

外部混合状態を考慮した大気エアロゾルの特性研究への新展開

Atmospheric aerosol properties inferred from their external mixing state

持田 陸宏 (MOCHIDA MICHIMIRO)

名古屋大学・大学院環境学研究科・准教授



研究の概要

気候変化に対する大気エアロゾルの寄与には大きな不確定性が残されている。本研究では、大気エアロゾル粒子の特性を、粒径および吸湿性で表現されるエアロゾルの外部混合状態と結びつけて解析する。そして、気候過程に対するエアロゾルの外部混合状態の重要性について考察する。

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：環境学・環境動態解析

キーワード：環境計測、大気エアロゾル

1. 研究開始当初の背景

地球温暖化などの気候変化は、社会で取り組むべき重大な環境問題として認識されている。しかし、気候変化をもたらす要因は複雑であり、その素過程に対する理解を更に深めない限り、正確な将来予測を行い、有効な対策を導き出すことは難しい。特に、大気中に浮遊するエアロゾル粒子が果たす役割には大きな不確定性が残され、その解明が課題として残されている。このような現状の理由の一つに、これまでの研究の多くが、エアロゾルの質量濃度を基に粒子の平均的な情報を扱い、雲・降水過程への関与など、個々の粒子の違いが重要である過程に関する知見が乏しい点が挙げられる。今後の大気エアロゾル研究では、個々の粒子の特性を明らかにし、それらの情報を混合状態と共にどのように気候モデルで取り扱うべきか、方向性を定めるための解析が求められる。

個々の大気粒子を区別する上で、一般的に用いられてきた有用な指標は粒径である。しかし、同様の大きさを持つ粒子でも、放出や生成、変質の過程の違いにより、様々な組成や特性を持つものが混在するため、粒径による区別だけでは、混合状態を十分に把握できない。そこで本研究では、吸湿性測定用タンデムDMA (HTDMA、DMAは電気移動度分級器を表す)を用いて、粒径に加えて吸湿成長の程度をもとに粒子を選別し混合状態を把握する手法の重要性を認識した。そして、

粒子の組成等の特性を、外部混合状態の尺度である粒径・吸湿性と共に解析し、気候過程に対するエアロゾルの混合状態の重要性を考察する本課題を計画した。

2. 研究の目的

本研究では、大気エアロゾル粒子の特性を外部混合状態の情報と共に解析することで、エアロゾルの気候影響の正確な理解に資する知見の獲得を目指す。粒子の混合状態の尺度には、粒径に加えてHTDMAで測定される吸湿成長因子を用いる。低い吸湿成長を示す粒子は、低吸湿性・非水溶性の成分に富み、一方、吸湿成長を示す粒子は、高吸湿性・水溶性成分に富むと考えられる。したがって、吸湿成長因子の分布は、化学組成が異なる粒子の混合状態を反映すると考えられる。本研究では、粒子の吸湿性の測定を含む大気エアロゾル観測を行い、エアロゾル粒子の特性(例：組成)のデータを取得する。そして、粒子の混合状態と特性の関係を、エアロゾルの放出・生成過程、大気輸送中の変質などの視点から解析する。得られた結果に基づき、外部混合状態の情報と結びついた粒子特性の情報が、今後の気候モデルの改良においてどのように有用であるかを考察する。

3. 研究の方法

HTDMAを用いて、大気エアロゾル粒子の

吸湿成長因子（乾燥粒径に対する加湿条件での粒径の比）を測定し、エアロゾルの外部混合状態を把握する。この HTDMA は、直列に接続された2台の DMA の間に加湿器があり、2 段目の DMA に凝縮粒子カウンタ（CPC）が接続された構成を持つ。1 段目の DMA では、特定の乾燥移動度径を持つ粒子が選別される。そして、粒径選別されたエアロゾルが加湿された状態で、2 段目の DMA において更に特定の吸湿成長因子を持つ粒子が選別され、CPC によりこれらの粒子が検出される。また、2 段目の DMA の下流側に他の測定器を接続することで、雲凝結核（CCN）の個数割合や化学組成の測定が可能となる。なお、HTDMA 内の 1 段目の DMA の下流側で試料エアロゾルを分割して CCN の個数割合を測定する方法や、HTDMA と他の測定器を並列に動作させる方法も、これまでの観測研究で用いられている。

エアロゾルの化学組成の測定には、質量分析の手法を用いる。また、複数の水蒸気過飽和度の条件において、エアロゾル粒子のうち CCN として作用する粒子の割合を雲凝結核カウンタ（CCNC）および CPC を用いて取得する。現在までに、名古屋・東京の都市大気を対象とした観測、生物起源有機エアロゾルに富むと考えられる和歌山県の森林大気を対象とした観測が実施されている。

4. これまでの成果

都市大気エアロゾルを対象に、以下の取り組みがなされた。まず、平成 20 年の 10 月に東京において、HTDMA の 2 段目の DMA の下流側にレーザーイオン化法のエアロゾル質量分析装置（ATOFMS）を接続した観測を実施し、吸湿成長因子に基づく粒子選別方法の実現性を確かめた。また、平成 21 年の 9 月に名古屋において、HTDMA、CCNC、高分解能飛行時間型質量分析計（HR-ToF-AMS）等を用いた大気エアロゾル観測を実施した。この観測では、CCNC を HTDMA の 1 段目の DMA の下流側に接続して、吸湿成長因子に加え、粒子の CCN 活性を反映する CCN 効率スペクトルを得た。また、HR-ToF-AMS を HTDMA と並列に動作させ、都市域のエアロゾル粒子の組成情報を得た。得られたデータを利用して、エアロゾル粒子の混合状態と雲粒生成の関係を調べるモデル計算も進めた。平成 22 年の夏季には、HTDMA の 2 段目の DMA の後段に CCNC・CPC を接続した構成で大気観測を実施し、異なる吸湿成長因子を持つ粒子群に対して、それぞれ CCN 効率スペクトルを得た。そのほか、名古屋においてフィルタ上に大気エアロゾルを採取し、溶媒で抽出した成分を再粒子化して HR-ToF-AMS、HTDMA に導入する実験を行い、化学組成の特徴や有機成分の吸湿性パラメータを得た。

また、名古屋の都市大気エアロゾルに含まれる単一粒子の質量スペクトルの取得も行われた。

平成 22 年 8 月には、和歌山県の森林域において、生物起源有機エアロゾルの寄与が考えられる大気エアロゾルを対象とした観測研究を実施し、平成 21 年 9 月の名古屋における観測と同様に、CCN 効率スペクトルおよび粒子の吸湿成長因子の分布を得た。また、HR-ToF-AMS を HTDMA と並列に動作させ、森林域のエアロゾルの組成情報を得た。

（これらの研究は、名古屋大学大学院環境学研究科の三原利之氏、川名華織氏、Yuemei Han 氏、東京大学大気海洋研究所の古谷浩志博士、植松光夫博士、海洋研究開発機構の久芳奈遠美博士ほかの協力のもとに実施された。）

5. 今後の計画

名古屋において、HTDMA の 2 段目の DMA の下流側に HR-ToF-AMS を接続した構成で都市大気エアロゾルの測定を行い、エアロゾル粒子の吸湿成長因子と化学組成の関係について解析する。HR-ToF-AMS を用いる組成の測定の際には、レーザー光の散乱を利用して装置内の粒子の飛行を検出することで、粒子が到達した時間帯のスペクトルを取得する。

上記の検討に加え、現在までに取得した大気観測データの解析を継続する。また、海洋エアロゾル粒子の特性を対象とした解析についても検討する。さらに、雲粒生成のモデル計算の結果に基づき、エアロゾルの外部混合状態の情報の重要性について考察する。そして、得られた研究成果の公表に向けた作業を進める。

6. これまでの発表論文等（受賞等も含む）

（国際会議発表）

Toshiyuki Mihara, Michihiro Mochida: Characterization of solvent-extractable organics in urban aerosols using a high resolution time-of-flight aerosol mass spectrometer and a hygroscopicity tandem differential mobility analyzer. 12th Symposium of the International Commission on Atmospheric Chemistry and Global Pollution (iCACGP) and 11th Science Conference of the International Global Atmosphere Chemistry (IGAC) Project, Halifax, Canada, 2010.

ホームページ等

<http://www.iar.nagoya-u.ac.jp/~mochida/ka kenhi.htm>