

令和 6 年 6 月 9 日現在

機関番号： 22604

研究種目： 国際共同研究加速基金（国際共同研究強化(A））

研究期間： 2019～2023

課題番号： 19KK0289

研究課題名（和文）大気・海洋の微粒子観測への実用化と国際共同広域観測のための基盤形成

研究課題名（英文）Building the Foundation for Practical Utilization and International Cooperative Wide-Area Observation of Atmospheric and Oceanic Microparticles

研究代表者

茂木 信宏（Moteki, Nobuhiro）

東京都立大学・理学研究科・准教授

研究者番号： 20507818

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 11,700,000円

渡航期間： 12ヶ月

研究成果の概要（和文）：渡航先研究機関の研究者・技術者と協力し、液相中または気相中に分散する微粒子の汎用分析法である「複素散乱振幅センシング法」に対して以下の2点の改良を施した。（1）直交する2つの偏光成分ごとに複素散乱振幅を検出する光学系・検出器を設計・開発した。この改良により、粒子の非球形度の情報を得ることが可能となり鉱物ダスト等の環境中の粒子種の判別能力が大きく向上した。（2）前方散乱波の検出と同時に、後方散乱波を低コヒーレンスマイケルソン干渉計で検出するシステムを開発した。この技術により、液相中だけでなく気相中の粒子についても各偏光の複素散乱振幅を±5%の誤差で測定することが可能となった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で開発した微粒子分析法は、試料の前処理が要らないため、大気や海水をそのまま導入して連続的に測定することができる。今後、地球環境問題に関わる大気・海洋中の多種多様な汚染微粒子の広域観測への応用が期待される。また、試料の汚染や破壊をすることがない分析法であるため、他の分析装置と組み合わせた複合分析や、血液など生体試料の計測にも利用できる。産業利用が急速に広まっている水中の微小気泡（ファインバブル）についても、他の不純物粒子と区別した正確な測定が初めて可能となる。本研究で開発した汎用粒子分析法は、今後、環境動態解析・産業技術・医療技術などに応用されていくことが期待される。

研究成果の概要（英文）：Working in collaboration with researchers and technicians from the destination research institution, we made two improvements to the "Complex Scattering Amplitude Sensing Method," a versatile analysis technique for dispersed particles in either liquid or gas phases. Firstly, we designed and developed an optical system and detector capable of detecting complex scattering amplitudes for two orthogonal polarization components. This enhancement allows for the retrieval of information on particle non-sphericity, leading to a significant improvement in the discrimination capability of particle types in environments such as mineral dust. Secondly, we developed a system to detect forward scattering waves while simultaneously detecting backward scattering waves using a low-coherence Michelson interferometer. With this technology, it became possible to measure the complex scattering amplitudes for each polarization with an error margin of ±5%.

研究分野： 大気化学

キーワード： エアロゾル 海洋微粒子 光散乱 観測装置

## 様式 F - 19 - 2

### 1. 研究開始当初の背景

大気・海洋・雪氷中には、数ナノから数マイクロ・メートルの微粒子が数多く存在し、気候や物質循環に重要な役割を果たしている。研究代表者は、水試料中の個々の微粒子の複素屈折率（実部・虚部）と体積を実時間測定できる新たな技術「複素散乱振幅センシング（CAS）法」を開発し、測定装置とデータ解析法全体を開発してきた（Moteki 2020, Moteki 2021）。ただし、大気・海洋中には多種多様な組成・形状・粒径分布をもつ微粒子が共存しているため、それらを互いに判別したうえで各々の粒子種を定量することは従来のCAS法では困難であった。

特に、気候変動科学における重要物質である燃焼起源の黒色炭素粒子や砂漠起源の鉱物ダスト粒子は、非揮発性・不溶性であるため、質量分析やイオンクロマトグラフィー等の既存の汎用化学分析法をもちいた実時間連続観測が困難であり、固体粒子そのままの状態での物性・粒径の情報が取得できるCAS法が有効だと期待された。しかし従来のCAS法は、複素屈折率の情報と粒子形状の情報が測定において縮退する問題を抱えており、複数の粒子種が共存する環境中の流体試料において、鉱物ダストや黒色炭素を確実に判別して定量することが困難であった。また、従来のCAS法は液中粒子にのみ適用でき、気相中の粒子には適用できないという制限があった。大気・海洋・雪氷中の試料のいずれにも適用でき、鉱物ダストや黒色炭素等の粒子の粒径別数濃度を自動的に測定できるような改良が必要とされていた。

### 2. 研究の目的

本研究では、世界に先駆けて開発された汎用微粒子測定技術CASを、実際の大気微粒子や海洋微粒子の測定に適用するための基礎固めをする。特に、環境中の主要な粒子種のうち、他の既存の分析法では自動連続測定が困難な、鉱物ダストと黒色炭素を判別・定量できるようにすることを目指す。さらに、液相中だけでなく気相中の粒子にも適用できるようにCASを改良する。そのために、大気・海洋の微粒子分析法の開発と観測研究で世界をリードしている米国海洋大気庁（National Oceanic and Atmospheric Administration: NOAA）の地球システム研究所（Earth System Research Laboratory, ESRL）に1年間滞在し、CASの粒子種判別能・定量能を高めるための改良を施す。今後10年間の大気・海洋の物質観測を担う重要な観測手法として確立することを目指す。

### 3. 研究の方法

液相中（例：海水）や気相中（例：大気）に分散する未知の粒子群の中から鉱物ダスト粒子や黒色炭素粒子を選択的に検出して定量できるようにするため、CAS法に以下の二つの機能の追加を施す。（1）直交する2つの偏光成分ごとに前方散乱波の複素散乱振幅を検出する光学系・検出器を設計・開発する。この機能により、鉱物ダスト粒子の非球形度の情報を得ることが可能となり、粒子種の判別能力が大きく向上すると期待される。（2）従来のCASでは必須であったマイクロ流路フローセルを使うことなくビーム中を横断する粒子の光軸方向の位置を正確に知ることが可能にする。この改良によりマイクロ流路に流すことができない気体試料中の粒子についてもCAS法による定量が可能になる。

### 4. 研究成果

粒子への入射ビームを円偏光として、前方散乱波と入射ビーム波の干渉の検出を、直交する2つの偏光成分について独立に行うことで、粒子形状の情報を得られるようにした。非球形度を判別指標とすることで、鉱物ダストとそれ以外の粒子種の明確な判別が可能になった（図1）。

CAS法により個別粒子の複素散乱振幅を定量するためには、散乱波を励起するビームを横断している粒子の光軸に沿う座標( $z_p$ )を $\pm 20 \mu\text{m}$ 以内の誤差で知る必要がある(Moteki 2021)。そのため、マイクロ流路が使えない気相分散粒子についてもビーム横断中の $z_p$ 座標を正確に決定できる要素技術が必要であった。研究代表者は、散乱波の励起のために低コヒーレンス光源であるスーパーluminescentダイオード(SLD)を用い、さらにマイケルソン干渉計と特製の光検出器により、個々の粒子の後方散乱波と基準ビーム波との干渉成分を検出することでこれを実現した。この干渉信号から、光源のコヒーレンス長以内の誤差で後方散乱の波源位置である $z_p$ を決定できることを示した。この単一粒子の位置検出技術を用いることで、マイクロ流路フローセルを用いずにビームを横断させている気相中の粒子についても、複素散乱振幅を高精度で測定できることを実証した（図2）。

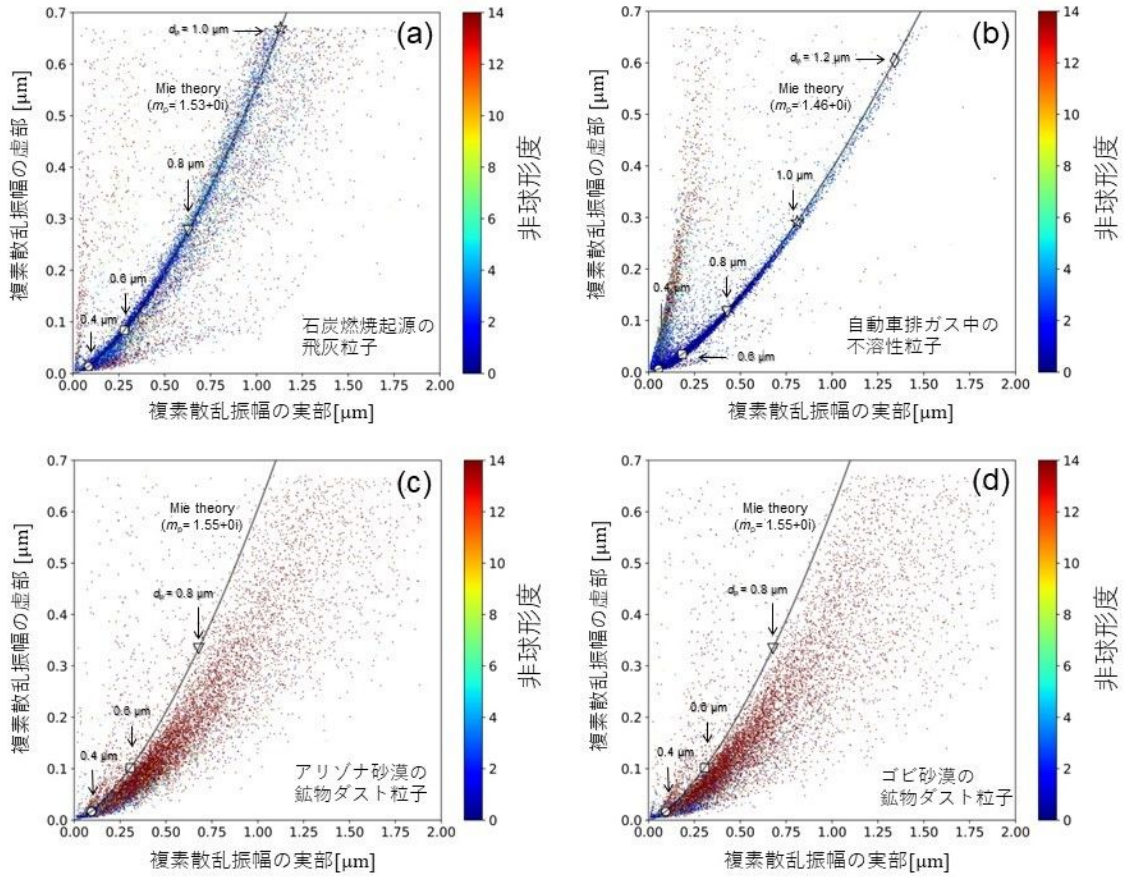


図 1: 改良後の CAS により測定した各種環境粒子試料 (水に分散させた状態) の単一粒子データ点群。各偏光成分の複素散乱振幅の実部・虚部の平均値 (横軸・縦軸) の散布図を、2 つの偏光成分の強度差から算出した非球形度で色付けしたもの。非球形度が 4 を超えると 99% 以上の確率で球形でない。図中の曲線は形状を球形と仮定・屈折率を表記の値に仮定したときの複素散乱振幅の理論曲線。球形に近い粒子はこれらの理論曲線に沿う傾向を示す。

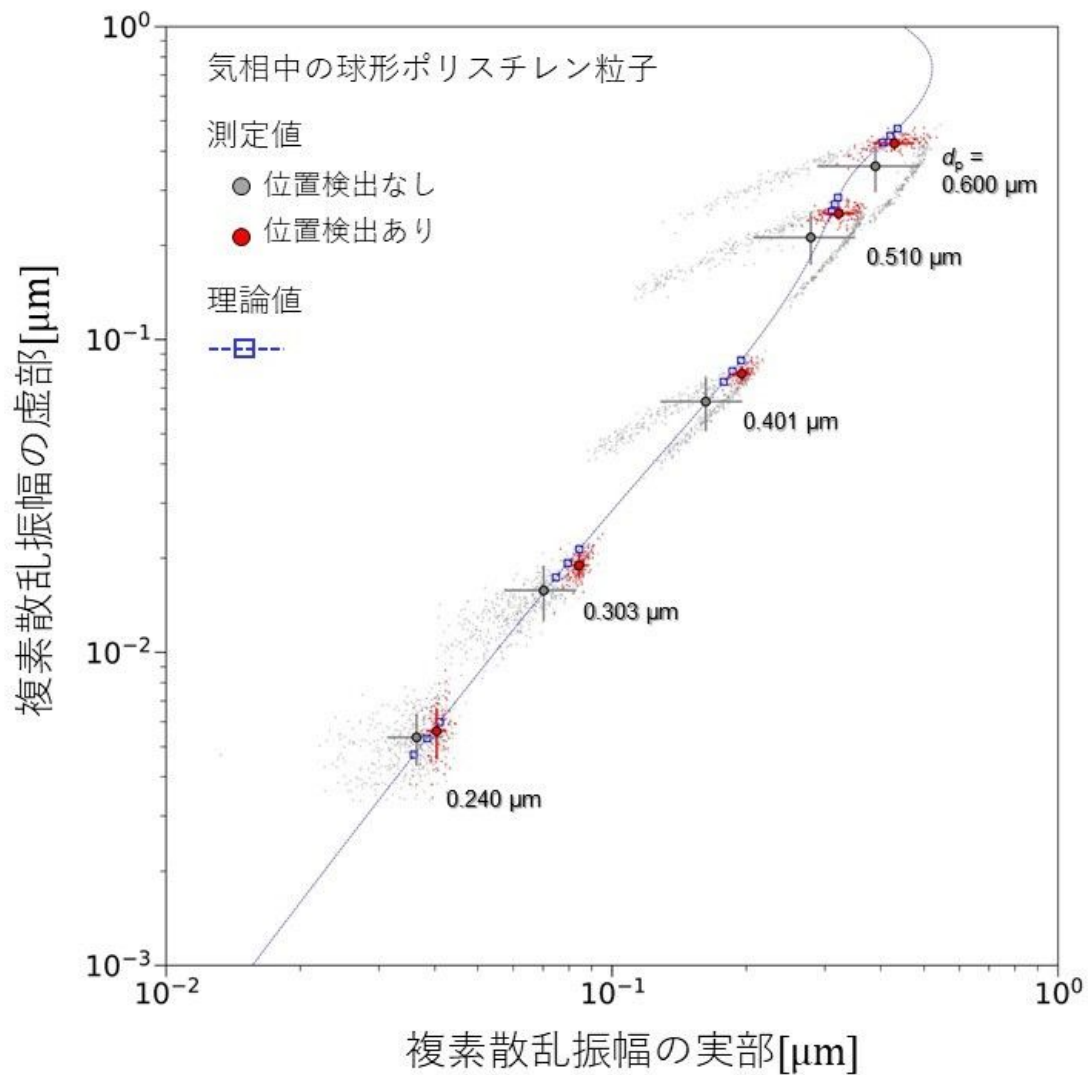


図2：改良後のCASにより測定した球形ポリスチレン粒子（気相中）の単一粒子データ点群。気相中ではマイクロ流路フローセルを用いることができないため、ビームを横断するサンプル流の太さは1mm程度の幅に広がりをもつ。そのため、本研究で新たに発明した単一粒子の位置検出技術を用いない場合、個々の粒子の光軸上の位置座標のばらつきのためデータ点群は広く分散してしまう（灰色）。位置検出技術を用いることでビーム横断中の光軸上の位置がビームウエストから $\pm 10 \mu\text{m}$ 以内の距離にある粒子のみを解析対象として選出することができ、複素散乱振幅の測定精度は格段に向上する。位置検出ありの測定値（赤色）は理論値（青色）と良い一致を示す。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Moteki Nobuhiro	4. 巻 10
2. 論文標題 Climate-relevant properties of black carbon aerosols revealed by in situ measurements: a review	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Progress in Earth and Planetary Science	6. 最初と最後の頁 1
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1186/s40645-023-00544-4	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 -
1. 著者名 Moteki Nobuhiro, Ohata Sho, Yoshida Atsushi, Adachi Kouji	4. 巻 1
2. 論文標題 Constraining the complex refractive index of black carbon particles using the complex forward-scattering amplitude	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Aerosol Science and Technology	6. 最初と最後の頁 1~21
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1080/02786826.2023.2202243	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 -
1. 著者名 Moteki Nobuhiro	4. 巻 29
2. 論文標題 Measuring the complex forward-scattering amplitude of single particles by self-reference interferometry: CAS-v1 protocol	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 20688~20688
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/OE.423175	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 -
1. 著者名 Yoshida Atsushi, Moteki Nobuhiro, Adachi Kouji	4. 巻 Online
2. 論文標題 Identification and particle sizing of submicron mineral dust by using complex forward-scattering amplitude data	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Aerosol Science and Technology	6. 最初と最後の頁 1~14
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1080/02786826.2022.2057839	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 N. Moteki, S. Ohata, A. Yoshida, K. Adachi
2. 発表標題 Constraining the complex refractive index of black carbon and light-absorbing iron oxides according to their complex forward-scattering amplitude at 633 nm wavelength
3. 学会等名 AGU fall meeting 2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 N. Moteki and K. Adachi
2. 発表標題 A polarization-resolved sensor of complex forward-scattering amplitude for inline measurements of mineral dust and other particles
3. 学会等名 AGU fall meeting 2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計1件

産業財産権の名称 微粒子識別装置及び微粒子識別方法	発明者 茂木信宏	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、2021-078102	出願年 2021年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔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
シュワルツ ジョーシュア  (Schwarz Joshua)	米国海洋大気庁・化学研究所・上席研究員	

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			
米国	NOAA ESRL			