CCN 測定との比較から、0.9% の過飽和度の場合、0.18 fg の被覆により不揮発性核は CCN として機能することになることが示された。東京においては不揮発性核の主成分は BC なので、この結果は BC 粒子が CCN として機能するために必要な最小被覆質量の目安を与えるものである。このようなエアロゾルの CCN 特性に関わるエアロゾルの混合状態や、その混合物の質量濃度による CCN 特性の変化を定量的に示した研究は世界に先駆けて示されたものであり、学術的な意義が大きい。

以上のように本論文は、VTDMA や VTAPM といった新しい装置の開発・手法により、エアロゾルの化学成分・粒径・混合状態がどのようにエアロゾルの CCN 特性を決定しているかを、室内実験・実大気の観測にもとづき体系的に示した研究として高く評価できる。

なお、本論文の第 2、3、4、5 の各章の主要な内容は共同研究に基づいたものであり、それぞれ学術論文誌 *Atmospheric Chemistry and Physics*, *Journal of Geophysical Research*, *Nature* などに発表済み、あるいは発表予定であるが、いずれの論文も論文提出者が第一著者であり、主体となって解析・解釈を行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

従って、博士 (理学) の学位を授与できると認める。