

大気化学研究

Archives of Atmospheric Chemistry Research

第 52 号

日本大気化学会

Japan Society of Atmospheric Chemistry

目次

総説

Article No.

—トピックス:「大気多相物理化学」—

大気エアロゾルにおける水相の生成とその特性	桑田 幹哲	052A01
雲粒生成への表面張力の影響評価について	南川 陸登, 玄 大雄	052A02
海洋表面・海洋エアロゾル表面の光化学反応	沼舘 直樹, 齊藤 翔大, 羽馬 哲也	052A03

第 20 回日本大気化学会奨励賞受賞記念論文

固体エアロゾルの測定技術の確立とその動態に関する研究	大畑 祥	052A04
----------------------------------	------	--------

会員からのお知らせ

Report on participation in the iCACGP-IGAC Joint International Conference on Atmospheric Chemistry (2024)	Jiaru Li, Yuanzhe Li, Sota Kometani, Nguyen Doan Thien Chi, Phuc Ha	052N01
第 11 回二酸化炭素国際会議 (ICDC11) 参加報告	佐伯 田鶴	052N02
The 7th International Workshop on Heterogeneous Kinetics Related to Atmospheric Aerosols 開催報告	江波 進一	052N03

学会からのお知らせ

第 29 回大気化学討論会開催報告	山地 一代, 定永 靖宗, 河野 七瀬, 坂本 陽介, 八代 尚, 池田 恒平, 中島 英彰, 関谷 高志, 竹谷 文一, 中山 智喜, 持田 陸宏, 角皆 潤, 内田 里沙, 齋藤 尚子, 入江 仁士, 石戸谷 重之, 江波 進一	052N04
第 29 回大気化学討論会に参加して	溝渕 隼也, 寺岡 秀将, 福山 大輔, 宮瀬 陸, ZHANG Jiali	052N05
日本地球惑星科学連合 2025 年大会 (JpGU2025) での大気化学セッション開催のお知らせ	江波 進一, 入江 仁士, 石戸谷 重之, 中山 智喜	052N06
第 20 回日本大気化学会奨励賞の選考結果について	日本大気化学会 運営委員会	052N07
日本大気化学会会員集会プログラム	日本大気化学会 運営委員会	052N08
第 37, 38 回日本大気化学会運営委員会議事録	日本大気化学会 運営委員会	052N09
日本大気化学会役員選挙制度の変更について	日本大気化学会 運営委員会	052N10
日本大気化学会役員選挙の公示	日本大気化学会 運営委員会	052N11

記事のご投稿について

論文や記事のご投稿をご検討されている方は、事前に本誌編集委員または日本大気化学会運営委員までご相談下さい。

大気化学研究編集委員:

大畑祥(共同編集長), 坂本陽介(共同編集長), 上田紗也子, 佐伯田鶴, 染谷有

日本大気化学会運営委員(第13期, 2023年7月1日から):

金谷有剛(海洋研究開発機構), 岩本洋子(広島大学), 石島健太郎(気象研究所),
石戸谷重之(産業技術総合研究所), 入江仁士(千葉大学), 江口菜穂(九州大学),
江波進一(筑波大学), 大畑祥(名古屋大学), 坂本陽介(国立環境研究所),
竹谷文一(海洋研究開発機構), 中山智喜(長崎大学), 町田敏暢(国立環境研究所),
宮崎雄三(北海道大学)

大気エアロゾルにおける水相の生成とその特性

Formation of aqueous phase in aerosol particles and its property

桑田幹哲^{1*}

地球大気は水蒸気を多く含むため、大気エアロゾルは吸湿し、水相を生成する。大気エアロゾルの吸湿成長は地球の放射収支や水循環に影響を与えるのみならず、液相化学反応の場となる。過去数十年間の研究により大気エアロゾルの吸湿成長過程や、雲粒生成に関する知見が蓄積されてきた。しかしながら未だに定量的理解が進んでいない課題も数多い。例えば有機エアロゾルの吸湿成長過程を化合物レベルの組成情報と結びつけて定量的に予測することは未だに困難である。氷点下においても大気エアロゾルは吸湿し水相を生成するが、その過程は実験的にほとんど調べられていない。液相化学反応の場として考えた際、エアロゾル水相の酸性度は非常に重要な指標となるが、酸性度の測定方法は未だに確立していない。本論文ではこれらの課題について主に筆者の研究グループが近年行ってきた研究をまとめ、将来的に求められる研究について議論する。

1. はじめに

地球大気、とりわけ対流圏の大気は水蒸気を多く含んでいる。そのためエアロゾルは吸湿し、水相を生成する。相対湿度が高い際には水がエアロゾルの主成分となる。例えば、相対湿度が80%以上の際、硫酸アンモニウムからなるエアロゾルの主成分は水となる[Tang & Munkelwitz, 1994]。さらにエアロゾルが過飽和と水蒸気雰囲気下に曝されると、エアロゾルはその吸湿特性と粒子直径に依り雲粒へと成長する[Rosenfeld et al., 2008]。このような水相の生成はエアロゾルが地球の放射収支に与える影響を評価する上で重要である。また雲生成、およびそれにより引き起こされる降水過程を通じて、エアロゾルは水循環に影響を与える。

さらに、エアロゾルの吸湿成長により生成した水相は大気中において化学反応が発生する場となる。例えば、冬季に北京で発生する硫酸塩を主体とするヘイズの発生に際しては、二酸化硫黄が水相において硫酸イオンへと酸化される化学反応過程が重要であると指摘されている[Y Cheng et al., 2016]。また、イソ

ブレンから二次有機エアロゾルが生成する化学反応においても水相における化学反応が重要であると考えられている[Paulot et al., 2009]。これらの化学反応を定量的に理解するためには pH やイオン強度といった、水相の化学的特性を把握する必要がある。

過去20~30年間に於いて集中的に行われてきた研究により、常温付近の温度においてエアロゾルが持つ吸湿性について、多くの実験的・理論的知見が得られてきた[Kuang et al., 2020]。また、過去10年強の研究において水相の化学的特性がエアロゾル内化学反応に与える影響の重要性が認識されるようになってきた[Ault, 2020]。

しかしながら、これらの現象について十分に理解されていない点があることも事実である。例えば、複雑な混合物である有機エアロゾルの化学組成と吸湿性の関係を測定可能な量から熱力学理論により予想することは未だに困難である。気温がエアロゾルの吸湿性に与える影響に関する研究は存在するが、限定的である。エアロゾル水相の pH に関しては研究手法自体が開発途上である。本論文においてはこれらの点

に関して筆者が行って来た研究を含めたレビューを行い、将来的に必要となる研究について議論する。

2. 理論的背景

多くの場合、乾燥状態において、エアロゾルは水を含まない(結晶水等の例は除く)。乾燥状態におけるエアロゾルは結晶を生成して固体として存在する場合もあれば、アモルファス固体(ガラス)となっている場合もある[Mikhailov *et al.*, 2009]。硫酸アンモニウムや塩化ナトリウムは結晶を生成しやすいことが知られているが、多くの有機物(例:スクロース, 二次有機エアロゾル)はアモルファス固体として存在する[Reid *et al.*, 2018]。

結晶を生成するエアロゾルの場合、潮解が発生する相対湿度に至るまで固体として存在する。エアロゾルは潮解後には液滴として存在する。潮解後の含水量は熱力学理論(ラウールの法則)に従って相対湿度に依存する。なお、水蒸気過飽和雰囲気下における雲凝結核生成過程を評価するためには、ラウールの法則のみならず、表面張力による水活量の変化(ケルビン効果)を考慮する必要がある(ケーラー理論)。潮解したエアロゾルが再度低い相対湿度下に曝された場合には風解するが、核生成に伴うエネルギー障壁のため、風解は潮解よりも低い相対湿度において発生する[Martin, 2000]。

アモルファスとして存在する物質の場合、潮解や風解は発生せず、エアロゾルの含水量は相対湿度の変化とともに連続的に増減する[Koop *et al.*, 2011]。アモルファス固体は非常に粘性が高い物質であるため、エアロゾル中における水の拡散速度が低い。そのため、含水量が熱力学平衡ではなく速度論的に支配されることがある[Zobrist *et al.*, 2011]。

二次有機エアロゾルやバイオマス燃焼により排出されるエアロゾルは、多くの物質の混合物である。これらの物質の中には水溶性が非常に高いものから実質的に不溶性のものまで、幅広い溶解度を持つものが存在する。水溶性が高い物質は低い相対湿度に

おいて吸湿を開始するが、中程度の水溶性を持つ物質はエアロゾル含水量が十分に大きくなったところで既存の水相に溶解する。従って混合物の場合、エアロゾル中に共存する物質の水溶性が、他の物質による水相への寄与に影響を及ぼすことがある[Riipinen *et al.*, 2015]。

エアロゾルにおける水相の溶液濃度は非常に高い。例えば、相対湿度が 80%以下の条件においては硫酸アンモニウムをはじめとする多くの化学成分が過飽和溶液を生成する。従ってエアロゾルの水相は熱力学的に理想溶液とはかけ離れた性質を持つ場合がほとんどである。そこでエアロゾルの水相における pH を見積もる際には活量係数の正確な評価が不可欠となる。さらにエアロゾルの水相はアンモニア等の半揮発/水溶性化合物との気液平衡にある。従って半揮発性無機物・有機物の気液分配が pH に与える影響も考慮する必要がある[Pyne *et al.*, 2020]。

3. 有機エアロゾルの吸湿性と雲凝結核特性

有機エアロゾルは一万種を超える化学成分を含んでいると考えられている。化学成分の複雑さにより、個々の物質が持つ水溶性や吸湿特性に基づき大気中に存在する有機エアロゾル、また室内実験により生成した二次有機エアロゾル等の吸湿性を評価することは現状では不可能に近い。

より簡便な方法として、有機エアロゾルを水溶性や極性により分類し吸湿性や雲凝結核特性を評価しようとする試みは長らく存在した。例えば、水溶性有機物(water-soluble organic matter: WSOM)の抽出は最も簡便かつ代表的な分類法である。WSOMに含まれる有機化合物も幅広い水溶性を持つため、固相抽出等によるさらなる分類が行われてきた [Q Chen *et al.*, 2016]。しかしながら、これらの手法による有機物の分類は定性的なものであり、有機エアロゾルの化学組成と吸湿性や雲凝結核特性を定量的に結びつけることは困難であった[Asa-Awuku *et al.*, 2008]。

そのような中、有機物の水溶解度分布を考慮してケ

ラー理論の計算を行えば、化合物レベルでの化学組成が分からない場合においても、吸湿性や雲凝結核特性の評価が可能になるのではないかと、という理論的提案がなされた[Riipinen *et al.*, 2015]。この考えは理論的には妥当ではあるものの、水溶性分布を測定する方法が存在しなかったため実験的検証を行うことは大変困難であった。

そこで、我々の研究グループでは 1-オクタノール/水分配係数 (1-octanol-water partitioning coefficient: K_{ow}) を利用して有機エアロゾルが持つ水溶解度分布を実験的に求める手法を開発した(図 1)[Kuwata & Lee, 2017; Lee *et al.*, 2020]。本手法の基本的なコンセプトは非常にシンプルであり、水抽出した有機エアロゾルサンプルを 1-オクタノールで液液抽出する際に溶媒の体積比を精密に制御することにより、各相に分配される物質の極性を変化させるというものである。

本手法を用いてバイオマス燃焼エアロゾルと二次有機エアロゾルの吸湿性を調べた[J Chen *et al.*, 2019; Lee *et al.*, 2022; Lee *et al.*, 2023]。バイオマス燃焼エアロゾルから抽出された WSOM が持つ吸湿性と雲凝結核特性を測定した結果、相対湿度が 100% 以下の領域においては非常に高い溶解度 ($> 10^2 \text{ g cm}^{-3}$) を持つ物質のみが吸湿性に寄与するのに対し、過飽和雰囲気下における雲凝結核生成には、それよりも低い ($> 10^{-2} \text{ g cm}^{-3}$) 水溶性を持つ物質もラウールの効果に寄与することが実験的に明らかとなった[Lee *et al.*, 2022]。

二次有機エアロゾルは α -ピネンのオゾン酸化により生成した。結果として、 α -ピネン二次有機エアロゾルから抽出した WSOM のうち、雲凝結核特性に寄与するのはバイオマス燃焼エアロゾルの場合と同様、一定以上の水溶性 ($> 10^{-2} \text{ g cm}^{-3}$) を持つ物質のみであることが明らかになった。これらの成分は WSOM 全体のうち、およそ 70% 程度の質量を占めていた。従来知られていた α -ピネン二次有機エアロゾル中にはこのような高い水溶性を持つ物質の存在は知られ

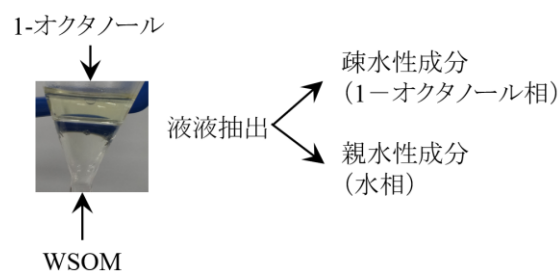


図 1 1-オクタノール/水分配係数を利用した WSOM 分類法の概念。

ていなかったが、エアロゾル質量分析計による化学組成測定の結果、高酸化有機化合物 (Highly oxygenated organic molecules: HOM) が雲凝結核特性を決定する上で重要な役割をはたしている可能性が示唆された[Lee *et al.*, 2023]。

K_{ow} は製薬化学や土壌化学等の分野で長らく用いられてきた指標であり、分子構造に基づく予測法や化学的に重要な他のパラメータとの関連がよく調べられている。これまで大気化学の分野において K_{ow} はあまり用いられてこなかったが、上述の研究成果はエアロゾルと水の相互作用を理解する上で本指標が有用であることを示している。

大気化学の分野では酸素炭素組成比 (Oxygen-to-carbon ratio: O:C) が有機エアロゾルの極性を表現する指標として長らく用いられてきた[Bertram *et al.*, 2011; Lambe *et al.*, 2011]。種々の質量分析法の発展により、O:C の測定は K_{ow} よりも簡便に行うことができる。しかしながら O:C では官能基の違いによる化合物の極性の違い (例えば $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$ と CH_3OCH_3) を表現することができない。今後、クロマトグラフィーを用いた手法等の開発により WSOM が持つ K_{ow} の分布を容易に測定することが可能になれば、エアロゾルの吸湿過程と化合物レベルでの化学組成の情報を定量的に結びつけることが出来るようになるものと期待される[Suda *et al.*, 2014]。

4. 気温が吸湿性に与える影響

大気中、とりわけ対流圏の温度は緯度や高度、また季節により大きく変わる。気温が吸湿性に与える影響はエアロゾルが雲生成に与える影響を評価する上で重要である。すなわち、(基本的には)吸湿性が高いエアロゾルは雲凝結核能を持つのにに対し、吸湿性が無いエアロゾルは氷晶核として機能する[Knopf & Alpert, 2023; Knopf et al., 2018]。さらに、エアロゾル含水量が気温により変化するのであれば、エアロゾル水相が持つ大気中化学反応の場としての機能に影響があるものと予想される。

ラウールの法則のみを考えた場合、エアロゾル含水量は相対湿度のみに依存し、気温には依存しない。しかしながら、相転移を考慮した場合には、気温が含水量に与える影響を考慮する必要がある。例えば、クラウジウス・クラペイロンの式により潮解相対湿度は気温によって変化する[Martin, 2000]。また、アモルファス固体を形成するエアロゾルの場合、固体中における水分子拡散速度が実質的に無視できるほど遅いため、吸湿過程が遅い(もしくは吸湿しない)ことが予想される[Berkemeier et al., 2014; Zobrist et al., 2011]。これらの実験的研究は主にマイクロメートル以上の大きさを持つ液滴に対して行われてきたが、大気中において主要な部分を占めるナノメートルサイズのエアロゾルに関しては、実験的検証が全く行われてこなかった。

この問題を研究するため、我々の研究グループでは低温 Hygroscopicity tandem differential mobility analyzer (HTDMA) を新たに開発した[M Cheng & Kuwata, 2023]。低温条件下ではエアロゾルの粘性が増し、拡散速度がエアロゾルの吸湿性に与える影響が調べやすいと期待される。低温条件下で HTDMA による測定を行う際、最大の問題となるのは加湿である。多くの場合、nafion 管が HTDMA の加湿に用いられる。しかしながら nafion はプラスチックの一種であるため、低温下では硬化し水の浸透性が悪くなるという問題がある。そこで我々は Shirasu Porous Glass

(SPG) 管を HTDMA に新たに導入した。SPG 管は九州の火山灰を原料とする多孔質ガラスであり、エアロゾル用のガス置換器としての特性が詳細に調べられているという利点がある。

開発した低温 HTDMA を用いて $-21^{\circ}\text{C} \sim +23^{\circ}\text{C}$ の温度範囲でスクロース及びグルコースの吸湿性を測定した[M Cheng et al., 2024]。これらの物質からなるエアロゾルは結晶化せずにアモルファス固体を形成することが過去の研究によりよく知られている。測定の結果、ナノメートルサイズのアモルファス固体エアロゾルにおける含水量が熱力学的にではなく速度論的に支配されていることが初めて実験的に示された。すなわち、湿度を上げる実験(加湿実験)の際にはエアロゾルは極少量しか水を含まなかった。一方、湿度を下げる実験(減湿実験)の際には加湿実験の時よりも含水量が多い現象が確認された。粘性が水分子の拡散に与える影響を考慮した多層モデル計算を行った結果、アモルファス固体中における非常に遅い水分子の拡散を考慮することにより、実験結果が説明できることが示された。

低温 HTDMA は大気観測やチャンバー実験等への応用が容易だという利点を持つ。今後、本手法を大気エアロゾルや室内実験において生成した二次有機エアロゾル等に応用することにより、エアロゾルの粘性が吸湿性に与える影響をより深く研究することができると期待される。また上述の研究とは逸れるが低温下では半揮発性物質の揮発が抑制されるため、低温 HTDMA を用いてこれらの物質が持つ吸湿性を今後新たに研究することが可能になると予想される。

5. エアロゾル水相の酸性度

エアロゾル水相の酸性度はエアロゾルの化学反応過程、健康影響、気候影響を定量化する上で重要なパラメータである。エアロゾル水相の pH は顕微ラマン分光、蛍光顕微鏡、pH 試験紙等の手法を用いて研究されてきた[Pye et al., 2020]。しかしながら、これらの手法は主に空中で捕捉された比較的大きな液滴、

もしくは何らかの表面に接触した粒子に対する測定法であり、浮遊しているナノメートルサイズのエアロゾルの pH を測定する方法は存在してこなかった。従って、エアロゾルの pH の研究を行うためには、大気中に存在する大きさのエアロゾルが持つ pH の測定法を開発するところから始める必要がある。

そこで我々の研究グループでは蛍光プローブを用いた pH 測定法を開発した(図 2)[Li & Kuwata, 2023]。本手法では微量のフルオレセイン、またフルオレセイン誘導体を含むエアロゾルを発生させる。フルオレセイン(及びその誘導体)の蛍光強度における励起波長依存性は pH の関数であることが知られている。従って二波長の光で蛍光プローブを含むエアロゾルを励起し、蛍光強度比を測定することにより pH を計測することができる。

新規に開発した蛍光によるエアロゾル pH 測定法と従来から存在するインパクトと pH 試験紙を組み合わせた手法による測定結果を比較したところ、 $\Delta\text{pH} < 0.4$ の範囲内で一致した。独立した二つの手法による測定結果の整合性は、データの妥当性を示唆するものである。なお、エアロゾルを発生させるためにネブライザに導入した溶液の pH とエアロゾルの pH は大幅に異なっていた。従来の研究においてはネブライザに導入した溶液の pH をエアロゾルの実験結果の解釈に適用したものが多数みられるが、それらの研究結果の定量的解釈には注意が必要だと思われる。

本手法は現在のところ、浮遊状態のままナノメートルサイズのエアロゾルが持つ pH を測定する唯一の手法である。今後は本手法による測定可能な pH の領域を広げるとともに、(ネブライザの溶液試料に蛍光プローブを加えるのではなく)浮遊状態のエアロゾルに蛍光プローブを導入する手法の開発が望まれる。これらの手法を使用することによりエアロゾル水相が持つ pH の支配要因の実験的解明、熱力学モデルにより推定された pH 値の妥当性評価、大気エアロゾルが持つ pH の実時間測定等が可能になると期待される。

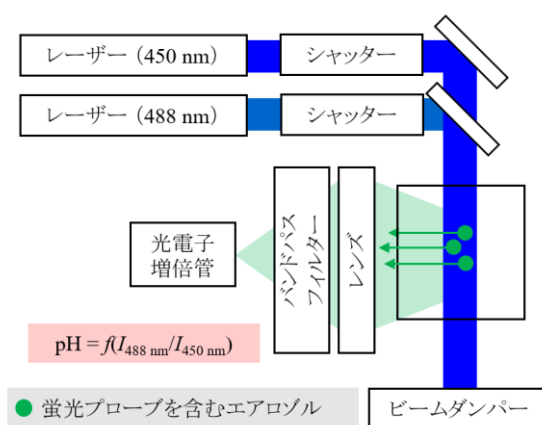


図 2 蛍光プローブを使用したエアロゾル pH の測定法。

6. 今後の展望

上述のように常温下におけるエアロゾルの吸湿性に関する知見及びデータは過去数十年間の研究によりかなり蓄積されてきた。しかしながら化学組成に基づき吸湿性や雲凝結核特性を予測することは未だ容易ではない。気温がエアロゾルの相や吸湿性に及ぼす影響に関しては主に純物質を用いた室内実験が行われているものの、二次有機エアロゾル等の複雑な系の研究や大気観測による検証の例は非常に限られている。エアロゾル水相の酸性度に関しては測定方法自体が発展途上である。また、近年の多相化学反応の知見の蓄積によりイオン強度といった酸性度以外の水相が持つ化学的特性にも注目が集まっているが、これらの性質を定量的に測定する手法は確立されていない。

1990 年代から 2000 年代にかけて、エアロゾル質量分析計をはじめとする多くのエアロゾル測定装置が開発され、製品化されてきた。2010 年代にはこれらの測定装置の普及が進み、大気観測・室内実験共に多くのデータが蓄積されてきた。しかしながら上記のようなエアロゾルの物理化学的性質に関する研究は、測定方法が十分に発展していないために極めて限られた数の研究者のみにより行われており、今後研究すべき課題が多く残されている。

今後、エアロゾルの熱力学特性や化学反応過程

に関する定量的理解を深めるためには、新たな発想に基づいた研究手法の開発が必要になると思われる。筆者はこれまで複数の国において研究を行ってきたが、日本では装置開発を行う能力を持つ研究者の割合が高いと感じる。この利点を生かし、現在測定不能な量を測定しようとする挑戦的な研究が行われることを期待したい。

謝辞

本論文に記載した研究には共同研究者の協力が不可欠でした。とりわけ Scot Martin 教授 (Harvard 大学), 持田陸宏教授 (名古屋大学), 李穎教授 (中国科学院大気物理研究所) に感謝します。本論文に記載した研究は主に筆者の研究室のメンバー (特に陳静, 李玫芊, 程曼秋, 李偉漢) により行われました。

参考文献

- Asa-Awuku, A., Sullivan, A. P., Hennigan, C. J., Weber, R. J., & Nenes, A. (2008), Investigation of molar volume and surfactant characteristics of water-soluble organic compounds in biomass burning aerosol, *Atmos. Chem. Phys.*, 8(4), 799-812, doi:10.5194/acp-8-799-2008.
- Ault, A. P. (2020), Aerosol acidity: Novel measurements and implications for atmospheric chemistry, *Acc. Chem. Res.*, 53(9), 1703-1714, doi:10.1021/acs.accounts.0c00303.
- Berkemeier, T., Shiraiwa, M., Pöschl, U., & Koop, T. (2014), Competition between water uptake and ice nucleation by glassy organic aerosol particles, *Atmos. Chem. Phys.*, 14(22), 12513-12531, doi:10.5194/acp-14-12513-2014.
- Bertram, A. K., et al. (2011), Predicting the relative humidities of liquid-liquid phase separation, efflorescence, and deliquescence of mixed particles of ammonium sulfate, organic material, and water using the organic-to-sulfate mass ratio of the particle and the oxygen-to-carbon elemental ratio of the organic component, *Atmos. Chem. Phys.*, 11(21), 10995-11006, doi:10.5194/acp-11-10995-2011.
- Chen, J., Lee, W.-C., Itoh, M., & Kuwata, M. (2019), A significant portion of water-soluble organic matter in fresh biomass burning particles does not contribute to hygroscopic growth: an application of polarity segregation by 1-octanol-water partitioning method, *Environ. Sci. Technol.*, 53(17), 10034-10042, doi:10.1021/acs.est.9b01696.
- Chen, Q., Ikemori, F., & M. Mochida (2016), Light absorption and excitation-emission fluorescence of urban organic aerosol components and their relationship to chemical structure, *Environ. Sci. Technol.*, 50(20), 10859-10868, doi:10.1021/acs.est.6b02541.
- Cheng, M., & Kuwata, M. (2023), Development of the low-temperature hygroscopicity tandem differential mobility analyzer (Low-T HTDMA) and its application to (NH₄)₂SO₄ and NaCl particles, *J. Aerosol Sci.*, 168, 106111, doi:doi.org/10.1016/j.jaerosci.2022.106111.
- Cheng, M., Li, Y., & Kuwata, M. (2024), Hysteresis in water content of ultrafine glassy organic aerosol particles, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 129(18), e2024JD041440, doi:doi.org/10.1029/2024JD041440.
- Cheng, Y., et al. (2016), Reactive nitrogen chemistry in aerosol water as a source of sulfate during haze events in China, *Sci. Adv.*, 2(12), e1601530, doi:10.1126/sciadv.1601530.
- Knopf, D. A., & Alpert, P. A. (2023), Atmospheric ice nucleation, *Nature Reviews Physics*, 5(4), 203-217, doi:10.1038/s42254-023-00570-7.
- Knopf, D. A., Alpert, P. A., & Wang, B. (2018), The role of organic aerosol in atmospheric ice nucleation: A review, *ACS Earth Space Chem.*, 2(3), 168-202, doi:10.1021/acsearthspacechem.7b00120.
- Koop, T., Bookhold, J., Shiraiwa, M., & Poeschl, U. (2011), Glass transition and phase state of organic compounds: dependency on molecular properties and implications for secondary organic aerosols in the atmosphere, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 13, 19238-19255, doi:10.1039/c1cp22617g.
- Kuang, Y., et al. (2020), A review on laboratory studies and field measurements of atmospheric organic aerosol

- hygroscopicity and its parameterization based on oxidation levels, *Current Pollution Reports*, 6(4), 410-424, doi:10.1007/s40726-020-00164-2.
- Kuwata, M., & Lee, W.-C. (2017), 1-octanol-water partitioning as a classifier of water soluble organic matters: Implication for solubility distribution, *Aerosol Sci. Technol.*, 51(5), 602-613, doi:10.1080/02786826.2017.1283004.
- Lambe, A. T., et al. (2011), Laboratory studies of the chemical composition and cloud condensation nuclei (CCN) activity of secondary organic aerosol (SOA) and oxidized primary organic aerosol (OPOA), *Atmos. Chem. Phys.*, 11(5), 8913-8928, doi:10.5194/acp-11-8913-2011.
- Lee, W.-C., Chen, J., & Kuwata, M. (2020), An inversion method for polarity distribution of atmospheric water-soluble organic matter, *Aerosol Sci. Technol.*, 54(12), 1504-1514, doi:10.1080/02786826.2020.1795482.
- Lee, W.-C., et al. (2022), Water solubility distribution of organic matter accounts for the discrepancy in hygroscopicity among sub- and supersaturated humidity regimes, *Environ. Sci. Technol.*, 56(24), 17924-17935, doi:10.1021/acs.est.2c04647.
- Lee, W.-C., Liu, P., Han, Y., Martin, S. T., & Kuwata, M. (2023), Accounting for cloud nucleation activation mechanism of secondary organic matter from α -pinene oxidation using experimentally retrieved water solubility distributions, *Environ. Sci. Technol.*, 57(36), 13439-13448, doi:10.1021/acs.est.3c03039.
- Li, W., & Kuwata, M. (2023), Detecting pH of sub-micrometer aerosol particles using fluorescent probes, *Environ. Sci. Technol.*, 57(23), 8701-8707, doi:10.1021/acs.est.3c01517.
- Martin, S. T. (2000), Phase transitions of aqueous atmospheric particles, *Chem. Rev.*, 100(9), 3403-3453, doi:10.1021/cr990034t.
- Mikhailov, E., Vlasenko, S., Martin, S. T., Koop, T., & Pöschl, U. (2009), Amorphous and crystalline aerosol particles interacting with water vapor: conceptual framework and experimental evidence for restructuring, phase transitions and kinetic limitations, *Atmos. Chem. Phys.*, 9(24), 9491-9522.
- Paulot, F., et al. (2009), Unexpected epoxide formation in the gas-phase photooxidation of isoprene, *Science*, 325(5941), 730-733, doi:10.1126/science.1172910.
- Pye, H. O. T., et al. (2020), The acidity of atmospheric particles and clouds, *Atmos. Chem. Phys.*, 20(8), 4809-4888, doi:10.5194/acp-20-4809-2020.
- Reid, J. P., et al. (2018), The viscosity of atmospherically relevant organic particles, *Nat. Commun.*, 9(1), 956, doi:10.1038/s41467-018-03027-z.
- Riipinen, I., Rastak, N., & Pandis, S. N. (2015), Connecting the solubility and CCN activation of complex organic aerosols: a theoretical study using solubility distributions, *Atmos. Chem. Phys.*, 15(11), 6305-6322, doi:10.5194/acp-15-6305-2015.
- Rosenfeld, D., et al. (2008), Flood or drought: How do aerosols affect precipitation?, *Science*, 321(5894), 1309-1313, doi:10.1126/science.1160606.
- Suda, S. R., et al. (2014), Influence of functional groups on organic aerosol cloud condensation nucleus activity, *Environ. Sci. Technol.*, 48(17), 10182-10190, doi:10.1021/es502147y.
- Tang, I. N., & Munkelwitz, H. R. (1994), Water activities, densities, and refractive-indexes of aqueous sulfates and sodium-nitrate droplets of atmospheric importance, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 99(D9), 18801-18808, doi:10.1029/94jd01345.
- Zobrist, B., et al. (2011), Ultra-slow water diffusion in aqueous sucrose glasses, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 13(8), 3514-3526, doi:10.1039/c0cp01273d.

原稿受領日: 2024 年 11 月 15 日

掲載受理日: 2024 年 12 月 10 日

著者所属:

1. 北京大学物理学院大气与海洋科学系

* 責任著者:

Mikinori Kuwata <kuwata@pku.edu.cn>

雲粒生成への表面張力の影響評価について

Evaluation of the effect of surface tension on cloud droplet formation

南川陸登¹, 玄大雄^{2*}

本記事では、大気中エアロゾルが雲凝結核 (CCN) として雲粒生成に及ぼす表面張力の影響について議論している。従来モデルは純水の一定表面張力を仮定していたが、界面活性剤の存在により表面張力が低下し、CCN 活性が増加する可能性が示されている。しかし、微小液滴では「サイズ効果」により、バルク中界面活性剤の枯渇が表面張力を増加させる。今回は、ラングミュアモデルを基にサイズ依存表面張力を予測する新モデルの構築および実験結果との比較について紹介する。さらに、本モデルを応用したケーラー曲線解析では、サイズ効果を見逃した場合、CCN 活性の過小・過大評価が起こる可能性を示す。

1. はじめに

大気エアロゾル粒子は、太陽放射を散乱・吸収することによって気候システムに直接影響を与え、また雲凝結核 (CCN) として雲粒に活性化することで間接的に影響を与える。エアロゾルが雲粒へと成長し太陽光を反射することで、地球全体の放射強制力に大きな負の影響を与えることが報告されている。しかし、その影響の予測は大きな不確実性をはらんでおり、これが全体の放射強制力にも不確実性を与える原因となっている。CCN 活性の予測には、ケーラー理論が用いられており、水蒸気の臨界過飽和度 (S_c) によって活性化される雲粒の数を予測している (図 1)。ケーラー理論には水の活量の項 (ラウール効果) と水滴の表面張力の項 (ケルビン効果) の2つが含まれており、水の活量は吸湿パラメータ κ によってパラメータ化された κ -ケーラー理論として理解されている。この吸湿パラメータ κ はエアロゾルの化学組成によって決まるもので、これまでに多くの研究によって κ の推定・計算などが行われてきた。その一方で、表面張力の効果に関しての議論はほとんど進んでいない。

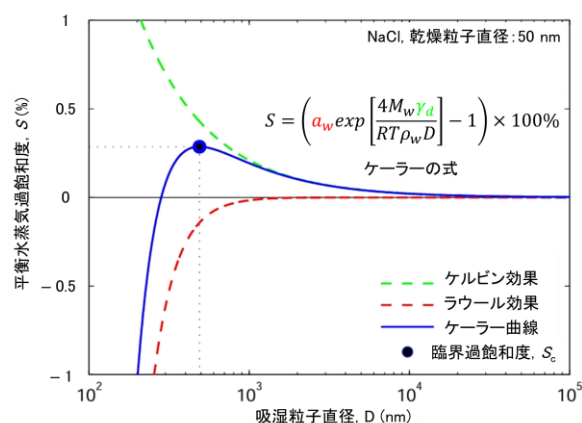


図 1 ケーラー曲線の例

CCN 活性に関する予測では純水の表面張力を仮定し、成長過程で一定であると仮定することが一般的である。しかし、その仮定では実大気観測を再現できない場合がある。例えば、2015 年に北大西洋上で観測された CCN の数の実測値は理論値を上回ることが分かった [Ovadnevaite et al., 2017]。この理論値は表面張力を純水と同等の 72 mN m^{-1} と仮定して計算されたが、この表面張力が 49 mN m^{-1} であるとして得た理論値は、観測値をよく再現するということが報告さ

れている。これは表面張力に純水の値を仮定すると CCN 活性を過小評価してしまう危険性を示唆している。実際に、30%の表面張力の変化は放射強制力に最大で 1 W m^{-2} の誤差をもたらす可能性があると言われている[Facchini et al., 1999; Prisle et al., 2012]。

実大気中でそのような表面張力低下を達成するには界面活性剤の存在が必要不可欠である。本当に表面張力の低下をもたらすほどの界面活性剤が大気エアロゾルに含まれているのであろうか？実大気サンプル中には 100 mM 程度の界面活性剤が含まれていることが報告されている[Petters & Petters, 2016]。

図 2 には、実大気サンプルによる表面張力の測定結果を含んだ様々な界面活性剤の表面張力の濃度依存性が示されている。界面活性剤 100 mM という濃度は、表面張力を十分に低下させることが出来る。しかし、雲粒の形成時にはエアロゾルの吸湿に伴い、界面活性剤の濃度は希釈される。既往の報告によると、エアロゾルから雲粒へ活性化される際に約 1000 倍に希釈されると言われており[Gérard et al., 2016], その領域でも表面張力は 72 mN m^{-1} よりも低い値を示す。つまり、雲粒に活性化するエアロゾルには、表面張力を純水以下に下げるとの界面活性剤が含まれている可能性が十分にある。

上記の結論は、バルク水溶液の表面張力測定の結果をもとに得られている。しかしながらサンプルサイズが小さくなる(比表面積すなわち表面積/体積比が大きくなる)と、界面活性剤の濃度が一定であっても表面張力が大きくなることが報告されている[Bain et al., 2023]。これは、マイクロスケールの液滴において界面活性剤の表面とバルクとの分配によって、バルク中の界面活性剤が枯渇することで生じる。これは比表面積がマイクロスケール液滴の方が非常に大きくなるためにおこる現象で、「サイズ効果」と呼ばれる。サイズ効果はこれまでにいくつかのモデルと実験的な検証が報告されているが、マイクロスケールの液滴の表面張力計測が困難であるためサイズ効果の予測モデルの確立はまだされていない。

本稿では、まず界面活性剤を含んだ液滴が示すサイズ効果について説明した後、現在用いられているマイクロスケールの液滴の表面張力の測定方法の最先端を簡単にまとめる。そして、実験によって得られた表面張力の値を再現でき、CCN 予測において重要なサブミクロンサイズの液滴のサイズ効果を予測するモデルについて紹介する。最後には、サイズ効果がケーラー曲線にどのような影響を与えるのかを評価し、今後の研究の展開についても触れる。

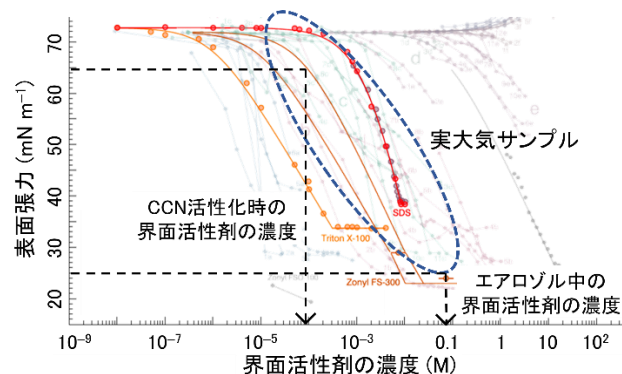


図 2 界面活性剤の濃度と表面張力の関係[Petters & Petters, 2016]

2. サイズ効果

界面活性剤を含んだ液滴の表面張力を考慮する際に、その予測を複雑にしている要因である「サイズ効果」について説明する。

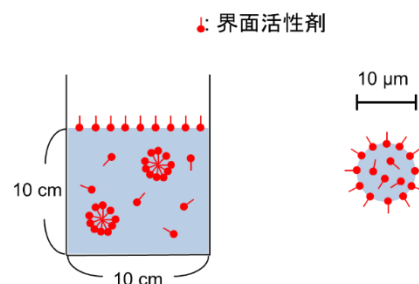


図 3 ビーカーと液滴中に界面活性剤が存在する様子を表した模式図

まず、図 3 のようにビーカーの水溶液や液滴中に界面活性剤が存在する系を考えてみる。ビーカー・

液滴ともに気液界面は界面活性剤によって被覆されていく。ここで、ビーカーを直径 10 cm の丸底を持ち高さ 10 cm だけ水溶液で満たされており、液滴は直径 10 μm であると仮定すると、その比表面積はビーカー:液滴でおよそ 1:60000 となる。ビーカーに比べて液滴は 60000 倍も体積に対する表面積の割合が多くなると言える。このように体積に比べて表面積の寄与が大ききことは、界面活性剤の表面濃度とバルク中の濃度にも影響する。

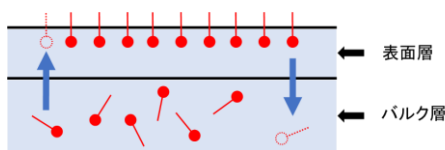


図 4 界面活性剤が表面層とバルク層で吸脱着している様子を表した模式図

次に、界面活性剤の表面への吸着と脱着について考える。界面活性剤の表面への吸着と脱着は動的平衡に達しており、表面に吸着した分子とバルク層中の分子が一定の割合で入れ替わっている(図 4)。比表面積が極めて大きな液滴では、表面への界面活性剤の吸着により、バルク相に存在する界面活性剤の分子数が無視できないほど減少する。そのため、バルク部分の界面活性剤の濃度は液滴全体の濃度より低くなる(バルク中の界面活性剤の枯渇)。ラングミュアの吸着式によると平衡状態では界面活性剤のバルク濃度が表面濃度を決定するので、界面活性剤の表面被覆率は、比表面積の小さい液滴に比べて低くなる。つまり比表面積が極めて大きな液滴では、表面・バルク相の界面活性剤の濃度がともに低くなる。(図 5)。これにより、界面活性剤の表面張力を下げる効果が弱まり、平衡時のバルク中の界面活性剤濃度の低下が表面張力に影響を与える。これがいわゆる「サイズ効果」である。

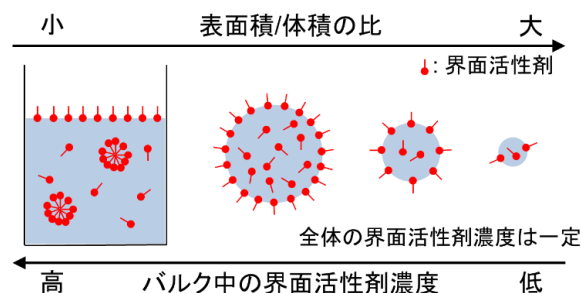


図 5 比表面積とバルク中界面活性剤濃度の関係を表した模式図

3. 表面張力測定方法

3.1 各種表面張力測定方法のまとめ

先ほど述べたサイズ効果を実証するためには、マイクロスケールの液滴の表面張力の測定が不可欠である。ここでは液滴の表面張力の測定方法について、現在用いられている手法を解説する。表 1 に、測定法の名称と測定にかかるタイムスケールおよび測定可能な液滴の粘度の情報をまとめた[Bain, 2024]。表で示した各種測定法について、以下に説明を加える。懸滴法は代表的な表面張力の測定法の一つで、液滴を針先に形成し、その形状を撮影してヤング・ラプラス方程式を用いて表面張力を計算する方法である。この測定法は少量のサンプルで高精度の結果が得られ、また様々な溶媒で測定が可能なることから、ミリメートルスケールの液滴においては研究室レベルから商業的な応用まで広く用いられている。原子間力顕微鏡(Atomic force microscopy, AFM)は、ナノサイズの針先を液滴に接触させ、その引き剥がし力(保持力)を測定して表面張力を算出する方法である。この方法は、現状唯一ナノスケールの液滴の表面張力を測定できる方法である。しかし、基盤と液滴が接触した状態で測定するため基板上の不純物により液滴が汚染されるおそれがあるなど、その測定方法には課題もある[Haber et al., 2024]。液滴合体法/弾性後方散乱法は、光学トラップ内で 2 つの液滴を合体させ、その振動周波数から表面張力を計算する方法で、光吸収の無い液滴のみが測定の対象となる。スト

ロボスコープイメージングは、高速撮影の技術を用いて液滴列の形状変化を記録し、その表面張力を動的に解析する方法である。特徴的なのは測定タイムスケールで、ミリ秒単位の表面張力動態の観察が可能である。続いて、振動固定液滴法は、液滴を固体基板上に置いた状態で外部刺激を与え、その形状変化を観測して振動周波数の変化や減衰特性などから表面張力を算出する方法である。この方法では数ピコリットル程度の試料でも測定が可能であるが、基板上に固定する以上基板との相性などが測定結果に影響を与える可能性は考慮しなければならない

い。液滴変形法は、高出力のレーザーを用いて液滴を変形させ、その形状変化を解析して表面張力を計算する手法である。5 μm 程度の液滴のみが対象となり、過飽和の状態でも測定が可能となっている。続いてレインボー屈折率測定法は、単一波長光を液滴に照射し、レインボー角の変化を観測して表面張力を算出する方法である。レインボー角は液滴の振動による形状変化に特に依存するものであるため、これを解析することで表面張力が得られる。準弾性散乱法 (Quasi-elastic Light Scattering, QELS) に関しては、次の 3.2 にて詳細にまとめた。最後に、電場誘起形

表 1 液滴の表面張力を測定する方法の一覧[Bain, 2024]

	測定可能な液滴サイズの範囲	測定のタイムスケール	測定可能な粘度の範囲
懸滴法[Berry et al., 2015]	0.4 – 1.8 mm	約 1 秒から数分	一般的に 0.6 – 1500 mPa·s が用いられる
原子間力顕微鏡[Morris et al., 2015]	0.25 – 2500 μm	平衡	<100 Pa·s
液滴合体法/弾性後方散乱法 [Bain et al., 2023; Bzdek et al., 2016, 2020]	5 – 10 μm	平衡	6400 mPa·s まで
ストロボスコープイメージング[Bain et al., 2024; Miles et al., 2019]	10 – 1500 μm	10 マイクロ秒から数秒	<3.2 mPa·s
振動固定液滴法[McCarthy et al., 2023; Yamakita et al., 1999]	$\approx 20 \mu\text{m}$	平衡	<3.2 mPa·s
液滴変形法[Rafferty et al., 2019]	$\approx 5 \mu\text{m}$	平衡	350 mPa·s (上限はもっと高いと予想される)
レインボー屈折率測定法[Lv et al., 2020; Wu et al., 2021]	65 – 85 μm	平衡	<3.2 mPa·s
QELS[Endo et al., 2018; Gen et al., 2023]	5 – 20 μm	平衡	粘性の高い液滴では測定不可 ($\approx 1.3 \text{ mPa}\cdot\text{s}$)
電場誘起形状振動法[Singh et al., 2023]	$\approx 50 \mu\text{m}$	平衡	2 – 7 mPa·s (上限は数 Pa·s と予想される)

状振動法は電場で液滴を変形させ、その振動を解析して表面張力を算出する方法で、温度依存性の表面張力が測定可能であるほか、高粘度の液滴にも適用可能な測定方法である。以上の測定方法の中で、マイクロスケール特に 10 μm より小さな液滴の表面張力を測定可能なのは、原子間力顕微鏡、液滴合体法/弾性後方散乱法、液滴変形法、QELS に限られる。

3.2 EDB-QELS によるその場測定法[Gen et al., 2023]

これは、我々の研究室で行っている測定方法で、電子力学天秤 (Electrodynamic balance, EDB) と準弾性光散乱 (Quasi-elastic light scattering, QELS) を組み合わせた方法である。図 6 に示した通り、EDB は重力や窒素ガスの流体抗力に釣り合うように DC 電極を用いて上向きの電場を作り、液滴を浮遊させる。この際に四極子を用いて液滴の横方向の揺れを抑え、安定して水平面に存在できるように調整している。EDB チャンバーはステンレスでできており、チャンバー内の相対湿度 (RH) は乾燥させた窒素ガスと水蒸気と窒素の混合ガスの割合を変えることで制御している。1 つの液滴を浮かせて平衡状態になるまで 15-30 分ほどおいたのち、表面張力の測定を行う。

続いて QELS について、その基本的な原理は、気液界面において熱揺らぎが引き起こす表面張力波による光散乱を計測するもので、光学的なアプローチで表面張力を測定できるユニークな手法である。図 7 に示したように我々の装置では 785 nm のレーザーを用いて測定を行っており、50 倍の対物レンズで液滴にその焦点を合わせている。透過光および散乱光の信号は凸レンズによって集光され、フォトダイオードに送られる。アンプで増幅された信号をスペクトロメーターでスペクトル化し、図 8 のようなスペクトルが得られる。解析によって各振動モード (l) での共鳴周波数 (f_l) が得られるが、図 8 中の黒の点で示した位置が、左から $l = 2, 3, 4$ での共鳴周波数 f_2, f_3, f_4 となる。この共鳴周波数は下記のラムの式 (Lamb's equation)

によって表面張力 (σ) との関係性が明示されているため、この式を用いることで液滴の表面張力が算出される。

$$f_l = \sqrt{\frac{l(l-1)(l+2)\sigma}{\rho a^3}} \quad (1)$$

ここで、 ρ は液滴の密度で、熱力学モデル (E-AIM モデル) により算出される値を用いる。この際、界面活性剤濃度は塩に対して数千分の一程度であり、液滴の密度および潮解性にはほとんど影響を与えないため、今回は界面活性剤が存在しない系として計算を行っている。また a は液滴の半径で、図 8 で示したように撮影した液滴の画像からその半径を計算している。

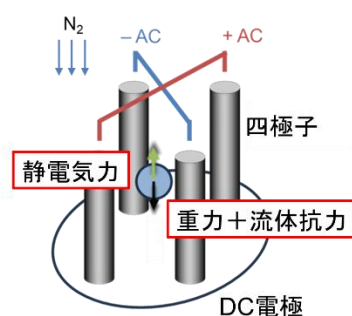


図 6 EDB の模式図

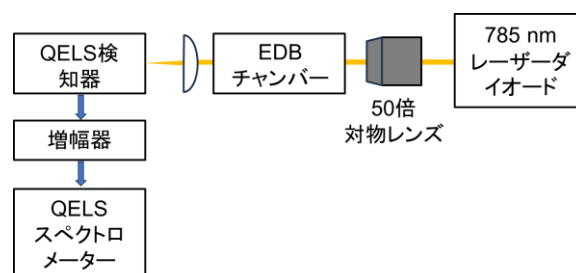


図 7 EDB-QELS 装置の簡略的な模式図

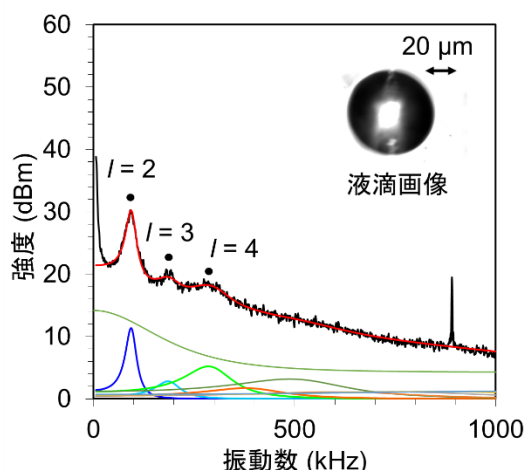


図 8 得られるスペクトルと液滴の画像の例

4. サイズ依存性表面張力を予測するモデルの提案とケーラー曲線への影響

4.1 ラングミュアモデルに基づく新たなモデルの構築

ここからは、ラングミュアの等温吸着式に基づく表面とバルクの界面活性剤の分配モデルについて解説する。

このモデルの最も重要な仮定である、液滴中の界面活性剤の物質収支について考えると、

$$C_t \times V = \Gamma_s \times A + C_b \times V \quad (2)$$

ここで、 C_t は液滴全体の界面活性剤の濃度、 Γ_s は表面に存在する界面活性剤の濃度、 C_b はバルク中の界面活性剤の濃度を表しており、 V が液滴の体積、 A が液滴の表面積に対応する。この液滴の半径を r と仮定すると、式(2)は

$$C_t = \frac{3}{r} \Gamma_s + C_b \quad (3)$$

このように書き換えることができ、液滴のサイズとバルク中の界面活性剤の濃度の関係がこの式によって記述される。

続いて、ラングミュアの等温吸着式により、 Γ_s と C_b の関係について

$$\Gamma_s = \Gamma_0 \frac{K_L C_b}{1 + K_L C_b} \quad (4)$$

このように表すことができる。ここで、 Γ_0 と K_L は熱力学パラメータで、それぞれ界面活性剤の表面過剰濃度とラングミュア定数と呼ばれる。 K_L は界面活性剤の表面への吸着と表面からの脱着の比を示すもので、単純に界面活性の強さを表しているとも言える。式(4)を式(3)へと代入すると以下のサイズに依存する C_b の関係式を導出することができる。

$$C_t = K_L C_b^2 + \left(1 + \frac{3\Gamma_0 K_L}{r} - K_L C_t\right) C_b \quad (5)$$

最後に、この式と表面張力の計算において一般的に用いられるシスコフスキーの式を組み合わせることで、

$$\sigma(r) = \sigma_0 - nRT\Gamma_0 \ln(1 + K_L C_b) \quad (6)$$

このサイズ依存性表面張力を計算できる式(6)が導かれる。ここで、 n はバルク中の界面活性剤の濃度に依存するパラメータで[Prosser & Franses, 2001]、今回の研究では 1 としており、 R は気体定数、 T は温度となっている。これらの式(5)および式(6)を用いることで、液滴のサイズ依存性表面張力を予測することが可能になる。この K_L と Γ_0 は、式(6)をバルクの表面張力の測定に対するフィッティングによって求めることができ、このときは $C_b = C_t$ として計算する。

4.2 実際の表面張力測定へのモデルの適用

4.2.1 界面活性剤濃度に依存する表面張力の予測

先ほどのモデルを実際の表面張力測定の実験結果に適用した例を見ていく。図 9 は、縦軸に表面張力、横軸に界面活性剤の濃度を取ったグラフである。ここでは 0.5 M の塩化ナトリウム水溶液に界面活性剤としてテトラデシルヘキサエチレングリコールエーテル(C14E6)を溶解させたものをサンプルとしている。バルク溶液を用いた表面張力測定の結果[Bain et al., 2023]から、図中の青のプロットが得られる。このデータを先ほどのモデルでフィッティングすると、熱力学パラメータである K_L と Γ_0 の値が得られ、この系では $K_L = 22380 \text{ m}^3 \text{ mol}^{-1}$ 、 $\Gamma_0 = 3.17 \times 10^{-6} \text{ mol m}^{-2}$ となった。次にこの値を用いて半径が 1 cm の液滴と仮定し

て引いた理論線が青の実線で、バルク実験の値をよく再現していることがわかる。続いて、6~9 μm の液滴の表面張力の測定結果[Bain et al., 2023](黒のプロット)を再現してみる。黄色の実線が半径 6 μm の液滴と仮定した場合、点線が半径 9 μm の液滴と仮定した場合の結果で、モデルが実験結果をよく再現していることがわかる。液滴の表面張力がバルク溶液のものに比べて大きな値を示すのは、前述したバルク中の界面活性剤の枯渇によるものである。また、実験値と理論値の誤差を測るときの指標としてしばしば用いられる、二乗平均平方根誤差(root-mean square error, RMSE)の値は 2.12 mN m^{-1} であり(表 2)、これは最大で 70 mN m^{-1} ほどの表面張力の値を持つこの系に対して、十分に小さい誤差であると評価できる。

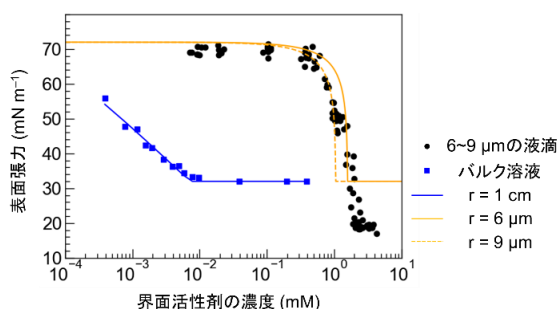


図 9 表面張力と界面活性剤の濃度の関係

表 2 実験値と理論値の RMSE (mN m^{-1})

溶液	界面活性剤	CMC 以下での RMSE (mN m^{-1})
0.5 M NaCl	C14E6	2.12

4.2.2 サイズに依存する表面張力の予測

次に、サイズ依存性の表面張力の実験に適用した例について紹介する。ここでは、塩として硫酸アンモニウム(AS)を、界面活性剤としてドデシル硫酸ナトリウム(SDS)を代表的なサンプルとして選定した。SDS が臨界ミセル濃度(CMC)以下の濃度でないとサイズ効果が発現しないため、まず CMC の決定を目的とし

た実験を行った。また、この際の液滴の半径はサイズ効果が出ないとされる大きな液滴(約 25 μm 以上)の液滴を用いて行った。縦軸に表面張力、横軸に SDS の濃度を取ったグラフを図 10 に示した。この図中のプロットは、3.2 で紹介した EDB-QELS を用いたその場測定法による表面張力測定の結果である。液滴中の AS の濃度は熱力学モデルより 3.4 M と計算された。この実験により、SDS の濃度が CMC に到達した時点での表面張力は 24.3 mN m^{-1} とし、図中の赤い丸で示した CMC 以下の濃度である 0.43 mM を次のサイズ依存性表面張力の実験の濃度に選んだ。その結果を次の図 11 に示す。これは、SDS の濃度を 0.43 mM で一定にして、液滴のサイズを変えて表面張力を測定した結果である。液滴の半径が減少していくほど表面張力の値が増加しており、サイズ効果の影響が顕著に表れている。半径 20 μm 付近では 25 mN m^{-1} ほどだった表面張力は、10 μm 以下の液滴では 60 mN m^{-1} を上回っており、サイズによって 30 mN m^{-1} 以上もの変化が出ている。そして、この表面張力のサイズによる変化を 4.1 で提案したモデルで予測した結果が図中の曲線である。この際の熱力学パラメータ K_L , Γ_0 の値および実験値と理論値の RMSE は表 3 にまとめた。 K_L の値は 10^6 オーダーであり、4.2 で取り扱った系や、その他の系でも見られないほど高い値を示していた。また、RMSE は 14.3 mN m^{-1} であり、これは 70 mN m^{-1} の表面張力を持つ液滴の系と考えればそこまで大きな誤差ではないと評価できる。

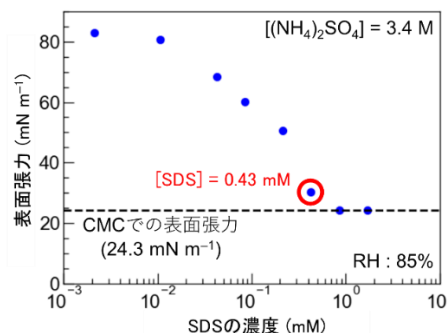


図 10 SDS 濃度と表面張力の関係

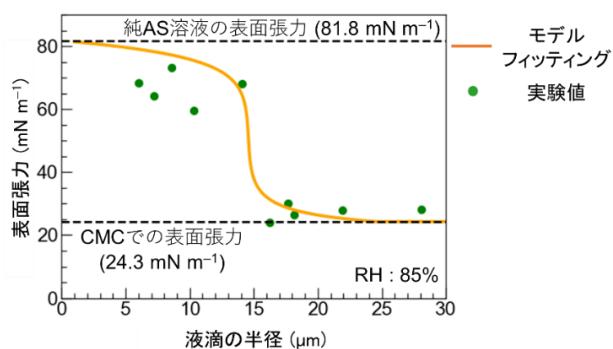


図 11 SDS を含んだ AS 液滴のサイズ依存性表面張力

表 3 K_L ($\text{m}^3 \text{mol}^{-1}$), Γ_0 (mol m^{-2}) の値および実験値と理論値の RMSE (mN m^{-1})

K_L ($\text{m}^3 \text{mol}^{-1}$)	Γ_0 (mol m^{-2})	RMSE (mN m^{-1})
4.34×10^6	2.07×10^{-6}	14.3

4.3 サイズ依存性表面張力がケーラー曲線に与える影響

最後に、ここまで議論してきたサイズ依存性の表面張力を考慮に入れたケーラー曲線について考える。ここでは表面の状態が異なる 3 つの条件で書いたケーラー曲線を比較し、その際の表面張力について見ていく(図 12)。青で示したものは、従来の水の表面張力(72 mN m^{-1})と仮定した場合(モデル 1)、赤で示したものは表面張力へのサイズ効果を考慮した場合(モデル 2)、そして緑で示したものはバルク溶液($C_t = C_b$)と仮定した場合(モデル 3)である。今回は、NaCl と SDS の 2 成分のみを含んだ系としており、そのモル比は 1:1 と仮定した。乾燥粒子直径は 100 nm とし、この系での吸湿度 κ の値は、NaCl が 1.28 [Petters & Kreidenweis, 2007], SDS が 0.134 [Petters & Petters, 2016; Ruehl et al., 2010]と仮定し 0.232 と計算された。また各 S_c および σ_c の値、その時の吸湿粒子直径 D と SDS の濃度を表 4 にまとめた。図 12 (a)を見ると、モデル 3 の場合に 1 や 2 に比べて S_c が 0.1% 以上も小さくなるのがわかる。また、 S_c での SDS の濃度はモデル 1, 2, 3 でそれぞれ $16.5, 12.2, 5.37 \text{ mM}$ である。既往の報告によると、雲粒中に含まれる界面活性

剤の濃度は $10 \sim 40 \text{ mM}$ であると予測されているため、本計算で得られた SDS 濃度はそれよりも低く現実的な濃度と言える[Petters & Petters, 2016]。つまり、バルク溶液という仮定は実際の CCN の予測で大きな誤差を生み出すおそれがある。一方で、モデル 1 と 2 の S_c の差は 3 との差ほど大きくはないものの、 0.02% の差があることから、表面張力が一定であるという仮定も CCN を過小評価する可能性があると言える。

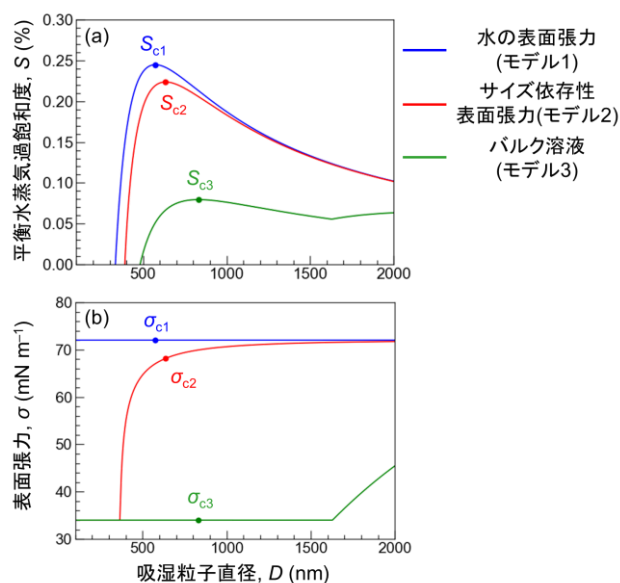


図 12 3 つの表面の状態を比較した(a)ケーラー曲線 および (b)表面張力と粒径の関係。各条件での S_c を $S_{c1} \sim S_{c3}$ 、その時の表面張力を $\sigma_{c1} \sim \sigma_{c3}$ として図中に示した。

表 4 S_c (%) および σ_c (mN m^{-1}) の値、その時の D (nm) と SDS の濃度 (mM)

	S_c (%)	σ_c (mN m^{-1})	D (nm)	[SDS] (mM)
表面張力一定(モデル 1)	0.24	72.0	579	16.5
サイズ依存性表面張力(モデル 2)	0.22	68.2	640	12.2
バルク溶液(モデル 3)	0.08	34.0	842	5.37

5. 結論

本稿では、マイクロ液滴の表面張力において界面活性剤が示すサイズ効果と、それを予測するモデルについての解説を行った。そのモデルを用いてケーラー曲線への影響を評価したが、このモデルにおいて重要な 2 つの熱力学パラメータは化合物の組成により決定されるものである。つまり、様々な組成の化学種に対して熱力学パラメータを求めることで、官能基や pH、分子のサイズや炭素数などによってグループ化できれば、今後の CCN 活性の予測がより効率的に行えることが期待できる。そのため、これらのパラメータに関してはさらに研究が必要で、組成や塩濃度、界面活性剤の濃度などで値の変動を定量化することが、より包括的なモデルの構築に繋がる。

謝辞

本研究は、科学技術振興機構 (JST) 創発的研究支援事業 (JPMJFR206V) の支援を受けて行われた。

参考文献

- Bain, A. (2024). Recent advances in experimental techniques for investigating aerosol surface tension, *Aerosol Sci. Technol.*, 58(11), 1–24, doi:10.1080/02786826.2024.2373907.
- Bain, A., Ghosh, K., Prisle, N. L., & Bzdek, B. R. (2023). Surface-Area-to-Volume Ratio Determines Surface Tensions in Microscopic, Surfactant-Containing Droplets, *ACS Central Sci.*, 9(11), 2076–2083, doi:10.1021/acscentsci.3c00998.
- Bain, A., Lalemi, L., Croll Dawes, N., Miles, R. E. H., Prophet, A. M., Wilson, K. R., & Bzdek, B. R. (2024). Surfactant Partitioning Dynamics in Freshly Generated Aerosol Droplets, *J. Am. Chem. Soc.*, 146(23), 16028–16038, doi:10.1021/jacs.4c03041.
- Berry, J. D., Neeson, M. J., Dagastine, R. R., Chan, D. Y. C., & Tabor, R. F. (2015). Measurement of surface and interfacial tension using pendant drop tensiometry, *J. Colloid Interface Sci.*, 454, 226–237, doi:10.1016/j.jcis.2015.05.012.
- Bzdek, B. R., Power, R. M., Simpson, S. H., Reid, J. P., & Royall, C. P. (2016). Precise, contactless measurements of the surface tension of picolitre aerosol droplets. *Chem. Sci.*, 7(1), 274–285, doi:10.1039/c5sc03184b.
- Bzdek, B. R., Reid, J. P., Malila, J., & Prisle, N. L. (2020). The surface tension of surfactant-containing, finite volume droplets, *Proc. Natl. Acad. Sci.*, 117(15), 8335–8343, doi:10.1073/pnas.1915660117.
- Endo, T., Ishikawa, K., Fukuyama, M., Uraoka, M., Ishizaka, S., & Hibara, A. (2018). Spherical Spontaneous Capillary-Wave Resonance on Optically Trapped Aerosol Droplet, *J. Phys. Chem. C*, 122(36), 20684–20690, doi:10.1021/acs.jpcc.8b03784
- Facchini, M. C., Mircea, M., Fuzzi, S., & Charlson, R. (1999). Cloud albedo enhancement by surface-active organic solutes in growing droplets, *Nature*, 401, 257–259, doi:10.1038/45758.
- Gen, M., Hibara, A., Phung, P. N., Miyazaki, Y., & Mochida, M. (2023). In Situ Surface Tension Measurement of Deliquesced Aerosol Particles, *J. Phys. Chem. A*, 127(29), 6100–6108, doi:10.1021/acs.jpca.3c02681.
- Gérard, V., Nozière, B., Baduel, C., Fine, L., Frossard, A. A., & Cohen, R. C. (2016). Anionic, Cationic, and Nonionic Surfactants in Atmospheric Aerosols from the Baltic Coast at Askö, Sweden: Implications for Cloud Droplet Activation, *Environ. Sci. Technol.*, 50(6), 2974–2982, doi:10.1021/acs.est.5b05809.
- El Haber, M., Gérard, V., Kleinheins, J., Ferronato, C., & Nozière, B. (2024). Measuring the Surface Tension of Atmospheric Particles and Relevant Mixtures to Better Understand Key Atmospheric Processes, *Chem. Rev.*, 124(1), 2076–2083, doi:10.1021/acs.chemrev.4c00173.
- Ly, Q., Wu, Y., Li, C., Wu, X., Chen, L., & Cen, K. (2020). Surface tension and viscosity measurement of oscillating droplet using rainbow refractometry, *Opt. Lett.*, 45(24),

- 6687, doi:10.1364/ol.412498.
- McCarthy, L. P., Reid, J. P., & Walker, J. S. (2023). High frame-rate imaging of the shape oscillations and spreading dynamics of picolitre droplets impacting on a surface, *Phys. Fluids*, 35(12), doi:10.1063/5.0174511.
- Miles, R. E. H., Glerum, M. W. J., Boyer, H. C., Walker, J. S., Dutcher, C. S., & Bzdek, B. R. (2019). Surface Tensions of Picoliter Droplets with Sub-Millisecond Surface Age, *J. Phys. Chem. A*, 123(13), 3021–3029, doi:10.1021/acs.jpca.9b00903.
- Morris, H. S., Grassian, V. H., & Tivanski, A. V. (2015). Humidity-dependent surface tension measurements of individual inorganic and organic submicrometre liquid particles, *Chem. Sci.*, 6(5), 3242–3247, doi:10.1039/c4sc03716b.
- Ovadnevaite, J., Zuend, A., Laaksonen, A., Sanchez, K. J., Roberts, G., Ceburnis, D., et al. (2017). Surface tension prevails over solute effect in organic-influenced cloud droplet activation, *Nature*, 546(7660), 637–641, doi:10.1038/nature22806.
- Petters, M. D., & Kreidenweis, S. M. (2007). A single parameter representation of hygroscopic growth and cloud condensation nucleus activity, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 1961–1971, doi:10.5194/acp-7-1961-2007.
- Petters, S. S., & Petters, M. D. (2016). Surfactant effect on cloud condensation nuclei for two-component internally mixed aerosols, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 121, 1878–1895, doi:10.1002/2015JD024090.
- Prisle, N. L., Asmi, A., Topping, D., Partanen, A. I., Romakkaniemi, S., Dal Maso, M., et al. (2012). Surfactant effects in global simulations of cloud droplet activation, *Geophys. Res. Lett.*, 39(5), 1–5, doi:10.1029/2011GL050467.
- Prosser, A. J., & Franses, E. I. (2001). Adsorption and surface tension of ionic surfactants at the air-water interface: Review and evaluation of equilibrium models, *Colloids Surf. A*, 178(1–3), 1–40, doi:10.1016/S0927-7757(00)00706-8.
- Rafferty, A., Gorkowski, K., Zuend, A., & Preston, T. C. (2019). Optical deformation of single aerosol particles, *Proc. Natl. Acad. Sci.*, 116(40), 19880–19886, doi:10.1073/pnas.1907687116.
- Ruehl, C. R., Chuang, P. Y., & Nenes, A. (2010). Aerosol hygroscopicity at high (99 to 100%) relative humidities, *Atmos. Chem. Phys.*, 10(3), 1329–1344, doi:10.5194/acp-10-1329-2010.
- Singh, M., Jones, S. H., Kiselev, A., Duft, D., & Leisner, T. (2023). The viscosity and surface tension of supercooled levitated droplets determined by excitation of shape oscillations, *Atmos. Meas. Tech.*, 16(21), 5205–5215, doi:10.5194/amt-16-5205-2023.
- Wu, Y., Lv, Q., Wu, X., Wang, X., Chen, L., & Cen, K. (2021). Simultaneous measurement of surface tension and viscosity of oscillating droplet using time-resolved rainbow refractometry, *Powder Technol.*, 391, 425–431, doi:10.1016/j.powtec.2021.06.029.
- Yamakita, S., Matsui, Y., & Shiokawa, S. (1999). New method for measurement of contact angle (droplet free vibration frequency method), *Japanese J. Appl. Phys., Part 1*, 38(5 B), 3127–3130, doi:10.1143/jjap.38.3127.

原稿受領日: 2024 年 11 月 25 日

掲載受理日: 2024 年 12 月 27 日

著者所属:

1. 東北大学理学研究科化学専攻
2. 中央大学理工学部応用化学学科

*** 責任著者:**

Masao Gen <mgen079@g.chuo-u.ac.jp>

海洋表面・海洋エアロゾル表面の光化学反応

Photochemical reactions at the sea surface and marine aerosols

沼舘直樹^{1*}, 齊藤翔大², 羽馬哲也²

近年, 海洋表面や海洋エアロゾル表面などの空気-水界面における界面活性有機物の光化学反応が新たなOHラジカル生成源として注目されている。しかし, 気液界面を対象とした実験研究は技術的に困難であり, 界面光反応に伴うラジカル生成過程は検証されずにいた。筆者らは, 液体有機物の光反応研究が可能な新たなレーザー実験装置を開発し, 液体ノナン酸の表面近傍における213 nm光分解反応に伴い生成した気相OHラジカルの直接検出に成功した。また, OHラジカル生成効率が既知である気相酢酸の光分解反応と厳密に比較することで, 液体ノナン酸界面の光分解反応におけるOHラジカル生成効率を定量することに成功した。

1. はじめに

「気候変動に関する政府間パネル (IPCC: Intergovernmental Panel on Climate Change)」による最新の報告書(第6次評価報告書)[IPCC, 2021]では, 気候に影響を与える重要因子として「海洋表面から放出されるエアロゾル」が挙げられている(図1)。海洋表面には生物由来の界面活性な有機物が濃縮して存在することが知られている[Carpenter *et al.*,

2012]。波しぶきにより生成される海洋エアロゾルの表面も同様の有機物で覆われていることが知られており[Bertram *et al.*, 2018], これらの空気-水界面における化学反応を解明することが地球規模での気候変動を理解する上で重要である[Pöschl & Shiraiwa, 2015; Vaida, 2016]。先行研究において Rossignol *et al.* [2016]は, 空気-水界面に存在するノナン酸[CH₃(CH₂)₇C(O)OH, 生物から排出される脂肪酸の一種]の紫外光吸収(>280 nm)による化学反応を通じてOHラジカルが生成され, それに伴いエアロゾル前駆体となる複雑な有機化合物が生成されると発表した。

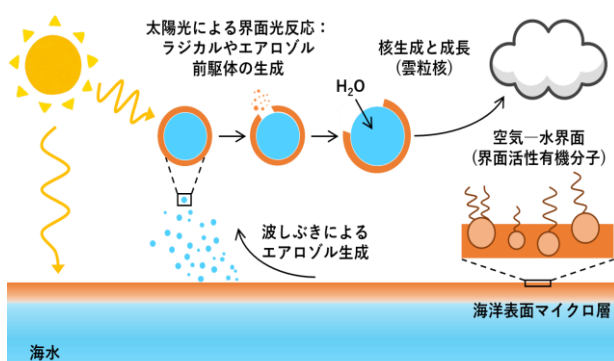
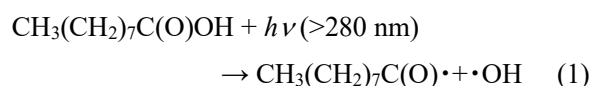


図1. 海洋から放出される波しぶきは, 地球上で最も重要なエアロゾル発生源の一つである。海洋表面や海洋エアロゾルの表面(空気-水界面)に濃縮した界面活性有機物の紫外光分解は, ラジカルや複雑な揮発性有機化合物を生成することで雲粒核の生成や雲の成長を促進し, 気候に影響を及ぼすと考えられている[Rappf & Vaida, 2016; Rossignol *et al.*, 2016]。



OHラジカルは大気中のほぼすべての分子と反応する極めて強力な酸化剤であり, エアロゾルの生成・成長を促進させることから大気化学において最も重要な反応活性種の一つとして知られている。地球上で海洋と海洋エアロゾルの表面は膨大な面積を有するため, 「空気-水界面に存在する有機物の光分解が

自然由来の新たな OH ラジカル源になりうる」という主張は大気化学分野に大きなインパクトを与えた。

上述の研究が引き金となり、ノナン酸水溶液の界面分子構造や光化学反応性に関する研究が行われ始めた。例えば、Luo et al.[2020]は分子動力学シミュレーションと核磁気共鳴分光法を組み合わせることで水溶液界面におけるノナン酸分子の酸解離定数を導出する手法を開発し、海洋表面や海洋エアロゾル表面にノナン酸分子が存在することが可能であることを示した。また、Badban et al.[2017]はノナン酸水溶液の界面においては液相よりもノナン酸分子の脱プロトン化が起こりにくく、中性ノナン酸分子濃度が高まることを示した。両者は海水中の無機化合物の存在によって上述の傾向がより強まることも併せて示した。加えて、Xiao et al.[2017]は第一原理計算により、空気-水界面においてはノナン酸分子と水分子の相互作用により反応障壁が下がり、光分解反応による OH ラジカル生成が起こりやすくなることを示した。このような研究の積み重ねにより海洋エアロゾル表面などの空気-水界面に濃縮して存在するノナン酸分子が引き起こす光化学反応の信憑性が増す一方で、実験による初期反応過程の直接検証には全く進捗がなかった。

このような状況の中で、筆者らは気液界面の光化学反応に伴い生成された気相ラジカルをレーザー誘起蛍光(Laser-Induced Fluorescence, LIF)法にて直接検出することを目的として、新たな実験装置の開発を始めた。そして、液体ノナン酸界面近傍の紫外光分解における OH ラジカル生成過程を直接観測し、その生成効率を定量した。本稿ではこれらの実験を簡単に紹介する。

2. 液体ノナン酸界面近傍の光分解

図 2(上)に開発した実験装置の全体図を示す。光分解の光源として、ナノ秒 Nd:YAG レーザーの 5 倍波(213 nm)を使用した。対流圏に到達する太陽光の波長は 295 nm 以上であり 213 nm は含まれない。し

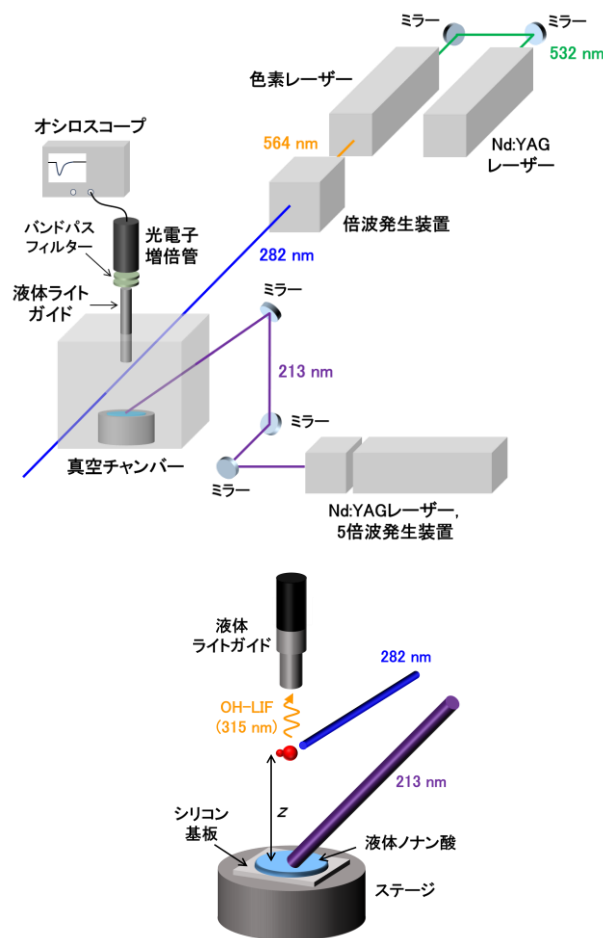


図 2.(上)実験装置の概略図。主に光分解用の Nd:YAG レーザー(213 nm)と OH 検出用の色素レーザー(282 nm)、真空チャンバーから構成される。(下)液体ノナン酸の 213 nm 光分解と脱離 OH ラジカル検出の模式図(真空チャンバー内)。液体ノナン酸に 213 nm レーザーを 45° 方向から照射し、界面から z(mm)の位置に 282 nm レーザーを入射した。OH ラジカルの脱励起に伴う発光(OH-LIF)を、液体ライトガイドを通じて光電子増倍管にて検出した。チャンバー内には緩衝気体として乾燥窒素を導入した(80 Pa)。

かし、測定対象としたノナン酸をはじめとするカルボン酸は 205 nm 付近に $C=O n-\pi^*$ 遷移($S_0 \rightarrow S_1$)に由来する吸収極大($\sim 10^{-19} \text{ cm}^2$)を持つことが知られており[Coyle, 1978; Saito et al., 2023], 本研究で製作した装置の試験として 213 nm を用いた光反応実験を行った。光分解に伴い生成された気相 OH ラジカルは、パルス色素レーザーを用いて検出した。ナノ秒 Nd:YAG レーザーの 2 倍波(532 nm)とローダミン 590 Chloride により 564 nm レーザーを発振させ、非線形光学結晶(BBO)により 282 nm へと変換した。2 本の

レーザーの照射と光電子増倍管による LIF 信号の測定タイミングはパルスジェネレーターを用いて制御した。実験は 10 Hz の繰り返し周波数にて実施され、OH 検出レーザーは光分解レーザーの照射から任意の時間 (10–1000 μs) だけ遅らせて発振させた。

図 2(下)に、真空チャンバー内における液体ノナン酸の 213 nm 光分解と OH ラジカル検出の模式図を示す。約 35 mm \times 45 mm \times 700 μm のシリコン基板をステージ上 (295 K) に設置し、約 2 mL の液体ノナン酸を滴下した。そして、真空ポンプを用いて約 1 Pa まで排気した。ノナン酸は室温で液体であり、その蒸気圧は約 0.2 Pa と低い [Ambrose & Ghiassee, 1987]。したがって、沸騰させることなく真空チャンバー内に静置することが可能である。本実験では、購入したノナン酸 (純度 >98.0%, 東京化成工業) を精製せずにそのまま使用した。

液体ノナン酸界面に対して 45° の方向から 213 nm 光分解レーザーを入射した (侵入深さは約 10 μm)。パルスエネルギーとビーム径はそれぞれ約 500 $\mu\text{J/pulse}$ と $\phi 4$ mm とした。光分解に伴い界面から脱離した気相 OH ラジカルは LIF 法を利用して検出した。液体界面から距離 z の位置に、シリコン基板と平行に 282 nm レーザー (約 50 $\mu\text{J/pulse}$, $\phi 2$ mm) を入射し、OH ラジカルを励起した ($X^2\Pi, v''=0 \rightarrow A^2\Sigma, v'=1$)。そして、電子遷移 ($A^2\Sigma, v'=1 \rightarrow X^2\Pi, v''=1$) に伴い放出された 315 nm の蛍光を、液体ライトガイドを通じて真空チャンバー外の光電子増倍管にて検出した。レーザー散乱光や迷光を除去するために、ライトガイドと光電子増倍管の間にバンドパスフィルター (中心波長 314.5 nm, 半値幅 4.50 nm) を 2 枚配置した。OH ラジカルの LIF (OH-LIF) は光電子増倍管によって電気信号へと変換され、デジタルオシロスコープにて時間分解計測と積算を行った。

はじめに、液体ノナン酸界面近傍の 213 nm 光分解に伴う気相 OH ラジカル生成の検証を目的として、OH-LIF 強度の 213 nm 光分解レーザーと OH 検出レーザーの照射時間差依存を測定した。液体界面と

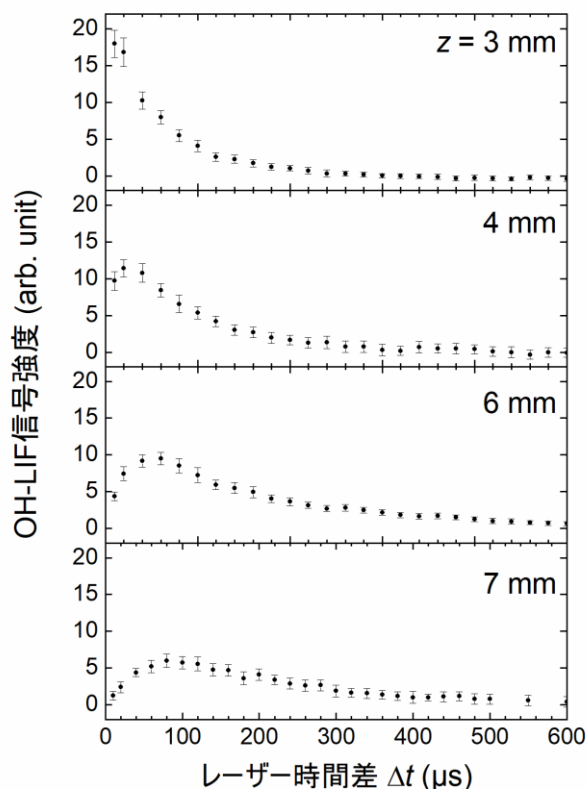


図 3. 液体ノナン酸の 213 nm 光分解における、OH-LIF 信号のレーザー照射遅延依存。横軸は 2 本のレーザーの照射タイミングの時間差 (OH ラジカルの飛行時間に相当)、縦軸は OH ラジカルの LIF 信号強度を示す。LIF 強度は気相ノナン酸の光分解の寄与を取り除き、213, 282 nm レーザーのパルスエネルギーにて規格化した。各点は 160 回測定の実測値であり、エラーバーは標準偏差 (1σ) を示す。

OH 検出レーザーの距離 z を固定し、光分解レーザーと OH 検出レーザーの照射時間差 Δt を変化させて OH-LIF 信号強度をモニターした。図 3 に $z = 3, 4, 6, 7$ mm と変化させたときの測定結果を示す。 z が大きくなるにつれて OH-LIF 強度が極大を取るレーザー時間差が大きくなっていることがわかる。これは OH ラジカルが液体界面から脱離していることを強く示している。これより、液体ノナン酸への 213 nm 照射により OH ラジカルが気相へ放出されることが実験的に確認された。

次に、検出された OH ラジカルがノナン酸分子の 213 nm 光分解にて直接生成されたのかどうかを確認するために、単一パルス照射測定を行った。Rossignol らの先行研究では質量分析法により、ノナ

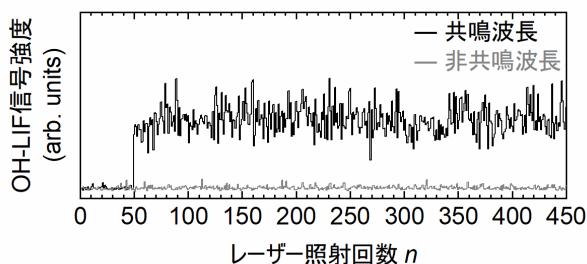


図 4. OH-LIF 信号強度の 213 nm レーザー照射回数依存。n = 0 から OH 検出用 282 nm パルスレーザーの照射を開始し、n = 50 にて光分解用 213 nm パルスレーザーの照射を開始した。測定周波数は 10 Hz で、測定 1 周期毎に OH-LIF 信号強度を記録した。図中の共鳴/非共鳴波長は OH 検出レーザーの波長をそれぞれ OH ラジカルが吸収する/しない波長とした際の測定結果である。共鳴波長では OH-LIF 信号とノイズ信号(迷光やレーザー散乱光)の和が、非共鳴波長ではノイズ信号のみが検出される。

ン酸分子の光化学反応を経て様々な気相有機分子(アルデヒド、アルコール、アルケン etc.)が生成されることを示した[Rossignol *et al.*, 2016]。本実験では液体ノナン酸に 213 nm レーザーを 10 Hz で照射し続けており(図 3 の各データ点は 160 回測定の平均値)、液体界面に蓄積された光反応生成物の 213 nm 光分解にて OH ラジカルが生成された可能性を否定できない。これを確認するために、測定 1 周期毎に光電子増倍管の信号強度を記録した(図 4)。OH 検出用パルスレーザーをチャンバー内に入射し、図中のレーザー照射回数 $n = 50$ のタイミングで光分解パルスレーザーの照射を開始した。OH 検出レーザーの波長を OH ラジカル吸収波長(282.00 nm)と非吸収波長(281.98 nm)に設定して二つの測定を行った。吸収波長の測定では、213 nm 照射開始 1 パルス目($n = 50$)から OH-LIF 信号が急激に立ち上がり、その後誤差の範囲内で一定となった。この結果から、OH ラジカルがノナン酸分子の光化学反応における初期反応生成物であることが示された。

本研究で取り扱っている液体ノナン酸など、液体界面の光分解に伴うラジカル生成過程を大気モデルに組み込むためには吸収断面積やラジカル生成の量子収率などの定量データが必要となる。液相の寄与を取り除き、液体界面のみを対象とした吸収断面

積を測定することは困難であるため、本研究では吸収断面積と OH ラジカル生成量子収率の積である光化学反応断面積を導出することを目指した。光化学反応断面積は下式から、 $[\text{OH}]/F_{\text{photon}}^{213}[\text{X}]$ (cm^2)と定義される。

$$[\text{OH}] = \sigma_{\text{abs}}^{213}(\text{X}) \times F_{\text{photon}}^{213} \times \phi_{\text{OH}}^{213}(\text{X}) \times [\text{X}] \quad (2)$$

$$\frac{[\text{OH}]}{F_{\text{photon}}^{213}[\text{X}]} = \sigma_{\text{abs}}^{213}(\text{X}) \times \phi_{\text{OH}}^{213}(\text{X}) \quad (3)$$

$[\text{OH}]$ と $[\text{X}]$ はそれぞれ生成 OH ラジカルと反応分子 X の数密度(cm^{-3})、 $\sigma_{\text{abs}}^{213}(\text{X})$ は分子 X の 213 nm における吸収断面積(cm^2)、 F_{photon}^{213} は 213 nm の光分解レーザーの光子フルエンス(cm^{-2})、 $\phi_{\text{OH}}^{213}(\text{X})$ は 213 nm での分子 X の光分解における OH ラジカル生成量子収率である。本研究では吸収断面積と OH ラジカル生成の量子収率が既知である気相酢酸[Orlando & Tyndall, 2003; Singleton *et al.*, 1990]の 213 nm 光分解と厳密に比較する手法を開発し、液体ノナン酸界面の光化学反応断面積が $9.0(4.1) \times 10^{-22} \text{ cm}^2$ と非常に小さい値であることを明らかにした(測定と解析の詳細については文献[Numadate *et al.*, 2022; 沼館ら, 2024]を参照)。本実験において液体ノナン酸のバルクで生成された OH ラジカルが脱離した場合、界面由来の OH ラジカルと区別することは原理的に不可能である。上記の測定値は、検出された OH ラジカルが全て界面で生成されたと仮定して生成効率を求めており、これは界面反応性の上限值を示す。

液体ノナン酸ではバルク・界面ともに、大半の分子が水素結合により環状二量体を形成することが明らかにされており[Iwahasi *et al.*, 2002; Numadate *et al.*, 2022]、バルクと界面で吸収断面積が近い値になると推測される。液体ノナン酸のバルクの 213 nm における吸収断面積 $\sigma_{\text{abs}}^{213}$ は $2.02(0.02) \times 10^{-19} \text{ cm}^2$ である[Saito *et al.*, 2023]。バルクと界面で吸収断面積が同じであると仮定すると、界面における OH ラジカル生成量子収率 ϕ_{OH}^{213} の上限值として $4.5(2.0) \times 10^{-3}$ が得られる。本測定で比較のために用いた気相酢酸の

222 nm 光分解における量子収率は、単量体で 0.546(0.097)、環状二量体で 0.038(0.026)といずれも上記測定値を大きく上回る[Singleton *et al.*, 1990]。液体ノナン酸界面では環状二量体の形成に加えて、分子内や周囲分子へのエネルギー散逸により光分解効率が著しく低下していると考えられる。

カルボン酸は 270 nm 付近に $C=O n-\pi^*$ 遷移 ($S_0 \rightarrow T_1$) に由来する吸収極大を持つと長年考えられてきた[Caswell *et al.*, 1976; Coyle, 1978; 長倉, 1980; George *et al.*, 2018; Rossignol *et al.*, 2016]。Rossignol *et al.*[2016]の先行研究では、この吸収の裾が対流圏の太陽光スペクトルとわずかに重なることから、ノナン酸の光化学反応の重要性を主張した。しかし、筆者らは再結晶法により液体ノナン酸試薬を精製することで、ノナン酸の 270 nm 付近の吸収が試薬に含まれる微量不純物に起因しており、太陽光波長 (>295 nm) の光をほとんど吸収しないことを明らかにした(詳細は文献[Saito *et al.*, 2023; 齊藤ら, 2025]を参照)。著者らが測定した 295 nm 以上の光に対するノナン酸分子の吸収断面積は約 10^{-23} cm^2 であり、213 nm と比較して 4 桁以上も小さい(精製前後で 213 nm における吸収断面積にほとんど変化はなく、本光分解実験では不純物の影響を無視できる)。これにより、ノナン酸分子の太陽光による OH ラジカル生成が地球大気に与える影響は無視できるほど小さいことが示された。そして、高感度核磁気共鳴分光法と高速液体クロマトグラフ法を利用してノナン酸試薬に含まれる微量不純物を分析することで、「1. はじめに」で記した先行研究[Rossignol *et al.*, 2016]において紫外光を吸収して化学反応を引き起こしたのはノナン酸分子ではなく、試薬に含まれる 0.1%以下のケトン類(ケトン, ケト酸)である可能性が高いことも明らかにした。

3. まとめと展望

液体有機物の光分解に伴う気相 OH ラジカル生

成過程の直接検出と定量を目的とし、新たなレーザー実験装置を開発した。そして、対流圏における新たな OH ラジカル生成過程として注目を集めていた液体ノナン酸界面近傍の紫外光分解に伴う OH ラジカル生成を LIF 法により直接観測し、その効率を定量することに成功した。その結果、液体ノナン酸界面の 213 nm 光分解における気相 OH ラジカル生成効率(光化学反応断面積)の上限値として $9.0(4.1) \times 10^{-22} \text{ cm}^2$ が得られた。また、OH ラジカル生成量子収率の上限値として $4.5(2.0) \times 10^{-3}$ が得られた。

著者らは再結晶法による試薬の精製と高感度分析により、ノナン酸が対流圏の太陽光を吸収しないことを明らかにし、先行研究[Rossignol *et al.*, 2016]の界面光反応が極微量の不純物(ケトン類)に起因する可能性を示した。これは気液界面にケトン類がわずかにでも含まれていれば、光化学反応を通じてラジカルや揮発性有機化合物が生成されることを示唆している。ケトン類は海洋に含まれており[Penezić *et al.*, 2022; Steinberg & Bada, 1982]、また気相実験から太陽光波長の光で分解されてラジカルを生成することが知られている[Eger *et al.*, 2021; Romero *et al.*, 2005]。したがって、地球上の気液界面における OH ラジカル生成過程の主役はノナン酸ではなく、ケトン類である可能性が浮上した。

現在、空気-水界面におけるケトン類の光化学反応を起点とした OH ラジカルと有機化合物の生成過程を解明することを目的として、Fluorescence Assay by Gas Expansion 法と負イオン化学イオン化質量分析法を利用した新規装置の開発を進めている。

謝辞

本研究は、科研費「若手研究(課題番号: JP22K18019)」, 「基盤研究(B)(課題番号: JP21H01143)」, 「学術変革領域研究(A)(課題番

号 : JP21H05421)」の支援により実施された。

参考文献

- Ambrose, D., & Ghiassaei, N. B. (1987), Vapor pressures and critical temperatures and critical pressures of some alkanolic acids: C1 to C10, *J. Chem. Thermodyn.*, *19*(5), 505–519, doi: 10.1016/0021-9614(87)90147-9.
- Badban, S., Hyde, A. E., & Phan, C. M. (2017), Hydrophilicity of Nonanoic Acid and Its Conjugate Base at the Air/Water Interface, *ACS Omega*, *2*(9), 5565–5573, doi: 10.1021/acsomega.7b00960.
- Bertram, T. H., Cochran, R. E., Grassian, V. H., & Stone, E. A. (2018). Sea spray aerosol chemical composition: Elemental and molecular mimics for laboratory studies of heterogeneous and multiphase reactions, *Chem. Soc. Rev.*, *47*(7), 2374–2400, doi: 10.1039/c7cs00008a.
- Carpenter, L. J., Archer, S. D., & Beale, R. (2012). Ocean-atmosphere trace gas exchange. *Chem. Soc. Rev.*, *41*(19), 6473–6506, <https://doi.org/10.1039/c2cs35121h>.
- Caswell, L. R., Francine Howard, M., & Onisto, T. M. (1976). Solvent and Substituent Effects upon the $n \rightarrow \pi^*$ Transition of Aliphatic Carboxylic Acids and Esters, *J. Org. Chem.*, *41*(20), 3312, doi: 10.1021/jo00882a023.
- Coyle, J. D. (1978), Photochemistry of Carboxylic Acid Derivatives, *Chem. Rev.*, *78*(2), 97–123, doi: 10.1021/cr60312a002.
- Eger, P. G. et al. (2021), Impact of pyruvic acid photolysis on acetaldehyde and peroxy radical formation in the boreal forest: Theoretical calculations and model results, *Atmos. Chem. Phys.*, *21*(18), 14333–14349, doi: 10.5194/acp-21-14333-2021.
- George, C., Brüggemann, M., Hayeck, N., Tinel, L., & Donaldson, J. (2018), Interfacial Photochemistry. In *Physical Chemistry of Gas-Liquid Interfaces* (pp. 435–457), Elsevier, doi: 10.1016/B978-0-12-813641-6.00014-5.
- IPCC, 2021. (2021), *Climate Change 2021: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, Cambridge University Press: UK.
- Iwahasi, M. et al. (2002), Molecular Behaviors of n-Fatty Acids in Liquid State, *J. Oleo Sci.*, *51*(3), 157–164, doi: 10.5650/jos.51.157.
- Luo, M. et al. (2020), Insights into the behavior of nonanoic acid and its conjugate base at the air/water interface through a combined experimental and theoretical approach, *Chem. Sci.*, *11*(39), 10647–10656, doi: 10.1039/d0sc02354j.
- Numadate, N. et al. (2022), Direct Observation and Quantitative Measurement of OH Radical Desorption during the Ultraviolet Photolysis of Liquid Nonanoic Acid, *J. Phys. Chem. Lett.*, *13*(35), 8290–8297, doi: 10.1021/acs.jpclett.2c02199.
- Orlando, J. J., & Tyndall, G. S. (2003), Gas phase UV absorption spectra for peracetic acid, and for acetic acid monomers and dimers, *J. Photochem. Photobiol. A: Chem.*, *157*(2–3), 161–166. doi: 10.1016/S1010-6030(03)00067-4.
- Penezić, A., Drozdowska, V., Novak, T., & Gašparović, B. (2022), Distribution and characterization of organic matter within the sea surface microlayer in the Gulf of Gdańsk, *Oceanol.*, *64*(4), 631–650, doi: 10.1016/j.oceano.2022.05.003.
- Pöschl, U., & Shiraiwa, M. (2015), Multiphase Chemistry at the Atmosphere-Biosphere Interface Influencing Climate and Public Health in the Anthropocene, *Chem. Rev.*, *115*(10), 4440–4475, doi: 10.1021/cr500487s.
- Rapf, R. J., & Vaida, V. (2016), Sunlight as an energetic driver in the synthesis of molecules necessary for life, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, doi: 10.1039/c6cp00980h.
- Romero, M. T. B. et al. (2005), Photolysis of methylethyl, diethyl and methylvinyl ketones and their role in the atmospheric HO_x budget, *Faraday Discuss.*, *130*, 73–88, doi: 10.1039/b419160a.
- Rossignol, S. et al. (2016), Atmospheric photochemistry at a

fatty acid-coated air-water interface, *Science*, 353(6300), 699–702, doi: 10.1126/science.aaf3617.

Saito, S. et al. (2023), Impurity contribution to ultraviolet absorption of saturated fatty acids, *Sci. Adv.*, 9(38), 1–8, doi: 10.1126/sciadv.adj6438.

Singleton, D. L., Paraskevopoulos, G., & Irwin, R. S. (1990), Laser Photolysis of Carboxylic Acids in the Gas Phase. Direct Determination of the OH Quantum Yield at 222 nm, *J. Phys. Chem.*, 94(2), 695–699, doi: 10.1021/j100365a034.

Steinberg, S. M., & Bada, J. L. (1982), The determination of α -keto acids and oxalic acid in sea-water by reversed phase liquid chromatographic separation of fluorescent quinoxilinol derivatives, *Mar. Chem.*, 11(4), 299–306, doi: 10.1016/0304-4203(82)90027-5.

Vaida, V. (2016). Atmospheric radical chemistry revisited. *Science*, 353(6300), 650. doi: 10.1126/science.aah4111.

Xiao, P., Wang, Q., Fang, W. H., & Cui, G. (2017), Quantum Chemical Investigation on Photochemical Reactions of Nonanoic Acids at Air-Water Interface, *J. Phys. Chem. A*, 121(22), 4253–4262, doi: 10.1021/acs.jpca.7b03123.

齊藤翔大, 沼館直樹, 羽馬哲也 (2025), 液体飽和脂肪酸の紫外光吸収における不純物の影響, しょうとつ, 22(1), R002, doi: 10.50847/collision.22.R002.

長倉三郎 編 (1980), 岩波講座現代化学 12 光と分子 下, 岩波書店. p.376.

沼館直樹, 齊藤翔大, 羽馬哲也 (2024), 液体ノナン酸界面の紫外光分解に伴うOHラジカル脱離過程の直接観測と定量測定, 分光研究, 73(1), 2–9.

* 責任著者:

Naoki Numadate

<numadate.naoki.gu@u.tsukuba.ac.jp>

原稿受領日: 2024 年 11 月 25 日

掲載受理日: 2024 年 12 月 12 日

著者所属:

1. 筑波大学 数理物質系化学域
2. 東京大学 大学院総合文化研究科 広域科学専攻 相関基礎科学系/附属先進科学研究機構

固体エアロゾルの測定技術の確立とその動態に関する研究

Development of measurement techniques for solid aerosols and studies on their atmospheric behaviors

大畑祥^{1*}

ブラックカーボン・酸化鉄・鉱物ダストなどの非水溶性物質を主成分とする固体エアロゾルは、光吸収性や氷晶核活性を持つことで地球の放射収支や雲過程に大きく影響を及ぼします。しかし、特定の種類の固体エアロゾルを選択的に検出して高精度に測定する技術は発展途上であり、これらの動態の把握は重要な課題として残されてきました。これは、固体エアロゾルの役割を定量的に理解する上で大きな制約となっています。本稿では、固体エアロゾル種ごとの測定手法の評価・確立に関するこれまでの取り組みと、大気観測の成果をご紹介します。

1. はじめに

この度は名誉ある奨励賞を授与いただき、誠にありがとうございます。今後より一層気を引き締めて、研究に取り組んで参る所存です。私が大気エアロゾルを研究対象とするようになったのは、大気中に浮遊する微粒子が気候を変えうることを大学の講義で聞き興味を持ったことがきっかけです。エアロゾルが関わる現象やその気候・健康影響の推定には未解明の課題が多くあると感じ、観測・モデル・室内実験により多角的にエアロゾルを研究する研究室に入りました。受賞対象となりました固体エアロゾルの測定手法やその動態に関する一連の研究は、学生時代からご指導いただいている先生方と多くの共同研究者の方々のご助力により実施されたものです。

本稿では、簡略化のため、ブラックカーボン・酸化鉄・鉱物ダストなどの非水溶性の固体のエアロゾルを単に「固体エアロゾル」と呼んでいます(海塩や硫酸塩エアロゾルなど、低湿度環境で固体として存在しうるが基本的に水溶性であるエアロゾルは含めないこ

とします)。光吸収性や氷晶核活性を持つことで重要な気候影響を持つと考えられるこれらの固体エアロゾル(図 1)について、これまでに実施してきた研究をご紹介します。

2. ブラックカーボンに関する研究

ブラックカーボン(BC)は短波放射の吸収に最も寄与する大気エアロゾルであり、地球の放射収支に全球規模で影響を及ぼします[Sand *et al.*, 2021; Szopa *et al.*, 2021]。発生源の分布に対応して大気中の BC 濃度の空間的な分布に大きな偏りがあることや、極域などでは雪氷面に沈着した BC がアルベドを低下させる効果が顕著になることから、領域規模においてはより大きな放射影響を持ち得ます[e.g., Oshima *et al.*, 2020]。

観測に基づく BC の動態や空間分布の理解は、2000 年代半ばに登場した単一粒子レーザー誘起白熱(laser-induced incandescence (LII))法により、飛躍的に進んできました[Moteki, 2023, and references

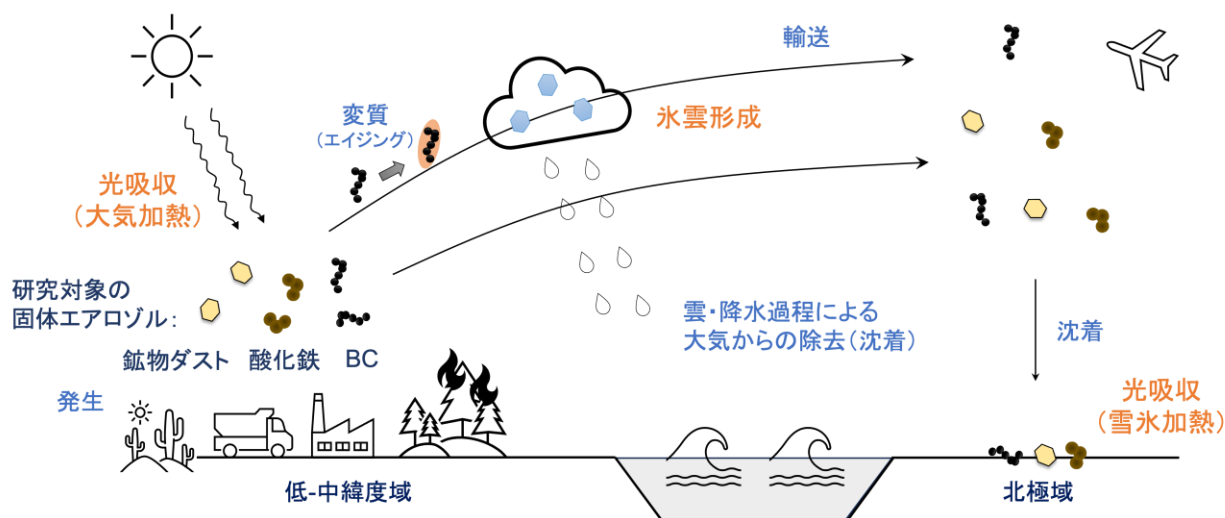


図 1 本稿で研究対象とする固体エアロゾルの発生・輸送・変質・沈着過程と放射・雲への影響を表す模式図。

therein]. 単一粒子 LII 法は、レーザーを通過する個々の BC がその蒸発温度である 4200 K 程度まで加熱される際に発する白熱光を検出することで、大気中の BC の粒径ごとの個数濃度・質量濃度のその場観測を可能にする技術です。この原理に基づく市販の装置 single-particle soot photometer (SP2, Droplet Measurement Technologies) は現在広く普及しており、その発展の歴史や観測成果は Moteki [2023]によりレビューされています。本章では、その中で私がわずかながら貢献することができた部分について、述べさせていただきます。

2.1 BC の湿性除去過程に関する研究

BC の空間分布は「発生・輸送・変質・除去(沈着)」の各過程によって支配されます(図 1)。BC 自体は疎水性ですが、発生源である化石燃料・バイオマスの燃焼環境や大気輸送中の変質過程(BC 表面への気体成分の凝縮や、BC と他のエアロゾルの凝集)に応じて、他の親水性成分で被覆されるようになります。このように他の成分と内部混合した BC は、雲凝結核として働き、他のエアロゾルと同様に雲・降水過程に伴う除去(湿性除去)を受けます。

湿潤対流で上昇する空気塊において、一部の BC は降水とともに大気から除去され、一部は除去を受けずに鉛直輸送され広域へと運ばれていきます。この過程は、BC の粒径・混合状態等の粒子特性と水蒸気過飽和度等の環境に依存し、BC の空間分布に強く影響すると考えられるものの、技術的な難しさもあり、観測に基づく理解が不十分でした。

そこで、BC の湿性除去過程の理解と除去量の実態把握を目指した観測を可能にするため、まず二つの測定手法の評価・確立に取り組みました。一つは水試料中に分散する BC の粒径別数濃度の測定手法、もう一つは大気中の BC 含有粒子の吸湿性の測定手法です。いずれも単一粒子 LII 法に基づく装置(SP2)を BC の検出・定量に利用します。

前者については、水試料を霧粒化し気流中でその霧粒を蒸発させることにより粒子を大気に取り出すネブライザと、SP2 を接続したシステムの評価を行いました[Ohata et al., 2011, 2013; Mori et al., 2016]。室内実験により、超音波式ネブライザに比べ、加圧空気式同軸ネブライザがより高い効率で粒径数マイクロメートルの粒子まで安定して大気に取り出せることが分かりました。また、SP2 で通常用いられている散乱光

検出器の1つを白熱光検出器に置き換え感度調節することにより、従来サブミクロンの粒径範囲に限られていた BC の検出粒径を数マイクロメートルにまで拡張しました。この測定システムにより、水試料に含まれる BC の粒径別濃度の測定を数ミリリットル以下の試料量で行うことが可能になりました。

後者の BC 含有粒子の吸湿性に関しては、SP2 の粒子検出チャンバに導入する空気(サンプル空気とそれを筒状に取り囲むシース空気)の相対湿度(RH)を制御するシステムを導入しました [Schwarz *et al.*, 2015; Ohata *et al.*, 2016a]。特定の乾燥質量を持つエアロゾルのみを透過させるエアロゾル分級器と、RH 制御機能付きの SP2 を組み合わせることにより、吸湿成長した BC 含有粒子の発する白熱光・散乱光強度の情報に基づく BC 被覆成分の吸湿パラメータ(κ)の測定を可能にしました。

そして、これらの測定技術を用いて、夏季の東京にて 10 回の降水イベントにおける大気・降水の同時観測を実施しました。すべてのイベントにおいて、降水開始前の 1 時間に大気境界層内に浮遊する BC の数粒径分布に比べて、降水に含まれる BC の数粒径分布は粒径が大きい方にシフトしており、降水を介した BC の除去に強い粒径依存性があることが分かりました。また、この粒径依存性は BC の雲凝結核能の粒径依存性によってのみ定量的に説明可能であり、BC と雲粒・雨粒の衝突併合の粒径依存性では説明できないことが分かりました。これにより、BC を含む累積モードに属する粒径を持つエアロゾルの湿性除去が、雲粒活性化の過程により強く支配されていること、さらに、BC を除去を受けたエアロゾルのトレーサーと見做すことで、降水雲内部の実効的な水蒸気過飽和度の推定が可能であることを示しました [Ohata *et al.*, 2016b; 大畑, 2018; Moteki *et al.*, 2019]。

水試料中の BC の測定手法は、北極域の降雨・降雪による長期的な BC 沈着フラックスの測定[Sinha *et al.*, 2018; Mori *et al.*, 2020, 2021]や、北半球高緯度域や南極における積雪中の BC の分析[Mori *et al.*,

2019; Kinase *et al.*, 2020], グリーンランドのアイスコア分析[Goto-Azuma *et al.*, 2024; 2025]にも応用され、周辺分野の研究者と連携した研究へと発展してきています。

2.2 北極域の春季における BC の航空機観測

急速に温暖化の進行する北極域における BC の動態を明らかにするため、短期集中的な航空機観測や長期の地上観測に携わってきました。

北極域の冬季～春季は、中・低緯度から北極域への大気汚染物質の輸送が起こりやすく、Arctic haze として知られています。極夜が明けて日射の届くようになる春季は BC の放射影響が大きくなるため、BC の高度分布やその年々変動の実態を航空機観測により明らかにすることは重要です。

2018 年の春季に、グリーンランド北東端に位置する Nord 基地を拠点とした国際的な航空機観測キャンペーンに参加し、SP2 を用いた BC の高度分布観測を実施しました[Adachi *et al.*, 2021; Ohata *et al.*, 2021a]。高度 5 km までの BC 鉛直積算濃度の観測期間平均値は、過去に報告のある 2008 年や 2015 年の春期の航空機観測の結果と比べて半分程度以下と低く、2010 年と同程度の低さであったことが分かりました。そして、人工衛星データを含む様々な解析や数値モデルとの比較により、北極域春季の BC の鉛直積算濃度の年々変動が中緯度の森林火災の発



写真 1 北極域上空における汚染大気層。2018 年春季にドイツの Alfred Wegener Institute が所有する観測用航空機 Polar 5 の窓から見られた。右上は航空機の外観、右下は機内の観測の様子。

生規模の年々変動に強く支配されていること、また、数値モデルで使用されている森林火災による BC 排出量が大幅に過小評価されている可能性があることを見出しました。

2018 年春季は BC 鉛直積算濃度こそ低かったものの、2 週間程度の観測期間の中で、航空機の窓から目視でも分かるような汚染大気の層が数日間に渡って高度 5 km 付近に見られ(写真 1)、実際に SP2 による観測でも BC の高濃度層が捉えられていました。後方流跡線解析や数値モデル計算から、この汚染大気層はシベリアの森林火災に起源を持つことが分かり、遠く中・低緯度で発生した森林火災に由来するエアロゾルが長距離輸送されて北極域に影響を及ぼしていることを、実感を持って認識しました。今世紀の気候変化に伴って生じる森林火災の規模・頻度の変化は、今後の北極域におけるエアロゾルの動態解明と気候影響評価にとって重要であると考えられます。

2.3 北極域の BC 質量濃度の長期観測手法の評価

北極域の BC 質量濃度の空間分布や季節変化、長期的なトレンドの把握には、多地点での正確な長期観測が求められます。単一粒子 LII 法は高精度に BC を観測できるものの、コストやメンテナンスの点で、装置をリモートな環境の多地点長期観測に展開することは困難です。北極域では 1960 年代頃から、フィルタ上に採取したエアロゾルに特定の波長の光を照射し、その透過光量の時間変化から光吸収係数を求め、BC 質量濃度に換算する手法が長期観測に用いられてきました。この原理(本稿ではフィルタ光吸収法と呼びます)に基づく様々な測定器が広く使用されていますが、透過光量の時間変化の測定値から光吸収係数を求める際には、フィルタに捕集された BC 以外のエアロゾルによる光散乱の効果、フィルタ内部で生じる多重散乱による光吸収増幅の効果、光路方向の BC の重なりにより光吸収が弱まる効果等の非線形な影響を補正する必要があります。補正方法は測定器ごとに異なります[Bond et al., 1999; Petzold et al., 2005;

WMO/GAW, 2016]。

フィルタ光吸収法は、単一粒子 LII 法や炭素分析の手法のように BC を選択的に検出・分離定量するものではなく、測定した光吸収係数を BC 質量濃度に換算するための変換係数(質量吸収断面積)の値を仮定する必要があります。変換係数は、BC の複素屈折率、粒径、形状、混合状態(被覆)で規定される光学特性に依存しますが、各装置固有の特性(上述の補正の誤差)にも影響を受ける可能性があります。北極域では、これまで各国の研究機関が様々な装置を用いて独自に変換係数を仮定して BC 質量濃度を報告してきており、絶対値の相互比較が難しくなっていました。

Continuous soot monitoring system (COSMOS) は、測定原理はフィルタ光吸収法ですが、測定の干渉となる BC 以外の粒子の影響をなるべく取り除くための工夫(300°Cあるいは 400°Cの加熱インレットや、PM1 サイズカット)が施された BC 測定器です[Miyazaki et al., 2008; Kondo et al., 2011]。私たちはまず、この COSMOS と SP2 を用いて北極域やアジアの様々な環境下で比較観測を実施し、COSMOS が大気環境によらず一定の変換係数を用いて SP2 と整合した BC 質量濃度を測定できることを示しました[Kondo et al., 2011; Ohata et al., 2019]。そして、COSMOS を北極域の 4 地点の観測所に設置し、6 各国の研究機関との共同研究により、各地で長期的に使用されてきた測定器と数年以上に渡る比較観測を実施することで、各測定器に対して BC 濃度スケールを統一する変換係数を導出しました[Ohata et al., 2021b]。これにより、北極域における BC の空間分布の定量的な把握や、COSMOS 設置以前の過去の BC 質量濃度の推定を可能にしました。

3. 酸化鉄に関する研究

マグネタイトやヘマタイト等の有色の酸化鉄粒子は光吸収性を持つため、鉱物ダストに含まれるこれらの酸化鉄の含有量がダストの光学特性ひいては放射

収支への影響にとって重要であることが知られていました[e.g., Moonsmüller *et al.*, 2012]。しかし、人為起源の酸化鉄粒子の発生源や動態に関する知見は限られており、その放射収支への影響については IPCC 等でも考慮されてきませんでした。また、自然起源に加え、人為起源の鉄含有粒子の動態把握は、陸域や海洋生態系への鉄供給の観点でも重要です。

SP2 のレーザーの中でこれらの光吸収性酸化鉄粒子も白熱光を発し、その蒸発温度 (~3300 K) と BC の蒸発温度 (~4200 K) の差に基づいて、酸化鉄粒子を選択的に検出・定量できることが示されたこと [Yoshida *et al.*, 2016] を契機に、アジア大陸下流域において人為起源のマグネタイトの凝集体粒子の光吸収への寄与が BC に対して無視できないことが明らかになります [Moteki *et al.* 2017]。私は、SP2 のレーザーの中で酸化鉄が白熱するときの粒子の散乱断面積の情報に基づき、自然起源の酸化鉄(鉱物ダストに含まれる酸化鉄)と人為起源の酸化鉄を分類する手法の考案等により、測定技術の確立に貢献しました。

人為起源の酸化鉄(ここでは主にマグネタイト)の発生源や発生量について調査するため、東京の都市大気や千葉の製鉄所近傍で SP2 を用いた集中観測を実施しました [Ohata *et al.*, 2018]。製鉄所は大きな酸化鉄発生源ではあるものの、観測された酸化鉄/BC 濃度比と全自動車/ディーゼル車の交通量比の日変化の高い相関などから、広域的には自動車の排気やブレーキなどが重要な発生源であることを示唆する結果が得られました。

SP2 を用いた酸化鉄の観測では、その後、アジアや北極域における BC 濃度との高い相関から人為起源酸化鉄と BC の発生源が空間的に近いことが示され [Yoshida *et al.*, 2020]、全球エアロゾルモデルを用いた人為起源の鉄エアロゾルの気候影響推定 [e.g., Matsui *et al.*, 2018] に繋がっています。

4. 鉱物ダストに関する研究

鉱物ダストは大気中のエアロゾル質量濃度の大きな割合を占め、放射との相互作用、氷晶核としての働きによる雲との相互作用、不均一反応の場としての役割、陸域・海洋生態系への鉄供給などを通じて、広範に渡る気候影響を有しています。これらの気候影響は鉱物ダストの質量濃度だけでなく、粒径分布にも強く依存すると考えられますが、個々の鉱物ダスト粒子を選択的に検出して粒径別数濃度を測定する手法は限られており、鉱物ダストの空間分布と微物理特性の観測的な理解は不十分です。

個々の粒子の複素散乱振幅を測定する手法 [Potenza *et al.*, 2015; Moteki, 2020, 2021] は、固体エアロゾルの種別ごとの粒径別数濃度の測定に応用できる可能性のある光学的手法です。複素散乱振幅 (S) は粒子の複素屈折率・体積・形状に依存する複素数のパラメータであり、主に水中に分散した粒子の S を測定する測定器 (complex amplitude sensor, CAS) がこれまでに開発されてきています [Moteki, 2020, 2021; Moteki *et al.*, 2023]。

CAS を大気中の鉱物ダスト等の固体エアロゾルの粒径別数濃度の分析に応用するため、フィルタに採取したエアロゾルを水に分散させて CAS で測定する手法の評価を行いました [Ohata *et al.*, 2023]。まず標準粒子を用いてフィルタから水への粒子分散の試験等を行った上で、春季に名古屋で採取したエアロゾルの CAS による分析結果を、電子顕微鏡や他のエアロゾル測定器による観測結果と比較することで評価しました。CAS で測定された各粒子の S の値 (複素平面上での位置) に基づいて、固体粒子を BC-like 粒子や dust-like 粒子に分類したところ、BC-like 粒子の数濃度は SP2 により測定した BC 数濃度と高く相関し、dust-like 粒子の数濃度は黄砂飛来時に顕著に増加して電子顕微鏡分析とも整合的な結果が得られました。これらの結果は本手法の妥当性を支持し、鉱物ダストの粒径別数濃度を定量する新しい手法として様々な大気環境での観測に応用できる可能性を

示すものです。

本手法に基づき、現在は西部北太平洋上空の航空機観測や北極域等でフィルタに採取したエアロゾルの分析を進めています。従来困難であったダスト発生源から遠く離れた清浄な環境における鉱物ダストの粒径別数濃度の変動を明らかにし、鉱物ダストの動態や氷晶核数濃度への寄与の解明ならびに全球エアロゾルモデル等の検証に貢献したいと考えています。

5. おわりに

本稿でご紹介した研究はすべて共同研究であり、学生時代から現在に至るまで、多くの先生方や共同研究者の方々にご指導・ご助力いただいで実施してきたものです。身近にたくさんの巨人がおり、その肩の上にしがみついで、なんとか研究活動を続けてこられたような感覚でいるのが正直なところです。

私にエアロゾル研究の重要性と面白さを伝えてくださり、新しい研究に向かってひたむきに取り組むよう鼓舞して下さる近藤豊先生(国立極地研究所)、広い視野で諸問題を捉え、研究の細部から大きな方向性まで適切に助言くださる小池真先生(東京大学)に感謝いたします。また、先駆的な装置開発と理論の構築で微粒子計測技術を大きく発展させてこられた茂木信宏先生(東京都立大学)の日頃のご指導に感謝いたします。本稿でご紹介した研究は、茂木先生の開発してこられた技術を土台として、新しい観測に応用させていただいてきたものです。名古屋大学に大気化学グループの一員として迎え入れてくださり、多くのご助力をいただいでいる持田陸宏先生(名古屋大学)に感謝いたします。研究内容だけでなく、研究者・教員としてのあり方を傍で学ばせていただいでいます。

これまでに多くのご支援をいただいた竹川暢之先生(東京都立大学)、松井仁志先生(名古屋大学)、宮川拓真博士(海洋研究開発機構)、大島長博士(気象研究所)、梶野瑞王博士(気象研究所)、足立

光司博士(気象研究所)、當房豊博士(国立極地研究所)、金谷有剛博士(海洋研究開発機構)、高見明憲博士(国立環境研究所)、北和之先生(茨城大学)、森樹大先生(慶應大学)、吉田淳博士(国立極地研究所)、小田知宏博士(USRA)、Joshua Schwarz 博士(NOAA)、David Fahey 博士(NOAA)に感謝いたします。また、すべての方々のお名前を挙げることは紙面の都合上叶いませんが、研究・学会活動・職場で関わりを持ってくださっている皆様に感謝いたします。

様々なプロジェクトの中にあっても、好奇心に基づいた研究に対する純粋な気持ちを忘れず、自分が面白いと思う研究を突き詰めていけるよう、日々研鑽を積みたいと思います。大気化学分野の発展に貢献できるよう努めて参りますので、今後ともご指導のほどよろしくお願い申し上げます。

参考文献

- Adachi, K. et al. (2021), Compositions and mixing states of aerosol particles by aircraft observations in the Arctic springtime, 2018, *Atmos. Chem. Phys.*, 21, 3607-3626, doi: 10.5194/acp-21-3607-2021.
- Bond, T. C., Anderson, T. L., & Campbell, D. (1999), Calibration and Intercomparison of Filter-Based Measurements of Visible Light Absorption by Aerosols. *Aerosol Sci. Technol.*, 30, 582-600, doi: 10.1080/027868299304435.
- Goto-Azuma, K. et al. (2024), Technical note: High-resolution analyses of concentrations and sizes of refractory black carbon particles deposited in northwestern Greenland over the past 350 years – Part 1: Continuous flow analysis of the SIGMA-D ice core using the wide-range Single-Particle Soot Photometer and a high-efficiency nebulizer, *Atmos. Chem. Phys.*, 24, 12985-13000, doi: 10.5194/acp-24-12985-2024.
- Goto-Azuma, K. et al. (2025), High-resolution analyses of concentrations and sizes of refractory black carbon particles deposited on northwest Greenland over the past 350 years

- Part 2: Seasonal and temporal trends in refractory black carbon originated from fossil fuel combustion and biomass burning, *Atmos. Chem. Phys.*, in press.
- Kinase, T. et al. (2020), Concentrations and size distributions of black carbon in the surface snow of Eastern Antarctica in 2011, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 125, doi: 10.1029/2019JD030737.
- Kondo, Y. et al. (2011), Consistency and traceability of black carbon measurements made by laser-induced incandescence, thermal-optical transmittance, and filter-based photo-absorption techniques, *Aerosol Sci. Technol.*, 45, 295-312, doi: 10.1080/02786826.2010.533215.
- Matsui, H. et al. (2018), Anthropogenic combustion iron as a complex climate forcer, *Nat. Commun.*, 9, 1593, doi: 10.1038/s41467-018-03997-0.
- Miyazaki, Y. et al. (2008), Performance of a newly designed continuous soot monitoring system (COSMOS), *J. Environ. Monitor.*, 10, 1195- 1201, doi: 10.1039/b806957c.
- Moosmüller, H. et al. (2012), Single scattering albedo of fine mineral dust aerosols controlled by iron concentration. *J. Geophys. Res.*, 117, D11210, doi: 10.1029/2011JD016909.
- Mori, T. et al. (2016), Improved technique for measuring the size distribution of black carbon particles in liquid water, *Aerosol Sci. Technol.*, 50, 242-254, doi: 10.1080/02786826.2016.1147644.
- Mori, T. et al. (2019), Black carbon and inorganic aerosols in Arctic snowpack, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 124, doi: 10.1029/2019JD030623.
- Mori, T. et al. (2020), Seasonal variation of wet deposition of black carbon in Arctic Alaska, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 125, doi: 10.1029/2019JD032240.
- Mori, T. et al. (2021), Seasonal variation of wet deposition of black carbon at Ny-Ålesund, Svalbard, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 126, doi: 10.1029/2020JD034110.
- Moteki, N. (2020), Capabilities and limitations of the single-particle extinction and scattering method for estimating the complex refractive index and size-distribution of spherical and non-spherical submicron particles. *J. Quant. Spectrosc. Ra.*, 243, doi: 10.1016/j.jqsrt.2019.106811.
- Moteki, N. (2021), Measuring the complex forward-scattering amplitude of single particles by self-reference interferometry: CAS-v1 protocol, *Opt Express*, 29, 20688-20714, doi: 10.1364/OE.423175.
- Moteki, N. (2023), Climate-relevant properties of black carbon aerosols revealed by in situ measurements: a review. *Prog. Earth Planet. Sci.*, 10, doi: 10.1186/s40645-023-00544-4.
- Moteki, N. et al. (2017), Anthropogenic iron oxide aerosols enhance atmospheric heating, *Nat. Commun.*, 8, 15329, doi: 10.1038/ncomms15329.
- Moteki, N., Mori, T., Matsui, H., & Ohata, S. (2019), Observational constraint of in-cloud supersaturation for simulations of aerosol rainout in atmospheric models, *npj Clim. Atmos. Sci.*, 2, doi: 10.1038/s41612-019-0063-y.
- Moteki, N., Ohata, S., Yoshida, A., & Adachi, K. (2023), Constraining the complex refractive index of black carbon particles using the complex forward-scattering amplitude, *Aerosol Sci. Technol.*, doi: 10.1080/02786826.2023.2202243.
- 大畑祥 (2018), エアロゾルの湿性除去メカニズムに関する観測的研究, *天気*, 65, 617-626.
- Ohata, S. et al. (2016a), Hygroscopicity of materials internally mixed with black carbon measured in Tokyo, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 121, 362-381, doi: 10.1002/2015jd024153.
- Ohata, S. et al. (2018), Abundance of light-absorbing anthropogenic iron oxide aerosols in the urban atmosphere and their emission sources, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 123, 8115-8134, doi: 10.1029/2018jd028363.
- Ohata, S. et al. (2019), Accuracy of black carbon measurements by a filter-based absorption photometer with a heated inlet, *Aerosol Sci. Technol.*, 53, 1079-1091, doi: 10.1080/02786826.2019.1627283.
- Ohata, S. et al. (2021a), Arctic black carbon during PAMARCMiP 2018 and previous aircraft experiments in spring, *Atmos. Chem. Phys.*, 21, 15861-15881, doi:

- 10.5194/acp-21-15861-2021.
- Ohata, S. et al. (2021b), Estimates of mass absorption cross sections of black carbon for filter-based absorption photometers in the Arctic, *Atmos. Meas. Tech.*, 14, 6723-6748, doi: 10.5194/amt-14-6723-2021.
- Ohata, S. et al. (2023), Evaluation of a method to quantify the number concentrations of submicron water-insoluble aerosol particles based on filter sampling and complex forward-scattering amplitude measurements, *Aerosol Sci. Technol.*, 10, 1-18, doi: 10.1080/02786826.2023.2223387.
- Ohata, S., Moteki, N., & Kondo, Y. (2011), Evaluation of a method for measurement of the concentration and size distribution of black carbon particles suspended in rainwater, *Aerosol Sci. Technol.*, 45, 1326-1336, doi: 10.1080/02786826.2011.593590.
- Ohata, S., Moteki, N., Mori, T., Koike, M., & Kondo, Y. (2016b), A key process controlling the wet removal of aerosols: new observational evidence. *Sci Rep*, 6, 34113. doi: 10.1038/srep34113.
- Ohata, S., Moteki, N., Schwarz, J. P., Fahey, D. W., & Kondo, Y. (2013), Evaluation of a method to measure black carbon particles suspended in rainwater and snow samples, *Aerosol Sci. Technol.*, 47, 1073-1082, doi: 10.1080/02786826.2013.824067.
- Oshima, N. et al. (2020), Global and Arctic Radiative Forcing of Anthropogenic Gases and Aerosols in MRI-ESM2.0, *Prog. Earth Planet. Sci.*, 7, 38, doi: 10.1186/s40645-020-00348-w.
- Petzold, A. et al. (2005), Evaluation of multiangle absorption photometry for measuring aerosol light absorption, *Aerosol Sci. Technol.*, 39, 40-51, doi: 10.1080/027868290901945.
- Potenza, M. A. C., Sanvito, T., & Pullia, A. (2015), Measuring the complex field scattered by single submicron particles. *AIP Adv.*, 5, 117222, doi: 10.1063/1.4935927.
- Sand, M. et al. (2021), Aerosol absorption in global models from AeroCom phase III. *Atmos. Chem. Phys.*, 21, 15929-15947. doi: 10.5194/acp-21-15929-2021.
- Schwarz, J. P. et al. (2015), Technique and theoretical approach for quantifying the hygroscopicity of black-carbon-containing aerosol using a single particle soot photometer, *J. Aerosol Sci.*, 81, 110-126, doi: 10.1016/j.jaerosci.2014.11.009.
- Sinha, P. R. et al. (2018), Seasonal progression of the deposition of black carbon by snowfall at Ny-Ålesund, Spitsbergen, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 123, 997-1016, doi: 10.1002/2017jd028027.
- Szopa, S. et al. (2021), Short-Lived Climate Forcers (Chapter 6). In: IPCC 2021: Climate Change 2021: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change, *Cambridge University Press*, pp. 817-922, doi: 10.1017/9781009157896.008.
- WMO/GAW: World Meteorological Organization/Global Atmosphere Watch (2016), WMO/GAW aerosol measurement procedures, guidelines, and recommendations, GAW Report No. 227.
- Yoshida, A. et al. (2016), Detection of light-absorbing iron oxide particles using a modified single-particle soot photometer, *Aerosol Sci. Technol.*, 50, i-iv, doi: 10.1080/02786826.2016.1146402.
- Yoshida, A. et al. (2020), Abundances and microphysical properties of light-absorbing iron oxide and black carbon aerosols over East Asia and the Arctic, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 125, doi: 10.1029/2019JD032301.

原稿受領日: 2024 年 12 月 16 日

掲載受理日: 2025 年 1 月 10 日

著者所属:

1. 名古屋大学宇宙地球環境研究所

*** 責任著者:**

Sho Ohata <sho.ohata@isee.nagoya-u.ac.jp >

Report on participation in the iCACGP–IGAC Joint International Conference on Atmospheric Chemistry (2024)

Jiaru Li^{1,2}, Yuanzhe Li^{3*}, Sota Kometani⁴, Nguyen Doan Thien Chi^{2,5}, Phuc Ha^{6*}

1. Introduction

The 16th Symposium of the International Commission on Atmospheric Chemistry and Global Pollution (iCACGP) and the 18th International Global Atmospheric Chemistry (IGAC) Science Conference (iCACGP-IGAC Conference 2024) aim to gather scientific discussions on the theme "Atmospheric Chemistry: From Local Knowledge to Global Sustainability" (the subtitle was proposed by Dr. Yugo Kanaya, as an IGAC Scientific Steering Committee member/Scientific Program Committee member from Japan). The iCACGP-IGAC2024 was held at the World Trade Center Kuala Lumpur, Malaysia, from September 9 to 13, 2024 (<https://icacgp-igac2024.com/wp-content/uploads/2024/09/Program-Book.pdf>, last access: November 14, 2024). The iCACGP-IGAC 2024 Conference provided inclusive platforms for scientific discussions through six sessions covering regional to global environmental issues such as air quality impacts, climate and weather impacts on air quality, chemical processes and mechanisms, atmospheric chemistry in the changing Earth system, milestones in observational and modeling work, and panel discussions on current environmental issues towards sustainable solutions.

Table 1 shows the participants' information specific to the Early-Career Researchers (ECRs, refer to

Table 1. Number of on-site and virtual participants with oral or poster presentations, and those from Japanese institutions/universities (ECR fractions in brackets)

Oral (ECR)		Poster (ECR)	
All	Japan	All	Japan
55(22)	4(3)	417(243)	27(9)

graduate students and researchers within 3 years of completing their PhD) and attendees from Japan. More than half of the presenters are ECRs at the conference. A substantial ECR program and a short course were prepared for ECRs. For instance, three workshops from senior scientists were provided to share prominent figures' perspectives and experiences via the topics of "career enhancement", "how to be a good scientist", and "tips and tricks for grant applications". Apart from the opportunities to connect with senior researchers, the conference site is one of the best places for ECRs to get to know each other well and build potential networks. More details of the ECR program will be provided in Section 2. Section 3 introduces the general research contents addressed at the main conference. Section 4 provides perspectives and challenges that have been highlighted at the conference. Section 5 gives concluding remarks.



Photo 1 The group photo was taken in the main conference room. Photo credited to the Local Organizing Committee (LOG).

2. Early Career Researcher Program

The 2024 iCACGP-IGAC Joint International Atmospheric Chemistry Conference placed a strong emphasis on supporting ECRs through a series of targeted programs. These initiatives offered young scientists a blend of workshops, networking sessions, and activities focused on skill-building, professional development, and collaboration. Sessions covered key topics such as scientific communication, research methodology, interdisciplinary collaboration, and career planning, providing participants with a well-rounded foundation for growth.

This section highlights the core components of the ECR program, including the Buddy System, excursion, luncheon, the presentation of the Paul J. Crutzen Award, and the ECR Short Course—all of which contributed to an enriching and supportive experience for ECR participants.

2.1 ECR Buddy System

The ECR Buddy System was a key program component designed to help newcomers navigate the conference by pairing them with more experienced participants. Each buddy pair included an early-career

researcher and a senior attendee who provided guidance on making the most of the conference, connecting with others, and engaging in scientific discussions.

This system fostered a welcoming community, helping ECRs feel comfortable engaging with other participants. The Buddy System eased the potential intimidation of attending a large international conference, providing ECRs expressed that the Buddy System significantly enhanced their experience, making the conference more accessible and enjoyable.

2.2 ECR Excursion

A special excursion, organized as part of the ECR Program, allowed participants to engage informally while exploring Kuala Lumpur. The outing included visits to cultural landmarks and sites of environmental significance, linking local perspectives to the broader themes discussed at the conference.

During the excursion, participants discussed topics such as regional pollution, biodiversity, and climate change impacts worldwide. These relaxed conversations reinforced the conference's goal of making scientific knowledge relevant and actionable. The excursion was well-received by participants, providing a valuable opportunity for ECRs to connect and build relationships that could foster future collaborations.

2.3 ECR Luncheon

The ECR luncheon provided a formal yet intimate setting for networking and career development. Held on the fourth day of the conference, the luncheon brought together ECRs and senior scientists in roundtable discussions on career growth, research funding, and scientific ethics.

Each table was led by a senior researcher who

facilitated conversations, encouraging ECRs to share experiences and seek advice. Discussions included securing research funding, managing work-life balance, and building research networks. For many ECRs, the luncheon was a unique opportunity to engage with leading figures in atmospheric science, gaining insights and mentorship that would otherwise be difficult to access. The informal roundtable allowed for deeper conversations, helping ECRs gain a clearer perspective on career paths within atmospheric science.

2.4 Paul J. Crutzen Award

A highlight of the ECR Program was the presentation of the Paul J. Crutzen Award, named in honor of the Nobel Laureate who made groundbreaking contributions to atmospheric chemistry. This prestigious award recognizes outstanding research achievements by early-career scientists.

The 2024 recipient, Dr. Georgios Gkatzelis from Forschungszentrum Jülich, was honored for his innovative work on understanding the impact of emerging anthropogenic sources of volatile organic compounds (VOCs) on air quality and climate.

Dr. Gkatzelis's research addresses how new VOC sources from rapid industrialization and urbanization affect atmospheric chemistry. His work highlights the need to monitor and manage these pollution sources, especially as they play an increasingly significant role in shaping air quality and environmental policy. The award ceremony was a moment of pride for the ECR community, with Dr. Gkatzelis's success serving as an inspiration to other young scientists.

2.5 ECR Short Course

The 2024 IGAC Early Career Short Course (ECSC) brought together 37 competitively selected ECRs from around the globe for an intensive three-day program.



Photo 2 The ECR short course group photo. Photo credited to the LOC.

The course provided a comprehensive introduction to key topics in atmospheric chemistry, including advanced measurement techniques, modeling, satellite observations, and career development strategies. In addition to lectures, participants visited the state-of-the-art environmental data center at the Department of Environment Putrajaya, where they gained hands-on exposure to advanced data collection and analysis tools.

Another highlight was a workshop focused on research proposal writing and defense. ECRs collaborated in groups to develop proposals, which were then presented and defended before a panel of senior scientists. This experience was invaluable for their professional growth, equipping participants with essential skills for preparing funding applications while fostering strong connections within the ECR community.

Following the course, participants established a professional network to facilitate knowledge sharing in atmospheric chemistry and exchange information on their career opportunities. This network will allow them to stay connected and support ongoing collaboration and support joint research initiatives, laying the groundwork for future joint research efforts.

Overall, the ECR Programs enriched the conference experience for participants and strengthened the



Photo 3 The ECRs discussion activities in the ECR short course program. Photo credited to the LOC.

atmospheric chemistry community by bringing fresh perspectives and energy to discussions. Investing in early-career researchers remains crucial to driving innovation and progress in atmospheric science, and the 2024 conference reaffirmed this commitment by providing meaningful opportunities for growth and engagement.

3. Research topics: with a focus on those relevant to climate change

Following on from previous scientific meetings, iCACGP-IGAC 2024 continued to provide scientific updates on key greenhouse gases toward mitigating climate change. Methane emissions in emission inventories such as Emissions Database for Global Atmospheric Research (EDGAR) v8, Greenhouse gas And Air Pollutants Emissions System (GRA²PES), Greenhouse Gas Emissions and Sinks (GHGI), and its climate feedback proposed in the Climate Model Intercomparison Project 6 (CMIP6) assessment were re-examined through satellite work using Greenhouse gases Observing SATellite (GOSAT) XCH₄ (column-averaged dry-air mole fractions for CH₄) (*John Worden et al.*, B37). A new approach to the emission-driven methane cycle demonstrated the need to include interactive methane components in Earth System

Models to assess the impact of methane emission reduction policies and their climate feedbacks on achieving global climate and air quality goals (*Fiona M. O'Connor et al.*, Day 4, Session 4.1; *Hasan Nawaz et al.*, A43; *Ashirbad Mishra et al.*, A39). Satellite observations from GOSAT, TROPOspheric Monitoring Instrument (TROPOMI), Orbiting Carbon Observatory-2 (OCO-2), Ozone Monitoring Instrument (OMI), and the newly launched Geostationary Environment Monitoring Spectrometer (GEMS) continue to identify large-scale sources and emission trends of greenhouse gases (*Naoko Saitoh et al.*, C55; *Chi Nguyen et al.*, B83; *Qianqian Zhang et al.*, A12; *Pauziyah Mohammad Salim et al.*, B12; *David Edwards et al.*, B53). The CO₂ and NO₂ products of the Global Observing SATellite for Greenhouse gases and Water cycle (GOSAT-GW), which is expected to be launched in 2024 or soon under the leadership of the Ministry of the Environment (MOE) and the National Institute for Environmental Studies (NIES), with commitments from the Japan Aerospace Exploration Agency (JAXA) and other institutions, were also discussed (*Masahiro Yamaguchi et al.*, B85; *Tamaki Fujinawa et al.*, B81, *Astrid Müller et al.*, B108).



Photo 4 ECR oral presenter from Japan with the topic of PM_{2.5} measurement using low-cost sensors during the paddy field burning season in India (*Poonam Mangaraj et al.*, Day 5, Session 5.2). Photo credited to *Yuanzhe Li*.

Modeling efforts such as the Transport Model 4 - Environmental Chemical Processes Laboratory (TM4-ECPL), the Weather Research and Forecasting model coupled with Chemistry (WRF-Chem), the United Kingdom Earth System Model - Stratosphere-Troposphere (UKESM-StratTrop), and CMIP6 have continuously provided insight into the transport and chemistry of O₃ and its precursors, such as wildfire-produced CO (*Nikos Daskalakis et al.*, A139), meteorological influence (*Kun Qu et al.*, C80), lightning-induced NO_x, OH, and O₃ (*Subhojit G. Chowdhury et al.*, B8), studied decadal trends in tropospheric O₃, NO₂, and CO at high altitudes and metropolitan areas in India (*Vikrant Tomar et al.*, B13), and the role of the stratosphere-to-troposphere flux of O₃ on tropospheric composition (*Paul T. Griffiths et al.*, B32). One of the highly successful IGAC activities, the Tropospheric Ozone Assessment Report (TOAR and TOAR-II; <https://igacproject.org/activities/TOAR> (last access: November 14, 2024)), aimed to provide a state-of-the-art scientific assessment of the global distribution and trends of tropospheric ozone and its impact on radiative forcing and climate change (*Owen R. Cooper et al.*, B21; *Yugo Kanaya et al.*, C75).

Modeling studies on the local and remote effects of Asian aerosols from the climatological contributions of the monsoon can help understand aerosol transport and its radiative forcing to the Arctic (*Suvarna S. Fadnavis et al.*, Day 1, Keynote). Decadal observations of black carbon (BC) and brown carbon (BrC) in East and South Asia could help not only to understand the light absorption properties and aging processes of BC and BrC, but also to decipher global climate warming (*Sang-Woo Kim et al.*, Day 2, Session 2.1). Other studies of urban sources of BC using ground-based sensors (AethLabs microAeth Model AE51, Compact and Useful PM_{2.5} Instrument with Gas sensors (CUPI-

Gs)) or airborne observations (Effect of Megacities on the Transport and Transformation of Pollutants on the Regional and Global Scales (EMerGe)) in conjunction with models (Weather Research and Forecasting / Community Multiscale Air Quality (WRF-CMAQ), Goddard Earth Observing System composition forecast (GEOS-CF)) diagnosed the dynamics of long-range transport of BC to Japan (*Yosuke Yamashita et al.*, C74), multi-purpose land use across regions in India (*Kazuyo Yamaji et al.*, C83), and the gap between BC and CO emissions in bottom-up inventories and observations (*Phuc Ha et al.*, C68). Continuous ground-based observations at multiple sites in Japan for up to 13 years suggest that fluctuations in SO₂ concentrations, a primary precursor of sulfate aerosols, are primarily influenced by international ship emission restrictions implemented since 2020 (*Sota Kometani et al.*, B101).

Studies focused on the fundamental chemistry of RO_x (OH, HO₂, and RO₂), NO_x (NO and NO₂), HONO, and photochemical spectrum measurements related to laboratory experiments (*Christian George et al.*, Day 3, Session 3.1; *Yosuke Sakamoto et al.*, C38; *Jiaru Li et al.*, C46; *Yuanzhe Li et al.*, C14), field measurements (*James Lee et al.*, A68; *Dwayne Heard et al.*, Day 3, Session 3.1; *Jake T. Vallow*, B68), and observational results explored by modeling simulations (*Wanyun Xu et al.*, C52; *Pooja V. Pawar et al.*, Day 3, Session 3.1). To better understand these highly uncertain mechanisms in the Arctic regions, multiphase processes on aerosol surfaces (*Julia Schmale et al.*, Day 4, Session 4.1) contributed to narrowing the knowledge gap. The aerosol chemistry investigated in the laboratory includes the sulfate photooxidation process (*Chak K. Chan et al.*, Day 3, Keynote; *Ruifeng Zhang et al.*, C6), aerosol chemophysical properties (*Mikinori Kuwata et al.*, C11; *Weihan Li et al.*, C18), haze events

(*Katherine Travis et al.*, B52), and biomass burning/wildfire (*Zhancong Liang et al.*, C50; *Lexia Cicone et al.*, Day 4, Session 4.1). Halogen chemistry was studied at the ocean-air/land-ocean interface (*Likun Xue et al.*, B38). In addition, aerosol and gas monitoring in under-represented regions is progressing rapidly, particularly in Southeast Asian, Latin American, and African countries. More details on this part are presented in Section 4.

4. Innovative techniques and global efforts to collect data in under-represented areas

In addition to the broad research interest in pollution hotspots, several oral and poster presentations provided valuable information on lesser-known regions and initiated potential collaborations. There are approaches to fill the data gap in some areas beyond long-term observations using traditional methods from ozone sondes (*Ryan M. Stauffer et al.*, Day 4, Session 5.1), satellites (*Elyse A. Pennington et al.*, Day 5, Session 5.2), and ground-based stations. NASA's Cloud, Aerosol and Monsoon Processes Philippines Experiment (CAMP²Ex) studied the pollution flux from the maritime continent of Metro Manila, Philippines, which is chemically complicated by its unique island environment (*Maria O. L. Cambaliza et al.*, Day 1, Session 1.2). Low-cost sensors, simple samplers, and questionnaires to measure human exposure to gaseous CO₂, VOCs, and particulate matter (PM_{2.5}, PM₁₀, BC, BrC) from ships and ground vehicles with different fuels used, household cooking sources, manufacturing and mining industries, and cigarette smoke and landscape fires, applicable to resource-limited regions with studies conducted in India (*Emil Varghese et al.*, *Poonam Mangaraj et al.*, Day 5, Session 5.2), Bangladesh (*Merajul Azam et al.*, A33), Indonesia and Taiwan (*Shih-Chun C. Lung et al.*, Day

1, Session 1.1; *Aurellia F Shandy et al.*, A87), Malaysia (*Nur F. Suhaimi et al.*, A165; *Nur Ismah Izzati Ismail et al.*, A164), Singapore (*Mutian Ma et al.*, Day 5, Session 5.2), Africa (*Abdou S. Kagabo et al.*, A5; *Imoh D. Ekpa et al.*, A2; *Victor D. Ablo et al.*; A52; *Shima Shams et al.*, A82; *Salon Vijay et al.*, A88), and Chile (*Mauricio Osses et al.*, A79). Machine learning algorithms were used to achieve monitoring goals, instrument calibration, and correction models to improve the accuracy of low-cost sensor-based data (*Emil Varghese et al.*, Day 5, Session 5.2) or to produce high-resolution air quality maps for data-sparse regions (*Samuel Chua et al.*, Day 5, Session 5.2).

Atmospheric problems do not respect national boundaries. Therefore, the collection of multi-perspective observations to address regional issues requires international cooperation. The final keynote presentation on the Airborne and Satellite Investigation of Asian Air Quality (ASIA-AQ) campaign, conducted in February-March 2024, provided insights from aboard NASA's DC-8 and G-III research aircraft and land teams in four countries/regions: the Republic of Korea, the Philippines, Taiwan, and Thailand (*James Crawford et al.*, Day 5, Keynote). Aside from the



Photo 5 Banquet dinner photo (members from left to right: Dr. Xiao Lu, Dr. Owen Cooper, Dr. Yugo Kanaya, Dr. Mohd Talib Latif, Dr. Vinayak Sinha, and Dr. Nestor Yezid Rojas). Photo credited to the LOC.

valuable data collected, the most challenging aspect of the researchers' international collaboration was obtaining government permission, which was also cited as a lesson for future collaborations.

5. Concluding remarks and following iCACGP-IGAC conference

Overall, the iCACGP-IGAC Conference 2024 has become a regular forum for researchers to discuss atmospheric chemistry, air pollution, and climate change issues, providing participants with the latest information and potential opportunities for research collaboration. The iCACGP-IGAC Conference 2024 highlighted several key research areas in line with the findings of the Intergovernmental Panel on Climate Change's (IPCC AR6) Working Group I (IPCC, 2021), such as the importance of accurate methane emission estimation, reviewing the contribution of SLCFs to climate change, and better understanding of atmospheric reactions, transport mechanisms and regional air pollution in metropolitan and complex environments (Chapter 6,7, The IPCC WG1 Report; *Sophie Szopa*, Day 2, Keynote).

The ECRs program was an outstanding feature of the conference, creating a supportive environment that encouraged professional development, networking, and self-exploration for ECRs. These initiatives contributed significantly to the event and left a lasting impact on participants, inspiring future contributions to the field of atmospheric chemistry.

Looking ahead, the iCACGP-IGAC Conference 2026 is scheduled to take place in Crete, Greece, September 7-11, 2026, continuing its tradition of advancing global atmospheric science.

Acknowledgments

JL, YL, SK, and PH thank the IGAC JAPAN

community and JpSAC for financially supporting their conference registration fees. JL also thanks Dr. Yosuke Sakamoto for covering travel expenses. NC appreciates the support from iCACGP-IGAC for funding the ECR short course and the conference. We sincerely thank Dr. Yugo Kanaya for his time and effort in reviewing this report.

References

- IPCC (2021), *Climate Change 2021: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change* [Masson-Delmotte, V., P. Zhai, A. Pirani, S. L. Connors, C. Péan, S. Berger, N. Caud, Y. Chen, L. Goldfarb, M. I. Gomis, M. Huang, K. Leitzell, E. Lonnoy, J. B. R. Matthews, T. K. Maycock, T. Waterfield, O. Yelekçi, R. Yu and B. Zhou (eds.)]. Cambridge University Press.

Author affiliations:

1. Tokyo Metropolitan University
2. National Institute for Environmental Studies
3. Sophia University
4. Chiba University
5. Nagoya University
6. Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology

* Corresponding author:

Yuanzhe Li <liyuanzhe@eagle.sophia.ac.jp>

Phuc Ha <phucha@jamstec.go.jp>

第 11 回二酸化炭素国際会議 (ICDC11) 参加報告

佐伯田鶴^{1*}

2024 年 7 月 29 日(月)から 8 月 2 日(金)にかけて、the 11th International Carbon Dioxide Conference (ICDC11; 第 11 回二酸化炭素国際会議; <https://www.icdc11.com/icdc-2024/page/3731-home>) がブラジル連邦共和国アマゾナス州マナウス市において開催された。マナウス市は南米のアマゾン熱帯雨林の中央に位置しアマゾン川中流に面した都市である。ICDC は、主要な温室効果ガスである二酸化炭素(CO₂)の循環の理解と地球システムとの相互作用について、科学的知見を発表・議論する国際会議であり、1981 年のスイス・ベルンでの開催以降、基本的に 4 年ごとに世界各地で開催されている。2017 年にスイス・インターラーケンにて開催された第 10 回会議[保科, 2017]の後、新型コロナ禍の影響により 2021 年の開催が延期となったため、7 年ぶりの開催となった。筆者にとっては 4 回目の ICDC 参加であった。

会議初日のオープニングセッション(写真 1)で、主催者であるブラジル国立宇宙研究所(INPE)の Dr. Luciana Gatti やブラジル環境・気候変動担当大臣から挨拶が行われた後、5 日間にかけて、15 のテーマ(表 1)について口頭発表とポスター発表が行われた。口頭発表は時間帯によりシングルセッション(1 会場)とパラレルセッション(2 会場)で行われ、ポスターセッションは各日午後 2.5 時間(コアタイム 1.5 時間と、続

くコーヒーブレイク 1 時間)の十分な時間をかけて実施された(写真 2)。現地参加者は 100 名以上、200 件超(うち口頭発表が約 90 件)の発表があった。現地発表が主であったが、ビデオレコーディングによる口頭発表やバーチャルポスター発表も相当数見られた。日本からは、国立環境研究所、気象研究所、JAMSTEC、千葉大学等からの現地参加があった。地理的距離のせい、アジアからの参加者が比較的少なかったように感じた。

今大会の特徴としては、アマゾンと炭素循環のテーマが設けられたこと(表 1 の No.11)や、初日の午後には"Debate: Amazonia"と題して、研究者だけでなく政府関係者やアマゾンの環境保護を行う NGO 団体からの登壇者も交えた討論会が行われたことであった。Debate での、「アマゾン域での火災の相当数は違法行為によるもの」「アマゾンのテリトリーに住む先住民のうち水や食料にアクセスできる人々は少数である」などの訴えが強く記憶に残っている。個々の研究発表でもアマゾンに関する話題が多く、アマゾン熱帯雨林の炭素循環研究や気候に対する応答、アマゾンでのタワー・航空機・リモートセンシングによる観測やモデル解析の発表が多数あった。以前と比較して、アマゾンでの観測も確実に増えてきており、この領域の炭素収支の精緻化が期待できる。

表 1 ICDC11 のテーマ

1. Carbon budgets and climate policy	9. Interaction with other gases in nature and policy
2. Measuring and modelling CO ₂ in the atmosphere	10. A just and sustainable climate transition, carbon policy and the SDGs
3. Measuring and modelling CO ₂ in the ocean	11. The Amazon and role in the global carbon cycle
4. Measuring and modelling carbon on land	12. The observing system of 2040
5. Anthropogenic fluxes, monitoring, reporting and verification	13. Carbon-cycle/climate feedbacks
6. Lateral fluxes of carbon and closing loops	14. Isotopes and proxies
7. The paleo carbon cycle and what it can teach us	15. Agriculture and land disturbances and the carbon cycle
8. Carbon in an urbanising world	

近頃のトピックスとしては、2023 年から世界的に観測されている CO₂ 濃度の高い増加率について、地上や衛星からの観測結果や、2023 年から 2024 年の森林火災の解析結果、森林火災が多発した結果 extra tropics でのネットの炭素吸収量が減少したのではないかな等の発表があった。筆者も日本の温室効果ガス観測技術衛星 GOSAT による CO₂ 観測に基づいた全大気平均濃度でもこの現象が捉えられていることを発表した。

炭素循環に関わる国際プロジェクト関連では、Global Carbon Project (GCP) の最新版の報告や、地域ごとの温室効果ガス収支をまとめる Regional Carbon Cycle Assessment and Processes 2 (RECCAP2) の報告があった。

炭素循環科学についての政策やプラン提言の発表も複数見受けられた。アメリカ航空宇宙局 (NASA) からは、アメリカ合衆国政府が 2023 年 11 月に発表し



写真 1 会議の初日、メイン会場でのオープニングの様子。



写真 2 ポスターセッションの様子。コーヒーとお菓子のテーブルが近くにあり、休憩時間もポスターの前で議論が盛り上がっていた。

た文書 "Federal Strategy to Advance an Integrated U.S. Greenhouse Gas Measurement, Monitoring, and Information System" (GHGMIS) が報告された。気候危機の取り組みの一環として温室効果ガス (GHG) 排出削減目標に向けて、省庁間の垣根を超えて GHG 観測、監視機能、データ機能を統合して提供するための国家戦略であり、実現に向けた Phase I の一端として US GHG センターが設置された。欧州宇宙機関 (ESA) からは "The Carbon Budget Reconciliation Challenge - A Joint ESA-NASA Initiative" と題して、ESA, NASA, 各国宇宙機関が地球観測衛星を用いて陸海の GHG (CO₂, CH₄, N₂O) 循環の解明に向けて果たす役割、特に、GCP や RECCAP2 等の国際プロジェクトへデータを提供することにより貢献しようとの報告があった。NASA ジェット推進研究所 (JPL) からは準備中の "The Third Decadal U.S. Carbon Cycle Science Plan" の紹介があり、1999 年、2011 年に続く 3 回目の更新に向け、ネットゼロへ向けた気候変動対策のために必要な炭素循環分野のサイエンスプランをとりまとめ、2026 年に発表予定とのことである。

衛星による GHG 観測または将来ミッションの発表も多く、7 年前の ICDC と比較して発表数が格段に増えた印象であった。現在運用中の衛星ミッションについては、日本の GOSAT, GOSAT-2, アメリカの OCO-2, OCO-3, EMIT 等の状況が報告された。NASA JPL による OCO-2 と OCO-3 の報告では、参加者に現場観測の研究者が多いためか、リリーバル結果を航空機や AirCore による現場観測、全量炭素カラム観測ネットワーク TCCON で検証しているため、WMO スタンダードとリンクしていることが強調された。リリーバルの改善や処理の状況についての報告や、OCO-2 model intercomparison project (MIP) の CO₂ フラックス推定に基づく国別排出量推計結果の報告があった他、OCO-3 Snapshot Area Mapping (観測範囲は水平約 80 km × 80 km; 個々のフットプリントの面積は約 3.5 km²) による都市レベルの CO₂ 濃度観測結果と排出量推定結果が報告された。GOSAT, GOSAT-2,

OCO-2 観測による CO₂ や CH₄ データを使ったインバージョンによるフラックス推定の発表も複数件あった。衛星データは短期間に広範を観測できるメリットはあるが、宇宙からのリモートセンシング故、バイアスの問題があり観測精度は現場観測と比べて落ちるため、高精度の現場観測と合わせて、それぞれの長所を生かして双方を利用する必要性を改めて感じた。

将来の衛星ミッションについては、日本の GOSAT-GW, アメリカの GeoCarb, ドイツが中心となって開発している CO2Image, 韓国の Korea Methane Monitoring Microsatellite (K3M)等の紹介があった。GeoCarb は 2022 年にミッション中止が発表されたものの、分光器の調整や熱真空試験の結果をまとめ 2024 年に NASA へ報告書を提出するとのことであった。筆者は、現在運用中の GOSAT と GOSAT-2 の最新の状況, 2024 年度打ち上げ予定(発表当時)の GOSAT-GW の準備状況について報告した。

また、近年炭素循環研究においても機械学習やニューラルネットワークの利用が増えてきているが、今回の ICDC でも、機械学習による陸域生態系の総一次生産の推定や大気輸送の計算を深層学習により高速化しフラックス推定を行う試み等、複数の発表があった。

次回の ICDC の開催地については、アメリカとイギリスの 2 つの研究機関がプロポーザルを発表したが、会議開催中には決定せず、今後 2 年間のうちにサイ

エンスコミティーが決定するとのアナウンスがあった。また、研究発表や情報交換の機会を増やし、特に学生の参加の機会を増やすために、4 年毎の開催ではなく 2 年毎にしてはどうかとの意見もあったが、会議運営負荷も増えるため、こちらもその場での結論は出なかった。

エクスカーシオンは、実行委員会によりいくつかのコースが用意され、アマゾン川や、国立アマゾン研究所やブラジル環境・再生可能天然資源院により管理されている熱帯雨林やエコロジーパーク等を見学することができた(写真 3, 4)。

今回の開催地ブラジル・マナウスは、日本からは地球の反対側への長距離移動であり、現地への経路も、筆者はヨーロッパ経由、同僚は中東経由やアメリカ経由など様々であった。出発前は、外務省の海外安全

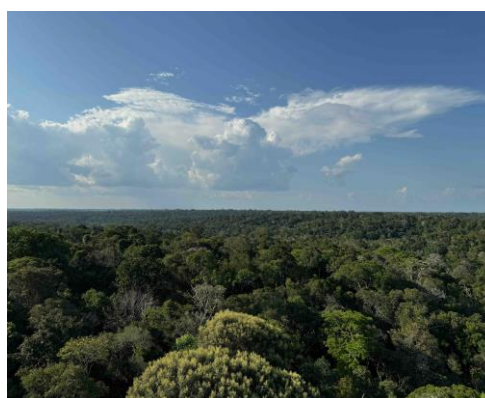


写真 3 マナウス沖のアマゾン川。本流のソリモンエス川(左側の茶色)と支流のネグロ川(右側の黒色)が合流し、水質の違いからしばらくは混じることなく流れるため、観光名所となっている。

写真 4 マナウス市内の植物園と保護林。市街地に隣接しているためアクセスがよく、気軽に熱帯雨林の雰囲気を感じることができた。

情報配信サービス「たびレジ」から「治安に注意」のメールが頻繁に届き心配になったり、開催 2 ヶ月前に会場が突然変更になり、慌ててホテルを取り直したりと、ドタバタもしたが、成田空港を出発して 37 時間後には無事現地空港に到着し、現地では安全に気をつけつつ筆者は大きなトラブルもなく過ごすことができた。同僚は旅につきものの想定外を楽しんだようである[笹川, 2024; 田口・メルニコワ, 2024]。いずれにしても、炭素循環に深く関わるアマゾン熱帯雨林の街で ICDC に参加できたことは非常に良い経験となった。

参考文献

- 保科優 (2017), ICDC10 (第 10 回二酸化炭素国際会議) 参加報告, 大気化学研究, 38, 038N01.
https://jpsac.org/wordpress/wp-content/uploads/2018/01/AACR_vol38.pdf
- 笹川 基樹 (2024), Air Mail ソンナコトアル?, 地球環境研究センターニュース, 35(8).
<https://cger.nies.go.jp/cgernews/202411/408001.html#air>
- 田口 琢斗, メルニコワ・イリーナ (2024), 第 11 回二酸化炭素国際会議参加報告 ~日本から 16000km, 秘境での集い~, 地球環境研究センターニュース, 35(8).
<https://cger.nies.go.jp/cgernews/202411/408001.html>
-

著者所属:

1. 国立環境研究所 地球システム領域

* 責任著者:

Tazu Saeki <saeki.tazu@nies.go.jp>

The 7th International Workshop on Heterogeneous Kinetics Related to Atmospheric Aerosols 開催報告

江波進一^{1*}

気体-液体界面などの不均一な反応場で起こる化学反応と物理過程は、大気中の微量ガス成分の濃度変化やエアロゾルの生成/変質などに大きな影響を与えている。例として、対流圏 HO_x サイクルの中心となる気体の HO₂ ラジカルは、エアロゾルの気液界面に取り込まれることで、気相中の濃度が減り、それにより大気のおゾン濃度に影響を及ぼす。また、エアロゾルの気液界面で起こる OH ラジカルの不均一反応によって、エアロゾルの親水性が増加し、その結果、エアロゾルの成長が促進される。更に、ヒトの皮膚の表面で気体オゾンと皮脂成分が反応することで、アレルギーの原因となる揮発性有機化合物(VOC)が気相に放出される。これらのような、不均一な反応場で起こる化学反応と物理過程は均一場と比較して十分理解されていないことを考えると、その研究推進は、気候変動や大気汚染を考える上で特に重要である。そのため、室内実験、フィールド観測、大気化学モデルのそれぞれのアプローチからの不均一化学の情報を共有し、より包括的な理解を進めることが必要である。このような背景のもと、アジアにおける不均一反応研究の現状を相互理解し、さらに発展させることを目的として、2015年8月に、第1回 International Workshop on Heterogeneous Kinetics Related to Atmospheric Aerosols が北京で開催され、その後、日中で交互に開催を重ねてきた。前回2021年第6回ワークショップ(WS)は世界情勢のためオンライン開催となったが、今回第7回WSは、IGACの協賛で、2024年10月18-21日に、中国の青島でオンサイト開催された。

Chairs は Prof. Tong Zhu (北京大学) と秋元肇先生、

Co-chairs は筆者、Prof. Lin Du (山東大学)、Prof. Mingjin Tang (Guangzhou Institute of Geochemistry)、Prof. Christian George (IRCELYON) および Prof. Hartmut Herrmann (TROPOS) であった。また、基調講演者として、Prof. Sergey Nizkorodov (University of California, Irvine) と Prof. Markus Ammann (Paul Scherrer Institute) が招待された。日本からは、河野七瀬先生(近畿大学)、羽馬哲也先生(東京大学)、坂本陽介博士(国立環境研究所)、胡明熙博士(筑波大学)、更に、中国在住の梶井克純先生(青島大学)と桑田幹哲先生(北京大学)が参加した。

Prof. Sergey Nizkorodov の基調講演では、Rates and mechanisms of photochemical aging processes in aerosol particles from urban and wild fires というタイトルで、エアロゾルのエイジングに関する室内実験研究が紹介された。特に、山火事などのバイオマス燃焼起源のエアロゾルには、ラジカルが含まれているため、不均一反応による変質、その人体への影響は他のエアロゾルとは本質的に異なっている可能性がある。今回のWSでは、バイオマス燃焼起源のエアロゾルに関する発表が多くみられた。

Prof. Markus Ammann の基調講演では、Kinetic limitations in secondary aerosol aging というタイトルで、エアロゾルの粘性や構成物質によって、エイジング過程が大きく変化することを、気液界面輸送モデルを用いて紹介した。気相のOHラジカルがエアロゾルの内部に存在する化学種と反応するためには、界面での反応で完全に消失しないこと、また内部に拡散する時間が反応時間よりも短いことが必要となる。この



参加者集合写真 Co-chairs:後列左から 4 番目著者, 6 番目 Prof. Herrmann, 8 番目 Prof. Du, 9 番目 Prof. George。

条件を満たさない時は、エアロゾル内部に OH はたどり着くことができない。一方で、フェントン反応などによりエアロゾル内部で OH が発生する場合は、OH が内部の化学種と直接反応することで、エイジングに寄与する。このように、エアロゾルの粘性などの物理的性質と構成分子、更に「どこで」OH が発生するかが重要となる。

また、今回の WS では、近年注目されている microdroplets で起こる特殊な反応性についても、活発な議論があった。特に、The mystery of spontaneous chemistry at the air/water interface と題した Prof. Christian George の発表は興味深く、今後、microdroplets 科学と大気化学がどのように関連していくのか注目される。その他にも様々な不均一化学に関する興味深い発表があった。

筆者は 2016 年の第 2 回 WS から連続で本 WS に参加しているが、今回の WS では特に中国の若手研究者の研究のクオリティの高さに感銘を受けた。海外

で大学院やポストドクを経験した若手研究者が中国国内で PI になるケースが年々増えており、彼らが活発な議論に参加していることが、特に印象的であった。

青島は風光明媚なところであった(写真)。青島は、歴史的な背景からドイツの影響を受けており、西洋と東洋が融合した独特の街並みが美しかった。また、青島ビールは世界的に有名であり、懇親会では大変美味しいビールを堪能することができた。今回の WS のいたるところにおいて、Prof. Lin Du ら中国側のホスピタリティに感激した。日中の研究者交流を考える上で本 WS は重要であり、今後もぜひ継続したい。

著者所属:

1. 筑波大学数理物質系化学域

* 責任著者

Shinichi Enami <enami.shinichi.ka@u.tsukuba.ac.jp>

第 29 回大気化学討論会開催報告

山地一代^{1*}, 定永靖宗², 河野七瀬³, 坂本陽介⁴, 八代尚⁴, 池田恒平⁴, 中島英彰⁴, 関谷高志⁵, 竹谷文一⁵, 中山智喜⁶, 持田陸宏⁷, 角皆潤⁷, 内田里沙⁸, 齋藤尚子⁹, 入江仁士⁹, 石戸谷重之¹⁰, 江波進一¹¹

2024年10月9日(水)～11日(金), 神戸大学統合研究拠点コンベンションホール(兵庫県神戸市ポートアイランド内)において, 第29回大気化学討論会が開催されました(図1)。現地では, 口頭発表およびポスター発表を行い, また, やむを得ない事情で現地参加ができない方のために, 口頭発表のみのリアルタイム映像配信を行いました。

参加登録者は, 一般99名, 学生37名, 映像視聴1名(事前登録), 招待講演者および神戸大学と近畿大学の協力学生などを含め, 合計149名の方がご参加くださいました(写真1)。誠に多くの皆さまにご参加いただきまして, 厚く御礼申し上げます。

討論会には, 学生の皆さんをはじめ大変多くの方々より発表登録いただきまして, 口頭発表42件(うち, 学生19件), ポスター発表64件(うち, 学生17件), 招待講演3件, 奨励賞記念講演1件の合計110件の発表が行われました。

10月10日(木)午後には, 関連分野の3名の先生をお招きし, ご講演いただきました。亀田貴之先生(京都大学)には「鉱物エアロゾルが関わる有機化合物の大気反応」, 嶋寺光先生(大阪大学)には「領域化学輸送モデルを用いた日本におけるO₃およびPM_{2.5}汚染の解析」, Paul Griffiths先生(ケンブリッジ大学)には「Studies of short-lived climate forcers using a chemistry-climate model」について, お話いただきました。それぞれ限られたご講演時間内では議論し尽くせない点もありましたが, 先生方には夜の部までご参加いただき, その後も, ご講演内容はもちろんのこと, 今後の共同研究や連携の可能性について活発な意見交換が行われました。

口頭発表では, 昨年同様に2名の座長体制にて進行し, 多くの参加者の方々にご協力いただきました。今年は, 例年以上に学生の皆さんより口頭発表の希望が寄せられ, 日頃の研究成果を堂々と発表する姿



図1 第29回大気化学討論会ご案内



写真1 コンベンションホールにおける参加者の集合写真



写真 2 学生優秀発表賞の受賞者

が見られました。また、いずれの発表でも活発な質疑応答が行われ、講演時間内だけでは議論が収まりきらず、休憩時間にも議論が続く場面が多く見受けられました。

ポスター発表は、10月9日(水)夕方にコアタイムを設け、実施しました。会場の都合により、2フロア(2F 会議室と1F 玄関ロビー)に分かれる形となり、参加者の皆さまにはご不便をおかけしましたが、どちらの会場も熱気にあふれ、活発な議論が交わされました。また、口頭およびポスター発表を行った学生の中から6名に学生優秀発表賞が授与されました(写真2)。

10月10日(木)午前には、日本大気化学会の会員集會が開催され、奨励賞の授賞式および記念講演が行われました。同日午後には、オプション企画として理化学研究所計算機センター「富岳」の見学会を実施しました(写真3)。また、夕方より、神戸市内中心部(三宮)のカフェで懇親会を実施し、106名の参

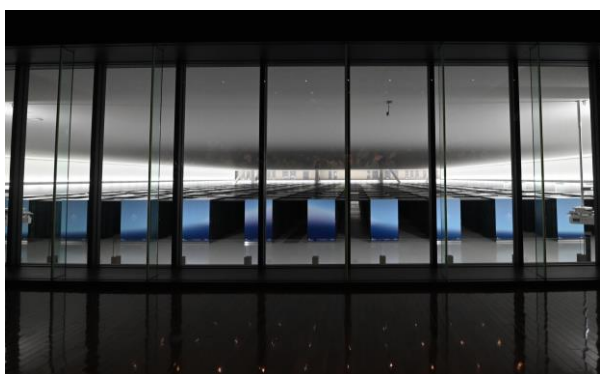


写真 3 理化学研究所計算機センター「富岳」

加者にお集まりいただき、広く親睦を深める貴重な機会となりました。

昼食に関しては、参加者の皆さまにご心配やご不便をおかけいたしました。最終日である10月11日(金)には、近隣の神戸どうぶつ王国さんのご協力のもと、昼食をご提供いただきました。ご利用いただいた皆さまより、「期待以上に良かった」と、ご満足の声を頂戴いたしました。

討論会期間中には、日本大気化学会の男女共同参画・人材育成委員会により、10月9日(水)夜に「大気化学若手交流会」、10月10日(木)昼食時に「女性会員のつどい」がそれぞれ行われました。

アンケート結果について

大会終了後に実施したアンケート調査では、91名(うち、発表者57名、発表者以外の参加者24名、不参加者10名)の方からご回答をいただきました。今回の討論会について、多くの参加者(ご回答81件)よりおおむね満足との回答を得ており、開催形式に関しても「満足」「大いに満足」との回答が多数を占めました。また、次回の討論会の希望開催形式についても、今回と同様の形式を希望する回答が約50%と最も多

Q 今回の大気化学討論会全体の満足度についてお聞かせ下さい

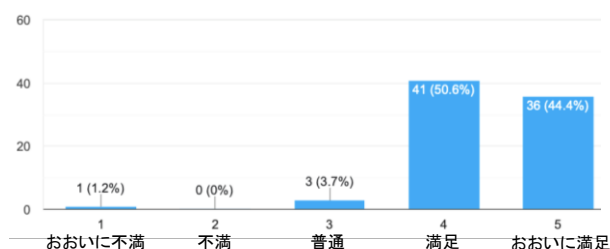


図 2 今回の大気化学討論会の満足度

Q 現地での口頭およびポスター発表と、口頭発表のライブ配信による開催形式の満足度についてお聞かせください

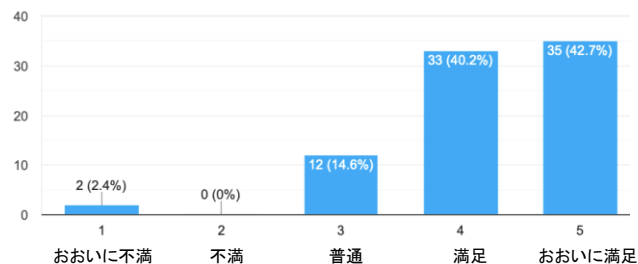


図 3 今回の開催形式の満足度

い結果となりました(図 2, 3)。

今回の新たな取り組みとして実施された若手旅費支援については、「大変適切」「概ね適切」との回答が多く、所属学生に薦めたいという意見も数多く寄せられました(図 4)。一方で、改善に関するご提案もいただいております。今後のさらなる制度充実のための参考とさせていただきます。

アンケートの自由記述欄には、数多くのご意見や LOC(討論会運営委員)に対する温かいお言葉をいただいております。LOC 一同、心より感謝申し上げます。いただいたご意見は、次回討論会の LOC への引継ぎを行い、今後の討論会の運営に活かしていきたいと考えております。

最後に、本討論会の開催にあたり、名古屋大学宇宙地球環境研究所、神戸大学大学院海事科学研究科、近畿大学理工学部、海神会(神戸大学海洋政策科学部同窓会)にご支援いただきました。また、開催準備や当日の運営において、多くの皆様にご協力頂きました。この場をお借りしまして、深く感謝申し上げます。

Q 若手旅費支援は適切であると思われますか?

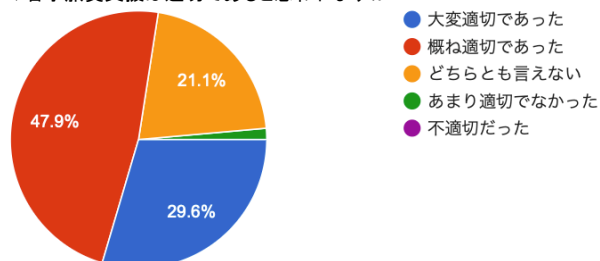


図 4 若手旅費支援について

著者所属:

1. 神戸大学
2. 大阪公立大学
3. 近畿大学
4. 国立環境研究所
5. 海洋研究開発機構
6. 長崎大学
7. 名古屋大学

8. 日本自動車研究所
9. 千葉大学
10. 産業技術総合研究所
11. 筑波大学

* 責任著者:

Kazuyo Yamaji < kazuyo@maritime.kobe-u.ac.jp >

第 29 回大気化学討論会に参加して

溝渕隼也¹, 寺岡秀将², 福山大輔³, 宮瀬陸⁴, ZHANG Jiali⁵

日本大気化学会男女共同参画・人材育成委員会では、第 29 回大気化学討論会において、学生会員および若手研究会員の討論会への参加を促進することによる、自身の研究へのフィードバックおよび人的ネットワーク形成を目的として、旅費の支援を実施しました。旅費支援対象者による参加報告を以下に掲載いたします。

(日本大気化学会男女共同参画・人材育成委員会)

1. 大気化学討論会へ初めて参加した感想と今後の研究への抱負【溝渕】

今回、初めて大気化学討論会に参加させていただきました。これまでは主に気象に関する学会やセッションへ参加する機会が多かったのですが、今回初めて大気化学討論会で口頭発表を行い、大気化学の視点から貴重なフィードバックをいただくことができました。また、普段あまり接することのない大気化学分野の最新知見も学ぶことができ、大変有意義な時間を過ごすことができました。学会では、休憩時間中に気軽に議論できる場も設けられており、「大気化学討論会」の名にふさわしく、活発な討論を行うことができました。今回いただいたフィードバックを踏まえてより深い研究を進めていくことで、大気化学分野への貢献を目指してまいります。今後とも、ご指導ご鞭撻のほど、どうぞよろしくお願い申し上げます。

2. 感想と抱負【寺岡】

この度、はじめて大気化学討論会に参加させていただきました。懇親会では、一人でいると、年長者の方々のお話の輪に自然に入れて下さるなど、とても居心地よく感じました。

討論会において、大いに学ぶことが出来ました。

例えば、モデルを用いた研究者の口頭発表における、観測系の研究者との質疑応答も印象に残ったもののひとつです。お二方のやりとりを通して、討論会の意義について理解を深められたからです。氷晶核に関して観測に基づいて研究なさっている方が、氷晶核に関して理論計算に基づいて研究なさっている方に、「ある物理量のエラーバーを理論的にどのように算出されているのか」について尋ねておられました。理論計算での誤差評価の知恵を、観測の精度向上に活かしたいと、質問なさった根拠についても明言されておられたと記憶しています。討論会の場において、お二人が、各々の御研究から獲得された経験や知識を共有し合い、お互いの研究を進めようとしていた姿勢を感じました。

ところで、私がポスター発表をおこなった際、聞きに来て下さった方々が、発表を聞き終わられた後、私の研究が発展できそうな方向性を、御自身の研究分野と絡めて、助言して下さることが多かったことを思い出しました。この場面でも、御自身の知識を他の研究者に伝え、研究発展に寄与なさろうとする姿勢を感じました。私も、引き続き研究に励み、特に私の実験手法でしか得られないような知識をたくさん身に付けることで、討論会において、活発で有益な議論をおこなえるようになりたいと感じました。

最後に、旅費支援、並びに、学生優秀発表賞を頂き、有難うございました。私の研究に様々な形で関わって下さっている皆様への感謝を改めて感じつつ、賞を励みに研究に邁進いたします。

3. 大気化学討論会に参加する意義【福山】

私が大気化学討論会に参加する意義は、大気化学の分野における最新の研究を学ぶことができること、

そして、研究者の方や、若手の方との人脈形成にあると考えています。

本討論会に参加するのは 3 回目でしたが、今年も室内実験やモデリング、フィールド観測など、大気化学の中でも様々な分野の発表を拝聴することができ、非常に有意義で学びある時間でした。大気化学の研究者としてまだまだ素人である私にとって、本討論会は「大気化学の集中講義」のような 3 日間であり、一挙に多くのことをインプットできる非常に充実した会だと改めて感じました。自身の研究に関するアウトプットは、この分野にとってまだまだ微々たるものですが、これからさらにインパクトのある研究を行い、発表できればと思っています。

また、発表に関するディスカッションや若手の会・懇親会を通して、様々な方と、研究のこと、研究以外のことをお話することができ、刺激の多い討論会であったように感じました。

今後は、今回学んだことや、日本大気化学会に関わる皆様とのご縁を大切にしながら、研究活動に励みたいと思います。

4. 初めての討論会参加【宮瀬】

この度第 29 回大気化学討論会に、学生及び若手研究者への旅費支援制度を利用し参加させていただきました。そして「札幌における大気エアロゾル中の水溶性燃焼起源炭素濃度の季節変動とその制御要因」というテーマで口頭発表をさせていただき、貴重な意見を多くいただくことができよかったです。

討論会への参加は今回が初めてでした。参加してみて感じたことは雰囲気の良いことです。発表はもちろん、間の休憩や懇親会などにおいても、立場や所属を問わずに盛んに意見交換ができました。もともと知り合いがほとんどいない状態だったのですが、他の大学の学生とも多くコミュニケーションをとることができ、今後の研究へのモチベーションもいただくことができました。今回得た交流をより深めていけたらと思います。

今回の討論会で私は陸上でのエアロゾル観測の

結果を報告させていただいたのですが、今後は洋上観測を実施していく予定です。今後の参考になるような発表も多く聞くことができたので、自分の研究へ反映させたり、新たな解析手法にもチャレンジしたりしていきたいと思います。そして大気化学討論会の場での発表・ディスカッションを通してさらに研究を深めていけたらと思っています。その際には学生発表賞を目指して、面白いプレゼンができるよう頑張ります。

5. JpSAC 2024: A Hub for Collaboration and Innovation【Zhang】

My experience attending JpSAC 2024 Annual Meeting was meaningful. I was impressed by the active engagement of attendees as they asked thoughtful questions after each presentation. This created a dynamic atmosphere that encouraged deep discussions. Additionally, the book of abstracts provided at the beginning of the symposium was very helpful to me since it allows participants to efficiently locate information and navigate the event. As a young female researcher, I felt truly supported by JpSAC. The organization's financial assistance for students and the afterparty for young researchers shows its effort in fostering the next generation of scientists. The sense of inclusion and encouragement I experienced at the symposium was inspiring.

The meeting also provided me with a valuable opportunity to learn from and connect with researchers across diverse fields and institutions. One of the most impactful moments for me was receiving feedback on my research from experts working on the Atmospheric Environmental Regional Observation System (AEROS). This database forms the foundation of my study. Their suggestions have given me new insights and ideas to improve my work. The symposium's diversity across a broad range of specialties and research centers demonstrates the interdisciplinary

nature of atmospheric science and the importance of collaboration. I was also inspired by the guest presentations from renowned researchers invited by JpSAC. They presented cutting-edge research in their fields and encouraged me to think more creatively about my own research.

Looking ahead, I am excited to further pursue my work in environmental chemistry with the help of the valuable insights and connections I gained at JpSAC 2024. The dynamic and supportive environment of the symposium has strengthened my wish to contribute to solving environmental challenges.

著者所属:

1. 千葉大学 環境リモートセンシング研究センター
2. 東京大学 大学院総合文化研究科
3. 横浜市立大学 大学院生命ナノシステム科学研究科
4. 北海道大学 大学院環境科学院
5. 早稲田大学 大学院創造理工学研究科

Shunya Mizobuchi <24wm1202@student.gs.chiba-u.jp>

Hidemasa Teraoka <teraoka-hidemasa776@g.ecc.u-tokyo.ac.jp>

Daisuke Fukuyama <n225303b@yokohama-cu.ac.jp>

Riku Miyase <miyariku@ees.hokudai.ac.jp>

Jiali Zhang <ppzhang@fuji.waseda.jp>

日本地球惑星科学連合 2025 年大会 (JpGU2025) での 大気化学セッション開催のお知らせ

江波進一^{1*}, 入江仁士², 石戸谷重之³, 中山智喜⁴

1. JpGU2025「大気化学セッション」

日本大気化学会では、1) 地球惑星科学分野全体に開かれた形で研究集会を実施すること、2) 他分野との交流を促進することを目的として、日本地球惑星科学連合大会において 2007 年から大気化学セッションを毎年開催してきました。これまで当該セッションには口頭・ポスター発表合わせて平均 50 件程度の申し込みがあり活発な議論が行われてきました。

日本地球惑星科学連合 2025 年大会 (JpGU2025) においても大気化学セッションが採択され、従来通り開催されることとなりました。以下、重要な点を抜粋してお知らせします。

2. 日程および予稿投稿

JpGU2025 は、現地開催およびオンライン開催のハイブリッド方式での開催が予定されています。口頭発表は、現地会場・オンラインの両方で、ポスター発表は現地のみで実施される予定です。また、口頭発表の時間帯にはポスター発表のフラッシュトークを行います。ハイブリッド開催のメリットを最大限活かした活発な議論と意見交換の場となることが期待されます。

「大気化学セッション」は口頭およびポスター発表を実施する予定です。各セッションの口頭コマ数は前年の投稿数を元に仮配分され、その後、実際の投稿数により微調整されます。2024 年 12 月に開催セッションおよびコマ割が公開され、大気化学セッションとして、5 月 26 日 (月) に 4 コマの口頭セッションが仮配分されました。現地ポスターセッションは 26 日の口頭セッション終了後に引き続いて行われます。

記

名称: 日本地球惑星科学連合 2025 年大会
会期: 2025 年 5 月 25 日 (日) ~ 5 月 30 日 (金)
開催方式: ハイブリッド方式 (現地 + オンライン)
現地会場: 幕張メッセ
予稿投稿: 2025 年 1 月 16 日 (木) ~ 2 月 18 日 (火)
(早期投稿締切: 2 月 6 日 (木))

大会 WEB サイト:

https://www.jpogu.org/meeting_j2025/

3. 発表言語および招待講演

大気化学セッションにおける発表言語については、「J」区分、すなわち、スライド・ポスター表記および口頭発表の言語は英語または日本語を発表者が選択可としております。しかしながら、大気化学セッションでは、外国人研究者を含めた多様な参加者が発表内容を理解できるよう、スライドおよびポスターは英語で作成いただきますよう、よろしくお願いいたします。

JpGU2025 においても、昨年度に引き続き、大気化学の周辺・境界領域や、近年特に注目されている分野の研究者による招待講演を実施する予定です。皆様の新たな研究の展開にご活用いただけますと幸いです。

本記事が公開される頃には、予稿原稿投稿受付が開始されていることと思います。日本大気化学会として、大気化学に関連する研究を盛り上げるためにも、皆様からの積極的な発表申し込みをお願い申し上げます。(日本大気化学会 運営委員会 (プログラム担当: 江波進一・入江仁士・石戸谷重之・中山智喜))

著者所属:

1. 筑波大学 数理物質系化学域
2. 千葉大学 環境リモートセンシング研究センター
3. 産業技術総合研究所 環境創生研究部門
4. 長崎大学 環境科学部

*** 責任著者:**

Shinichi Enami

<enami.shinichi.ka@u.tsukuba.ac.jp>

第20回日本大気化学会奨励賞の選考結果について

受賞者氏名：大畑 祥（名古屋大学）

受賞研究課題名：固体エアロゾルの測定技術の確立とその動態に関する研究

受賞理由：ブラックカーボン（BC）・酸化鉄・鈹物ダストなどの大気中の固体エアロゾルは、光吸収性や氷晶核活性を持つことで地球の放射収支や雲過程に大きく影響を及ぼす。しかし、これらの動態の把握は重要な課題として残されてきた。大畑祥氏は固体エアロゾル種ごとの測定手法の確立ならびに大気観測に取り組み、以下の数多くの特筆すべき成果を挙げている。

第一に、主要な光吸収性エアロゾルであるBCの測定技術を確立し、大気観測を実施してBCの動態把握を行った。具体的には、レーザー誘起白熱法測定器（SP2）を応用し、水試料中のBCの粒径別数濃度と、大気中のBC含有粒子の吸湿特性の測定技術をそれぞれ確立した。そして、大気境界層内と降水中のBCの同時観測に基づき、大粒径のBCがより高い降水除去効率を持つこと、さらに、この原因が雲粒活性過程の粒径依存性にあることを示した。この成果は、BCの湿性除去の支配要因を明確化するものである。2018年には北極域でSP2を用いたBC高度分布の航空機観測を実施し、森林火災由来のBCの発生量が数値モデルで過小評価されている可能性を指摘した。本成果は、北極BCの動態理解に不可欠な高度分布と時空間変動を明らかにしたものである。

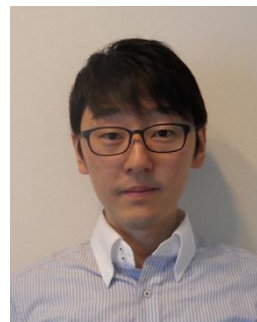
第二に、近年まで光吸収性の重要性が見過ごされてきた人為起源酸化鉄エアロゾルを対象に、SP2を用いた測定技術開発に貢献し、観測を実施した。そして発生源として、製鉄所ではなく自動車等からの排出が重要であることを示唆する結果を得た。得られた知見は、人為起源の酸化鉄エアロゾルの発生源・発生量の把握

と、その光吸収量や海洋への鉄供給の定量に資するものである。

第三に、近年は、氷晶核として重要である鈹物ダストの粒径別数濃度を測定する技術の評価と観測に取り組み、複素散乱振幅センシング技術を応用し、フィルタに捕集したエアロゾル試料に含まれる鈹物ダストの粒径別数濃度を測定する手法を確立した。本手法に基づき、西部北太平洋での航空機観測や北極域での地上観測を展開しており、今後鈹物ダストの動態・気候影響の解明と数値モデルの検証に大きく発展することが期待される。

以上のように、大畑氏は固体エアロゾル種の測定技術を確立し、大気観測を通じて固体エアロゾルの動態の理解を前進させることで、大気化学や関連分野の発展に大きく寄与してきた。これらの成果論文の引用度は高く、また、IPCC第6次評価報告書や北極圏監視評価プログラム（AMAP）報告書でも引用されており、これらは大畑氏による学術的貢献が高い水準にあることを裏付けている。さらに、大畑氏は日本大気化学会の運営委員や準委員を務め、学会活動への貢献も大きい。日本大気化学会は、大畑祥氏が同賞にふさわしい実績と将来性を有するものと認める。

（日本大気化学会運営委員会）



大畑祥氏

日本大気化学会会員集会プログラム

日時：2024年10月10日（木）11:00–11:50

場所：神戸大学統合研究拠点コンベンションホール

- 1) 金谷会長より挨拶
- 2) 会計・会員報告
- 3) 賛助会員のご紹介
- 4) JpGU2025 での大気化学セッション
- 5) 男女共同参画・人材育成委員会の活動について
- 6) 大気化学会論文賞の募集について
- 7) 学会誌「大気化学研究」について
- 8) 選挙制度改善に向けたアンケート結果および
学会細則改定について
- 9) 会長および運営委員選挙について
- 10) 大気環境衛星検討委員会からの報告
- 11) その他

日本大気化学会奨励賞授与式

（日本大気化学会 運営委員会）

第 37, 38 回日本大気化学会運営委員会議事録

第 37 回日本大気化学会運営委員会

日時: 2024 年 8 月 23 日 (金) 09:30 - 12:30

場所: WEB 会議による開催

出席者: 石島健太郎, 入江仁士, 江口菜穂, 金谷有剛, 坂本陽介, 竹谷文一, 中山智喜, 町田敏暢, 宮崎雄三 (敬称略, 五十音順) (以上, 運営委員), 山地一代 (第 29 回討論会 LOC, 運営委員外)

欠席者: 石戸谷重之, 岩本洋子, 江波進一, 大畑祥 (敬称略, 50 音順)

1) 議事録確認

第 36 回運営委員会の議事録は AACR に掲載済である旨が報告された。

2) 会計・会員報告

会計・会員幹事の竹谷委員より会員の入退会および会費未納者の状況について報告がなされた。会員数は 330 名に達する見込みで、前年の 300 名より増加している。

会員入会フォームに関して、性別項目の柔軟化や学生証明手続きの簡略化が提案された。年末のフォーム更新に向けて作業を進めることが了承された。

3) 第 29 回討論会準備状況

討論会 LOC の山地会員より、第 29 回大気化学討論会の準備状況について報告がなされた。口頭セッションは最大 350 名収容の会場で実施し、ポスター会場は件数次第で調整予定である。学生発表賞の受賞者の発表を懇親会 (2 日目) に行うことが提案されたが、審査や事務作業的な負担が大きいため、例年通り閉会式で受賞者の発表を行うこととした。共催大学の学生を招待することについて了承が得られた。

4) 男女共同参画・人材育成委員会の活動について

男女共同参画人材育成担当の江口委員より、討

論会における各種支援について報告がなされた討論会の旅費支援に関する申請が 2 件 (運営委員会当日朝時点) あった。委員会内で審議した結果を来週中に運営委員会で諮り、採択者を決定する。

女性会員の集い、若手交流会の企画について共有された。保育支援や休会中の会員向けの会費サポートについて運営委員会後にアナウンスを予定している。

5) 第 20 回大気化学奨励賞の選考について

奨励賞の受賞者は運営委員会で決定され、受賞者にはその結果が伝達済みであることが報告された。応募者数を増やすために、広く自薦・他薦の促す必要があるとの意見があった。日本学術会議の協力学術研究団体となったことで、様々な外部の賞の案内も届くようになった。本学会に相応しいものに絞って、外部の賞に会員を推薦し、活動度を示して行きたいという意見があった。

6) 大気化学研究誌について

編集担当の坂本委員より、「大気化学研究」第 52 号の編集状況について報告がなされた。選挙制度の変更等の公式なアナウンスや、IGAC 等の国際学会の参加報告について掲載の要望があった。

7) 選挙制度の改善について

選挙制度担当の宮崎委員より、JpSAC 役員選挙制度の改善に向けたアンケートの結果について説明がなされた。推薦人制度や準委員の位置付けについて意見交換がなされた。最大投票人数を 5 名から 6 名にすることが提案され了承された。選挙制度委員会で細則改定の文案を作成することが了承された。アンケートの結果は会員に公表することとした。

8) 選挙投票システムについて

選挙管理担当の坂本委員より、新規投票システムの導入見積もりや運用について説明があった。会長選挙と運営委員選挙は切り分けて実施する必要がある

り、そのぶん経費がかかる可能性がある。今年度の会員が投票できるように、引き続き準備を進める。

9) その他

金谷会長より、学会の将来構想を英訳し 50 ページ余りの冊子を作成したことが報告された。IGAC 国際会議で公開・配布を予定している。PDF 版は大会化学会ウェブサイトに掲載されている。

以上

第 38 回日本大気化学会運営委員会

日時:2024 年 10 月 1 日(木)09:30-12:10

場所:WEB 会議による開催

出席者:石島健太郎, 石戸谷重之, 入江仁士, 岩本洋子, 江口菜穂, 江波進一, 大畑祥, 金谷有剛, 坂本陽介, 竹谷文一, 中山智喜, 町田敏暢, 宮崎雄三 (以上, 運営委員),

山地一代(第 29 回討論会 LOC, 運営委員外)

欠席者:なし

(敬称略, 50 音順)

1) 議事録確認

第 37 回運営委員会の議事録について確認がなされた。

2) 会計・会員の状況

会計・会員幹事の竹谷委員より会員の入退会および会費未納者の状況について報告がなされた。会員数は順調に増加しており 330 名(うち学生 67 名)に達した。

会員入会申込フォームの更新を進めており、R6 年末からの運用を目指す。

3) JpGU2025 大気化学セッション準備状況

JpGU2025 の学協会プログラム委員として、江波委員(正)と入江委員(副)が選任された。

国際化を推進する JpGU から、セッションで用いる言語をできるだけ E(スライド, ポスター表記, 口頭発表言語を英語)とするよう依頼があり、これについてメリット・デメリットを議論した。運営委員会としては、留

学生・外国人研究者への配慮, 秋の討論会との差別化の観点から、E 化を提案することが了承された。討論会期間中の会員集会で会員の意見を収集した後に最終的な判断を下すこととした。

4) 2024 年度第 29 回大気化学討論会について

討論会 LOC の山地委員より、第 29 回大気化学討論会の準備状況について報告がなされた。口頭セッションのオンライン配信を実施する。会場のレイアウト、昼食を取れる場所に関して確認がなされた。

プログラム編成担当の石戸谷委員より、学生優秀発表賞の審査方法について説明がなされた。学生優秀発表賞のエントリー数が増加しており、今後さらに増える場合はプログラム編成を工夫する必要がある。

5) 男女共同参画・人材育成委員会の活動について

男女共同参画人材育成担当の江口委員より、討論会における各種支援について報告がなされた。討論会参加のための若手旅費支援の応募状況と審査結果について共有された。旅費支援を受けた学生・若手研究者は、学会誌上で報告を予定している。討論会期間中の女性会員の集い、若手交流会の申込状況について共有された。

複数の学術組織によって企画された「雇い止め問題」に関する緊急アンケート(9/18 ML 配信)の集計結果について報告された。集計結果は後日会員に ML で共有する。

6) 論文賞の選考について

表彰担当の町田委員より論文賞の募集について近日中に周知することが報告された。討論会期間中の会員集会においても宣伝する。

7) 大気化学研究誌について

編集担当の大畑委員より、「大気化学研究」第 52 号の編集状況について報告がなされた。IGAC 若手旅費支援を受けた会員や、討論会参加のための若手旅費支援を受けた会員による報告記事を掲載する。その他の国際研究集会についても参加報告があっても良いという意見があった。

8) 学会役員選挙の準備状況

選挙管理担当の坂本委員より、次期会長・運営委員選挙に向けた準備状況について報告がなされた。新規投票システムの導入にともない、前倒しで準備を進めている。新規投票システムの改善点について意見収集がなされた。引き続き、システムの改善と準備を進める。

9) 細則改正について

選挙制度変更にともない、細則を改正することが承認された。細則改正は2024年12月1日付とする。役員選挙制度変更に関するアンケート結果をMLで公表する。

10) 会員集会の資料案について

討論会期間中に開催する会員集会の資料を確認した。

大気環境衛星検討委員会の進捗報告を資料に入れることが提案された。

以上

(日本大気化学会 運営委員会)

日本大気化学会役員選挙制度の変更について

本会役員選挙の制度の改善に向け、選挙制度委員会では制度の見直しの議論と変更案の作成を行いました。この制度変更案に対する意向調査のため令和6年6月17日～8月2日の期間、選挙権を持つ正会員に対してアンケートを実施しました。アンケートでは、主な提案として挙げられた、会長選挙における「立候補制度」の導入(従来との併用)、運営委員の定員増、被選挙人名簿の表示方法の変更、選挙結果の情報開示の一部拡大等についてご意見を伺いました。

結果として、38名の正会員の方々から回答をいただき、どの提案項目においても回答者からは8割以上の賛成とともに様々なご意見・ご提案をいただきました。なおアンケート回答結果の概要・詳細については令和6年10月開催の会員集会ならびに本会正会員メーリングリスト宛てに配信・公表済みです。

上記のアンケート結果もふまえ、学会規約【3. 役員の選出に関する細則】の改正が運営委員会で承認され、令和6年12月から施行されました。選挙制度に関する主な変更点は以下の通りです。

- ・会長選挙における立候補制の導入(被選挙権を有する全ての正会員の名簿から投票する従来法との併用で、立候補者は200字以内の所信表明と推薦人2名を必要とする)。
- ・運営委員の定員を2名増員(選挙定員1名、会長指名1名をそれぞれ増員する)。

第14期役員選挙の実施については、他稿に記載の選挙管理委員会からのお知らせをご覧ください。

日本大気化学会 選挙制度委員会

(日本大気化学会 運営委員会)

日本大気化学会役員選挙の公示

1. 役員選挙について

日本大気化学会則の選挙細則に基づき、下記の要領により第 14 期(大気化学研究会から通算)運営委員会役員選挙をインターネット投票で実施します。2024 年度会費を 2024 年 12 月 31 日時点で納入済みの全ての正会員が選挙権と被選挙権を持ちます。ただし、例外として選挙細則第 6 条により会長および運営委員の被選挙権を持たない場合があります(本公示 5 項「第 14 期運営委員会役員選出に関する注意」参照)。

会長選挙

今回の会長選挙から、従来の正会員被選挙人を対象にした互選制に加え、立候補制を導入しました。この新制度のもと、選挙を行います。新制度に基づき、立候補の受付を行った結果(受付期間:2025 年 1 月 8 日~1 月 17 日)、1 名の方が第 14 期会長に立候補されました。立候補者情報は、以下の通りです。

立候補者: 持田 陸宏(名古屋大学)

所信表明:

「私は、本学会の副会長等の役割や、名古屋大学との討論会共催などを通して学会の運営・活動に取り組み、また、IGAC 小委員会・iCACGP 委員等の立場から当該分野の国際活動に携わって参りました。これらの経験を活かし、大気化学の発展を担う中核としての学会活動の推進、iLEAPS・SOLAS 等の関連分野との連携強化、次世代研究者の育成、社会への発信を目標に掲げ、皆様と共に本学会・分野の発展を目指す所存です。」

推薦人: 金谷 有剛(海洋研究開発機構)

岩本 洋子(広島大学)

運営委員選挙

従来通り、正会員被選挙人名簿に基づく投票により選挙を行います。

2. 選挙日程

2025 年 1 月 29 日 選挙告示

2025 年 2 月 10~14 日頃

有権者へ ID およびパスワード連絡

2025 年 2 月 17 日(00:00JST)

~2 月 26 日(23:59JST)

会長選挙の投票期間

2025 年 3 月上旬 会長当選者確定と公表

2025 年 3 月 17 日(00:00JST)

~3 月 27 日(23:59JST)

会長以外の運営委員選挙の投票期間

2025 年 4 月上旬 運営委員当選者確定と公表

2025 年 7 月 1 日 第 14 期運営委員会任期開始

3. 選挙要領

1. 選出役員数: 会長 1 名、および会長以外の運営委員 11 名。
2. 無記名インターネット投票を 2 回行う。
3. 第 1 回投票(2 月)は会長選挙とし、立候補者を含む被選挙人の中から 1 名に投票する。第 2 回投票(3 月)は会長以外の運営委員選挙とし、会長当選者を除く被選挙人の中から 6 名に投票する。
4. インターネット投票手順は、2 月 14 日までに正会員宛に電子メールで通知される。

4. 役員を選出に関する細則(抄)

第 1 条 役員選挙の管理事務を行うため、3 名の役

員をもって構成する選挙管理委員会を置く。

第2条 選挙管理委員会委員は、会長が運営委員より3名を委嘱する。委員長は互選とする。

第3条 選挙管理委員会は次の事業を行う。

1. 選挙の公示
2. 投票および開票に関する事務
3. 投票結果の確認と当選者の確定
4. 選挙結果の運営委員会への伝達および会員への公表
5. その他選挙管理に必要な事項

第4条 選挙により選出すべき運営委員会役員およびその定数は以下の通りとする。

会長1名、運営委員11名

第5条 会長は立候補者を含む全ての正会員の互選により選出する。会長以外の運営委員会役員は、全ての正会員の互選により選出する。正会員は選挙に際して選挙権と被選挙権を有する。

2 学生会員ならびに賛助会員は選挙権ならびに被選挙権を有しない。

3 正会員が会長選挙において立候補者となる場合、立候補者に加え推薦人2名を選挙管理委員会に届け出る。推薦人は本会正会員とする。

第6条 役員任期を2期連続したものは被選挙権を持たない。ただし例外として会長の選出については、会長を2期連続したもの以外の正会員は被選挙権を持つものとする。

第7条 選出すべき運営委員会役員として、会長1名、および会長以外の運営委員会役員6名までを無記名投票する。

第8条 当選者は得票数の多い順に選出され、得票同数の場合は抽選によるものとする。

第9条 会長は任期内に正会員の中から3名を限度に運営委員を指名することが出来る。

第10条 運営委員に欠員を生じたときは、前条とは別に、会長の指名により補充することが出来る。ただし補充された運営委員の任期は前運営委員の残余期間とする。

第11条 副会長は選出された運営委員会役員による互選とする。

第12条 監事は運営委員会で、運営委員以外の正会員の中から選出される。

2 監事は、再任は妨げないが、3期連続して監事になることはできない。

第13条 運営委員会は当会の円滑な運営のため、必要に応じて運営委員以外に準委員を任命できる。準委員の任期は運営委員の任期と同じとする。

5. 第14期運営委員会役員選出に関する注意

会長の選出に関して、2期連続して会長を務めている金谷有剛第13期会長(△印)を除く、全ての正会員(2024年度の会費を2024年12月31日時点で納入済みの方)が被選挙権を持ちます。運営委員の選出に関して、金谷第13期会長、2期連続して役員をされている6名の方(▲印)および第14期会長当選者は、運営委員の選出に関して、被選挙権を持ちません。

第13期運営委員会役員(委員会推薦役員を含む):

会長: △金谷有剛

副会長: ▲岩本洋子

運営委員(50音順):

石島健太郎(庶務幹事), ▲石戸谷重之,

▲入江仁士, 江口菜穂, 江波進一, 大畑祥,

▲坂本陽介, ▲竹谷文一(会計幹事),

中山智喜, 町田敏暢, ▲宮崎雄三

(注1: △印のついた方は、会長・運営委員選出共に被選挙権を持ちません)

(注2: ▲印のついた方は、運営委員選出に被選挙権を持ちませんが、会長選出に被選挙権はあります)

以上

日本大気化学会 選挙管理委員会

(日本大気化学会 運営委員会)

編集後記

今号では、トピックスとして「大気多相物理化学」をテーマに3編の総説記事を掲載しました。本特集では、大気物理化学研究において注目されている研究対象をバランスよく網羅した構成を心がけ、大気エアロゾルの吸湿過程、表面張力、さらには表面光化学反応について、近年の著者の研究で明らかになった知見を交えながら解説していただきました。執筆およびレビューを快くお引き受けいただいた皆様に、深く感謝申し上げます。

加えて、2024年度奨励賞受賞記念論文を掲載するほか、3件の学会参加報告もご投稿いただきました。受賞者の優れた研究成果や、会員の学会での多様な活動が垣間見える内容です。

本誌は、自身の研究や活動内容を会員と共有する有用な場としてご活用いただけます。引き続き、積極的なご投稿とご意見をお寄せください。(YS)

大気化学研究 第52号 (2025年2月4日 発行)

編集兼発行：日本大気化学会

編集委員：大畑祥(共同編集長)、坂本陽介(共同編集長)、上田紗也子、佐伯田鶴、染谷有

連絡先：〒162-0801 東京都新宿区山吹町358-5 アカデミーセンター 日本大気化学会事務局

電話：03-5389-6237

FAX：03-3368-2822

電子メール：jpsac-post@as.bunken.co.jp

ホームページ：<https://jpsac.org/publications/aacr/>

《本誌掲載著作物の転載を希望される方へ》

本誌に掲載された著作物を転載される場合は、上記までご連絡ください。無断での二次使用や勝手な加工はお控えください。