

令和 4 年 6 月 3 日現在

機関番号：13901

研究種目：若手研究

研究期間：2019～2021

課題番号：19K20437

研究課題名（和文）氷晶核として働く固体エアロゾルの測定器開発

研究課題名（英文）Development of a method to measure solid aerosols that act as ice nucleating particles

研究代表者

大畑 祥 (Ohata, Sho)

名古屋大学・高等研究院（宇宙）・助教

研究者番号：70796250

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,100,000円

研究成果の概要（和文）：水の雲粒が凍結して氷の雲粒が生成する過程は、降水形成や雲の反射率に大きな影響を及ぼす。水の雲粒内部で氷形成の核として重要な働きをする固体エアロゾルの、大気中における数濃度の測定を可能にするため、エアロゾルをフィルタに採取し、非水溶性固体粒子を水に分散させてから光学的に測定する分析手法の評価を進めた。室内実験や、都市大気エアロゾルの既存測定器との比較観測を通じて、本手法による鉱物ダストやブラックカーボンなどの固体エアロゾルの数濃度測定の妥当性が示された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

鉱物ダストや生物由来粒子などの固体エアロゾルは雲の中で氷晶形成の核（氷晶核）として効率良く働くと考えられているもの、確立された測定手法がないために、その時空間的な変動や氷晶核への寄与の実態の把握が不十分である。本研究では、近年開発された水中微粒子の検出技術をフィルタに採取したエアロゾルの分析に応用し、その測定手法の評価を行った。本手法の評価は今後の固体エアロゾルと氷晶核の観測研究の1つの基礎となるものであり、これらの動態の理解に貢献すると考えられる。

研究成果の概要（英文）：The freezing process of cloud droplets has a significant impact on precipitation formation and cloud reflectivity. In this process, solid aerosols inside water droplets play an important role by acting as nuclei for initiating ice formation. To measure the atmospheric number concentrations of solid aerosols, a new analytical method was examined, where aerosols were collected on a filter and water-insoluble solid particles were dispersed in water and measured optically. The validity of this method for measuring the number concentration of solid aerosols was demonstrated through laboratory experiments and comparative observations in the urban atmosphere with existing aerosol instruments.

研究分野：エアロゾル

キーワード：エアロゾル 鉱物ダスト ブラックカーボン

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

過冷却となった水雲粒が凍結し氷雲粒を生成する過程は、降水開始のタイミングなどの雲の時間発展や、雲の光学特性に大きな影響を及ぼす。しかし、観測的な理解が不十分であり、気象・気候研究で使用される数値モデルにおいて、氷雲粒の生成は定量的な表現が最も不確実な過程となっている。この氷雲粒生成の温度依存性や生成する氷雲粒の数濃度を強く支配しているのが、氷形成の核(氷晶核)となる固体エアロゾルである。特に、鉱物ダストや生物由来粒子が氷晶核として効率良く働くと考えられている。しかし、大気中の各種の固体エアロゾルの種別を区別して数濃度を測定する確立された手法はなく、固体エアロゾルの動態と氷晶核数濃度への寄与の実態把握は不十分である。これらの観測的理解を進めるため、新しい固体エアロゾルの分析手法の開発・評価が必要とされていた。

### 2. 研究の目的

本研究の目的は、大気中の固体エアロゾルの数濃度・粒径・組成情報を測定する新しい手法を評価することである。フィルタに採取したエアロゾルを水に分散させ、近年開発された微粒子測定技術である Single-particle extinction and scattering method (SPES 法; Moteki et al. 2020) を用いて非水溶性粒子を検出することにより、鉱物ダスト・生物由来粒子・ブラックカーボンを区別して数濃度を測定することを目指した。

### 3. 研究の方法

#### (1) SPES 装置の粒子検出効率の評価実験

SPES 装置では、粒子検出部であるフローセルに導入された水試料中の粒子の内、レーザーの中心を横断した粒子のみが検出される。したがって、単位時間あたりに導入される粒子数に対して実際に検出される粒子数の割合(検出効率)を実験的に決定する必要がある。粒径既知のポリスチレンラテックス(PSL)球の標準粒子を用いて、あらかじめ独立した手法により水中の PSL 粒子数濃度を定量し、その試料を SPES 装置で測定することにより SPES 装置の粒子検出効率を PSL 粒径毎に決定した。

#### (2) フィルタから純水への粒子の分散効率の評価実験

フィルタに採取したエアロゾルを水に分散させる操作において、フィルタ上に吸着されたまま残存してしまう粒子の割合が水に分散する粒子に対して小さいことを実験的に確認する必要がある。実験室でエアロゾル化した PSL 粒子の大気中の数濃度を独立したエアロゾル測定器で測定しつつ、フィルタに採取し、超音波洗浄機を用いてフィルタ上の PSL 粒子を水に分散させて CAS 装置で測定することにより、フィルタから水への粒子の分散効率を決定した。

#### (3) 既存の測定器との比較による分析手法全体の評価

名古屋の都市大気エアロゾルを集中的に採取し、本手法により非水溶性粒子を分析するとともに、既存のエアロゾル測定器による同時観測データと比較することにより、本手法の検証を行った。

### 4. 研究成果

上記(1)と(2)の室内実験により、SPES 装置の粒子検出効率が粒径 0.5-0.9 $\mu\text{m}$  の PSL 粒子に対して 8%以内で安定していることや、フィルタの素材はポリカーボネートが適しており、PSL 粒子の分散効率は 70%程度で粒子の大部分が水に分散していることが明らかになった。

上記(3)による名古屋の都市大気エアロゾルの試験的な集中観測において、まず、SPES 装置で得られる信号の特徴から、本手法により検出された粒子を BC・鉱物ダスト・生物由来粒子の 3 種類に分類した。大気中の BC の粒径別数濃度は、レーザー誘起白熱法(SP2)という独立した手法によっても測定可能であることから、これらの比較を行った。本手法の測定による BC 数濃度は SP2 による BC 数濃度と高く相関し、本手法が BC の粒子数濃度の変動を捉えていることを実証した。また、両者の絶対値は 30%以内で一致しており、室内実験で標準粒子の大部分がフィルタから水に分散していたことと整合的な結果を得た。

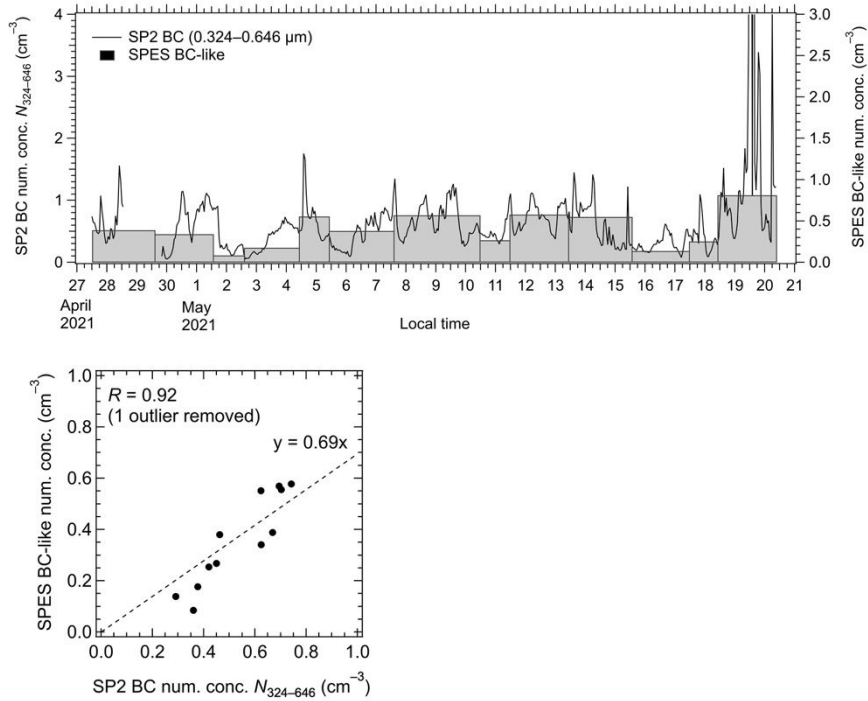


図 1. 名古屋で本手法と SP2 により測定された BC 数濃度の時系列と散布図

また、本手法で鉱物ダストに分類された粒子の数濃度は、既存のエアロゾル測定器により得られた粗大粒子数濃度と相関し、名古屋への黄砂の飛来により数濃度が顕著に増加していることが明らかになった。

今後は、本手法による生物由来粒子の測定の検証を進めるとともに、本手法により様々な大気環境下で採取されたエアロゾルを分析することにより、固体エアロゾルの動態と氷晶核数濃度への寄与を解明する観測研究に発展することが期待される。

#### < 引用文献 >

Moteki, N., Capabilities and limitations of the single-particle extinction and scattering method for estimating the complex refractive index and size-distribution of spherical and non-spherical submicron particles, *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 243, 106811.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 S. Ohata, T. Mori, Y. Kondo, S. Sharma, A. Hyvarinen, E. Andrews, P. Tunved, E. Asmi, J. Backman, H. Servomaa, D. Veber, K. Eleftheriadis, S. Vratolis, R. Krejci, P. Zieger, M. Koike, Y. Kanaya, A. Yoshida, N. Moteki, Y. Zhao, Y. Tobo, J. Matsushita, and N. Oshima	4. 巻 14
2. 論文標題 Estimates of mass absorption cross sections of black carbon for filter-based absorption photometers in the Arctic	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Atmospheric Measurement Techniques	6. 最初と最後の頁 6723-6748
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.5194/amt-14-6723-2021	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 0件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 大畑祥
2. 発表標題 雪氷中のブラックカーボンの測定方法
3. 学会等名 研究集会：氷河融解を加速する光吸収性不純物に関する研究
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 松井仁志、大畑祥
2. 発表標題 大気化学会のロードマップについて
3. 学会等名 2019年度 エアロゾル・雲・降水の相互作用に関する研究集会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 S. Ohata, T. Mori, Y. Kondo, S. Sharma, A. Hyvarinen, E. Andrews, P. Tunved, E. Asmi, J. Backman, H. Servomaa, D. Veber, K. Eleftheriadis, S. Vratolis, M. Koike, Y. Kanaya, A. Yoshida, N. Moteki, Y. Zhao, J. Matsushita, and N. Oshima
2. 発表標題 Estimates of mass absorption cross sections of black carbon for filter-based absorption photometers in the Arctic
3. 学会等名 4th PACES Open Science Meeting (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 S. Ohata, T. Mori, Y. Kondo, S. Sharma, A. Hyvarinen, E. Andrews, P. Tunved, E. Asmi, J. Backman, H. Servomaa, D. Veber, K. Eleftheriadis, S. Vratolis, R. Krejci, P. Zieger, M. Koike, Y. Kanaya, A. Yoshida, N. Moteki, Y. Zhao, Y. Tobo, J. Matsushita, and N. Oshima
2. 発表標題 Estimates of mass absorption cross sections of black carbon for filter-based absorption photometers in the Arctic
3. 学会等名 第12回極域科学シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 大畑祥、茂木信宏、川中子ひかる、當房豊、足立光司、持田陸宏
2. 発表標題 SPES法に基づく名古屋都市大気の水溶性エアロゾルの観測
3. 学会等名 第26回大気化学討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 川中子ひかる、大畑祥、茂木信宏、當房豊、持田陸宏
2. 発表標題 SPES法に基づく非水溶性エアロゾルのオフライン分析法の評価
3. 学会等名 第26回大気化学討論会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------