

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 1 日現在

機関番号：62611

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2016

課題番号：15K13570

研究課題名(和文) 手軽に高精度で、大気中の氷晶核の数濃度を計測できる手法の検証

研究課題名(英文) Development and evaluation of a simple but powerful method for measuring atmospheric ice nucleating particles

研究代表者

當房 豊 (TOBO, Yutaka)

国立極地研究所・研究教育系・助教

研究者番号：60572766

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円

研究成果の概要(和文)：大気中に含まれる氷晶核(氷形成能力を有するエアロゾル粒子)の存在は、極微量であっても雲の中での氷形成過程に多大な影響を及ぼす。しかし、その計測には、コスト面での問題や技術面での難しさもあって、観測データが不足している。そこで本研究では、より低コストでも行える水滴凍結法(エアロゾル粒子を含む水滴を低温ステージ上で冷却することで、それらの粒子の氷核活性を計測する手法)の開発と改良に取り組み、その結果、約 $-30$ ～ $0$ と非常に幅広い温度範囲内での氷晶核の計測に適用できる新たな実験系を確立することができた。

研究成果の概要(英文)：It is expected that the existence of ice nucleating particles (INPs) in the atmosphere has a significant impact on ice nucleation in clouds. However, because of cost issues and technical difficulties, the information on atmospheric INPs has been lacking. Here, we have tried to develop a new cold-stage-based droplet freezing technique. As a result, we could establish a new experimental system capable of measuring ice nucleating particles over a wide temperature range (about  $-30^{\circ}\text{C}$  to  $0^{\circ}\text{C}$ ).

研究分野：大気物理化学

キーワード：気象学 エアロゾル - 雲相互作用 氷晶核

### 1. 研究開始当初の背景

(1) 大気中に含まれる氷晶核（氷形成能力を有するエアロゾル粒子）の数濃度を示す観測データは非常に不足しており、そのことはエアロゾル粒子が雲形成に及ぼす影響を評価する上での非常に大きな不確定要素となっている。

(2) 氷晶核の数濃度の計測には、任意の温度と相対湿度に調整されたチャンバー内にエアロゾル粒子を注入し、その条件下で氷粒を形成したものを計測する技術がよく使われている。例えば、雲生成チャンバーや氷晶核計（Continuous Flow Diffusion Chamber）がよく知られている。ただし、それらの開発や製作には高い技術とコストを要することから、同様の装置を所有する研究機関は世界的にみてもわずか数箇所に限られている。よって、大気中の氷晶核の数濃度に関する観測データを低コストで、しかも容易に取得できる手法の開発が強く望まれていた。

(3) 低コストでしかも容易に氷晶核計測を行える方法として、「水滴凍結法（エアロゾル粒子を含む水滴を低温プレート上で冷却することで、それらの粒子の氷核活性を計測する手法）」がある。この手法を用いると、雲生成チャンバーや氷晶核計では計測できないような超低濃度状態（約1個/L未満）にある氷晶核でも計測できるという利点もある。その一方で、従来の水滴凍結法は、エアロゾル粒子を含まない水滴であっても、理論値よりもかなり高い温度で凍結し始めてしまうため、約-20以下の温度での氷晶核計測には適さないと考えられていた。

### 2. 研究の目的

(1) 手軽でありながら、非常に幅広い温度範囲での氷晶核の計測にも適用できる新しい水滴凍結法を開発する。

(2) フィルター上に捕集されたエアロゾル粒子に対して水滴凍結法を適用することにより、大気中に含まれる氷晶核の数濃度を高精度で計測できる技術の確立を目指す。

### 3. 研究の方法

(1) より幅広い温度範囲で適用できる氷晶核計測用の実験系の設計および製作に取り組む。具体的には、冷却方式や実験環境、低温プレートの素材の選定などを行う。そして、エアロゾル粒子を含まない水滴を使った凍結実験を行い、どのような工夫を加えれば、理論値よりも明らかに高い温度（-20前後）での凍結を抑制できるかを検証する。

(2) 標準エアロゾル試料を含んだ水滴を用いた凍結実験を実施することで、他の氷晶核計測装置（雲生成チャンバー、氷晶核計、他の水滴凍結法を用いた実験装置など）との比較

実験を行い、標準試料の氷核活性をどの程度の精度で計測できるかを評価する。

(3) フィルター上をろ過捕集されたエアロゾル粒子に対して、水滴凍結法を適用することによって、大気中での氷晶核の数濃度を計測できるかを検証する。

(4) もし上記の方法の有効性を確認できた場合には、雲生成チャンバーや氷晶核計といった計測技術では実現が不可能であった応用研究に取り組む。

### 4. 研究成果

(1) まずは、正確な温度制御が可能なスターリング方式の冷却装置をベースとした実験系を製作し、それから低温プレートの素材の選定に取り組んだ。従来の水滴凍結法では、疎水性のマイクロウェルプレート（Garcia et al., 2012 *J. Geophys. Res.*）やガラスプレート（Budke and Koop, 2015 *Atmos. Meas. Tech.*; Wilson et al., 2015 *Nature*）が使用されてきていたが、これらのプレート上だと、エアロゾル粒子を含まない水滴（Milli-Q）であっても、-20に達する前に凍結してしまうことが報告されていた。一方、本研究では、試行錯誤した結果、アルミ板の上にワセリンを薄く塗ったプレートを使用した場合、エアロゾル粒子を含まない水滴であれば、-30に達するまでほとんど凍結せず、理論値にかなり近い温度に達する前で凍結が起きないことを実証することに成功した（図1）。また、従来の水滴凍結法では、プレート上での結露を抑制する目的で、窒素ガスなどによるパーズングが行われていたが、本手法を用いた場合には、それらのガスによるパーズングは必ずしも必要でないことも実証した。このようにして開発されたオリジナルの実験系を CRAFT（Cryogenic Refrigerator Applied to Freezing Test）と名付けた。

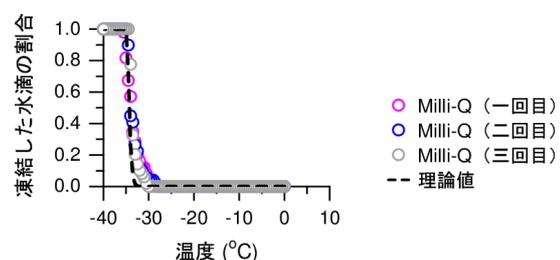


図1 エアロゾル粒子を含まない水滴（Milli-Q）が凍結する様子。各実験には、5  $\mu$ Lの体積の水滴を49個使用している。

(2) 標準エアロゾル粒子を使用し、現存する様々な氷晶核計測装置（雲生成チャンバー、氷晶核計、他の水滴凍結法を用いた実験系など）との氷核活性の計測精度の比較実験に取り組んだ。この比較実験には、標準鉱物粒子（illite-NX）と標準細菌粒子（Snomax）など

の標準試料を使用して、それらの氷核活性（単位質量あたりの試料に含まれる氷形成の場）を算出した。その結果、CRAFT を用いた凍結実験によって得られた値は、他の氷晶核計測装置によって得られた値とほぼ一致することを確認することができた。しかも、1つの計測装置だけで、約 -30 ~ 0 と非常に幅広い温度範囲での氷晶核の計測が可能なのは CRAFT のみであったため、現存する氷晶核計測装置の中では、CRAFT が最も高性能であると考えている。以上の 4-(1)と 4-(2)の研究成果をまとめた論文は、Scientific Reports 誌に発表した (Tobo, 2016 *Sci. Rep.* )

(3) 大気中のエアロゾル粒子を直径 47 nm、孔径 0.2  $\mu\text{m}$  のメンブレンフィルター上にろ過捕集した後、純水 (Milli-Q) 中に抽出し、その懸濁液からなる水滴を使った凍結実験を CRAFT にて行い、その結果から大気中の氷晶核の数濃度を算出する方法を構築した。2016年5月には、コロラド州立大学 (CSU) と共同研究によって、CSU の氷晶核計等との大気中の氷晶核の計測精度の比較実験を実施した。その結果、CRAFT と CSU の氷晶核計で得られた計測値を比較した場合、約 -20 よりも高い温度ではほぼ一致していたものの、それよりも低い温度 (-30 付近) になると、計測値にやがズレが生じる傾向にあることが確認された。この比較実験の結果については、共同研究者である CSU の Paul J. DeMott 博士らと論文にまとめており、現在、論文投稿中である (DeMott et al., 2017 *Atmos. Chem. Phys. Discuss.* )

(4) 上記の比較実験から、CRAFT を用いて大気中の氷晶核の数濃度を計測した場合、少なくとも約 -25 よりも高い温度においては、氷晶核計ともあまり差のない結果が得られることを確認することができた。そこで、大気中の氷晶核計測の実用化に向けた活動にも取り組んだ。

2016年7月と2017年3月には、北極圏に位置するスバルバル諸島のニーオルスンにて集中観測を行った。その結果、北極圏のようなクリーンな環境下であっても、CRAFT であれば、雲生成チャンバーや氷晶核計ではほとんど計測ができないくらい超低濃度状態 (約 1 個/L 未満) にある氷晶核を計測可能であることを実証することができた。

2016年8月からは、東京スカイツリーの高度 458 m 地点に開設した大気観測サイトに、自動でフィルター上へのエアロゾル粒子の捕集ができるエアロゾルサンプラーを設置した。このエアロゾルサンプラーは、72 時間毎にフィルターを自動で交換できるように設定しているため、このエアロゾル試料を使った凍結実験を CRAFT で行うことにより、世界初の試みとなる「大気中の氷晶核の通年

モニタリング」を既に開始している。

5. 主な発表論文等  
(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 3 件)

DeMott, P. J., Hill, T. C. J., Petters, M. D., Bertram, A. K., Tobo, Y., Mason, R. H., Suski, K. J., McCluskey, C. S., Levin, E. J. T., Schill, G. P., Boose, Y., Rauker, A. M., Miller, A. J., Zaragoza, J., Rocci, K., Rothfuss, N. E., Taylor, H. P., Hader, J. D., Chou, C., Huffman, J. A., Pöschl, U., Prenni, A. J. & Kreidenweis, S. M. Comparative measurements of ambient atmospheric concentrations of ice nucleating particles using multiple immersion freezing methods and a continuous flow diffusion chamber. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.* (2017), 査読無  
DOI:10.5194/acp-2017-417

Tobo, Y. An improved approach for measuring immersion freezing in large droplets over a wide temperature range, *Sci. Rep.* **6**, 32930 (2016), 査読有  
DOI:10.1038/srep32930

Hill, T. C. J., DeMott, P. J., Tobo, Y., Fröhlich-Nowoisky, J., Moffett, B. F., Franc, G. D. & Kreidenweis, S. M. Sources of organic ice nucleating particles in soils. *Atmos. Chem. Phys.* **16**, 7195-7211 (2016), 査読有  
DOI:10.5194/acp-16-7195-2016

[学会発表] (計 17 件)

Tobo, Y., Koike, M., Moteki, N., Ohata, S., Mori, T., Yoshida, A., Shiobara, M., Uetake, J., Hiranuma, N. & Pantazi, M. Introduction of the ArcticCARE-2017, Atmospheric Flagship On Site Meeting, 22 March 2017, Ny-Ålesund, Svalbard (Norway).

當房 豊. 大気中の氷晶核数濃度のモニタリング体制の構築. 2016 年度 エアロゾル・雲・降水の相互作用に関する研究集会. 2017年2月17日, 国立極地研究所(東京・立川).

Tobo, Y., Uetake, J., Uji, Y., Iwamoto, Y., Miura, K. & Misumi, R. Routine measurements of atmospheric ice nucleating particles on the Tokyo Skytree. Atmospheric Ice Nucleation Conference – Focus Meeting 9. 2017年1月17日, Leeds (UK).

當房 豊. 東京スカイツリーで捕集した大気エアロゾルの氷晶核能. 第1回 東京スカイツリー大気観測データ検討会. 2016

年 12 月 21 日, 東京理科大学 (東京・神楽坂).

Tobo, Y. & Uetake, J. Intensive measurements of ice nucleating particles at Ny-Ålesund, Svalbard, in summer 2016. 7th Symposium on Polar Science. 2 December 2016, Tachikawa, Tokyo (Japan).

當房 豊. 鉱物エアロゾル粒子の表面状態の変化: 吸湿性や氷核活性に与える影響. 気候物質科学セミナー. 2016 年 11 月 18 日, 東京大学 (東京・本郷).

當房 豊, 植竹 淳, Suski, K. J., Hill, T. C. J. & DeMott, P. J. CRAFT を用いた氷晶核の数濃度の計測: コロラド高原での事例. 日本気象学会 2016 年度秋季大会. 2016 年 10 月 26 日, 名古屋大学 (愛知・名古屋).

Tobo, Y., Nagatsuka, N. & Uetake, J. Evaluation of the immersion freezing behaviors of dust collected in northwest Greenland. 17th International Conference on Clouds & Precipitation. 26 July 2016, Manchester (UK).

當房 豊. 土壌起源の有機エアロゾルとその氷晶核としての役割. 有機エアロゾルに関するワークショップ: 大気におけるその動態・性状・役割 (第 2 回). 2016 年 3 月 1 日, 秋葉原 UDX (東京・秋葉原).

當房 豊. 氷晶核濃度のパラメタリゼーション化に関する取り組み. エアロゾル-雲相互作用について語らう会. 2016 年 2 月 26 日, 国立極地研究所 (東京・立川).

Tobo, Y., Potential importance of biogenic ice nucleating particles. DEGCR-Atmosphere Seminar, Yokohama (Japan).

當房 豊. バイオエアロゾル・氷晶核の調査研究: ロッキー山脈の森林地帯での事例. 第九回「放射性物質の大気沈着・拡散過程および陸面相互作用の理解」. 2015 年 12 月 9 日, 気象研究所 (茨城・つくば).

Tobo, Y., Nagatsuka, N. & Uetake, J. Investigation of the ice nucleation properties of dust collected in northwest Greenland. 6th Symposium on Polar Science. 16 November 2015, Tachikawa, Tokyo (Japan).

當房 豊. コールドプレート実験に基づいた氷晶核計測法の評価. 日本気象学会 2015 年度秋季大会. 2015 年 10 月 27 日, 京都テルサ (京都).

當房 豊. 氷形成を誘発するバイオエアロ

ゾル粒子. 雪氷化学分科会. 2015 年 9 月 14 日, 信州大学 (長野・松本).

Tobo, Y., Hill, T. C. J. & DeMott, P. J. Can soil organic matter particles affect atmospheric ice nucleation? 9th Asia Aerosol Conference. 27 June 2015, Kanazawa, Ishikawa (Japan).

Tobo, Y. Challenges in understanding the impact of aerosols on atmospheric ice nucleation. Aerosol analyses by early career researcher in Asia ~Pre-event for 9th Asian Aerosol Conference~. 23 June 2015, Kanazawa, Tokyo (Japan).

[ その他 ]

ホームページ等

<http://researchmap.jp/yutaka.tobo/>

<http://www.researcherid.com/rid/D-9158-2013>

## 6 . 研究組織

### (1) 研究代表者

當房 豊 ( TOBO, Yutaka )

国立極地研究所・研究教育系・助教

研究者番号 : 6 0 5 7 2 7 6 6

### (2) 研究分担者

塩原 匡貴 ( SHIOBARA, Masataka )

国立極地研究所・国際北極環境研究センター・准教授

研究者番号 : 6 0 2 9 1 8 8 7

### (3) 連携研究者

平沢 尚彦 ( HIRASAWA, Naohiko )

国立極地研究所・研究教育系・助教

研究者番号 : 1 0 2 7 0 4 2 2

小林 拓 ( KOBAYASHI, Hiroshi )

山梨大学・大学院総合研究部・准教授

研究者番号 : 2 0 3 1 3 7 8 6

田尻 拓也 ( TAJIRI, Takuya )

気象庁気象研究所・予報研究部・主任研究官

研究者番号 : 4 0 4 1 4 5 1 0

### (4) 研究協力者

平沼 成基 ( HIRANUMA, Naruki )

West Texas A&M University・Department of Life, Earth and Environmental Sciences・Assistant Professor

Paul J. DeMott ( DEMOTT, Paul J. )

Colorado State University・Department of Atmospheric Science・Senior Research Scientist