

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 29 年 6 月 9 日現在

機関番号：13901

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26281007

研究課題名(和文) 森林域で生成する生物起源二次有機エアロゾルの吸湿性・光学特性の解明

研究課題名(英文) Hygroscopicity and optical properties of biogenic secondary organic aerosol formed in a forest area

研究代表者

持田 陸宏 (Mochida, Michihiro)

名古屋大学・環境学研究科・准教授

研究者番号：10333642

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,300,000円

研究成果の概要(和文)：大気エアロゾルの吸湿性・光学特性の野外観測を紀伊半島の森林域において実施した。雲凝結核の測定データを基に、有機エアロゾル・生物起源有機エアロゾルの吸湿性パラメータを計算し、また、雲凝結核の個数濃度に対する有機エアロゾル・生物起源有機エアロゾルの寄与を評価した。さらに、加熱した/しない条件でのエアロゾルの光吸収の測定に基づき、ブラックカーボン粒子の被覆について分析した。そのほか、エアロゾル粒子の吸湿成長度、二次有機エアロゾルのトレーサ化合物の濃度やスカイラジオメータのデータも得た。本研究の結果やデータは、森林エアロゾルの今後の更なる特徴付けの基盤となると期待される。

研究成果の概要(英文)：Field observations of the hygroscopicity and optical properties of atmospheric aerosol were conducted in a forest area of the Kii Peninsula. Hygroscopicity parameters of organic aerosol and biogenic secondary organic aerosol were calculated based on measurements of cloud condensation nuclei. The contributions of organic aerosol and biogenic secondary organic aerosol to the number concentrations of cloud condensation nuclei were assessed. Further, the coatings of black carbon particles were analyzed based on light absorption measurements of the aerosol with and without heating. The hygroscopic growth factors of aerosol particles, the concentrations of tracer species of biogenic secondary organic aerosol, and sky-radiometer data were also obtained. Results and data from this study are expected to be the basis for further characterization of forest aerosols.

研究分野：大気化学

キーワード：有機エアロゾル 吸湿性 光学特性 森林 大気

## 1. 研究開始当初の背景

大気中の微粒子(大気エアロゾル)には、植物から放出される有機ガスを前駆体として生成する生物起源二次有機エアロゾル(BSOA)が含まれる。Hallquist et al. (2009)の見積もりでは、炭素換算で有機エアロゾルの放出生成の半分を超える 88 TgC/yr が BSOA として供給されていると推定されており(トップダウン法での最良推定値)、BSOA は全球の有機エアロゾルの多くの割合を占めると考えられる。気候変動のメカニズムの解明において、放射収支・雲降水過程への関与による大気エアロゾルの影響を見積ることは大きな課題として残されており、高い存在量が推定される BSOA の寄与を把握することは、森林生態系と気候の相互作用(Kulmala et al., 2004)の視点を含め、近年の地球温暖化や長期の気候変動を理解する上で重要である。

BSOA の寄与を解明するには、生成放出量や濃度という BSOA の「量」の知見に加え、BSOA が水蒸気を取り込む性質(吸湿性)、光を吸収・散乱する性質(光学特性)という2つの「質」の知見が必要となる。これは、BSOA の吸湿性・光学特性がそれぞれ、雲粒の核として作用する能力、太陽光を散乱・吸収する能力と結びついており、吸湿性の場合には光学特性の湿度依存性も規定するためである。これまで、チェンバ実験によって、植物起源として知られる有機ガスから人工的に生成させたエアロゾルの吸湿性や光学特性の知見は蓄積されてきた。しかし、複数の有機ガスから多様な条件下で生成し、大気条件に応じた変質が見込まれる実大気の大気 BSOA については、北欧・南米の森林などで限られた情報・間接的な情報が得られるに留まっており、多くが未解明のままである。この主な原因には、森林での観測が容易でないこと、また人為起源を含む他のエアロゾルとの寄与の分離が解析上の課題となることが考えられる。

このような状況の下、研究代表者の持田らは、2010年の夏季に、紀伊半島の森林域において短期の大気エアロゾル観測を実施した。この観測では、新粒子の生成と BSOA の生成が考えられる日中の有機エアロゾル濃度の顕著な上昇がみられる事例があった(Han et al., 2013, 2014)。この現象には、エアロゾルの供給域である大都市圏を通過せずに太平洋から清浄な空気塊が流入し得るといふ、当域の特徴が寄与していることが考えられた。また、この観測では、エアロゾルの吸湿性の測定も実施した(Kawana et al., 2017)。この観測の取り組みを経て代表者の持田は、当域が BSOA 特性の調査に適しており、さらなる大気観測研究の実施によって BSOA の特性の決定と、森林エアロゾルにおけるその寄与の解明に近づき得ると考えた。そして、分担者とともに、吸湿性に加えて光学特性も対

象としてその実現を目指す本課題を計画した。

### <引用文献>

- Hallquist, M. et al., *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 5155-5236, 2009.  
Han, Y. et al., *Atmos. Environ.*, 64, 77-84, 2013.  
Han, Y. et al., *J. Geophys. Res. Atmos.*, 119, 259-273, 2014.  
Kawana, K. et al., *J. Geophys. Res. Atmos.*, 122, 3042-3064, 2017.  
Kulmala, M. et al., *Atmos. Chem. Phys.*, 4, 557-562, 2004

## 2. 研究の目的

本研究では、植物から放出される有機ガスを前駆体として生成する BSOA に着目し、その気候影響を評価する上で必要となる BSOA の吸湿性・光学特性を明らかにすることを目的とした。

具体的には、BSOA の特性の研究に適していると考えられる紀伊半島の森林域において、大気エアロゾルの採取とその場観測を実施し、(1)大気エアロゾルに含まれる BSOA の吸湿性・光学特性を決定すること、そして、(2)森林エアロゾルの吸湿性・光学特性に対する BSOA の寄与とその変動要因を明らかにすることを目標とした。そして、大気エアロゾルの入力値として利用できる BSOA の吸湿パラメータ・複素屈折率を提示すること、また、植生等が異なる他の地点の大気観測や、BSOA の放射・雲生成の影響を扱う大気モデルの指針となる、将来の研究展望を示すことを目的に含めた。

## 3. 研究の方法

本研究では、京都大学フィールド科学教育研究センター森林ステーション和歌山研究林(和歌山県有田川町)において、2014年および2015年にそれぞれ大気観測を行った。

1回目の観測は、2014年の7月から9月の間に実施した。この観測では、高分解能飛行時間型エアロゾル質量分析計を用いた大気エアロゾル成分の濃度・粒径分布の測定、走査式モビリティパーティクルサイザによるエアロゾル個数粒径分布の測定、雲凝結核カウンタおよび凝縮粒子カウンタ、電気移動度分析器で構成される装置システムによる粒径別の雲凝結核の個数割合の測定を行った。また、光音響分光法による波長 375, 405, 532, 781 nm における光吸収および光散乱係数の測定、熱分離光学補正法による元素状および有機性炭素重量濃度、加熱インレットとフィルタ光吸収法の組み合わせによる黒色炭素の重量濃度の測定を行った。さらに、太陽直達光と周辺光の放射輝度を測定できるスカイラジオメータを用いた観測を行った。

これらの測定のほか、7月から8月の間の観測期間の一部において、50%カットオフ径が $0.95\ \mu\text{m}$ のエアロゾル粒子のフィルタ上への採取を行った。採取したエアロゾル試料の一部に対して、BSOAのトレーサ化合物、水溶性有機態炭素、無機成分（硫酸塩ほか）の分析を行った。

2回目の観測は、2015年の8月から9月にかけて実施した。この観測では、吸湿タンデム微分型電気移動度分析器による粒子の吸湿成長度の測定、キャピティリングダウン分光装置を用いた消散係数の測定を行った。また、高分解能飛行時間型エアロゾル質量分析計によるエアロゾル化学成分の濃度とその粒径分布の測定、走査式モビリティパーティクルサイザによる個数粒径分布の測定なども行った。また、スカイラジオメータを用いて、太陽光と周辺光の輝度の連続測定も行った。加えて、8月および9月のそれぞれ一部の期間において、ハイボリュームエアサンプラを用いた大気エアロゾルの採取（50%カットオフ径が $0.95\ \mu\text{m}$ のエアロゾル粒子および総浮遊粒子状物質の採取）も行った。

また、京都大学和歌山研究林において2014年の夏季に採取したエアロゾル試料から水溶性成分および非水溶性成分を抽出し、アトマイザを用いて抽出液から粒子を発生させてその光学特性を測定した。別のプロジェクトにおいて都市（名古屋大学東山キャンパス）で春季および夏季に採取した大気エアロゾル試料に対しても、光学特性の測定を行った。

#### 4. 研究成果

##### (1) 雲凝結核活性・雲凝結核数濃度の解析

2014年の大気エアロゾル観測で得られた雲凝結核の測定データの解析を行い、観測で用いた水蒸気過飽和度の条件における雲凝結核活性化粒径を求めた上、それらの粒径から、エアロゾル粒子の吸湿性パラメータを算出した。そして、粒子の吸湿性パラメータの日変動パターンを得た。また、エアロゾル粒子の吸湿性パラメータと、エアロゾルの化学組成の情報をもとに、エアロゾルに含まれる有機物の吸湿性パラメータの値を導出した。そして、有機エアロゾル成分の吸湿性パラメータとエアロゾル質量スペクトルから計算される有機物の酸素/炭素比との関係を得た。さらに、観測期間中の5日間を取り上げ、有機エアロゾルに含まれるBSOA成分の吸湿パラメータの見積もりを行った。そのほか、エアロゾル粒子の吸湿性に対する有機エアロゾル成分の寄与についてその指標となる値を求めた。

また、雲凝結核活性化粒径とエアロゾルの個数粒径分布の情報を基に、大気に含まれる雲凝結核の個数濃度を算出した。そして、こ

の個数濃度に対して有機エアロゾル成分の存在がどの程度寄与しているのかを、有機物が存在しない場合の仮想的な条件における雲凝結核数濃度を推定することで評価した。さらに、BSOAの生成が雲凝結核の濃度に及ぼす影響を評価するために、日中の有機エアロゾルの生成の影響を受けていると考えられる時間帯の有機物の質量濃度の増加分を見積もった上、その増加分と雲凝結核の数濃度の増加の関係や、雲凝結核濃度の増加分のうち、有機物の寄与による見積もられる数濃度との関係を得た。そして、二次有機エアロゾル成分の粒子の凝縮による雲凝結核数増加の水蒸気過飽和度に対する依存性を解釈するために、コンデンセーションシンクと呼ばれる粒子の凝縮に関する指標と、エアロゾル粒子の体積のそれぞれの粒径分布（規格化したもの）を確認した。

##### (2) エアロゾルの吸湿成長度の解析

吸湿タンデム微分型電気移動度分析器を用いた2015年の大気観測をもとに、エアロゾルの吸湿成長度の分布を取得した上、カーブフィッティングによって吸湿成長度の代表値の時系列データを得た。その代表値から、対応する粒子の吸湿性パラメータも算出した。

##### (3) エアロゾルの光学特性の解析

2014年の夏季に実施した大気エアロゾルの光吸収および光散乱係数の測定結果について、解析を行った。加熱管の通過の有無による光吸収特性の変化からブラックカーボン粒子の被覆による光吸収量の増加率を推定したところ、この光吸収の増加率は、以前測定した名古屋市内での夏季の増加率と比べて大きかった。

##### (4) その他の解析

森林大気エアロゾル試料の抽出物や、その比較対象となる都市で採取したエアロゾル試料の抽出物に対して光学特性の測定を行い、データを取得した。そのほか、カットオフ径が $0.95\ \mu\text{m}$ の条件でフィルタ上に採取したエアロゾル試料（2014年に採取）に対するGC-MSを用いた分析により、BSOAトレーサの定量を行った。また、太陽直達光と周辺光の放射輝度を測定するスカイラジオメータを用いた観測の結果から、エアロゾルの光学的特性と体積粒径分布の時系列変化を解析した。

##### (5) まとめと今後の展望

本研究では、紀伊半島の森林域において2回の大気エアロゾル観測を実施し、エアロゾルの吸湿性・光学特性に関するデータを取得した。また、その解釈をするための化学組成の情報も併せて得た。エアロゾルの雲凝結核

能力に関する解析では、研究対象とした森林における有機エアロゾル成分、さらにはそれに含まれる BSOA 成分の吸湿性を定量した。また、有機エアロゾル成分や BSOA 成分の雲凝結核数濃度に対する寄与に関して知見が得ることができた。なお、BSOA の寄与の変動要因の解析や将来の研究展望のための考察など、本研究の当初の計画に含まれ、今後の取り組みが望まれる点が残されている。今後、取得したデータや試料をもとに、さらなる解析・実験を行うことで、当該森林大気における BSOA の役割について更に知見が得られると見込まれる。

#### 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6件)

Chen, Q., Miyazaki, Y., Kawamura, K., Matsumoto, K., Coburn, S., Volkamer, R., Iwamoto, Y., Kagami, S., Deng, Y., Ogawa, S., Ramasamy, S., Kato, S., Ida, A., Kajii, Y., and Mochida, M.: Characterization of chromophoric water-soluble organic matter in urban, forest and marine aerosols by HR-ToF-AMS analysis and excitation emission matrix spectroscopy, Environ. Sci. Technol., 50, 10,351-10,360, 2016, doi:10.1021/acs.est.6b01643.(査読有)

##### [学会発表](計17件)

Deng, Y., Mochida, M., Kagami, S., Ogawa, S., Kawana, K., Nakayama, T., Kubodera, R., and Aoki, K. (Mochida は発表時に追加): Organic aerosol hygroscopicity and the contribution to CCN concentrations over a mid-latitude forest facing the North Pacific, International Global Atmospheric Chemistry (IGAC) Project 2016 Science Conference, September 29, 2016, Breckenridge (USA).

Deng, Y., Mochida, M., Kagami, S., Ogawa, S., and Kawana, K. (発表時に著者追加): The 13th International Conference on Atmospheric Science and Applications to Air Quality (ASAAQ13), November 13, 2015, Kobe International Conference Center (Kobe, Japan).

鏡味沙良, 持田陸宏, 鄧彦閣, 小川修平, 中山智喜, 久保寺亮, Ramasamy Sathiyamurthi, 岸本伊織, 鶴丸央, 井田明, 加藤俊吾, 梶井克純, 定永靖宗, 坂東博: 夏季の紀伊半島の森林域において生成する有機エアロゾルの特徴, 第21回

大気化学討論会, 2015年10月20日, 東京工業大学(東京都目黒区).

久保寺亮, 中山智喜, 鏡味沙良, 鄧彦閣, 小川修平, 持田陸宏, 足立光司, 青木一真, 松見豊: 2014年夏季紀伊半島森林域におけるエアロゾル光学特性と化学特性の同時計測, 日本地球惑星科学連合2015年大会, 2015年5月27日, 幕張メッセ・国際会議場(千葉県千葉市).

鏡味沙良, 持田陸宏, 鄧彦閣, 小川修平: 2014年夏季の紀伊半島の森林域における有機エアロゾルの観測, 第20回大気化学討論会, 2014年10月27-28日, 府中グリーンプラザ本館(東京都府中市).

[図書](計1件)

[産業財産権]

出願状況(計0件)

取得状況(計0件)

[その他]

スカイラジオメータウェブ

[http://skyrad.sci.u-toyama.ac.jp/gobs/amiyukawa.html](http://skyrad.sci.u-toyama.ac.jp/gobs/kamiyukawa.html)

#### 6. 研究組織

##### (1)研究代表者

持田 陸宏 (MOCHIDA, Michihiro)

名古屋大学・大学院環境学研究科・准教授  
研究者番号: 10333642

##### (2)研究分担者

中山 智喜 (NAKAYAMA, Tomoki)

名古屋大学・宇宙地球環境研究所・講師  
研究者番号: 40377784

宮崎 雄三 (MIYAZAKI, Yuzo)

北海道大学・低温科学研究所・助教  
研究者番号: 60376655

青木 一真 (AOKI, Kazuma)

富山大学・大学院理工学研究部・教授  
研究者番号: 90345546

##### (4)研究協力者

鄧 彦閣 (DENG, Yange)

小川 修平 (OGAWA, Shuhei)

鏡味 沙良 (KAGAMI, Sara)

矢井ひかり (YAI, Hikari)

川名 華織 (KAWANA, Kaori)

久保寺 亮 (KUBODERA, Ryo)

立花 英里 (TACHIBANA, Eri)