

奨励金No.1527

エアロゾルの気候影響の解明を目指した電気力学天秤の開発

玄 大雄

中央大学 准教授

Development of electrodynamic balance for understanding aerosol-climate interactions

Masao Gen,

Chuo University, Associate Professor



本研究は、①大気中のエアロゾルの物理化学的変化（エアロゾルの変質）を正確に再現できる電気力学天秤装置を開発し、②エアロゾルの気候影響を考える上で最も重要な因子の一つである、大気中のガス－エアロゾル反応系の速度定数の測定を目的とした。

エアロゾルの大気中での寿命に匹敵する時間、単一微粒子を空中に保持でき、エアロゾルが経験する大気環境を再現できる電気力学天秤装置を開発した。開発した EDB システムを用いてエアロゾル化学反応に伴う粒子径減少を実験的に評価した。

This research aims to develop an electrodynamic balance (EDB) device capable of accurately reproducing the physicochemical changes (aging) of aerosols in the atmosphere and measuring the rate constants of gas-aerosol reaction systems in the atmosphere. These are among the most important factors to consider in assessing the climate impact of aerosols.

I have developed an electrodynamic balance device that can hold individual particles in the air for a duration comparable to the aerosol's atmospheric lifetime, thereby simulating the atmospheric environment experienced by aerosols. Using the developed EDB system, we experimentally evaluated the reduction in particle size due to aerosol chemical reactions.

1. 研究内容

PM2.5 に代表される大気中に浮遊する微粒子（エアロゾル）は、地球に入射する太陽光を散乱・吸収し（直接効果）、また雲凝結核として雲粒へと成長することで気候の形成と密接に関わる（間接効果）（Seinfeld et al. Proc Natl Acad Sci USA 2016）。例えば間接効果は、雲の生成、分布、特性に影響を与え、最終的に降水パターンを決定する。これらの直接・間接効果が正味で太陽光から地球に入るエネルギーの大きさ（放射強制力）に寄与し、その結果、気候変動に影響を及ぼす。

エアロゾルの直接・間接効果、ひいては放射強制力はその化学組成によって決定される。そのた

め「エアロゾル」の「気候影響」を解明するためには、エアロゾル組成と直接効果である光散乱・吸収特性、間接効果である雲凝結核活性との定量的な関係を明らかにしなければならない。しかし、エアロゾル組成に係るデータの蓄積が進んでいるにもかかわらず、その組成と気候影響との明瞭な関係性を未だに見いだせていない。このような状況から、エアロゾルは放射強制力や気候変動を予測する上で最も大きな不確実性をもたらす要因のひとつとして認識されている（IPCC 第 6 次評価報告書、2021）。

大気中に存在する多くのガス成分は、エアロゾル中の水分に溶解し、エアロゾル相で様々な化学

反応を引き起こす。これは「多相反応系」と呼ばれ、大気エアロゾルの生成・変質に大きく寄与する (Su et al., Acc. M. Res., 2020)。多相反応系は、ガス成分の気相中での拡散、エアロゾル表面への吸脱着、エアロゾル相への拡散、そして反応の順で進行していく極めて複雑な移動現象を含んだ系となる。これらすべてのプロセスが最終的な反応速度へ影響する複雑な系のため、多相反応系の定量的な理解はほとんど進んでいない。当初の実施計画は、(1) 電気力学天秤の開発、(2) 反応性ガスとエアロゾルの多相反応実験、(3) 大気化学モデルへの応用とした。

電気力学天秤 (EDB) は、帯電したエアロゾル粒子を空中に浮遊させ、大気中で起こる様々な環境変化 (例えば相対湿度変化) や反応性ガスを導入して多相反応を連続的に再現できる実験装置である。本研究では四重極型の EDB を開発した (図 1)。交流電圧 (AC) と直流電圧 (DC) を印加することで、浮遊している粒子の水平方向と鉛直方向の動きをそれぞれ制御し、エアロゾルの大気中での寿命に匹敵する時間スケール (= 約 1 週間) で、EDB 内の粒子を空中に保持することができた。

東アジアでの主要な大気エアロゾル組成になりつつある硝酸イオンの多相反応系に着目し、反応実験を行った。硝酸イオン (NO_3^-) は太陽光を受け、光分解を起こし、 NO_2 や亜硝酸イオン

(NO_2^-) を生成するため地球での窒素循環に影響を与える。とくに亜硝酸イオンはプロトン化すると HONO と呼ばれる揮発性の物質を生成し、エアロゾルの中から気相に蒸発する。さらに HONO は光分解により大気化学で最も重要な酸化剤である OH ラジカルを生成するため、HONO は非常に重要な OH の前駆体である。一方でエアロゾルから HONO が蒸発していくと溶質の量が減少するため、同じ相対湿度雰囲気下になるとエアロゾルの粒子径は小さくなる。本研究では開発した EDB システムを用いてエアロゾル化学反応に伴う粒子径減少を実験的に評価した (図 2)。

硝酸アンモニウムを含んだ水溶液から PM2.5 のサイズに近い直径が数 μm 程度の液滴を Microfab 社製のディスペンサーを用いて発生させた。EDB チャンバー内の相対湿度は、開発済みの自動制御システムを利用し、乾燥・湿潤空気の混合比を変えて 82% に調整した。粒子を EDB チャンバーに導入する際には、400 V 程度を穴の開いた金属板 (Induction plate ; 図 1) に印加し、ディスペンサーから発生した粒子をその穴を通過させて帯電させた。空中に浮遊した粒子の位置は、EDB チャンバーの下からレーザーを照射しその散乱光を利用して確認する。キセノンランプを用いて粒子に光を照射したタイミングを反応開始とし、Mie 散乱スペクトルを一定の時間間隔で取得、スペクトルの経時変化から粒子径変化を測定した (図 3)。

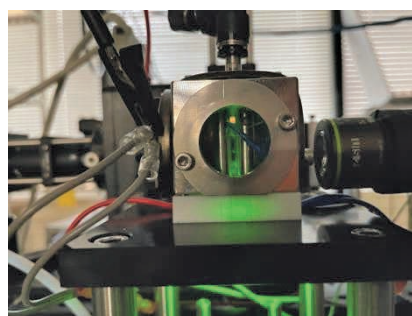
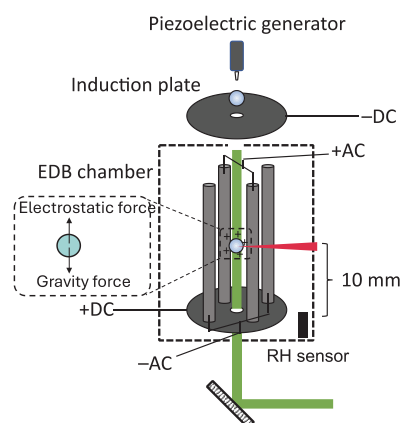


図 1 EDB の概略図、写真

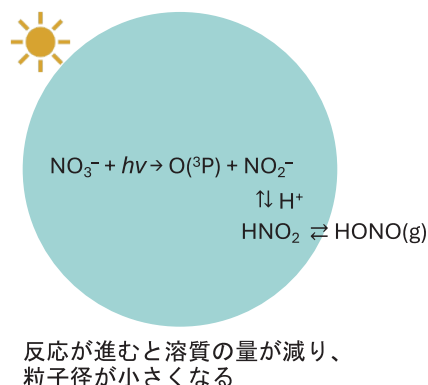


図 2 硝酸イオンの光化学反応による窒素循環

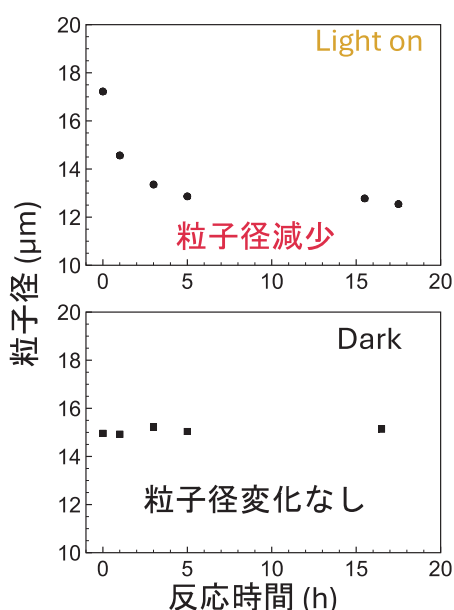


図 3 （上）光照射した際の粒子径変化、（下）光照射が無い場合の粒子径変化

光を照射した際には初期粒子径 17 μm 程度の粒子は粒子径が 12 μm 程度まで 5 時間ほどかけて減少し、その後変化は無くなった。一方で光が無い場合、粒子径変化はほとんどなかった。これらの結果から硝酸イオンの光化学反応により、亜硝酸イオンがプロトン化し、HONO となって蒸発し、エアロゾル内の硝酸イオンが減少していることを示唆している。光照射の条件下で 5 時間以降に粒子径変化が止まったのは、エアロゾル内での H^+ の濃度が減少したためであると考えられる。硝酸イオンの光分解時は H^+ を一つ消費することが知られているため、光分解が進むにつれて H^+ 濃度は

減少すると予想される。以上より EDB を作製し、エアロゾル化学反応を詳細に評価できる実験装置を開発することができた。

2. 発表（研究成果の発表）

玄 大雄、Surface Tension Measurement of Deliquesced Aerosol Particle、AOGS2024 21th Annual Meeting（韓国、2024 年）

玄 大雄、Single particle studies of deliquesced aerosols: multiphase reactions and surface tension、Taiwan-Japan Workshop on Atmospheric Physics and Chemistry（台湾、2024 年）（招待公演）

Ruifeng Zhang, Rikuto Minamikawa, Masao Gen, Yongjie Li, Chak K. Chan, Heterogeneous Hydrolysis of NO_2 Dominated by Interfacial Reaction in Deliquesced Aerosol Particles（責任著者として投稿予定）