

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 6 月 28 日現在

機関番号：82706

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2010～2012

課題番号：22310018

研究課題名（和文） HOx ラジカルとの不均一酸化反応による有機エアロゾル粒子の親水性・光学特性変化

研究課題名（英文） Heterogeneous reactions with HOx radicals and property changes in organic aerosol particles

研究代表者

金谷 有剛 (KANAYA YUGO)

独立行政法人海洋研究開発機構・地球環境変動領域・チームリーダー

研究者番号：60344305

研究成果の概要（和文）：有機エアロゾル粒子に対し HOx ラジカルを曝露し、エイジングに伴う光学特性の変化を測定する実験を実施した。加湿制御機能付き積分型ネフェロメータを用い、酸化前後の各種エアロゾル試料について、散乱係数の湿度依存性を測定した。酸化エイジングに加え、吸湿度の高い成分の存在度も、大気中の有機エアロゾルの光学特性とその変動を支配する要因として重要であることがわかった。これらの知見を、中国や福江で観測されたエアロゾル散乱係数の湿度依存性に対する有機物の役割についての解釈にあてはめた。

研究成果の概要（英文）：Changes in the optical properties of organic aerosol particles upon exposure to HOx radicals, major atmospheric oxidants, were measured in the laboratory. Dependence of the scattering coefficient on the relative humidity was measured with an integrating nephelometer equipped with a humidifier. In addition to aging, presence of organics originally having large hygroscopicity could control the optical properties of the atmospheric organic aerosols. These findings were used to interpret the roles of organics in determining the humidity dependence of the aerosol scattering coefficient as observed in China and Fukue Island.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010 年度	6,200,000	1,860,000	8,060,000
2011 年度	3,400,000	1,020,000	4,420,000
2012 年度	1,600,000	480,000	2,080,000
総計	11,200,000	3,360,000	14,560,000

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：有機エアロゾル、大気中酸化、光学特性、不均一反応、吸湿特性、環境質定量化・予測、地球変動予測、大気現象

## 1. 研究開始当初の背景

有機エアロゾル粒子は一般に透明な粒子とされ、気候に対しては日傘効果によって寒冷化に働く直接効果をもつと考えられてきた。有機粒子は地表面付近から直接放出された一次成分と、大気中で生成・ガスから移行した二次成分から構成されるが、いずれも大気中での酸化エイジングを受ける。気相酸化

からの類推では、大気中での酸化エイジングによって分解が進み、不可逆的に有機物の炭素数が小さくなり、また酸素原子の付加などによって親水性が高まってゆくと予想されるが、エアロゾル中では十分な知見は得られていない。一方で、エアロゾル相中では、気相とは異なり、酸化エイジングの過程でオリゴマー化によってフミン様物質など炭素数のより大きい物質が生成することも報告さ

れている。また、疎水性から親水性への変化が阻害される効果 (Rudich et al., 2007) や、いわゆる” brown carbon” (Andreae and Gelencser, 2006) としての性質、すなわち紫外～可視域波長域における吸収性が生じる効果もあることが新たに指摘されているが、まだ定性的な検討にとどまっている。これまでエアロゾルの不均一酸化過程としては、OH, O<sub>3</sub>, NO<sub>3</sub> による酸化が注目され、HO<sub>2</sub> 酸化の研究はほぼ皆無である。また、研究が先行している OH 酸化の場合でも、親水性や光学特性の変化を OH への曝露量の関数として定量的に表現する試みはなされてこなかった。

我々は、これまで大気中にそれぞれ 1ppt 以下、10ppt 程度で存在する OH, HO<sub>2</sub> ラジカル (あわせて HO<sub>x</sub> ラジカルと呼ぶ) の定量測定を行い、大気中の生成・消失プロセス解明・未知過程の指摘を行ってきた (Kanaya et al., 2007 など)。その中で、HO<sub>2</sub> ラジカルがエアロゾル粒子上不均一反応によって消失している可能性を見出し、実際に実験室において有機エアロゾルに対しても取り込み係数が 0.1 以上となることを見出し、消失過程として有意に寄与していることを明らかにした。本研究では、同様の不均一反応に関して、今度はエアロゾル粒子側の酸化・変質にも着目し、解析を進めるものである。

また、有機エアロゾルについて、野外湿度条件における吸湿因子を考慮してエアロゾル散乱係数を評価することは気候への直接効果を正確に理解するうえで欠かせないが、これまでの実験室的研究では酸化過程と組み合わせるその変化を追った例はなかった。また、野外実大気中での散乱係数の湿度依存性について、有機エアロゾルが無機エアロゾルに対して、吸湿を抑制するように働くことがあることは、比較的リモートな地域での観測によって指摘されてきたが、発生源付近でのふるまいとの対応関係や、酸化状態との関係性などについては、解析されてこなかった。

## 2. 研究の目的

以下のような実験室的研究と野外観測研究・データ解析とを組み合わせ、気候変化への強い関与が指摘されているものの、光学特性変化の過程解明が遅れている有機物に着目し、その酸化変質がエアロゾルの光学特性に与える影響について解析することを目的とする。

### (1) 実験室での親水性・光学特性変化実験

多種の有機エアロゾル粒子 (モデル化合物や東アジア地域で採取された粒子) に対して、HO<sub>x</sub> ラジカルを曝露する酸化エイジング実験を行い、エイジングに伴う親水性の変化、吸湿による散乱特性の変化、吸収特性の変化を

測定し、定性的な傾向や、曝露量の関数として評価することで、大気化学・気候モデルで大気中酸化変質を適切に扱うための情報を提供する。疎水性物質が親水性を獲得する際の、散乱特性の湿度依存性変化を定量化することを主な目的とする。付加的に、酸化変質によって、むしろ親水性が抑制される効果についても検証するため、高分子化に関係した紫外可視域の吸収性出現にも着目した実験を行う。

### (2) 中国・日本での野外実大気エアロゾル粒子の散乱特性計測と解析

中国で得られた試料についても同様の実験を行うことにより、越境大気輸送の観点から、有機エアロゾルが中国から日本へと酸化エイジングを受けながら輸送されてくる際の変質について考察する。とくに、散乱係数の湿度依存性に関する野外測定を、大陸の発生源付近の気塊と、大気酸化を受けながら大陸から日本へ輸送された後の気塊とに対して行い、比較・解析を行うことで、有機エアロゾルの変質がもたらしうる気候への影響に関する知見を得ることを目的とする。

## 3. 研究の方法

### (1) 散乱係数の湿度依存性測定装置・吸収測定装置の製作等

積分型ネフエロメータの気体導入部分について、加温・乾燥部、加湿部、さらに加湿部と順に接続された加湿ユニットを製作し、エアロゾル粒子試料を含む空気流を約 30 分で加湿し、また引き続いての 30 分で乾燥状況に戻すことができるようにした。加湿部分には、ゴアテックスチューブ (外径 9mm) を用い、外側を加温・温調された水の一部浸すことによって、チューブ内部へと適量の水分を供給できるようにした。温度範囲は室温 (25°C) ~ 75°C としたところ、ネフエロメータへ通常供給される流量 (約 6L/分) の条件で、およそ 40-85% の相対湿度範囲を走査できることがわかった。また、速やかに加湿条件を変化させるために、3 方バルブを用いて、加湿部をバイパスする流路も準備した。加湿ユニット部の段階的昇温・降温や、前後のヒーターの加温、3 方バルブの切り替えはすべてプログラマブルコントローラから自動的に行うことができるようにした。

エアロゾル粒子のネフエロメータへのオンライン供給ラインは以下のようなものである。有機物試料約 40mg を 25ml の純水に溶解し、アトマイザを用いてゼロガス発生器からのガス (3L/分) をキャリアとして 100nm 以下の粒径の粒子を発生させた。乾燥後、マスフローコントローラを用い、そのうちの 9 割はフィルターを通じて排気し、残りの 1 割

のガス流に含まれる粒子について、フィルターを通した室内空気ですらに約 20 倍に希釈し、ネフエロメータへと導入するようにした。

吸収測定装置は、セル中央部に直径約 16mm の石英フィルターを装着することができ、赤色 LED による光照射とその反射光強度の測定（光ファイバセンサを利用）から、吸収度の時間変化を追うことができる装置である。また、上方斜め方向より、石英管を通して HOx ラジカルを発生させながら石英フィルターに直接照射できるように設計し、不均一的なラジカル曝露時間に対する吸収の発現をデータロガーに記録することができる。

親水性を測定するための接触角計には、マツボ社製 PG-X を用いた。測定対象とする有機物は、エタノール飽和溶液を用いてガラス基板に膜状に塗布し、その上に純水を 2~4 マイクロリットル滴下し、CCD 画像から静的接触角を測定した。酸化前後での接触角の変化を測定した。

定性的な HOx ラジカル曝露実験のために、塗布試料や水溶液試料に対して、直接的にペン型低圧水銀ランプからの波長 185nm の光を 1~数時間に渡り照射し、水の光分解に由来する HOx ラジカルを試料に曝露させた。

定量的な HOx ラジカル曝露実験のためには、OH 測定装置の校正に用いられる水蒸気・酸素同時光分解の原理を用いたシステムを構築して使用した。内径約 26mm、長さ約 50cm の合成石英管に約 19L/分のゼロガスを層流条件で流通させ、ごく短時間、低圧水銀ランプからの 185nm の真空紫外光を側方より照射する。光分解により、酸素からは 2 分子のオゾンが、水蒸気からは OH、HO<sub>2</sub> ラジカルがそれぞれ生成する。既知の光吸収断面積とオゾン濃度実測値を用いると、発生させる HOx ラジカル濃度を水蒸気量と対応づけることができる。ラジカル発生後、石英管出口までの部分での石英管内壁におけるラジカル消失は無視できる。石英管出口より管内に向けて、フィルターホルダーを挿入できるようにし、測定対象とする有機物を含浸させたフィルター（直径約 16mm）を設置してラジカルに対して曝露を行った。水蒸気量は鏡面冷却型の露点計を用いて測定した。0 度前後の露点条件では、発生させた OH、HO<sub>2</sub> ラジカル濃度は約 10<sup>10</sup> radicals cm<sup>-3</sup> であった。夏季の実大気中濃度と比較すると約 10<sup>3</sup> 倍高い濃度であり、10 分の曝露で、典型的なエアロゾル粒子の大気中寿命である 7 日の大気中酸化を模擬できるものと考えられた。また、一部の実験では、CO を流通空気に一定量混ぜることによって、発生させた OH を HO<sub>2</sub> に定量的に変換させて、HO<sub>2</sub> の曝露実験とした。

(2) 如東（中国）・福江島（日本）での野外実大気エアロゾル粒子の散乱特性計測

2010 年 5-6 月に、中国江蘇省・如東 (Rudong, 32.26° N, 121.37° E) にて行った野外集中観測に、上述の加湿部を備えた積分型ネフエロメータを持ち込み、実大気中のエアロゾル粒子による散乱係数の湿度依存性を測定した。観測サイトは、上海の北約 100km、東シナ海まで 3km 以内に位置する郊外地点（工業地区化予定地）であり、近傍の発生源の影響は小さいと考えられた。粒径区分は行わずに散乱係数を測定した。観測の後半に PM<sub>2.5</sub> サイズカットを伴う比較実験を行ったところ、大きな影響はみられず、期間を通して主に微小粒子の散乱を測定したものと考えられた。観測期間中には、昼夜ごとに PM<sub>2.5</sub> 粒子をハイボリュームエアサンプラーによって採取し、イオン分析等で主要水溶性イオン成分分析を行った。また、現地に光学補正熱分離型の ECOC（元素状・有機炭素）計を持ち込み、炭素性エアロゾルの重量濃度についても連続測定した。

同様の加湿部を備えた積分型ネフエロメータは、前年度 5-6 月の集中観測で、長崎県・福江島大気環境観測施設 (32.75° N, 128.68° E) においても運用された。中国観測前には加湿部のゴアテックスチューブの長さを 50cm まで短縮しても運用できることを確かめ、小型化された装置を持ち込んだ。福江での観測期間中は、全日の PM<sub>2.5</sub> 試料を捕集し、イオン分析等を行った。また、ECOC 計についても中国観測の場合と同様の連続運用を行った。これらの成分分析の結果を、有機物やその酸化がもたらす散乱係数の湿度依存性変化の解釈に用いた。

#### 4. 研究成果

##### (1) 実験室での親水性・光学特性変化実験

###### ① 吸収性の測定

まず、直接的にペン型低圧水銀ランプからの波長 185nm の光を試料に照射して、定性的に HOx ラジカルを曝露するバッチ実験を多種の試料に対して行った。その結果、3,5 ジヒドロキシ安息香酸、caffeic acid 等のエタノール溶液を含浸し風乾したフィルター試料では、1 時間未満の短時間で、元の白色（石英フィルターの色）から明らかな褐色呈色が見られることがわかった。

次に、3,5 ジヒドロキシ安息香酸を中心に、反射型の吸収計で吸収度の変化を追う実験を行った。その結果の一例を図 1 に示す。この図から、HOx ラジカル不均一酸化反応によって、明らかに 3,5 ジヒドロキシ安息香酸が酸化変質を受け、1 時間当たり約 0.8% の反射光の低下が起こることを見出した。曝露後のフィルターは、バッチ実験でみられたのと同様に、褐色を呈していた（図 1 インセット参

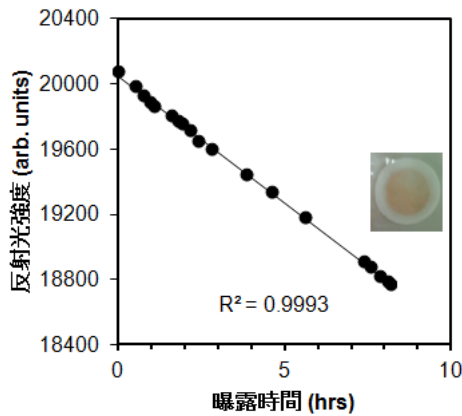


図 1. 3,5ジヒドロキシ安息香酸のHOxラジカル曝露に伴う反射光強度の変化。

照)。

さらに定量的なHOx曝露量との対応関係を見るために、水蒸気・酸素同時光分解の原理を用いたシステムを用いて、既知濃度のOHを同様の3,5ジヒドロキシ安息香酸含浸フィルターに対して曝露する実験を行った。条件は露点が $-2.6 \pm 1.7^\circ \text{C}$ であり、照射されたOH濃度は平均で $9.5 \times 10^9 \text{ radicals cm}^{-3}$ と算出された。4.75時間までの曝露による褐色の呈色はごくわずかで、0.2%以下であった。同様の実験を、一酸化炭素を加えた系で行ったところ、9時間までの曝露時間の範囲での結果では、吸収は0.4%以下であった。

このことから、3,5-ジヒドロキシ安息香酸の酸化による着色は化学反応としては実際に起こることが確かめられたものの、定量的には、対流圏大気中に実在するOH、HO<sub>2</sub>濃度を考慮すると、大気中での変化速度は遅いこ

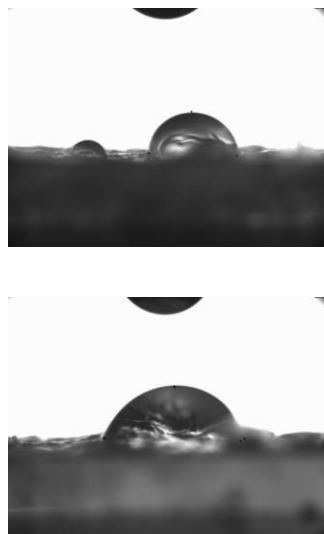


図 2. ステアリン酸コート試料に対するHOx酸化前(上)、後(下)の純水水滴に対する接触角変化の測定例。

とが推察された。また、各種の単成分に対する実験、複数成分の共存下での実験も行ったが、最大の吸収を呈したものは3,5ジヒドロキシ安息香酸であった。大気中の未同定有機物種に対する重要性は議論できないが、一般に、ラジカル類曝露酸化による着色反応は遅い可能性が指摘された。

## ② 接触角測定による親水性変化

図2には、純水水滴に対する静的接触角の測定例として、ステアリン酸の例を示す。石英ガラス基板上にコートしたステアリン酸試料に対し、HOxラジカル曝露の有無による接触角の違いを見たもので、明らかにラジカル曝露後には、元の場合と比較して、接触角が減少し(この例の場合、 $84.8^\circ$ から $72.8^\circ$ に減少)、親水性が増したことが示されている。この例の場合のOH曝露量は濃度約 $9 \times 10^9 \text{ radicals cm}^{-3}$ 、発生時間は3時間であった。接触角変化には発生時間に依存する傾向が見られ、親水性が時間と共に発現することが分かった。接触角の測定試験は短時間・簡便であり、試料ごとの結果を基にして、散乱係数の湿度依存性変化を測定する対象物質を選択するための判断材料とした。

## ③ 散乱係数の湿度依存性の測定

図3は、積分型ネフエロメータを用いて、散乱係数の湿度依存性を測定した例を示す。縦軸は吸湿成長因子 $f(\text{RH})$ で、各湿度(ここでは相対湿度5%ごとにデータを区分し平均化した)での散乱係数を、湿度45%以下の条件での平均値で規格化したものである。なお、測定は湿度上昇の条件で測定されたものであるが、加湿後の配管において一部冷却の効果を受けているため、潮解・風解のヒステリシスが見られる物質の場合は、その中間的な状況での測定であることに注意が必要である。そのため、以降、80-85%の相対湿度での $f(\text{RH})$ 値に主に着目した比較解析を行う。

図3aは、いずれもバイオマス燃焼起源物質として大気中に存在すると考えられるバニリン酸(vanillic acid)、パラヒドロキシ安息香酸(PHBA)について、OHによる酸化前後の条件で $f(\text{RH})$ を測定した例である。酸化前は湿度依存性は弱く、それぞれ80-85%の相対湿度における $f(\text{RH})$ 値は $1.10 \pm 0.03$ 、 $1.02 \pm 0.02$ であった。一方、酸化後には、これらの値が $1.29 \pm 0.06$ 、 $1.15 \pm 0.01$ にまで高まり、有意な湿度依存性も上昇が見られた。このことからHOxラジカル不均一酸化反応により有機エアロゾルの親水性が増し、高湿度時には散乱特性が変化する物質が存在することが明らかとなった。なお、いずれの物質でも酸化後の水溶液では黄～褐色呈色が見られ、(1)の結果とも整合的であった。

図3bは、大気中に存在することが示唆され

る有機物質（メタンスルホン酸ナトリウム (SMS)、スクロース、アジピン酸、レボグルコサン、マロン酸、3,5-ジヒドロキシ安息香酸 (3,5-DHBA)、クエン酸 (citric acid)、および、その他の有機化合物 (1-ペンタンスルホン酸ナトリウム (S1PS)、vitamin C、メリト酸 (mellitic acid)) について、同様の散乱係数の湿度依存性を測定した結果を示す。ここから、SMS、S1PS 以外は、80-85% の  $f(RH)$  値はほぼ 1-1.8 の間に入ることがわかる。トリカルボン酸・ジカルボン酸であるクエン酸、マロン酸の値は高いが (1.65, 1.75)、ヘキサカルボン酸であるメリト酸での値は 1.51 にとどまった。水への溶解度が低いことで知られるジカルボン酸であるアジピン酸は、予想通り 1.11 と低めの値であった。バイオマス燃焼起源物質・糖類 (レボグルコサン、スクロース、3,5-DHBA、バニリン酸、PHBA) では 1.02-1.60 の範囲であった。それらに対し、海洋起源などで大気中に存在することが知られる有機物である SMS では 4 を超える値となることがわかった。これは大気中エアロゾル主成分である硫酸アンモニウムの値に匹敵する。また、メチル基が 1-ペンチル基で置換された S1PS でも、SMS 程ではないものの、他の有機物よりも高い値 (1.87) を示した。図 3a で見たように、大気中の酸化反応によって認められた 80-85% の相対湿度での  $f(RH)$  値は最大で 1.3 程度だったことから、酸化による変質は有意であり重要な場合があると考えられるものの、SMS な

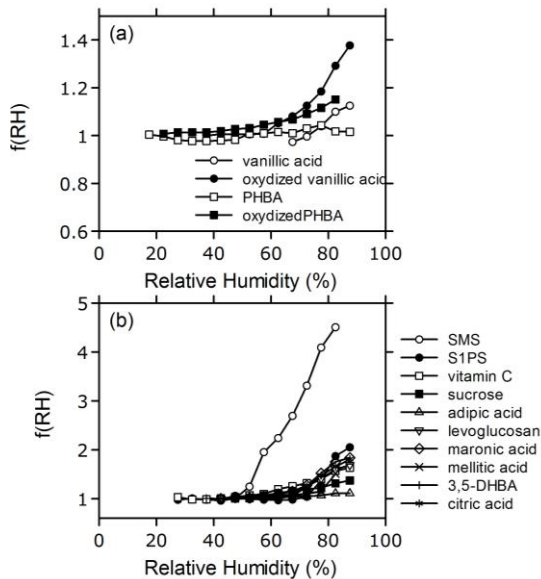


図 3. (a) バニリン酸、パラヒドロキシ安息香酸の酸化前後における  $f(RH)$  測定結果。(b) 多種の有機物に対する  $f(RH)$  測定結果。物質名称は本文参照。

どの高親水性有機物の混合割合も、大気中の有機エアロゾル全体としての吸湿特性を支配する大きな要因になることが明らかとなった。

## (2) 如東 (中国)・福江島 (日本) での野外実大気エアロゾル粒子の散乱特性計測

実大気中で加湿型ネフロメータによって測定された散乱係数を、同時に測定された  $PM_{2.5}$  質量濃度で除して算出した質量散乱係数  $b_{scat}(RH)$  について、下式に基づいてパラメータ  $\gamma$  を算出した。 $\gamma$  値が大きいほど、散乱係数の湿度依存性が高いことに相当する。

$$b_{scat}(RH) = b_{scat}(40\%) \times ((100-40)/(100-RH))^\gamma$$

その上で、有機物がもたらす  $\gamma$  値の変化を検討するため、 $\gamma$  値の (有機物 POM) / (POM + 硫酸塩 SO4) 比に対する関係を検討した。福江の結果を図 4a に示す。ここから、有機物の割合上昇と共に  $\gamma$  値が低下することが明らかとなり、有機物の存在が散乱強度の湿度依存性を弱めていることがわかる。ここで有機物 100% の場合に外挿して得られる  $\gamma$  値は  $0.19 \pm 0.04$  であり、図 3 に示した各種有機物での  $f(RH)$  を変換して得られる  $\gamma$  値と比較すると、酸化されたバニリン酸 (0.21) やスクロース (0.22) の値と適合することがわかった。

一方、中国如東での結果 (図 4b) では有機物の割合に対する  $\gamma$  値の依存性は強く見られなかった。この理由としては、(1) 有機物粒子は存在していても無機塩類と外部混合し

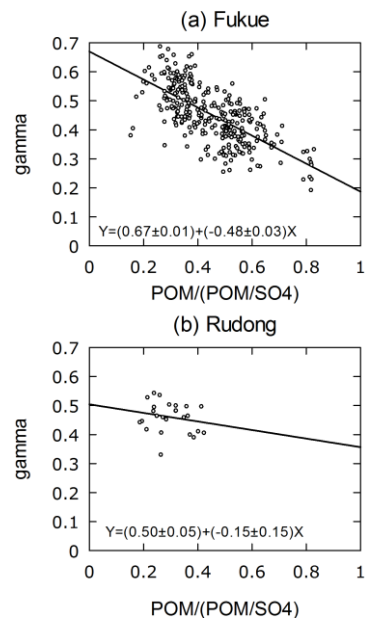


図 4. (a) 福江、(b) 如東での散乱係数の湿度依存性パラメータ  $\gamma$  (gamma、縦軸) の、有機物割合に対する依存性。



ているために無機塩類での吸湿性が妨げられない可能性、(2)内部混合しているものの、影響を及ぼしている成分が、本研究で酸化実験を行った一般的な有機物よりも、むしろ前項③で見たような高親水性物質(SMS など)である可能性が挙げられる。

また、如東を発生源側、福江を大気中酸化が進んだ下流側とみなして傾向を比較すると、有機物 100%の場合に外挿して得られる  $\gamma$  値は如東でも福江 ( $0.19 \pm 0.04$ ) と有意差はなく ( $0.36 \pm 0.18$ )、酸化と共に大きく散乱係数の湿度依存性は増していないことがわかった。このことは、図 3a に示した物質でも  $\text{HO}_x$  酸化による吸湿散乱特性変化が強く見られなかったことと整合している結果と考えられた。

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 3 件)

① Taketani, F. et al., Kinetic studies of heterogeneous reaction of  $\text{HO}_2$  radical by dicarboxylic acid particles, *Int. J. Chem. Kinet.*, in press, 2013. (査読あり)

② Taketani, F. et al., Measurement of overall uptake coefficients for  $\text{HO}_2$  radicals by aerosol particles sampled from ambient air at Mts. Tai and Mang (China), *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 11907-11916, doi:10.5194/acp-12-11907-2012, 2012. (査読あり)

③ Kanaya, Y. et al., Comparisons of observed and modeled OH and  $\text{HO}_2$  concentrations during the ambient measurement period of the  $\text{HO}_x\text{Comp}$  field campaign, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 2567-2585, doi:10.5194/acp-12-2567-2012, 2012. (査読あり)

[学会発表] (計 7 件)

① 金谷有剛ほか、Isoprene chemical mechanism evaluation using ensemble observations of ambient  $\text{HO}_x$  concentrations during the  $\text{HO}_x\text{Comp}$  field campaign, IGAC International Science Conference 2012, 2012年09月19日、北京市(国家会議センター)、中国

② 金谷有剛ほか、Comparisons of observed and modeled OH and  $\text{HO}_2$  concentrations during the ambient measurement period of the  $\text{HO}_x\text{Comp}$  field campaign, EGU General Assembly 2012, 2012年4月26日、ウィーン市(ウィーン国際会議場)、オーストリア

③ 金谷有剛ほか、大気中イソプレン新規気相反応の  $\text{HO}_x$  ラジカル濃度への影響、日本化学会第92春季年会、2012年3月26日、横浜市(慶応大学)

④ 金谷有剛ほか、Dependence of aerosol scattering coefficients on relative humidity observed at two coastal sites on the East China Sea: Comparison to remote observations and influence of chemical composition, AGU fall meeting 2011, 2011年12月9日、サンフランシスコ市(モスコニー会議場)、米国

⑤ 金谷有剛ほか、イソプレン大気化学反応は  $\text{HO}_x$  ラジカルを効率的に再生するか:  $\text{HO}_x\text{Comp}$  観測による検証、第17回大気化学討論会、2011年10月18日、宇治市(京都大学)

⑥ 金谷有剛ほか、2010年春季中国江蘇省 Rudong における大気成分総合集中観測: 目的と初期成果、日本地球惑星科学連合 2011年大会、2011年5月23日、千葉市(幕張メッセ)

⑦ 金谷有剛ほか、野外大気およびシミュレーションチャンバー SAPHIR における大気中 OH,  $\text{HO}_2$  ラジカル濃度測定 of 公式相互比較:  $\text{HO}_x\text{Comp}$ 、日本化学会第91春季年会、2011年3月26日、横浜市(神奈川大)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

金谷 有剛 (KANAYA YUGO)  
独立行政法人海洋研究開発機構・地球環境変動領域・チームリーダー  
研究者番号: 60344305

### (2) 研究分担者

なし

### (3) 連携研究者

竹谷 文一 (TAKETANI FUMIKAZU)  
独立行政法人海洋研究開発機構・地球環境変動領域・研究員  
研究者番号: 50377785

駒崎 雄一 (KOMAZAKI YUICHI)  
独立行政法人海洋研究開発機構・地球環境変動領域・主任研究員  
研究者番号: 80286640