

## 東アジア大陸から輸送される大気微粒子の吸湿性 ～化学組成との関係を明らかに・ラボ分析に基づく 実験手法の有用性も提示～

国立大学法人東海国立大学機構 名古屋大学宇宙地球環境研究所のデン ヤンガ 研究員（研究当時）、持田 陸宏 教授、同大学大学院環境学研究科の藤成 広明 博士 前期課程学生（研究当時）らの研究グループは、東京農工大学・北海道大学・中部大学・中山大學（中国）・中国気象局・東京大学・国立極地研究所・国立環境研究所との共同研究で、アジア大陸から空気塊が運ばれる沖縄の大気エアロゾル<sup>注1)</sup>の吸湿性<sup>注2)</sup>や、その化学組成との関係を明らかにしました。また、大気エアロゾル試料を実験室で調べる「オフライン分析」が、吸湿性の解析に有用であることを提示しました。

大気エアロゾルが水蒸気を取り込む能力（吸湿性）は、雲粒ができる際の核としての働きを決めるため、エアロゾルの気候影響を把握する上で鍵となる性質です。本研究では、東アジア大陸から輸送される沖縄のエアロゾルを対象に、水溶性成分の吸湿性の程度や、吸湿性に対する無機・有機物の寄与を明らかにした上で、その変動に関わる組成の特徴を示しました。また、大気エアロゾル試料を実験室で解析する「オフライン分析」で得た結果を、その場観測の結果と比較し、「オフライン分析法」が大気エアロゾルの吸湿性の研究に有用であることを裏付けました。本研究の成果は、エアロゾルの気候影響の理解に寄与し、また、そのための研究の技術的な発展に結びつくと期待されます。

本研究成果は、2022年5月2日午前8時（日本時間）付国際学術雑誌「Atmospheric Chemistry and Physics」に掲載されました。

本研究は、科学研究費補助金基盤研究(B)「大気有機エアロゾルの吸湿性に対する定量的理解の深化—化学構造・起源との関係—」、環境再生保全機構環境研究総合推進費「地球温暖化に関わる北極エアロゾルの動態解明と放射影響評価」等の支援のもとで行われたものです。

## 【ポイント】

- ・東アジア大陸から空気が輸送される沖縄で、大気エアロゾルの採取を行い、その成分分析により、硫酸塩に富み、酸素含有率の高い変質の進んだ有機物を含むなどの特徴を捉えた。
- ・大気エアロゾル試料の抽出物を再微粒子化する技術を用い、粒子が相対湿度に応じて水蒸気を取り込んで成長する程度を測定して、無機物・有機物の吸湿性への寄与を見積もった。そして、大気エアロゾルの吸湿性の変動と化学組成の関係を示した。
- ・エアロゾルを採取して実験室で分析する「オフライン分析」で得た吸湿性・化学組成の測定結果と、観測地点で測定された結果が類似していることを確かめ、オフラインの手法が、大気エアロゾルの吸湿性の研究に有用であることを指摘した。

## 【研究背景と内容】

大気に浮遊するエアロゾルが水蒸気を取りこむ能力（吸湿性）は、エアロゾルが太陽光を散乱・吸収する能力を変化させ、大気中の太陽光の伝達を通したエネルギーの収支、ひいては気候に影響を及ぼします。また、吸湿性はエアロゾルが雲粒の核として働く能力を左右し、雲の性質や寿命に影響を及ぼすことでも気候に影響をもたらします。このエアロゾルの吸湿性は、粒子を形作る物質の化学組成によって決まり、これまで、エアロゾルの吸湿性と化学組成の関係が論じられてきました。しかし、多くの研究では、現場観測の限られた手段に基づいて議論が行われており、エアロゾルの吸湿性と化学組成の関係には、大きな不確かさが残されています。本研究では、沖縄で大気エアロゾル試料の採取を行い、そこに含まれる化学成分を実験室で改めて微粒子化した上で分析する手法を用い、その吸湿性を精査しました。また、一般的な化学分析法に加えて、再微粒子化した試料に対して、エアロゾル質量分析と呼ばれる手法を適用することで、試料の化学組成を調べ、吸湿性との関係について解析しました。

大気エアロゾル試料の採取は、ハイボリュウムサンプラとよばれる機器を用いて、石英繊維フィルタに集める方法により、2015年の秋に沖縄で実施しました。気象データを用いた空気塊の輸送経路の解析では、採取した大気エアロゾルが、東アジア大陸から輸送されていることが示されています。本研究では、エアロゾル試料に含まれる水溶性成分を抽出し、水溶液を噴霧してエアロゾル粒子を再生成した上、吸湿タンデムDMA（HTDMA）<sup>注3)</sup>と呼ばれる装置に導入して、相対湿度に応じた粒径の増大を観察しました。具体的には、噴霧により生成した粒子を乾燥させ、HTDMA内の静電分級器（DMA）と呼ばれる装置で、粒径が100ナノメートルの微小な粒子を選別し、これらの粒子を含む空気を加湿して、水蒸気を取り込みによる粒径の増大を測定しました。これにより、加湿による粒径の増大率である吸湿成長度を、沖縄のエアロゾル試料の水溶性成分を対象に得ることができました（図1）。また、イオンクロマトグラフ法などを用いて、採取したエアロゾル試料の化学組成の測定も行いました。この組成分析においては、噴霧により再生成した微粒子を、エアロゾル質量分析計<sup>注4)</sup>と呼ばれる装置に導入し、有機物の特徴を解析する独自性の高い手法も用いました。

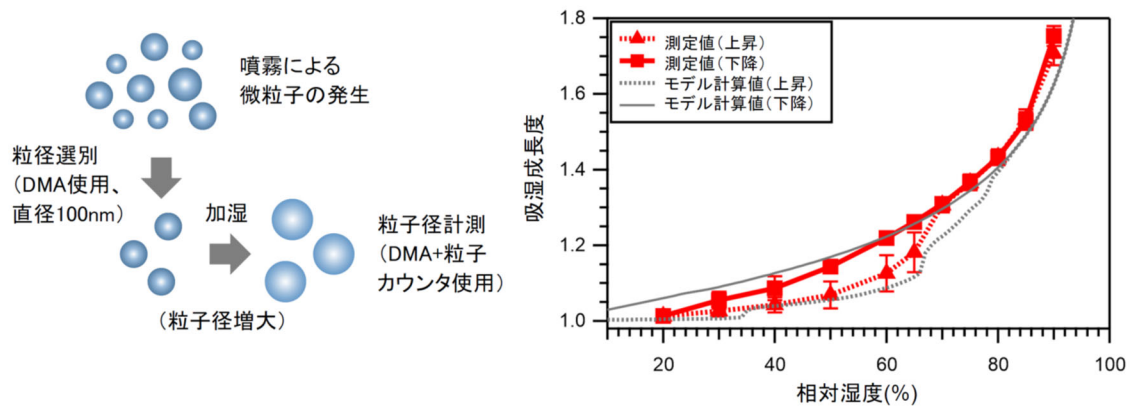


図1 (左) 大気エアロゾル抽出物の吸湿成長測定の概要。(右) 吸湿タンデム DMA を用いて得た大気エアロゾル抽出物(水抽出物)の吸湿成長度(乾燥粒径に対する加湿時粒径の比)の測定結果。水溶性無機物の寄与をモデルによって見積もった結果も表す。図中の「上昇」「下降」は、加湿時粒径を測定する直前の湿度履歴を表す。本発表の論文より改写。

これらの測定で得られた結果を解析し、沖縄で採取したエアロゾルが硫酸塩に富み、酸素含有率の高い変質の進んだ有機物を含むといった特徴を捉えました。また、水溶性成分の吸湿性を吸湿性パラメータ  $\kappa$  という指標で得たほか、そこに含まれる有機物や粒子全体の  $\kappa$  値の導出も行いました。熱力学平衡モデルと組み合わせた解析では、水溶性成分の吸湿成長に対して、平均で無機塩が 88%、有機物が 12%と、化学成分の寄与が明らかとなりました。さらに、試料ごとの吸湿性の変動をもたらしている要因を化学組成の指標と吸湿性の間の相関から調べ、高い相対湿度(70~90%)においては、有機物の含有量の高低にかなりの影響を受けていること(有機物の含有量が高いと吸湿性が下がる傾向)、低い相対湿度(20~50%)では、酸性成分の中和の程度が影響し得ることを明らかにしました。

また一方で、本研究を通して、フィルタ上にエアロゾルを採取して実験室で吸湿性・組成を分析する手法が有用であることを裏付ける結果を得ました。試料採取の期間には、実験室での分析にも使用した、エアロゾル質量分析計を用いた「その場」の大気エアロゾル測定が行われ、また、実験室で用いた HTDMA と類似の装置も、「その場観測」に用いられました。これらの現場と実験室での測定の結果の比較から、化学組成の測定においては、本研究で用いたエアロゾルに含まれる酸性成分の中和度に関する指標が、フィルタ採取による「オフライン分析」とその場観測の間で良く対応していること(図2左)、また、吸湿性の測定においても、吸湿性パラメータ  $\kappa$  で表される値が、(対象粒子の大きさに違いはあるが) 15%程度以内で一致すること(図2右)を確かめました。

### 【成果の意義】

エアロゾルが、大気中の輸送を経てどのような特徴を持っているのかという点は、エアロゾルの気候影響を論じる上で重要であり、本研究で得た東アジアの空気塊の受容域(沖縄)における吸湿性の特徴は、今後の更なる観測の結果と合わせて、エアロゾル

の気候影響の理解に資すると考えられます。また、本研究で用いた大気エアロゾルの吸湿性・組成の「オフライン分析法」は、試料から分析対象とする化合物群のみを取り出して、それらを詳細に調べることができる点、また、現地に移設や運用が容易でない複雑な装置を持ち込むことなく、エアロゾルの試料採取により分析が可能となる点などにおいて、「その場測定」を補う有力な手法となり得ます。本研究では、この「オフライン分析法」が、吸湿性の解析に有用であることを裏付ける結果を得ており、複雑な組成を持つエアロゾルの吸湿性と化学組成の関係を明らかにしていく上で、今後、同様の手法が活用されることが期待されます。

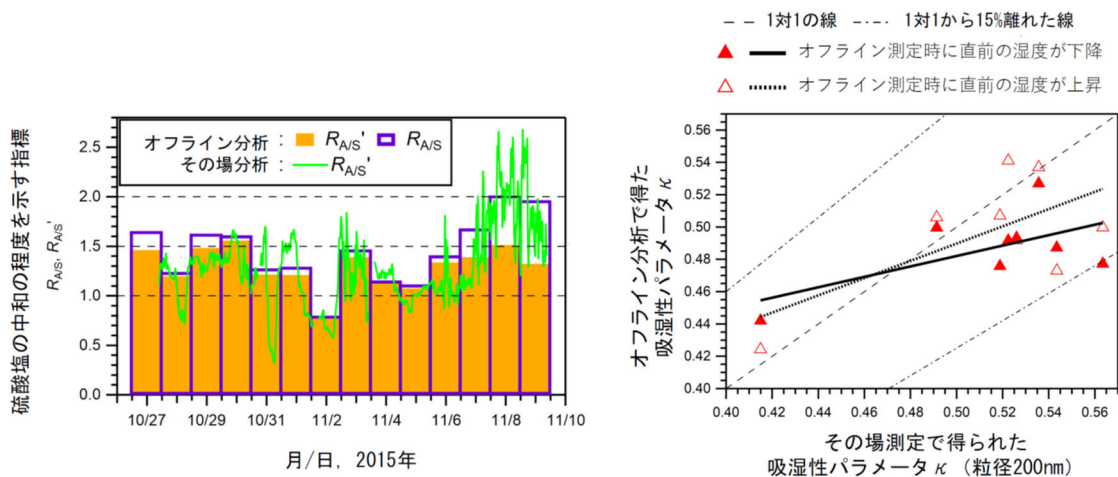


図2 (左) フィルタに採取したエアロゾル試料を対象とするオフライン分析と、観測地点におけるその場分析のそれぞれで得られた、エアロゾルに含まれる酸性成分の中和度に関する指標の比較。(右) オフライン分析とその場測定で得られた大気エアロゾルの吸湿性の比較。いずれも本発表の論文より改写。

### 【用語説明】

注1) 大気エアロゾル：

大気に浮遊する、数ナノメートルから100マイクロメートル程度までの大きさを持つ微粒子（1ナノメートル、1マイクロメートルは、それぞれ1メートルの10億分の1と100万分の1）。人の健康に悪影響を及ぼす大気汚染物質として知られるほか、雲粒ができる際の核として作用などによって気候に関与することから、気候変動における役割が注目されている。

注2) 吸湿性：

大気エアロゾルは水蒸気を取り込んで大きくなる性質を持ち、その程度はエアロゾルを形成する物質の種類によって大きく異なる。エアロゾルの吸湿性は、気候影響を調べるモデル研究で扱う必要がある一方で、何千種類以上の物質からなるエアロゾルに対して、いつ、どこでどのような吸湿性を持っているのかを正確に予測することは難しく、課題として残されている。

注3) 吸湿タンデム DMA (HTDMA) :

様々な大きさのエアロゾル粒子が混ざっている空気試料から、乾燥状態で特定の大きさを持つ粒子のみを選別し、それらの粒子が加湿により大きくなる程度を観察する装置。直径が数十～数百ナノメートルの微小な粒子を測定対象とすることができる。

注4) エアロゾル質量分析計 :

エアロゾル粒子が浮遊している空気試料を装置内に取り込み、装置内部で粒子構成成分をイオンにして検出する装置。発生したイオンの質量と量から、もとの化学成分の種類などの情報を得ることができる。大気エアロゾルを直接測定する方法として利用が進み、本研究のように、大気エアロゾルの抽出物を微粒子化して分析する方法への応用も進みつつある。

### 【論文情報】

雑誌名 : Atmospheric Chemistry and Physics

論文タイトル : Offline analysis of the chemical composition and hygroscopicity of sub-micrometer aerosol at an Asian outflow receptor site and comparison with online measurements

著者 : Yange Deng<sup>1,2,a</sup>, Hiroaki Fujinari<sup>1</sup>, Hikari Yai<sup>1</sup>, Kojiro Shimada<sup>3,b</sup>, Yuzo Miyazaki<sup>4</sup>, Eri Tachibana<sup>4</sup>, Dhananjay K. Deshmukh<sup>5</sup>, Kimitaka Kawamura<sup>5</sup>, Tomoki Nakayama<sup>2,c</sup>, Shiori Tatsuta<sup>3</sup>, Mingfu Cai<sup>6,d</sup>, Hanbing Xu<sup>6</sup>, Fei Li<sup>7,e</sup>, Haobo Tan<sup>7</sup>, Sho Ohata<sup>8,f,g</sup>, Yutaka Kondo<sup>9</sup>, Akinori Takami<sup>10</sup>, Shiro Hatakeyama<sup>3,h</sup>, Michihiro Mochida<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup>名古屋大学宇宙地球環境研究所, <sup>2</sup>名古屋大学大学院環境学研究科, <sup>3</sup>東京農工大学, <sup>4</sup>北海道大学, <sup>5</sup>中部大学, <sup>6</sup>中山大学 (中国), <sup>7</sup>中国気象局, <sup>8</sup>東京大学, <sup>9</sup>国立極地研究所, <sup>10</sup>国立環境研究所 (現在の所属 : <sup>a</sup>国立環境研究所, <sup>b</sup>琉球大学, <sup>c</sup>長崎大学, <sup>d</sup>暨南大学 (中国), <sup>e</sup>廈門気象局 (中国), <sup>f</sup>名古屋大学宇宙地球環境研究所, <sup>g</sup>名古屋大学高等研究院, <sup>h</sup>日本環境衛生センター)

DOI : 10.5194/acp-22-5515-2022

URL : <https://acp.copernicus.org/articles/22/5515/2022/>