

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 9 日現在

機関番号：82109

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2014

課題番号：25740008

研究課題名(和文) ナノスケール特性の分析から挑む有機エアロゾルの地球気候への影響

研究課題名(英文) Influence of organic aerosol on the global climate revealed by nano-scale analyses

研究代表者

足立 光司 (ADACHI, KOUJI)

気象庁気象研究所・その他部局等・主任研究官

研究者番号：90630814

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：有機エアロゾルは数百ナノメートルの小さな粒子であるが、その表面・内部で複雑な物理化学反応を行い、最終的に地球気候に大きな影響をもたらす。本研究では、その性質を電子顕微鏡を使った解明を試みた。様々な環境から得られた試料を、新たに開発した分析手法で解析した結果、有機エアロゾルの粘性、揮発性、組成などに新たな知見をもたらした。特に、一部の有機エアロゾルが従来より低揮発の固体で存在することが確認された。

研究成果の概要(英文)：Organic aerosol, which is tiny particles with several hundred nanometers, has chemical and physical reactions on its surface and inside and influences the global climate. This study aims to investigate these properties using electron microscopy. The technique developed in this study reveals viscosity, volatility, and compositions of organic aerosols collected from various environments. Especially, I found that some organic aerosols are solid and have less volatility than that in previous estimation.

研究分野：環境科学

キーワード：エアロゾル 有機物 大気 電子顕微鏡 ナノテクノロジー 揮発性 粘性 化学組成

1. 研究開始当初の背景

有機エアロゾル（有機成分からなる浮遊粒子）は 1 μ m 以下の大気浮遊粒子の 20-90 重量%（地球大気中に約 34Tg 存在）を占め、気候に大きな影響がある（Zhang, 2007, Geophys. Res. Lett.）。特に、有機エアロゾルの一部は太陽光を吸収し（Alexander, et al., 2008, Science）また、雲の生成を促進させることで、地球気候に正負反対の放射強制力（温暖化・寒冷化）という複雑かつ重要な影響を与える（下図）。しかし、IPCC 報告書（2007）でまとめられているように、有機エアロゾルの気候影響を正確に理解することは非常に困難な課題である。有機エアロゾルの大気中での挙動の解明されていない主な問題点を以下にあげる。

(1) 光化学反応などと連動して気体・液体・固体と相変化し（揮発性の変化）その存在量が正確に求められない（Robinson et al., 2007, Science）。

(2) すすなどの既存粒子表面での化学と表面物理反応の両方を考慮した生成・成長メカニズムが十分理解されていない（Adachi et al., 2010, J. Geophys. Res.）。

(3) 有機エアロゾルが酸化していくことで低揮発性に変化するプロセス（Jimenez, 2009, Science）の個別粒子単位での進行が謎である。

(4) 有機エアロゾルの他の粒子へのコーティング（Adachi et al., 2010, J. Geophys. Res.）や変質プロセスのタイムスケールが不明である。

そのため、室内実験結果から推定される大気有機エアロゾル量の計算が実際の野外観測における存在量の約 1/10 程度しか再現できておらず（Volkamer et al., 2006, Geophys. Res. Lett.）。現在の主要な気候モデルでは有機エアロゾルの実際の影響はほとんど考慮できていない。

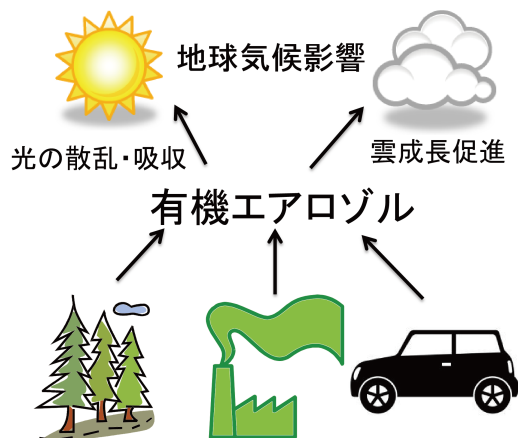


図1 有機エアロゾルの発生と気候影響

2. 研究の目的

本研究は地球気候に大きな影響を持ち、その性質が謎に包まれた大気中の有機エアロゾルのナノスケール特性を明らかにして、その気候影響を理解することを目的とする。特に、電子顕微鏡を使って有機エアロゾルの組成、形態、他の粒子との混合状態、酸化状態、揮発性を個別粒子単位で分析し、大気中における変質過程（エイジング）を解明する。本研究は、電子顕微鏡の先端機能を有機エアロゾルに世界で初めて応用する。波及効果として、気候予測や温室効果気体の気候影響見積もりなどを行う際に大きな不確定要因であった有機エアロゾルの影響評価がより確実になり、地球気候予測や人為エアロゾル・ガス排出抑制の気候影響評価の高精度化が達成できる。

課題 1. 試料採取：日本各地や北南米において、異なるエイジング程度を持つ試料を採取し、また標準粒子を作成する。

課題 2. 分析：電子顕微鏡を用いて、個別有機エアロゾル試料の特性を分析する。

課題 3. データ考察：結果を解析し、大気化学反応との関係を考察する。

課題 4. モデル・論文化：本研究結果から、有機エアロゾルの変質メカニズムモデルを提唱し、研究協力者とともにモデル精度向上に取り組み、その成果を論文として公表する。

3. 研究の方法

本研究では野外大気から採取した試料や標準試料中の有機エアロゾル組成・形態・混合状態・酸化状態・揮発性などの分析を行い、その変質過程の解明に取り組む。

(1) 試料採取

米国ワシントン州で取得した試料（バイオマス燃焼エアロゾルを対象としたプロジェクト）

ブラジル・アマゾン地方で取得した試料（GoAmazon Project）

和歌山森林域で取得した試料

西日本（沖縄や九州）北海道・東北上空で取得した試料（航空機サンプリングで取得）

ヨーロッパ上空や中国で得られた試料

東京都内で得られた試料

つくばで得られた試料など

(2) 分析

本研究では、野外で採取された試料と実験室内でのアトマイザーなどを用いて作成された標準試料に対し、以下の実験を行う。

自動多点粒子組成分析を用いた組成や形態などの情報から有機エアロゾルの分類を行う。

有機エアロゾルと他の粒子（すすなど）との混合状態を画像解析し、既存粒子表面にお

ける有機エアロゾルの成長を観測する。

個別有機エアロゾル粒子に対して、その酸素・炭素分布を定量的に測定し、粒子表面から内部にかけて酸化程度の変化を解析する。

試料温度を上昇させることによる有機成分の揮発程度を画像解析で定量評価し、特定の温度に対する有機成分の挙動を分析する。

透過型電子顕微鏡の電子線エネルギー損失法 (EELS) を用いて、有機エアロゾルの官能基のナノスケールでの検出を行う。

(3) データ考察

各ステーションや標準物質として得られた試料の TEM 分析結果と、粒子径や有機エアロゾルの質量分析などのオンライン分析結果 (秒や分単位で連続的に得られるデータ) との比較を行い、粒子の組成・形態、混合状態、酸化、揮発性の変化がどのようなプロセス及びタイミングで起こるのかを検討する。予想される結果として、エアロゾルが発生してから時間経過とともに進行する個別粒子内の酸化プロセスや、それに伴う揮発性、生成速度の変化、などの関係が明らかになり、結果として有機エアロゾルの大気変質過程と存在量が明らかになることが期待される。本研究で得られた有機エアロゾルのデータから、その野外大気中における変質メカニズムを考察する。

4. 研究成果

本研究では地球気候に大きな影響を持ち、その性質が謎に包まれた大気中の有機エアロゾルのナノスケール特性を明らかにした。特に、電子顕微鏡を使って有機エアロゾルの組成、形態、他の粒子との混合状態、揮発性を個別粒子単位で分析し、大気中における変質過程 (エイジング) の解明を行った。具体的な研究成果として以下の項目があげられる。

(1) アマゾンの植物由来有機エアロゾル観測キャンペーン (GoAmazon Project ブラジル: 2014 年) に参加し、森林・人為由来またそれらが混合した有機エアロゾルの電子顕微鏡分析を行い、それぞれ異なった起源の有機エアロゾルの特徴や混合状態に関する解明を行った。具体的には、有機エアロゾルの粘性に関する研究を重点的に行い、より粘性の低い固体有機エアロゾルの存在を明らかにした。また、人為由来エアロゾルのエイジングについて、特にブラックカーボン粒子と有機エアロゾルの混合に関する日変化が明らかとなった。これらの結果は、様々な起源から由来する有機エアロゾルの物理特性を理解するうえで重要な知見である。特に、固体の有機エアロゾルが多く存在することが明らかになったことで、エアロゾル表面反応に関する速度・有機エアロゾルの大気寿命、存在量見積りの高精度化が期待される。

(2) バイオマス燃焼由来の有機物質に関する試料採取、測定を行った。そして、バイオマス燃焼から生じるターボール粒子 (球状有機エアロゾル) の生成メカニズムや生成速度などを推測した。また、電子顕微鏡内で加熱実験が行える加熱フォルダを用いた分析を行うことで、従来の想定より高い温度まで揮発しない低揮発性有機エアロゾルの存在を明らかにした。この結果は、ブラウンカーボンの一種であるターボールの存在量の高精度化や、その気候影響についての重要な知見となる。特に、極低揮発性有機エアロゾルの存在は、大気中の有機エアロゾルの表面反応速度論の見積もりの見直しを示唆するものである。

(3) 電子線エネルギー損失スペクトル法によって有機エアロゾルの組成を個別粒子単位で明らかにすることに成功した。この結果は、世界で初めてナノスケールでの有機エアロゾル官能基検出に成功した例であり、今後この技術を用いて有機エアロゾルのエイジングに関する知見が深まることが期待される。

(4) 日本の山岳域、都市域や森林域において採取した有機エアロゾルのブラックカーボンなどとの混合の日変化等を明らかにした。この結果は、有機エアロゾルが他のエアロゾルと混合する過程に対して、その速度や個別粒子単位での反応を明らかにするものであり、今後モデル等に組み込まれることで、有機エアロゾルの寿命や大気反応プロセスモデルの高精度化が期待される。

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 10 件)

K. Adachi, P. R. Buseck, Changes in shape and composition of sea-salt particles upon aging in an urban atmosphere, *Atmospheric Environment*, 100, 1-9, 2015 doi:10.1016/j.atmosenv.2014.10.036 査読あり

Kuchiki, K., T. Aoki, M. Niwano, S. Matoba, Y. Kodama, and K. Adachi, Elemental carbon, organic carbon, and dust concentrations in snow measured with thermal optical and gravimetric methods: Variations during the 2007-2013 winters at Sapporo, Japan, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 120, doi:10.1002/2014JD022144. 2015、査読あり

K. Adachi, Y. Zaizen, M. Kajino, Y. Igarashi, Mixing state of regionally transported soot particles and the coating

effect on their size and shape at a mountain site in Japan, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 119, 5386-5396, DOI: 10.1002/2013JD020880, 2014 査読あり

N.Moteki, Y.Kondo, K.Adachi, Identification by single-particle soot photometer of black carbon particles attached to other particles: Laboratory experiments and ground observations in Tokyo, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 119, 1031-1043, doi:10.1002/2013JD020655, 2014 査読あり

足立光司, ナノスケールで見るすす粒子, エアロゾル研究, 29-1, 10-14, 2014 https://www.jstage.jst.go.jp/article/jar/29/1/29_10/article/-char/ja/, 査読あり

足立光司, 山火事や野焼きから発生するターボール粒子, 空気清浄, 52-3, <http://www.jaca-1963.or.jp/jp/books/journal/>, 2014 査読なし

P.R.Buseck, K.Adachi, A.Gelencser, E.Tompa, M.Posfai, Ns-soot: a material-based term for strongly light-absorbing carbonaceous particles, *Aerosol Sci. Tech.*, 48:7, 777-788, DOI: 10.1080/02786826.2014.919374, 2014 査読あり

T.Aoki, S.Matoba, S.Yamaguchi, T.Tanikawa, M.Niwan, K.Kuchiki, K.Adachi, J.Uetake, H.Motoyama M.Hori, Light absorbing snow impurity concentrations measured on Northwest Greenland ice sheet in 2011 and 2012, *Bulletin of Glaciological Research*, 32, 21-31, https://www.jstage.jst.go.jp/article/bgr/32/0/32_21/article/, 2014 査読あり

足立光司, 電子線トモグラフィによるエアロゾル粒子の3次元形態解析, エアロゾル研究, 28-3, 189-194, https://www.jstage.jst.go.jp/article/jar/28/3/28_189/article/-char/ja/, 2013 査読あり

K. Adachi, P. R. Buseck, Changes of ns-soot mixing states and shapes in an urban area during CalNex, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 118, 3723-3730, doi:10.1002/jgrd.50321, 2013 査読あり

[学会発表](計7件)

K Adachi, Z Gong, A P Bateman, S T Martin, G G Cirino, P Artaxo, A J Sedlacek III, P R Buseck, 2014, Single-particle

Analyses of Compositions, Morphology, and Viscosity of Aerosol Particles Collected During GoAmazon2014 : American Geophysical Union 2014 Fall Meeting, December 16, 2014, San Francisco, USA

K. Adachi, Mixing states of aerosol particles from various environment: transmission electron microscopy analysis, International Aerosol Conference, August 28-September 4, 2014, Busan, Korea

K. Adachi, A. J. Sedlacek, L. Kleinman, D. Chand, P. Buseck, 2014, Transmission Electron Microscopy Analysis of Biomass-Burning Aerosol Particles during BBOP Campaign 2013. October 20-24 AAAR, Orlando, USA

K. Adachi, N. Moteki, Y. Kondo, and Y. Igarashi, Mixing states of soot and BC particles measured using transmission electron microscope (TEM) and single particle soot photometer (SP2), American Geophysical Union 2013 Fall Meeting, December 9-13, 2013, San Francisco, USA.

足立光司, 財前祐二, 茂木信宏, 小池 真, 近藤 豊, 東アジアにおける航空機を使ったエアロゾル観測 (AForce) プロジェクトで得られた試料の電子顕微鏡分析, 2014年8月6-8日, 第31回エアロゾル科学・技術研究討論会, 茨城県つくば市

足立光司, 航空機によって捕集された人為起源およびバイオマス燃焼から発生したエアロゾル粒子の電子顕微鏡分析, 2014年5月1-2日, 日本地球惑星科学連合2014年大会, 神奈川県横浜市

足立光司, 財前 祐二, 五十嵐康人, 電子顕微鏡を使ったすす粒子の混合状態, 2013年5月19日, 日本地球惑星科学連合2013年大会, 千葉県幕張

6. 研究組織

(1) 研究代表者

足立光司 (Kouji Adachi) 気象研究所・環境・応用気象研究部

研究者番号: 90630814