

称号及び氏名 博士（環境学） Tran Thi Minh Ngoc

学位授与の日付 2024年3月31日

論文名 ホーチミン市におけるPM2.5：化学組成、発生源、
新型コロナウイルスパンデミックの影響

論文審査委員 主査 竹中 規訓

副査 興津 健二

副査 藤井 佑介

副査 To Thi Hien（ベトナム国家大学ホーチミン市校）

論文要旨

微粒子状物質（PM2.5）は、大気質やヒトの健康に対する悪影響、気候影響に関する懸念があり、注目を集めている。PM2.5は直径 $2.5\mu\text{m}$ 未満の粒子状物質であり、肺の奥深くまで侵入する。高濃度のPM2.5に長期間曝露されると、ヒトの健康に悪影響がでることが知られている。PM2.5は一次粒子と二次粒子に大別される。一次粒子は、山火事、波しぶき、火山噴火などの自然発生源、化石燃料の燃焼、バイオマス燃焼（BB）、工業プロセスなどの人為的活動の両方から直接排出される。二次粒子は、大気中での変質過程で生成される。

ベトナムで最も人口の多い都市部の一つであるホーチミン市（HCMC）では、PM2.5による死亡率が2倍に増加しており、ホーチミン市におけるPM2.5によってもたらされる重大な公衆衛生リスクが浮き彫りになっている。PM2.5濃度を低下させるためには、PM2.5の特性を明らかにすると共にPM2.5の主要な排出源を特定する必要がある。その際、長期観測及びその結果に基づく解析が有効であるが、そのような研究はホーチミン市では皆無であり、ベトナムでも少ない。

新型コロナウイルス感染拡大の影響を受け、2020年から2022年にかけて世界中のさまざまな都市でPM2.5濃度の大幅な減少が認められた。この減少は、新型コロナウイルス感染拡大に伴う行動制限及びロックダウン（ARL）によるPM2.5の直接排出量の減少によるものである。該当期間における地域規模の排出量が減少したため、長距離輸送の影響が強くなった。したがって、ARL期間は、一次粒子排出の変化や長距離輸送による影響をみるにはまたとない機会である。

ホーチミン市の大気質とヒトの健康に対するPM2.5の影響は分かっていない。それは長期観測データがなく、PM2.5の特徴が分かっていないからである。本研究では、PM2.5の

季節変化やその発生源及び地理的起源、ホーチミン市の主要な PM2.5 発生源の一つである BB の種類の解析を通し、ホーチミンの PM2.5 の特徴を明らかにすることを目的とした。論文は以下の 5 章から構成されている。

第 1 章では、研究の背景、目的、および本論文の概要について説明した。

第 2 章は、2019 年 9 月から 2020 年 8 月までの PM2.5 の化学組成、季節変化、潜在的な発生源を明らかにすることを目的とした。本観測期間には、新型コロナウイルス感染拡大による ARL の影響を受けた期間（2020 年 2 月から 4 月）が含まれる。PM2.5 サンプリング装置は、ベトナム国家大学ホーチミン市校 科学大学（北緯 0 度 45 分 43.6 秒、東経 106 度 40 分 52.8 秒）の屋上（地上 49 メートル）に設置した。2 セットの PM2.5 サンプラーを使用して、47 mm ポリテトラフルオロエチレン (PTFE) フィルターと石英繊維 フィルター上に大気中 PM2.5 を 10 L min⁻¹ の流量で 24 時間捕集した。サンプリング後、PM2.5 質量、炭素成分（有機炭素 - OC および元素状炭素 - EC）、水溶性イオン（WSI、Na⁺、NH₄⁺、K⁺、Mg²⁺、Ca²⁺、Cl⁻、NO₃⁻、SO₄²⁻、および C₂O₄²⁻）、微量元素（V、As、Pb、Mn、Ni、Cu、Zn、Fe、Ca、Mg、Al）を、それぞれマイクロ天秤、OCEC 分析装置、イオンクロマトグラフ、誘導結合プラズマ質量分析装置により定量した。ホーチミン市における PM2.5 の質量濃度は 28.44 ± 11.55 μg m⁻³（平均 ± 標準偏差）であった。OC、EC、WSI、および微量元素は、PM2.5 質量のそれぞれ約 30%、10%、25%、および 2.5% を占めた。雨季（2019 年 9 月～11 月および 2020 年 5 月～8 月）の PM2.5 質量および総 WSI の濃度は、乾季（2019 年 12 月～2020 年 4 月）に観測された濃度と比較して低かった。この結果は、雨季のホーチミン市における多量の降水に起因すると考えられる。さらに、PM2.5 質量、OC、EC、および WSI の濃度は、ARL 以前と比較して、ARL 期間中に 40 ～ 50% 大幅に減少した。これは、ホーチミン市での ARL 期間中の人間活動による PM2.5 排出量が減少した状況が反映されている。

第 3 章では、positive matrix factorization (PMF) モデルによる PM2.5 発生源の特定及びその寄与率を推定した。さらに、weighted-concentration weighted-trajectories モデル (WCWT) による地理的起源の解析も行った。第 2 章の 2019 ～ 2020 年の観測から得られた 123 個のサンプルと 20 の化学種の PM2.5 のデータセットを PMF モデルに用いた。PMF 解析の結果、BB や石炭燃焼、交通、地殻起源を含む人為起源が支配的な発生源のホーチミン市の PM2.5 質量濃度に対して 36.4% 寄与している結果が得られた。その他の主要な PM2.5 発生源は、硫酸アンモニウム粒子 (18.4%)、海塩 (13.7%)、道路粉塵 (9.6%)、石炭と原油の燃焼起源 (9.4%) であった。寄与率の低い発生源は、土壌粉塵、マンガが支配的な発生源、鉛が支配的な発生源であり、それぞれ PM2.5 質量濃度の 7.9%、4.3%、1% を占めた。PMF 解析結果（各発生源の PM2.5 質量濃度（寄与濃度）と後方流析線解析結果（計算条件: 最終到達気塊の高さ = サンプリング地点の地上 500 m、遡及時間 = 72 時間（6 時間ごと））を WCWT モデルの入力データとして用い、

PM2.5 の地理的起源を推定した。PM2.5 の主な地理的起源はホーチミン市の中心部である結果が得られたが、その他、ホーチミン市の北東部および南西部地域からの長距離輸送による影響も示唆された。ARL 期間中に、人間活動による PM2.5 の大幅な減少がみられ、それは市中心部の人間活動による PM2.5 の直接排出の低下に関係していると考えられた。同期間において、周辺諸国からの PM2.5 の長距離輸送による影響も認められた。

第 4 章では、ホーチミン市の大気中の PM2.5 に対する BB の影響を調査した。PM2.5 の発生源の内訳は第 3 章で推定されたが、BB や石炭燃焼、交通、地殻起源を含む人為起源が支配的な混合発生源の中で PM2.5 への寄与が特に高い発生源の詳細までは示すことができなかった。BB は PM2.5 の主要発生源の 1 つとして報告されており、東南アジアの特徴である。したがって、ホーチミン市における大気中の PM2.5 に対する BB の寄与を明らかにするには、BB の特性を理解することが不可欠である。PM2.5 試料は、2021 年 10 月から 12 月にかけて、2019~2020 年の観測と同じ場所で捕集した。PM2.5 の質量、OC、EC、および WSIS は、第 2 章で述べたのと同様の方法で定量した。さらに、無水糖であるレボグルコサン (LG)、マンノサン (MN)、およびガラクトサン (GL) は、ガスクロマトグラフ-質量分析法により分析した。全サンプリング期間中の PM2.5 の濃度は 12.47 から 46.92 $\mu\text{g m}^{-3}$ ($26.44 \pm 8.74 \mu\text{g m}^{-3}$) の範囲であった。OC、EC、および WSI は、それぞれ PM2.5 質量の $31.3 \pm 11.5\%$ 、 $10.2 \pm 3.5\%$ 、および $22.9 \pm 6.5\%$ を占めた。LG が主な化学種であり、平均濃度は $210.43 \pm 82.37 \text{ ng m}^{-3}$ 、続いて MN ($12.67 \pm 4.79 \text{ ng m}^{-3}$) および GL ($3.94 \pm 2.22 \text{ ng m}^{-3}$) であり、総無水糖の $92.5 \pm 1.5\%$ 、 $5.7 \pm 0.8\%$ 、及び $1.8 \pm 0.8\%$ であった。PM2.5 質量濃度は、雨季よりも乾季の方が BB マーカーと強い相関関係を示し、両季節の間で BB の種類が異なることが示唆された。大気中での LG の寿命は短いことが知られている。そのため、BB 発生源の種類を特定する際の不確実性を下げるために、サンプリング期間中の LG の大気中における減衰の可能性について調べた。リセプター (受容域) における LG と発生源における初期 LG の比は 0.12 であり、前者の LG が後者の 12% を占めた。したがって、LG の 88% は発生源からリセプターへの大気輸送中に分解された。LG/OC、LG/K+、および LG/MN の比を使用して、BB 発生源の種類を調べた。LG の分解を考慮した場合、LGno-chem/OC の比率は 0.20 ± 0.05 、LGno-chem/K+BB は 1.73 ± 0.38 、LGno-chem/MN は 140.98 ± 21.31 であった。したがって、ホーチミン市では広葉樹の燃焼が主な BB 発生源であると考えられる。WCWT の結果と MODIS データに基づき、BB の起源はホーチミン市の郊外地域および北/北東地域であり、作物残渣の燃焼から放出されたものではないと考えられる。

第 5 章では、この論文の結論とその限界について述べた。本研究において、PM2.5 試料は 1 つのサンプリング地点から捕集されたものであり、都市全体としてのデータ代表性には疑問が残っている。よって、より正確性を上げるためには、サンプリング地点は少なくとも都市部、郊外、バックランド地域などの 3 か所で実施する必要があると考える。さらに、人為起源からの一次排出や二次粒子生成の詳細について明らかにするためには、多

環芳香族炭化水素、NH₄⁺の窒素同位体比、大気汚染ガス状物質（O₃、NO_x、SO₂ など）、その他の気象要素（日射量や視程）といったデータも必要である。

List of Publications

Tran, N., Fujii, Y., Le, V. X., Doan, N., Chi, T., Okochi, H., Hien, T. T., and Takenaka, N. (2023). Annual Variation of PM_{2.5} Chemical Composition in Ho Chi Minh City, Vietnam Including the COVID-19 Outbreak Period. *Aerosol and Air Quality Research*, 23(5), 220312. <https://doi.org/10.4209/AAQR.220312>. (Chapter 2 and Chapter 3)

Tran, N., Fujii, Y., Khan, M.F., Hien, T.T., Minh, T.H., Okochi, H., Takenaka, N., 2024. Source apportionment of ambient PM_{2.5} in Ho Chi Minh City, Vietnam. *Asian J. Atmos. Environ.* 18, 1. <https://doi.org/10.1007/s44273-023-00024-7>. (Chapter 3)

学位論文審査結果の要旨

学位論文審査委員会

本論文は、ベトナムのホーチミン市において深刻な健康被害を及ぼしている微小粒子状物質（PM2.5）の通年観測結果をもとに、その発生源の解明を主な目的とした研究である。この地域では初めての通年観測結果であり、偶然にも新型コロナウイルス感染拡大による都市封鎖期間の観測データを含んでおり、学術的にも非常に貴重なデータである。

以下、現代システム科学専攻の博士論文審査基準（2018年度以降入学生より適用）の1)～5)をもとに審査結果を述べる。

1) 博士学位申請者が主体的に取り組んだ研究であること。

本研究は、申請者が提案して取り組んだ研究課題であり、現地でのサンプリング計画、現地におけるサンプリング実施及び一部依頼、分析、解析を自ら行ったものである。また、第3章の結果を得るために、新潟県のアジア大気汚染センターに数か月間にわたって研修に行き、分析技術を習得した。以上のように、本研究は申請者が主体的に取り組んだ研究であることを確認した。

2) 研究内容に新規性および独創性を有していること。

ホーチミン市における通年観測は、これまで報告例がない。さらに、本観測期間中には、新型コロナウイルス感染拡大による都市封鎖に伴い、社会・経済活動が著しく低下した期間が含まれていた。申請者はこの状況を発生源特定に活かしており、新規性、独創性は十分に備えていると判断できる。また、これまで不明であった一部の発生源を信頼性のある結果で示した点に、新規性を見出すことができる。

3) 当該研究分野の発展に貢献する学術的価値が認められること。

東南アジア地域では、PM2.5の信頼できる十分なデータが少なく、今回得られたデータは貴重であり、発生源特定に至った点も含め、当該研究分野の発展に貢献する学術的価値が非常に高いといえることができる。

4) 論文の構成および内容が適切であり、論文としての体裁が整っていること。

先行研究を含めて研究背景および課題が記述され、研究目的が明確であることを確認した。研究方法や研究目的については、論文審査段階から指摘し、十分に記載されたものになっていることを確認した。結果およびそれに対する考察についても不明な部分の指摘を行い論理的に記述され、研究目的に対応した結論が適切に導き出されている論文であることを確認した。また、文献が適切に引用されていることを確認し、論文の構成等、論文としての体裁が整っていることを確認した。

5) 学位論文の公聴会での論文内容の発表および質疑応答が論理的に明確に行われていること。

公聴会では、主査竹中規訓教授、副査、興津健二教授、藤井佑介准教授、の3名の分野内審査委員に加え、申請者の元指導教員であり、本研究の現地受入れ機関の環境技術学科長の To Thi Hien 准教授の4人を含め、約40分にわたり論文内容の説明が行われた。英語での説明であったが、論理的に順を追って説明がなされており、非常に理解しやすい発表であった。資料の作成方法も適切で、プレゼンテーション能力にも問題がないことを確認した。副査やその他の聴講者からの質問に対しても、論理的に応答がなされていた。本審査会は、本研究が科学的に新規な優れた研究であり、当該分野の研究領域に新たな知見を加えるものであると判断した。

以上から本審査会は、本研究論文は現代システム科学専攻の博士論文審査基準を満たしており、申請者が自立して研究活動を行うのに十分な能力と学識を示していると結論した。