

令和元年6月19日現在

機関番号：13301

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2014～2018

課題番号：26701001

研究課題名(和文) 大気中微粒子の増加要因と雲核活性の解明：エアロゾル・クライマトロジー構築にむけて

研究課題名(英文) Investigation on the source of atmospheric particles are related cloud nucleation activity: Towards the establishment of a new aerosol climatology

研究代表者

松木 篤 (MATSUKI, ATSUSHI)

金沢大学・環日本海域環境研究センター・准教授

研究者番号：90505728

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 11,600,000円

研究成果の概要(和文)：本計画では、東アジア地域における大気エアロゾルの季節変化や増加要因を正確に把握し、その雲凝結核としての働きも含めた物理化学的特性を明らかにするため、能登半島先端の大気観測施設においてエアロゾルの連続観測を行った。その結果、季節によって化石燃料と植生の発生源寄与が大きく変化するだけでなく、大陸の森林火災やバイオマスのバーニングの影響が、少なからず風下地域のエアロゾルの増加要因となっており、さらには雲凝結核としての活性にも影響していることがわかった。また、従来は主に日中に行くと考えられてきた新粒子生成が、能登では夜間にも確認され、その発生源として日本海側地域特有の冬季季節風の関与が示唆された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

東アジア地域は急速な経済発展に伴う大気汚染が顕在化し、長期的な観測に基づいたエアロゾルの増加要因の解明が待たれていた。特にエアロゾル中有機物の起源や生成・変質過程に関する理解の遅れから、現状の数値モデルでは実際の有機物の濃度を正確に再現できず過小評価する傾向にあることが指摘されていた。本研究が示した炭素状エアロゾルの起源推定に関する結果はこうした不確実性を解消する上で貴重な知見となる。また、本計画を通じて得られた直接観測結果は、今後、数値シミュレーションやリモートセンシング観測結果の検証に役立つ。当該地域におけるエアロゾル雲凝結特性の体系的な理解に向けた大きな貢献が期待される。

研究成果の概要(英文)：In order to identify the factors controlling the seasonal variation and increasing patterns of atmospheric aerosols in the East Asia region, as well as to clarify the physicochemical characteristics of aerosols including their activity as cloud condensation nuclei, continuous observation was performed at the atmospheric observation facility based at the tip of the Noto Peninsula.

It was found that the relative source contribution from fossil fuel and biogenic emissions largely fluctuates depending on the season. Also, forest fire and biomass burning activities in the continent significantly affect the aerosol loading as well as their cloud nucleating ability in the downwind regions. In addition, new particle formation, which was conventionally considered to occur mainly during the daytime, was also spotted at night in Noto, and potential involvement of the unique winter monsoon in the Japan Sea region was suggested as the controlling factor.

研究分野：大気環境科学

キーワード：エアロゾル PM2.5 大気汚染 同位体 気候変動 雲凝結核

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

東アジアでは、急激な経済発展に伴って大量の大気汚染物質が排出され、わが国においても、PM2.5 問題として越境汚染に対する懸念が顕在化している。従来の研究では、気流によって黄砂とともに大気汚染物質が運ばれやすいとされた春季や秋季を中心に、集中的な観測プロジェクトが生まれ、議論が行われてきた。しかし、研究代表者らが行った予察的観測結果からは、従来、太平洋高気圧の影響下で大陸からの越境汚染はブロックされるとの見解から見落とされがちだった夏季においても、PM2.5 を構成するような微小粒子が春季と同等、あるいはそれ以上の濃度で頻繁に観測されていた。これらの粒子は一体どこからやってくるのか。また、このような現象は今後も増加する傾向にあるのか。こうした問いに答えるためにも、この地域特有の新しいエアロゾル・クライマトロジー（風土学）の構築が求められている。

### 2. 研究の目的

黄砂や PM2.5 に代表される大気中の微粒子（エアロゾル）はヒトの健康に影響を及ぼす地域的な大気質の悪化をもたらすのみならず、太陽光を散乱・吸収し、さらには水蒸気が凝結し雲が形成する際に不可欠な雲核（雲凝結核）としても働いて重要な気候変動因子である。東アジア地域で深刻化する大気汚染を背景に、近年、エアロゾル増加による気候への影響が懸念されている。エアロゾルの増加はすなわち雲の生成に不可欠な雲核の増加を意味し、地域の気候に大きな影響を及ぼすが、その正確な影響評価には、特に有機物を含む粒子の挙動と雲核活性の理解が不可欠である。本計画では、能登半島先端の大気観測施設において、エアロゾルの連続観測を行い、その季節変化や増加要因を正確に把握し、雲凝結核としての活性化能も含めた粒子の物理化学的特性を明らかにすることを目的としている。

### 3. 研究の方法

能登半島は周囲を海に囲まれ、大規模な都市や工業地帯などの汚染源も存在しない。そのため純粋に、東アジアの背景環境（バックグラウンド）に起こる大気質のわずかな変化を高感度で検出できるのが特徴である。本計画では、研究代表者が中心となって整備を進めてきた能登半島の先端に位置する能登大気観測スーパーサイトにおいて、中部日本地域を代表する「バックグラウンドエアロゾル」の連続的な観測を行い、その包括的な物理化学的特性の評価（化学組成、光学特性、雲核活性、個数粒径分布）を行う。

有機物を含む炭素状エアロゾルの起源推定には、能登でフィルター上に採集したエアロゾル試料の同位体分析を行った。例えば、放射性炭素年代測定にも使用される  $^{14}\text{C}$  を利用した場合、化石燃料起源と現代の植生起源粒子とを区別することができる。また、安定同位体である  $^{13}\text{C}$  は海洋と陸上植物の間でも光合成の経路による違いから同位体分別に差が生じるため、両者の同位体比を組み合わせると、海洋生物起源、陸上植生起源（バイオマス燃焼もしくは植生代謝物）、化石燃料起源の別を同定し、それぞれの寄与の推定が可能となる。

大気エアロゾルの雲凝結特性の評価には  $1\ \mu\text{m}$  以下のサイズ領域における微小粒子の化学組成、個数濃度粒径分布、吸湿特性が必要となる。能登の施設でエアロゾル質量分析計（ACSM）、走査型移動度パーティクルサイザー（SMPS）、雲凝結核カウンター（CCNC）を長期間運用し、化学組成と吸湿特性の対応を検討、並びに気体が粒子化する新粒子生成イベントの抽出を行った。

### 4. 研究成果

予察的な観測により能登半島で蓄積されたデータから、夏季においても PM2.5 の濃度が予想以上に多く、中でも有機物を主体とする炭素性エアロゾルが占める割合の大きさが明らかになっていた。そこで、放射性炭素年代測定にも利用される  $^{14}\text{C}$  を指標とし、フィルターに採集したエアロゾル試料約 1 年間分の同位体分析を行った結果、炭素質成分の主な発生源である化石燃料起源、植生起源の相対的な寄与率に明瞭な季節変化が存在することが明らかになった（図 1）。この他、当初想定されていたよりも化石燃料起源の寄与が小さいことや、大陸の森林火災やバイオマスバーニングなどの影響が、少なからず風下地域のエアロゾルの増加要因となっていることなどもわかった（図 2）。

特にエアロゾル中有機物の起源や生成・変質過程に関する理解の遅れから、現状の数値モデルでは実際の有機物の濃度を正確に再現できず過小評価する傾向にあることが指摘されていた。本計画によって明らかになった炭素状エアロゾルの起源推定に関する結果はこうした不確実性を解消する上で貴重な知見となる。

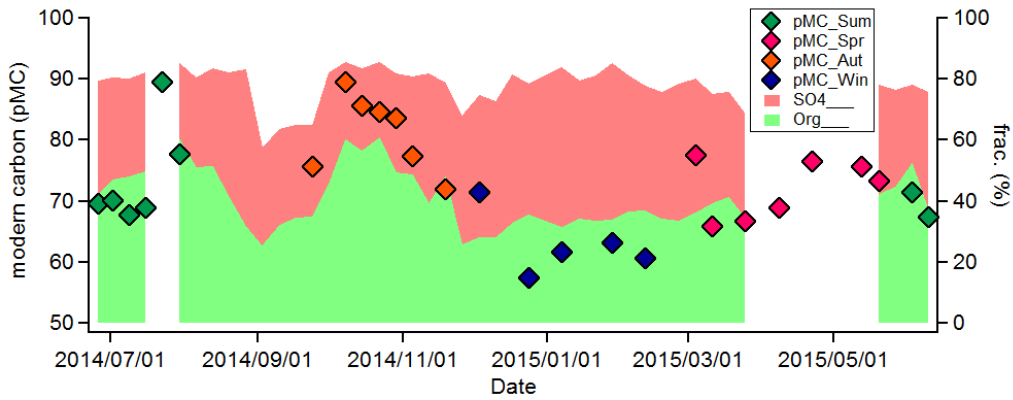


図1 エアロゾルの主要化学成分と<sup>14</sup>C同位体組成に基づく現代炭素寄与率の比較。夏や秋に極端に現代炭素の寄与が極端に高くなる時期が確認された。

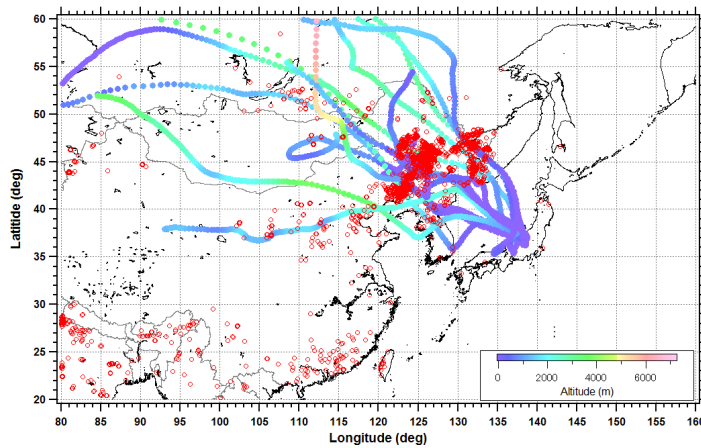


図2 後方流跡線解析による空気塊の推定輸送経路と衛星観測(MODIS)のfire spotの比較。高濃度の炭素状エアロゾルが観測され、現代炭素の寄与が高かった2014年10～11月の期間は中国東北地域のバイオマスバーニングの影響を受けた可能性が高い。

長期連続観測から得られたエアロゾルの粒径、化学組成と雲核活性には良い対応関係が見られ、季節的な特徴も明らかになった。また粒径の小さい粒子ほど有機物の含有率が高く、雲核活性が小さくなる傾向が見られた(図3)。さらに分析電子顕微鏡を用いた個別粒子分析を行い、エアロゾルの粒子サイズごとの混合状態を詳細に調べた結果、硫酸塩の周りを有機物がコーティングしている粒子が多く見つかリ、特に有機物の含有量は粒径が小さくなるほど増える傾向が顕著に見られた。また、エアロゾルの同位体組成の分析から大陸におけるバイオマスバーニングの影響を受けたと考えられる期間について、エアロゾルの雲核活性の評価を行った結果、バイオマスバーニングの影響下では顕著な微小エアロゾル濃度(雲凝結核)と有機物の寄与割合の増加が確認された(図4)。

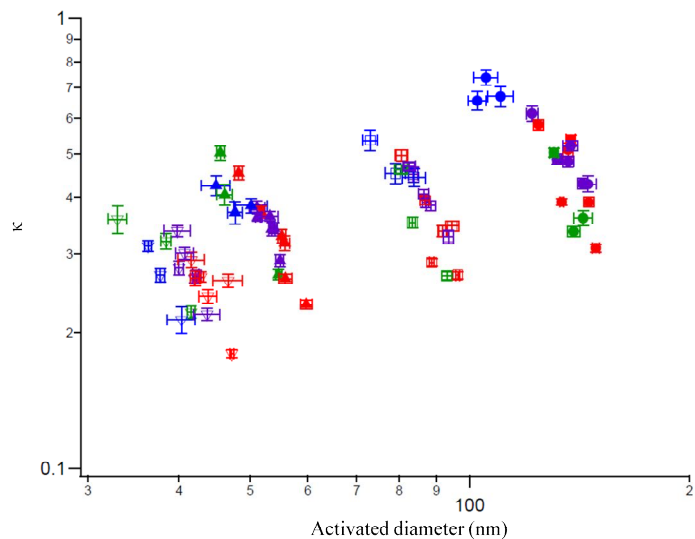


図3 エアロゾルの粒径別吸湿特性( $\kappa$ )の季節変化(緑:春、赤:夏、紫:秋、青:冬)。粒径が小さいほど吸湿性が下がる傾向。夏は総じて吸湿性が低い。

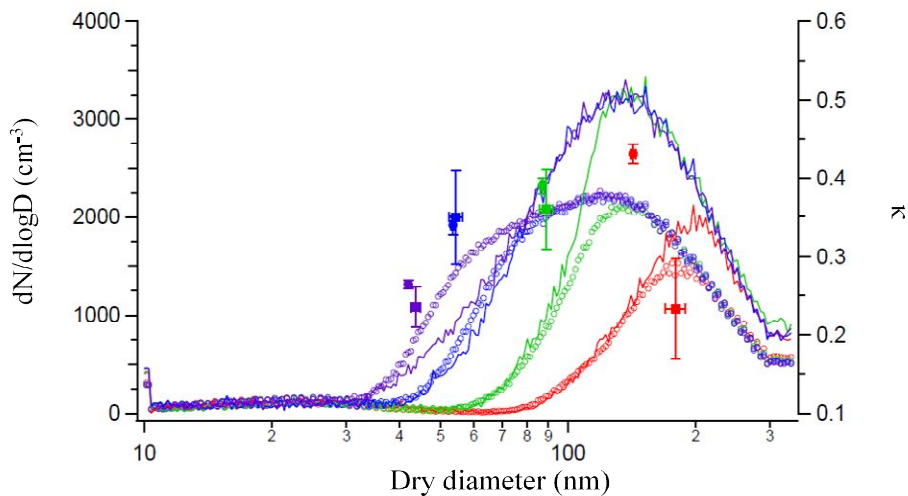


図4 CCNの粒径分布および吸湿特性( $\kappa$ ): バイオマスバーニングの影響を受けたと考えられる期間(実践)と月平均(白抜きの○)の比較(2014年秋)。色の違いは水蒸気過飽和度を示す(赤: 0.1%、緑: 0.2%、青: 0.5%、紫: 0.8%)。バイオマスバーニングの影響によりCCN濃度に顕著な増加がみられる。

この他、国際データベースへの具体的な貢献として、世界11カ所の大気観測拠点で集められたエアロゾル(雲凝結核)観測データの国際比較研究に参加した。のべ14カ国、23研究機関、70名余の研究者が関与したこのキャンペーンに本計画が加わっており、その結果は国際共著論文にまとめられている(雑誌論文、)。この大規模なデータセットは今後、数値モデルおよび衛星観測結果の検証などを通じ、体系的なエアロゾル雲凝結特性の理解に向けた大きな貢献が期待される。

大気中の微量なガスが前駆物質となって粒子化する新粒子生成(NPF)は、最終的に雲凝結核の濃度を決定付け、地球の気候に影響を与える大気エアロゾルの重要な発生プロセスである。本計画期間において得られた長期のエアロゾル粒径分布観測データに基づいて、NPFの発生トレンドを解析した結果、興味深い季節性の存在が明らかになった(図5)。東アジア地域における従来のNPFに関する観測研究は数週間から数か月程度の短期集中観測に基づいたものがほとんどであり、本研究のように季節性も含む長期的なトレンドを明らかにした例は少ない。

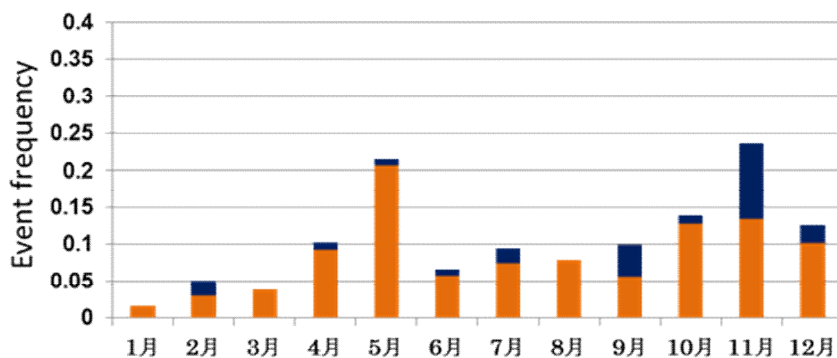


図5 観測期間(2012年10月~2017年6月)の月別イベント頻度。橙色は昼間のイベント、紺色は夜間のイベントを表す。

また、従来NPFは光化学反応を介して主に日中に起こる大気現象だと考えられてきたが(図6)長期的な観測から夜間のイベントの存在も確認された。世界的に見ても、夜間にNPFイベントが観測された事例は依然限られているだけでなく、その発生要因として日本海側地域特有の冬季季節風の関与を示唆する興味深いデータも得られており、研究戦略上、能登地域が持つ大気観測拠点としての有用性を改めて再認識する結果となった。

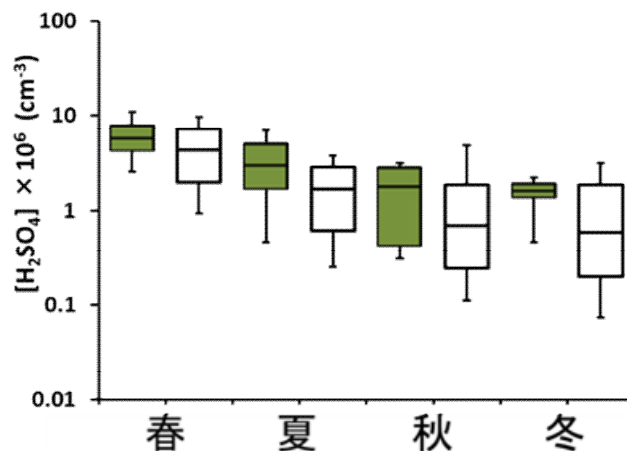


図6 NPFが確認された日(緑)と確認されなかった日(白)の季節別硫酸プロキシ。  
特に春のイベント時は日中、強い日射の影響で凝縮性のガス濃度が高くなる傾向がある。

## 5. 主な発表論文等

### 〔雑誌論文〕(計 20 件)

- Sadanaga, Y., Ishiyama, A., Takaji, R., Matsuki, A., Kato, S., Sato, K., Osada, K., and Bandow, H., 2019, Behavior of total peroxy and total organic nitrate concentrations at Suzu on the Noto Peninsula, Japan: Long-range transport and local photochemical production, *Atmospheric Environment*, 196, 20-26. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2018.10.003>. 査読有
- Schmale, J.ほか 48名(Matsuki, A. 45 番目), 2018, Long-term cloud condensation nuclei number concentration, particle number size distribution and chemical composition measurements at regionally representative observatories, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18, 2853-2881, <https://doi.org/10.5194/acp-18-2853-2018>. 査読有
- Schmale, J.ほか 62名(Matsuki, A. 57 番目), 2017, Collocated observations of cloud condensation nuclei, particle size distributions, and chemical composition. *Scientific Data*, 4, 170003, doi:10.1038/sdata.2017.3. 査読有
- Ueda, S., Nakayama, T., Taketani, F., Adachi, K., Matsuki, A., Iwamoto, Y., Sadanaga, Y. and Matsumi Y., 2016, Light absorption and morphological properties of soot-containing aerosols observed at an East Asian outflow site, Noto Peninsula, Japan, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16, 2525–2541, doi:10.5194/acp-16-2525-2016. 査読有
- Iwamoto, Y., Kinouchi, K., Watanabe, K., Yamazaki, N. and Matsuki, A., 2016, Simultaneous Measurement of CCN Activity and Chemical Composition of Fine-Mode Aerosols at Noto Peninsula, Japan, in Autumn 2012, *Aerosol and Air Quality Research*, 16(9), 2107-2118, doi: 10.4209/aaqr.2015.09.0545. 査読有
- Watanabe, K., Yamazaki, N., Mizuochi, R., Iwamoto, Y., Matsuki, A., Sadanaga, Y., Bandow, H. and Iwasaka, Y., 2015, High Concentrations of Sulfur Dioxide and Sulfate Particles Observed in Suzu City, the Noto Peninsula in the Summer of 2012: On the Influence of the Smoke of Sakurajima, *Tenki*, 62(3), 43-50. 査読有

### 〔学会発表〕(計 105 件)

- Hyono, H.ほか 5名(Matsuki, A. 6 番目), Investigation on the factors controlling new particle formation by long term observation in Noto peninsula. 15th IGAC conference (2018)
- 松木篤他, 能登半島で観測された大気エアロゾルの吸湿性に基づく粒径別化学組成. 第35回エアロゾル科学・技術研究討論会 (2018)
- Matsuki, A. et al., Isotopic Source Apportionment of Carbonaceous Aerosols Observed in Noto Region, Japan: Impact of Biomass Burning on the East Asian Outflow. 36th AAAR Annual Conference (2017)
- Matsuki, A. et al., Carbonaceous aerosols observed in Noto peninsula: Their source and impact on aerosol CCN activity. Goldschmidt 2016 (2016)
- Matsuki, A. et al., Characterization of CCN in remote coastal region in East Asia: Ground-based observation at Noto peninsula, Japan. The 9th Asian Aerosol Conference (2015)
- Matsuki, A. et al., Seasonal variation of atmospheric aerosol properties observed at the tip of Noto peninsula, Japan. 2014 International Aerosol Conference (2014)

### 〔図書〕(計 2 件)

松木篤他(分担執筆),2016,低温の科学辞典「第二章 対流圏大気の化学 生物氷晶核」.  
河村公隆編,朝倉書店,東京,432(42-43)p,(ISBN978-4-254-16128-1).  
Matsuki, A.(Co-authoring), 2018, Trans-Boundary Pollution in North-East Asia, Chapter II  
Long-Range Transport of Asian Dust in East Asia: Chemical and Physical Processing of Mineral  
Particles and Potential Environmental Impacts, NOVA Science Publishers, New York, 297 (49-74)  
p.

〔その他〕

ホームページ等

ACTRIS data centre-an atmospheric data portal

<http://actris.nilu.no/Content/?pageid=226809f7a0ac49538914eeafb4448afa>

## 6. 研究組織

### (1)研究協力者

池盛 文数

Fumikazu Ikemori

名古屋市環境科学調査センター

### (2)研究協力者

中村 俊夫

Toshio Nakamura

名古屋大学宇宙地球環境研究所

### (3)研究協力者

南 雅代

Minami Masayo

名古屋大学宇宙地球環境研究所

### (4)研究協力者

中野 孝教

Takanori Nakano

早稲田大学

### (5)研究協力者

申 基澈

Ki-Cheol Shin

総合地球環境学研究所

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。