

第 14 回(2018 年度)日本大気化学会奨励賞

受賞者:坂本 陽介(京都大学)

受賞課題:速度論的手法による対流圏ハロゲン不均一反応化学の定量的解明

受賞理由:対流圏におけるハロゲン化学は、地球表面の約 70%を占める海洋上でのオキシダント生成過程およびそれに続く大気微量成分の酸化除去過程に関与することが知られている。海塩エアロゾル成分などと気相酸化剤との不均一酸化反応は、ハロゲン種の主要な大気放出過程と考えられているが、その速度論的記述はいまだ確立されておらず、実験的な困難さゆえに定量的パラメータも十分に報告されていない。坂本陽介会員は、不均一反応を通じたハロゲン放出過程の正確な把握が、今後の大気化学の発展のための重要な課題であると考え、独自の実験手法を開発し、従来手法では得ることができなかった定量的な成果を報告してきた。

まず、海洋上のオゾン収支やエアロゾル核生成に寄与を持つと報告されているヨウ素化学種の大気への放出過程を明らかにするため、坂本氏は、キャビティーリングダウン分光法や質量分析法を用いた気-液不均一反応生成物測定手法を新たに開発し、ヨウ化物イオンとオゾンの不均一反応を調べた。そこからヨウ素化学種の定量的な放出機構を提案し、さらに鉄イオンによる放出の促進を見いだした。この研究は、生物起源の有機ヨウ素化合物放出が主であると考えられてきたヨウ素化学種放出機構に対し、無機放出過程の重要性を示したもので、ヨウ素化学種に着目した観測および大気モデル計算の結果の解釈に大きく貢献した。

また坂本氏は、臭化物イオンとオゾンの不均一反応において、生成物である臭素分子の放出速度を負イオン化学イオン化質量分析計とフローチューブ法で実測し、従来の速度論モデルでは考慮されていない界面反応の可能性を定量的に示した。不均一反応からの生成物放出を定量的に評価した研究は貴重であり、その速度論的な記述の確立に貢献することが期待される。また、本研究で報告された速度論パラメータは、海洋境界層での反応性臭素化学種の供給過程を解明する上でも重要性が高い。

さらに最近、坂本氏はレーザー光分解法とレーザー誘起蛍光検出法を組み合わせたエアロゾルへのラジカル取り込み速度測定法を新たに開発した。そして従来のフローチューブ法では直接測定が不可能であった高湿度条件における塩化ナトリウム粒子への OH ラジカルの取り込み速度を測定し、これまで間接的手法で見積もられていた取り込み速度よりも数倍大きい値を報告した。これは現在の大気モデルにおいて塩素放出が過小評価されていることを示した重要な報告である。またこの手法は、従来法ではほぼ不可能であった実大気エアロゾルの取り込み速度直接測定への応用可能性を持っており、今後の発展が期待されている。

以上のように、坂本氏は独自の実験手法を用いて、速度論的観点から対流圏ハロゲン不均一反応の定量的な解明につながる先駆的な成果を上げ、国内外の大気化学の分野で高い評価を得ており、大気化学の今後の更なる解明に貢献することが期待される。以上の理由により、日本大気化学会運営委員会は坂本陽介会員が同賞に値するものと認める。