

令和元年6月21日現在

機関番号：17301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2018

課題番号：16K12581

研究課題名（和文）オープンパス超長光路吸収分光法を用いたエアロゾルおよび雲粒計測装置の開発と応用

研究課題名（英文）Development and application of aerosol and cloud particle measurement instrument based on open-path cavity ring-down spectroscopy

研究代表者

中山 智喜（NAKAYAMA, Tomoki）

長崎大学・水産・環境科学総合研究科（環境）・准教授

研究者番号：40377784

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）：キャビティリングダウン分光法を用いたオープンパスタイプのエアロゾル消散係数計測装置を新規に開発して、性能評価試験を実施した。粒子を除去した条件での連続測定や、実大気粒子の試験測定などを実施し、開発した装置が実大気の相対湿度環境下でエアロゾル消散係数のリアルタイム直接観測に適用可能であることを示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で開発したオープンパスタイプのエアロゾル消散係数計測装置を用いた実大気観測研究を進めることで、エアロゾル粒子が吸湿成長して太陽光の光散乱量が増加する程度や、吸湿成長に伴い雲粒を生成する過程に関する知見が得られると考えられる。その結果、エアロゾル粒子が気候や大気環境に及ぼす影響に関する、より詳細な理解が得られると期待される。

研究成果の概要（英文）：A new instrument based on open-path cavity ring-down spectroscopy to measure aerosol extinction coefficients was developed. Performance of this instrument was evaluated by conducting continuous background measurements of particle free air and ambient particle measurements. As results, this instrument was found to measure the extinction coefficient of aerosol particles in the atmosphere under ambient relative humidity conditions with enough accuracy and precision.

研究分野：大気環境科学

キーワード：環境変動 気候変動 環境分析

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

1. 研究開始当初の背景

大気中には、様々な微粒子(エアロゾル)が存在しているが、多くの放出・生成や沈着・除去過程が存在し、また大気中での変質により、その性質が時々刻々と変化することから、その動態については未解明な点が多い。大気エアロゾルは太陽光を吸収もしくは散乱することにより、地球大気を直接加熱もしくは冷却するが、エアロゾルが高湿度環境下で吸湿成長し粒径が大きくなると、冷却効果が増大すると考えられる。また、エアロゾルの数や性質によって、生成する雲粒の数や大きさが変化し、結果的に雲のアルベドや寿命を変化させることで、放射収支や降水過程を変化させ、気候変動や環境変動に影響を及ぼす可能性がある。しかし、従来用いられているセル内に粒子を引き込んで、その散乱係数や消散係数を計測する装置では、サンプリングチューブおよびセルの壁面の影響や、外気温と室温の違いなどにより、相対湿度が変化してしまい、相対湿度 100%に近い高湿度環境下など、実際の大気の下で直接観測することはできなかった。

2. 研究の目的

本研究では、超長光路吸収分光法であるキャビティリングダウン分光(CRDS)法を用いたオープンパスタイプの消散係数計測装置を新規に開発して、性能評価試験を実施することにより、開発した装置がエアロゾル粒子の吸湿成長・雲粒生成過程などのリアルタイム直接観測に適用可能であることを実証し、その有用性を示すことを目指した。

3. 研究の方法

CRDS 法を用いたオープンパスタイプの消散係数計測装置を設計し、プロトタイプ機を製作した。オープンパス CRDS 装置では、粒子の検知部分である光学キャビティを屋外に置く必要があるため、降水など悪天候条件下でも測定が可能な設計にした。また、エアロゾルや風雨による高反射率ミラーの反射率低下などの影響を避けるために、高反射率ミラーの周囲にパージガスを低流量で流せるようにするとともに、高反射率ミラーと周囲の光学系を覆うように雨よけ用のボックスを設置した。

オープンパス CRDS 装置では、粒子のあり・なしで、光学キャビティから漏れ出したレーザー光の減衰時定数を測定することで、消散係数を決定する。そこで、粒子のない条件下でのバックグラウンド計測を定期的かつ自動的に実施することが可能となるように、筒状のカバーが移動する自動開閉システムを設計し、機械的な動作試験を実施した。しかしながら、筒状のカバーのひずみや動作時の軸の不安定性の影響が無視できず、結果として、スムーズな開閉が困難であると判断された。そのため、装置全体を覆う直方体のカバーの中央部分に窓を設置して、開閉を行うように設計を変更し、光学キャビティを地面に対して垂直方向に設置するタイプの改良型のプロトタイプ機を製作した。レーザー光源および光学キャビティ、ピンホール、光学フィルター、光検出器の設置位置や光学調整を行い、消散係数の測定を行うことが可能であることを確認した。

エアロゾル消散係数が高精度かつ高時間分解で測定できるか確認するため、実大気粒子および実験室で発生させた硫酸アンモニウム粒子を用いた性能評価試験を行なった。また、どの程度の時間間隔で粒子を除去したバックグラウンド計測を行う必要があるか調べるため、粒子なしでの計測を連続して行なった。さらに、実際の空気エアロゾル粒子を測定し、得られた消散係数を小型の PM2.5 計測器で得られた PM2.5 重量濃度と比較した。

4. 研究成果

本研究で開発したオープンパス CRDS 装置の外観を図 1 に、構成の概略を図 2 に示した。

光源には 405 nm の半導体レーザーを用いた。波形発生器を用いてレーザー電源を制御することで、レーザーの出力を 200 Hz の繰り返し周波数で ON/OFF (変調) した。絞りをを用いて切り出したレーザービームを、2 枚の高反射率ミラー (反射率 99.9% 以上) で構成される光学キャビティに導入した。大気中のエアロゾル粒子や気体成分の付着等による、高反射率ミラーの反射率低下を防ぐため、小流量 (10 cm³/min 程度) の合成空気をパージガスとして流した。光学キャビティから漏れ出した光を光検出器でモニターした。

漏れ出した光の強度の時間変化を指数関数でフィッティングすることで、リングダウン速度を求めた。装置上部に設置した粒子除去用の HEPA フィルター付ファンを運転して、キャビティ

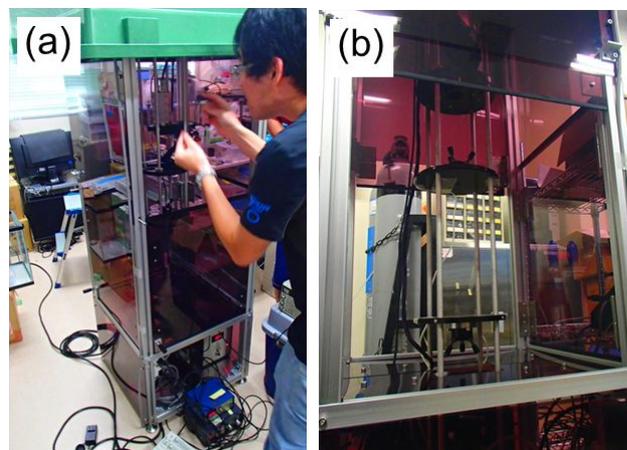


図 1 開発したオープンパス CRDS 装置の外観
(a: 装置全体、b: 光学キャビティ部分)

内に粒子が存在しない場合と、粒子が存在する場合のリングダウン速度の変化から、エアロゾルの消散係数を求めた。本装置では連続発振レーザーを変調して用いることで、高い繰り返しでのデータ取得を実現し、6 Hz 程度の時間分解能で、実大気濃度レベルの粒子の消散係数を測定できることが確認できた。

どの程度の時間間隔でバックグラウンド計測を行う必要があるか調べるために、HEPA フィルター付ファンを7日間、連続稼働させ、粒子がない条件での計測を行なった。得られたリングダウン速度の時間変化を図3に示した。リングダウン速度のドリフトは、1日あたり $1.3 \times 10^{-6} \text{ m}^{-1}$ 程度であり、通常の観測環境においては、1 から数日程度毎にバックグラウンド測定を実施することで、実大気粒子の消散係数が測定できることが判明した。

小型PM2.5計測器をオープンパスCRDS装置の内部に設置して、エアロゾル消散係数との同時観測を行い、PM2.5重量濃度と消散係数の比較をした。小型PM2.5計測器は、パナソニックと共同で開発したセンサを内蔵した装置を用いた。本PM2.5センサによる測定値は、ベータ線吸収法などの大型の標準計測器に対して、高い相関を示すことが確認できている。

得られたリングダウン速度およびPM2.5重量濃度の時間変化を図4に、リングダウン速度から導出した消散係数とPM2.5重量濃度の相関プロットを図5に示した。観測の期間中、1から2日ごとに、HEPA フィルター付ファンを稼働して、バックグラウンド測定を行なった(図4の破線の丸)。その結果、両者は、ほぼ同様の時間変化を示し、得られた消散係数とPM2.5重量濃度相関係数(R^2)は0.849であった。図5の相関プロットにおける傾きは、粒子の質量消散断面積に相当するが、本研究により得られた質量消散断面積 $6.74 \text{ m}^2/\text{g}$ は、過去に報告された値と整合的であった。これらの結果から、本研究で開発した装置が、実大気のエアロゾル消散係数の測定に応用可能であることが示された。

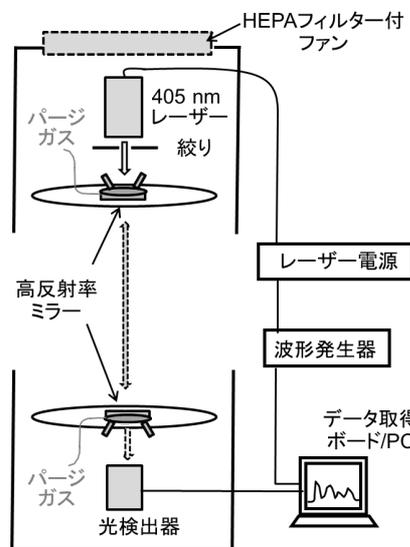


図2 開発したオープンパス CRDS 装置の構成

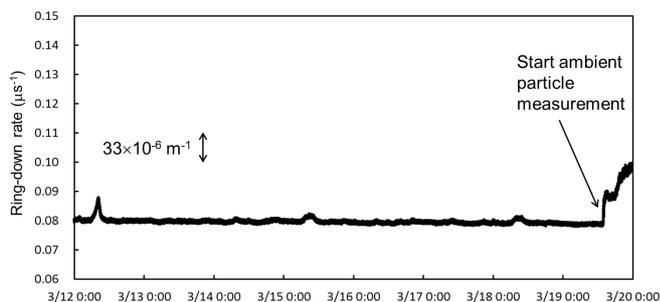


図3 粒子なしでのリングダウン速度の測定例 (図の両矢印が消散係数 $33 \times 10^{-6} \text{ m}^{-1}$ に相当する)

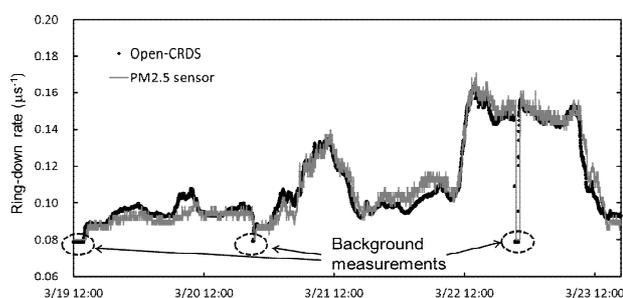


図4 実大気粒子測定時のリングダウン速度とPM2.5の重量濃度の時間変化

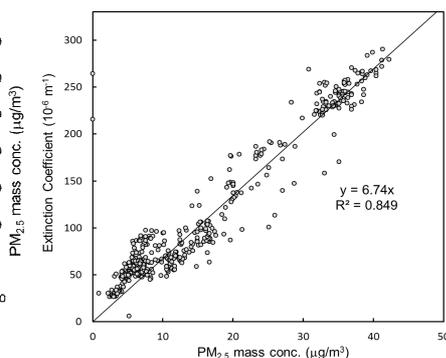


図5 実大気中のエアロゾル消散係数とPM2.5の重量濃度の相関プロット

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計4件)

T. Nakayama, K. Sato, T. Imamura, Y. Matsumi, Effect of oxidation process on complex refractive index of secondary organic aerosol generated from isoprene, Environmental Science & Technology, 52, 2566-2574, doi: 10.1021/acs.est.7b05852 (2018). 査読有
 T. Nakayama, Y. Matsumi, K. Kawahito, Y. Watabe, Development and evaluation of a palm-sized optical PM2.5 sensor, Aerosol Science and Technology, 52, 2-12, doi:10.1080/02786826.2017.1375078 (2018). 査読有

B. -T. Ly, Y. Matsumi, T. Nakayama, Y. Sakamoto, Y. Kajii, D. T. Nghiem, Characterizing PM2.5 in Hanoi with new high temporal resolution sensor, *Aerosol and Air Quality Research*, 18, 2487-2497, doi:10.4209/aaqr.2017.10.0435 (2018). 査読有
T. Nakayama, Y. Kuruma, Y. Matsumi, Y. Morino, K. Sato, H. Tsurumaru, S. Ramasamy, Y. Sakamoto, S. Kato, Y. Miyazaki, T. Mochizuki, K. Kawamura, Y. Sadanaga, Y. Nakashima, K. Matsuda, Y. Kajii, Missing ozone-induced potential aerosol formation in a suburban deciduous forest, *Atmospheric Environment*, 171, 91-97, doi:10.1016/j.atmosenv.2017.10.014 (2017). 査読有

〔学会発表〕(計 16 件)

T. Nakayama, Y. Matsumi, Laboratory and observational studies on optical properties of carbonaceous particles, *Symposium on Frontiers of Atmospheric Aerosol Studies: Toward the Understanding of the Health and Climatic Effects*, 2018

Y. Matsumi, T. Nakayama, Development and applications of a palm-sized optical PM2.5 sensor: Personal exposure measurements and installation in Asian countries, *Symposium on Frontiers of Atmospheric Aerosol Studies: Toward the Understanding of the Health and Climatic Effects*, 2018

T. Nakayama, Application of Spectroscopic Techniques for the Characterization of Atmospheric Particulate Matters, *The 40th Progress In Electromagnetics Research Symposium (PIERS)*, 2018

中山智喜、エアロゾル粒子の光学特性のその場計測の現状と課題、第 59 回大気環境学会年会、2018

中山智喜、ブラックおよびブラウンカーボン粒子の光学特性の実験および観測研究、2018

T. Nakayama, Y. Matsumi, Development and Application of a New Palm-Sized Optical PM2.5 Sensor, 2018 International Aerosol Conference (IAC2018), 2018

T. Nakayama, K. Sato, T. Imamura, Y. Matsumi, Effect of oxidation process on optical properties of secondary organic aerosol generated from isoprene, 33rd Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics, 2017

中山智喜、車裕輝、松見豊、森野悠、佐藤圭、鶴丸央、R. Sathiyamurthi、坂本陽介、加藤俊吾、宮崎雄三、望月智貴、河村公隆、定永靖宗、中嶋吉弘、松田和秀、梶井克純、東京多摩丘陵における実大気へのオゾン添加による二次粒子生成の観測：エアロゾル生成モデル計算との比較、東京多摩丘陵における実大気へのオゾン添加による二次粒子生成の観測：エアロゾル生成モデル計算との比較、第 34 回エアロゾル科学・技術研究討論会、2017 年

中山智喜、車裕輝、松見豊、森野悠、佐藤圭、鶴丸央、R. Sathiyamurthi、坂本陽介、加藤俊吾、宮崎雄三、望月智貴、河村公隆、定永靖宗、中嶋吉弘、松田和秀、梶井克純、都市近郊森林における実大気へのオゾン添加による二次粒子生成の観測：未知の SOA 生成過程の存在、第 23 回大気化学討論会、2017 年

中川真秀、中山智喜、笹子宏史、車裕輝、矢井ひかり、小川修平、鄧彦閣、持田 陸宏、松見豊、夏季名古屋における単一粒子光散乱角度分布の観測：エアロゾルの球形度・混合状態の推定と化学成分との比較、第 34 回エアロゾル科学・技術研究討論会、2017 年

M. Nakagawa, H. Sasago, T. Nakayama, S. Ueda, Y. Matsumi, Development and performance of a PM2.5 single particle polar nephelometer: Estimation of components of individual particles from their optical properties, *ImpACT International Symposium on InSECT 2016*, 2016

中山智喜、有機エアロゾルの光学特性の研究、北大低温研研究集会「有機エアロゾルに関する大気化学的研究：組成、起源、および、光化学的変質」、2016 年

中川真秀、中山智喜、笹子宏史、車裕輝、矢井ひかり、小川修平、鄧彦閣、持田 陸宏、松見豊、開発したエアロゾル散乱全角度分布同時計測装置を用いた実大気粒子の測定 - 散乱角度分布と化学組成の比較 -、日本地球惑星科学連合 2016 年大会、2016 年

中川真秀、中山智喜、松見豊、エアロゾル光散乱全角度分布計測装置の開発と性能評価 - 大気中のサブミクロンの単一粒子による光散乱角度分布測定 -、第 33 回エアロゾル科学・技術研究討論会、2016 年

中川真秀、中山智喜、笹子宏史、車裕輝、矢井ひかり、小川修平、鄧彦閣、持田 陸宏、松見豊、エアロゾル散乱全角度分布同時計測装置で測定した光学特性と化学成分の関連、第 22 回大気化学討論会、2016 年

中川真秀、中山智喜、笹子宏史、上田紗也子、D. S. Venables、松見豊、単一粒子の光散乱全角度分布計測装置の開発と性能評価 - エアロゾル粒子による放射影響推定の不確実性の低減のために -、日本気象学会 2016 年度秋季大会、2016 年

〔図書〕(計 1 件)

中山智喜 他、朝倉書店、低温の科学辞典、2016 年、411(40-41)

6 . 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名：松見 豊

ローマ字氏名：(MATSUMI, Yutaka)

所属研究機関名：名古屋大学

部局名：宇宙地球環境研究所

職名：研究員

研究者番号 (8 桁): 30209605

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。