

# 大気エアロゾル粒子の光学特性の計測

## Measurement of optical property of atmospheric aerosol

中山 智喜

Tomoki NAKAYAMA

長崎大学大学院水産・環境科学総合研究科

Graduate School of Fisheries and Environmental Sciences, Nagasaki University

### 摘 要

エアロゾル粒子が放射との相互作用により、気候や大気環境へ及ぼす影響の仕組みを理解し、正確な将来予測を行うためには、光を散乱したり吸収したりする効率といったエアロゾル粒子の光学特性を測定することが不可欠である。エアロゾル粒子には、様々な発生源や大気中での生成・変質過程が存在する。そのため、様々な色(光吸収の波長依存性)を持つ粒子が存在するなど、光学特性も多種多様で、時空間的にも複雑に変化する。本稿では、粒子の光学特性パラメータの関係や光学特性の計測手法について解説するとともに、光吸収性を有するブラックカーボンやブラウンカーボン粒子などの光学特性研究の現状について紹介する。

**キーワード：**エアロゾル・放射相互作用, 鉱物ダスト, 酸化鉄粒子,  
ブラウンカーボン, ブラックカーボン

**Key words :** Aerosol Radiation Interaction, Mineral Dust, Iron Oxide Particle,  
Brown Carbon, Black Carbon

### 1. はじめに

大気中に存在する液体や固体のエアロゾル粒子は、「エアロゾル・放射相互作用」及び「エアロゾル・雲相互作用」により、気候変動に影響を及ぼしている(IPCC, 2013)。前者は、エアロゾル粒子が、太陽光を散乱もしくは吸収することで、放射収支を直接変化させるものである。後者は、雲凝結核や氷晶核として、雲粒や氷晶の生成に関与することで、雲の反射率(アルベド)や寿命を変化させ、結果として、放射収支に影響を及ぼすものである。エアロゾル粒子による光吸収や光散乱が放射収支に及ぼす影響は、粒子の存在量や空間分布に加えて、光学的な特性に依存する。例えば、硫酸塩や硝酸塩などから構成される非光吸収粒子は大気を冷却する一方、光吸収性を有する黒色のブラックカーボン(Black Carbon: BC)(ススや元素状炭素とも呼ばれる(Bond and Bergstrom, 2006; Bond *et al.*, 2013; 中山, 2014))粒子は、太陽光を効率よく吸収し、正味の効果として、大気を加熱する。

エアロゾル粒子には、自動車や船舶、工場の排気ガスや森林火災、農業残渣物燃焼などの様々な直接的な放出源に加え、硫黄酸化物や窒素酸化物、揮発性有機化合物(Volatile Organic Compound: VOC)

などの気体成分が大気中での酸化反応を経て、低蒸気圧成分に変化することで、粒子化し、生成するもの(二次粒子と呼ばれる)もある(図1(a))。大気中に粒子として直接放出される有機物粒子(Organic Aerosol: OA)は一次有機エアロゾル(Primary Organic Aerosol: POA)、大気中でVOCから生成する粒子は二次有機エアロゾル(Secondary Organic Aerosol: SOA)と呼ばれる。大気エアロゾルは、大気中で粒子同士が凝集したり、気体成分が粒子表面に凝縮したり、表面反応や液相反応が進むなどして、その化学成分や形状、混合状態が複雑に変化する。

例えば、BC粒子は大気中を輸送される際に、無機塩や有機成分により被覆され、被覆物がレンズとして働くことで、光吸収量が増加する可能性がある(図1(b))。また、主要なエアロゾルである有機エアロゾルは、含有する化学成分が数千から数万種類にも及ぶと考えられており、その光学特性については、未解明な点が多い。近年、波長350-400 nm付近の近紫外から短波長可視領域に有意な光吸収性を有する黄色や茶色の有機化合物「ブラウンカーボン(Brown Carbon: BrC)」が存在し、放射収支への影響に加えて、二酸化窒素の光分解を介した対流圏オゾンの生成や、オゾンの光分解を介したOHラ

受付: 2019年2月16日, 受理: 2019年5月9日

\* 〒852-8521 長崎県長崎市文教町1-14, E-mail: t-nakayama@nagasaki-u.ac.jp

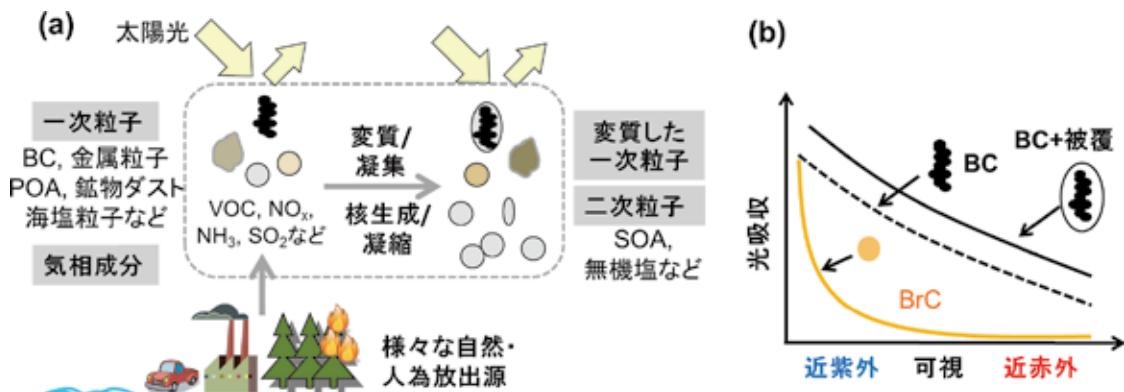


図1 (a) 大気エアロゾルの生成及び変質過程, (b) BC 及び BrC の光吸収の波長依存性の概念図.

ジカルの生成など、近紫外光により駆動される大気化学反応に重要な影響を及ぼしている可能性が指摘されている (Andreae and Gelencsér, 2006; Laskin *et al.*, 2015)。BrC による光吸収は、短波長可視(波長 400 nm 程度)よりも短波長側で急激に増加するのが特徴的である(図 1 (b))。さらに、鉱物ダストや酸化鉄粒子による光吸収も、大気における放射収支の決定に重要な寄与を及ぼしている可能性がある。

以上のことから、エアロゾルが放射との相互作用を介して、気候変動や大気化学反応過程に及ぼす影響を理解し、将来の影響を予測するためには、様々な環境における実大気観測により大気中に存在するエアロゾル全体としての光学特性やエアロゾルの種類ごとの寄与を明らかにするとともに、室内実験によりエアロゾルの生成過程や化学的な特徴と光学特性の関係の理解を深めることが必要である。本稿では、エアロゾル粒子の放射影響を決定する上で重要となるエアロゾルの光学特性パラメータ及び光学特性の計測手法について解説するとともに、光吸収性を有する粒子の光学特性研究の現状を紹介する。

## 2. 光学特性パラメータ

大気の放射伝達を決定づけるエアロゾルの光学特性として、消散係数の鉛直積分量(エアロゾル光学的厚さ)、全消散中の光散乱の割合(単一散乱アルベド)、光散乱の角度依存性(散乱位相関数)及びそれらの波長依存性がある(図 2)。ここで、消散係数は、吸収係数と散乱係数の和である。エアロゾル光学的厚さは、主に粒子の量に依存するパラメータである。一方、単一散乱アルベドや散乱位相関数は、粒子の質に依存するパラメータである(工藤 2014)。

単一散乱アルベドは、単位距離当たりの消散・散乱・吸収のそれぞれによる光の減衰を表す消散・散乱・吸収の各係数(いずれも単位は距離の逆数)のうち、二つを測定することで得られる。非光吸収性粒子の単一散乱アルベドは 1 であり、被覆のない BC 粒子の可視領域における単一散乱アルベドは、0.1

から 0.3 程度である (Bond and Bergstrom, 2006 など)。

消散・散乱・吸収の各係数は、波長のべき乗に反比例することが多いことから、このべき指数をオングストローム指数とし、光学特性の波長依存性を表すパラメータとして用いられている。散乱や消散のオングストローム指数は、微小粒子の割合が大きければ大きく、粗大粒子の割合が大きければ小さくなることから、粒子サイズの指標として用いられる。一方、光吸収のオングストローム指数は、被覆のない BC では 1 程度であるが、BrC では 1 よりも大きく、これらの粒子を区別するために用いられる (Bond and Bergstrom, 2006; Laskin *et al.*, 2015)。

これらの光学特性を決定する物質固有のパラメータとして複素屈折率( $m = n + ki$ )がある。実部  $n$  は、主に物質の誘電率に依存し、非光吸収性の物質の場合、物質中の光速に対する真空中の光速に相当し、主に、エアロゾル粒子による光散乱を決定づける。また、物質の共鳴波長が測定波長に比べて十分短い場合、 $n$  値は、波長が短くなるにつれて徐々に増加する。一方、虚部  $k$  は、主に物質の電気伝導率に依存し、光吸収の大きさに対応する。物質の共鳴波長が測定波長に比べ短い場合には、 $k$  値は、共鳴波長の近傍で急激に増加する。各大気層における粒径分布及び粒子形状が既知(もしくは仮定可能)であれば、電磁方程式を用いて、各波長における複素屈折率から、各波長における消散・散乱・吸収の各係数や光学的厚さ、位相関数を計算することができる(図 2)。均質な球形粒子や球形のコア成分を他の成分が同じ被覆厚さで被覆した粒子(コア・シェル型粒子)の場合には、Mie 散乱理論が用いられる。非球形粒子の場合には、離散双極子近似や T-マトリクス法などを用いて光学特性パラメータを計算することが可能であるが、多数の粒子に適用する場合には、計算負荷の低減が必要である。

エアロゾル粒子の重量濃度と消散・散乱・吸収の各係数を結びつけるパラメータとして、消散・散乱・吸収の各質量断面積が用いられる。消散・散

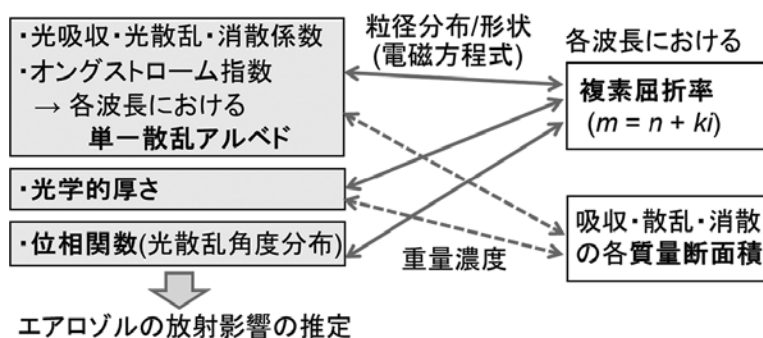


図2 エアロゾル粒子の放射影響を決定づける各光学パラメータの関係(実線及び破線の両矢印はそれぞれ、粒径分布・形状及び重量濃度の情報を用いて関係づけられることを表している)。

乱・吸収の各係数は、「粒径ごとの粒子数密度」, 「消散・散乱・吸収の各効率」, 及び「粒子の幾何学的な断面積(粒径の2乗に比例)」の積を、粒径に対して積分したものである。そのため、消散・散乱・吸収の各効率が粒径の1乗に比例する領域では、各係数は、粒子の体積(粒径の3乗), つまり粒子の重量に比例する。この場合、消散・散乱・吸収の各質量断面積を用いて、粒子の重量濃度から各係数を推定することが可能である(図2)。

光学特性のその場計測では、主に、太陽放射フラックスが最大となる可視光及び周辺波長における消散・散乱・吸収の各係数が測定されており、一部では、光散乱の角度依存性に関する情報の測定も行われている。また、室内実験により、発生源や生成過程ごとの複素屈折率や質量断面積を決定する試みも精力的に行われている。

### 3. エアロゾル光学特性の計測法

#### 3.1 リモートセンシングによる計測

本稿では、主に光学特性のその場計測について解説するが、リモートセンシングを利用した計測も広く行われているため、簡単に紹介する。リモートセンシングによる計測としては、直達日射を分光測定し、エアロゾルの光学的厚さを得るサンフォトメータや、直達日射及び散乱日射の輝度分布から、エアロゾルの光学的厚さや粒径分布、単一散乱アルベド、非等方因子(前方散乱の割合が増えると1に近づく)を推定できるスカイラジオメータによる観測が世界各地で行われている(Nakajima *et al.*, 2007 など)。また、レーザー光を大気中に照射して、後方散乱を測定することで、高度ごとの後方散乱係数や消散係数、偏光解消度(非球形性の指標)を得るライダーや、複数の仰角で散乱日射を分光測定し、 $O_4$ の光吸収から光路長を決定することで、高度区分ごとの消散係数を得る多角度-差分吸収法による観測も行われている(Irie *et al.*, 2015 など)。これらの計測装置は、比較的長期間にわたり、安定して測定が可

能であることに加え、空間代表性のあるデータが取得できる利点がある。一方で、雲の影響を受ける点や、ライダー以外は通常、昼間にしか測定できない課題がある。

#### 3.2 光吸収のその場計測

従来、エアロゾル粒子の光吸収の計測には、主にフィルター光吸収法が用いられてきた。フィルター光吸収法では、エアロゾルをフィルターに捕集しつつ、ランプやLEDからの光を照射し、その透過光や反射光強度の時間変化を測定する(図3(a))。比較的安価で簡便に使用できることから、長期間の大気モニタリング観測などに広く用いられている(Backman *et al.*, 2017 など)。フィルター光吸収法では、フィルターに堆積した非光吸収性粒子やフィルター繊維による多重散乱の影響を考慮する必要があるのに加えて、特に液体状の粒子など、粒子の種類によっては、フィルター繊維上での粒子の変質や形状変化が測定値に影響を及ぼす可能性がある。

一方、粒子が浮遊した状態でその光吸収を直接計測できる手法として光音響分光(Photo-Acoustic Spectroscopy; PAS)法がある。PAS法では、強度変調したレーザー光(もしくはパルスレーザー光)をエアロゾルに照射し、光吸収により生じた熱で周りの空気が膨張することで発生した音波を、高感度のマイクで検出することで光吸収量を得る(図3(b))。近年、レーザー分光技術の進歩などにより検出感度が向上したことで、実大気環境下での測定が可能になってきた(Nakayama *et al.*, 2015a など)。PAS法では、粒子の形状や混合状態の変化の影響を受けずに確度の高い測定が可能であることから、被覆されたBCやBrCの光吸収特性の測定への応用が進みつつある。

#### 3.3 光散乱及び消散のその場計測

エアロゾル粒子の散乱係数は、主に積分型ネフェロメータを用いて測定されている。本装置では、ランプやLED、レーザーからの光をエアロゾル粒子に照射し、散乱光を検出することで光散乱係数を得る(図3(c))。通常、入射光の伝搬方向やその逆方

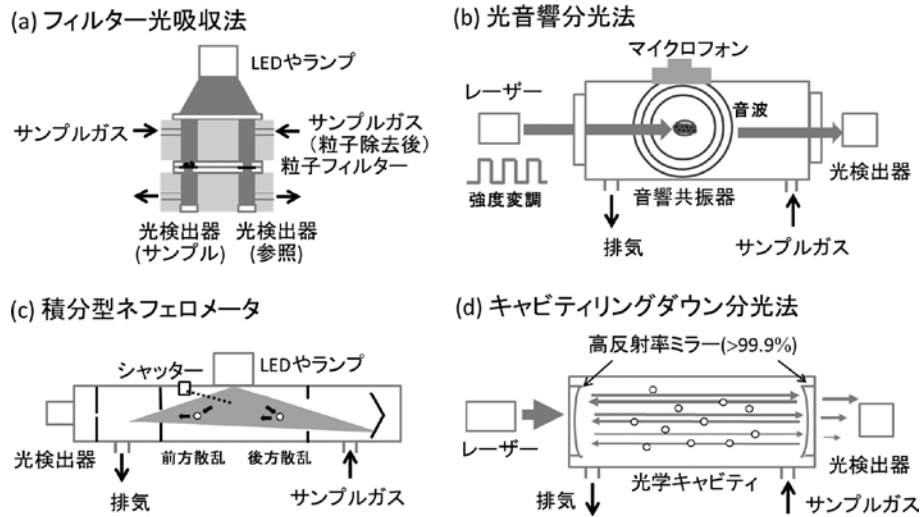


図3 大気エアロゾルの光学特性のその場計測装置の概念図。(a) フィルター光吸収法, (b) 光音響分光法, (c) 積分型ネフェロメータ, (d) キャビティリングダウン分光法。

向に極めて近い角度(10°程度以内), つまり極前方や極後方への散乱光を検出できないことから, 特に極前方への光散乱の割合が大きな粗大粒子の測定時には, 誤差が大きくなる課題がある。

近年, キャビティリングダウン分光(Cavity Ring-Down Spectroscopy: CRDS)法を用いて, 消散係数を計測する装置が開発されている(Nakayama *et al.*, 2010a など)。一般的なCRDS法では, 2枚の非常に高い反射率(99.9%以上)のミラーで構成した光学キャビティ内にレーザー光を導入する(図3(d))。キャビティ内に入った光は一往復ごとにわずかなずつ漏れ出しながら, キャビティ内を数千から数万回往復する。このとき, 漏れ出した光は時間と共に指数関数的に減衰する。キャビティ内にエアロゾル粒子が存在すると, 粒子による光吸収や散乱により減衰の時定数が短くなることから, 粒子の有無で減衰の時定数を計測することで消散係数を得ることができる。CRDS法には, 粒子が浮遊した状態で高感度な測定が可能で系統誤差の要因が少ない利点がある。

### 3.4 散乱角度分布のその場計測

粒子による光散乱の角度依存性(散乱位相関数)の測定には, ポーラーネフェロメータが用いられる。ポーラーネフェロメータには, 散乱点を中心とした円弧上で検出器を動かしつつ散乱光を順番に検出するもの, 散乱点の周りに配置した多数の光検出器で散乱光を一度に検出するもの, 散乱光を楕円ミラーで集光し, アレー型の検出器で光散乱の角度依存性を計測するものなど, 様々なタイプがある(Barkey *et al.*, 2012; Nakagawa *et al.*, 2016)。また, シャッターを用いて, 一部の散乱角の散乱光を遮ることにより, 後方散乱の割合を得る方法(図3(c))や, 遮る散乱光の散乱角度範囲を変化させて, 光散乱の角度依存性の情報を得る装置もある(Müller *et al.*, 2011)。

## 4. 光吸収性を有する大気エアロゾルの光学特性の研究

### 4.1 ブラックカーボン粒子

前述のように, BC粒子は無機塩や有機成分により被覆されると, 被覆物がレンズとして働く「レンズ効果」により, 光吸収量が増加する可能性がある(図1(b))。レンズ効果による個々のBC含有粒子の光吸収の増加率は, BCに対する被覆物の量(被覆厚)の違いに加えて, BCと被覆物の位置関係により変化すると考えられる(図4(a))(Scarnato *et al.*, 2013)。そこで, 「BC以外の成分のうちBCの被覆に使われる割合(BCと他の成分が同じ粒子内に存在する内部混合と別々の粒子として存在する外部混合の割合)」, 「被覆の程度(被覆物とBCの体積比や被覆の厚さ)」, 「BCと被覆物の位置関係(粒子内の構造)」, といった粒子の混合状態や混合形態が, 粒子全体の光吸収特性に及ぼす影響に関する研究が精力的に進められている。

被覆による光吸収の増大率の決定には, 主に以下の二つの方法が用いられている。一つ目の方法は, 一定時間ごとにサンプル空気の流路を切り替え, 200°Cから400°C程度に加熱したサーモデニューダを通過させ, 被覆成分の大部分を蒸発させて除去した後, 光吸収係数を測定するものである。サーモデニューダを通過させた場合に対する, 通過させない場合の光吸収係数の変化率から, 被覆による光吸収の増加率を決定する。二つ目の方法は, 被覆によるBCの質量吸収断面積の変化を利用するものである。被覆のない時の質量吸収断面積の推定方法として, 文献値を用いる方法や, BC含有粒子のBC以外の成分の割合に対して質量吸収断面積をプロットし, そのデータの外挿(つまりY切片)から被覆のないBCの質量吸収断面積を得る方法などが用いられて

いる。いずれの方法においても、BC 以外の光吸収の影響が小さい波長 530 nm 以上での吸収係数の測定値を用いる場合が多い。

従来用いられているフィルター光吸収法は、捕集に伴い BC 含有粒子の被覆状態が変化する可能性があったことから、2010 年前後から、粒子が浮遊した状態で光吸収を直接計測できる PAS 法を用いた観測が実施されるようになってきた。表 1 に、PAS 法を用いた被覆による BC の光吸収の増加率の測定例を示した。これまでの観測により、観測地点や季節により、被覆による光吸収の増加率が大きく異なることがわかってきている。

著者らは、名古屋市内において BC の光吸収及び混合状態の観測を実施し、BC は主に他の成分と別々の粒子として存在し、被覆による光吸収の増大は、夏季・冬季ともに小さいことを報告した (Nakayama *et al.*, 2014)。また、能登半島の珠洲で春季に観測を行い、中国大陸から越境輸送された気

塊を観測した際に、被覆された BC の割合が大きくなり、BC の光吸収が被覆により最大で 50% 程度 (平均で 22%) 増加することを見出した (Ueda *et al.*, 2016)。これらの国内での観測条件においては、発生源の近傍では、BC 含有粒子が他の成分と主に外部混合しているか、被覆に関わる二次粒子成分は主に前駆気体として存在しており、レンズ効果による光吸収の増加は小さい一方で、大気中での滞留時間が増加すると、二次粒子生成や変質に伴って他の成分による被覆が進み、BC の単位重量濃度当たりの光吸収量が増加することが示唆される。一方、都市域で観測が行われた場合でも、中国・西安やインド・カーンプルなど、揮発性有機化合物や窒素酸化物などの前駆気体が高濃度で存在する地域においては、光化学反応等により粒子状物質が効率よく二次生成し、より短時間に BC を被覆することで、平均 80% 程度の大きな増加率を示すことが報告されている (Wang *et al.*, 2014; Thamban *et al.*, 2017) (表 1)。

これまでの観測においては、BC の光吸収の増加率は比較的大きく、コア・シェル型粒子 (図 4(a)) を仮定した Mie 理論により予測される増加率と整合的であるとする報告例 (Wang *et al.*, 2014; Liu, S. *et al.*, 2015) がある一方で、BC 含有粒子中の BC 以外の成分の割合 (質量比) が最大で 10 から 12 程度以上と大きいにも関わらず、Mie 理論から予測される結果に比べて 1/3 程度以下のわずかな増加率しか見られない事例も報告されている (Cappa *et al.*, 2012; Lan *et al.*, 2013; Healy *et al.*, 2015; Cappa *et al.*, 2019)。近年、それぞれの観測における BC の混合形態の違い (図 4(a)) に加えて、個々の粒子の被覆厚のバラツキの大きさ (多様性) (図 4(b)) の違いが、これらの一見相反する観測結果をもたらしている可能性が指摘されている (Fierce *et al.*, 2016; Liu D. T. *et al.*, 2017; Cappa *et al.*, 2019)。ディーゼル排ガス中の BC は、レンズ効果による光吸収の増加はほとんどないことが報告されている (Guo *et al.*, 2014) のに対し、バイオマス燃焼起源の BC は燃焼条件によ

(a) BC と他成分との混合形態の影響



(b) BC と他成分との混合形態の多様性の影響

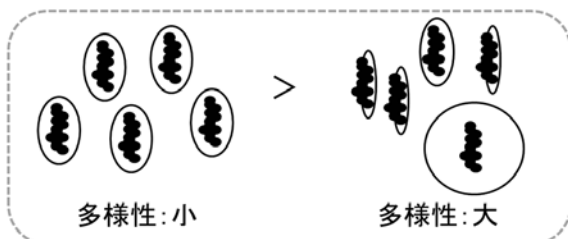


図 4 レンズ効果による光吸収増加率の大小関係。(a) BC と他成分の混合形態及び (b) 混合形態の多様性がレンズ効果による光吸収増加率の大小関係に及ぼす影響の概念図。

表 1 PAS 装置を用いた観測にもとづく被覆による BC 粒子の光吸収の増加率の報告例。

観測地点	地域	期間	方法 <sup>a)</sup>	波長 (nm)	光吸収増加率 <sup>b)</sup>	文献
米国・カリフォルニア <sup>c)</sup>	都市近郊	2010/5-6	TD	532	6%	Cappa <i>et al.</i> , 2012
中国・深圳	都市	2011/8-9	MAC	532	7%	Lan <i>et al.</i> , 2013
日本・名古屋	都市	2011/8	TD	781	10%	Nakayama <i>et al.</i> , 2014
		2012/1	TD	781	ND	Nakayama <i>et al.</i> , 2014
中国・西安	都市	2012/12-2013/1	MAC	870	80%	Wang <i>et al.</i> , 2014
英国・ロンドン	郊外	2012/2	MAC, TD	781	40%	Liu S. <i>et al.</i> , 2015
カナダ・トロント	都市	2013/6	TD	781	ND	Healy <i>et al.</i> , 2015
日本・能登半島	農村	2013/4-5	TD	781	22%	Ueda <i>et al.</i> , 2016
インド・カーンプル	都市	2015/1-2	MAC	781	80%	Tamban <i>et al.</i> , 2017
米国・フレズノ	郊外	2014/12-2015/1	MAC	870	10%	Cappa <i>et al.</i> , 2019
米国・フォンタナ	都市近郊	2015/7	MAC	532	7%	Cappa <i>et al.</i> , 2019

<sup>a)</sup> 光吸収の増加率の決定方法 (TD: サーモデューダを用いる方法, MAC: 質量吸収断面積の変化を用いる方法)

<sup>b)</sup> 被覆による光吸収の増加率の平均値もしくは中央値 (ND: 光吸収の増加は不検出)

<sup>c)</sup> カリフォルニア州沿岸 (主にロサンゼルス周辺) 及びサクラメント

っては厚く被覆され、排出直後から大きなレンズ効果を持つ場合がある(McMeeking *et al.*, 2014)。また、輸送中の変質過程により、BC 粒子のサイズや形状が変化するだけでなく、被覆厚の多様性が減少する可能性がある。そのため、地域や季節によるBC の発生源や輸送中の変質過程の違いが、BC の混合状態や混合形態、被覆厚の多様性の変化を介して、各地で観測された光吸収の増加率の違いに寄与している可能性がある。

今後、各発生源の寄与や変質の程度が異なる様々な環境下での観測研究を実施することで、実大気におけるBC 粒子の光吸収特性と、その決定要因を明らかにすることが期待される。

#### 4.2 ブラウンカーボン粒子

BrC の光吸収特性を観測的に調べる方法として、フィルターに捕集した粒子を水や有機溶媒で抽出したり、粒子液化捕集装置を用いて水溶性有機成分を液相に導入したりすることで得た抽出液の吸収スペクトルを吸光度計で測定する方法が広く用いられている。また、主に、多波長型のフィルター光吸収装置により光吸収係数の波長依存性を測定し、BC とBrC の光吸収を分離することで、BrC の寄与や発生源を推定する研究も多く実施されてきた(Laskin *et al.*, 2015)。2010年頃からは、多波長PAS装置を用いて、粒子が浮遊した状態で直接BrC の光吸収特性を調べる研究も盛んに行われている。

これまでの観測研究では、森林火災や農業残渣物・バイオ燃料の燃焼など、バイオマス燃焼の寄与が大きな時に、OA の光吸収や光吸収オンゲストローム指数が大きくなることを報告している例が多い(Laskin *et al.*, 2015)。著者らは、多波長PAS装置を用いた観測を名古屋市で行い、夏季にはBrC の寄与は無視できるのに対し、バイオマス燃焼の寄与の大きいと考えられる冬季には、BrC による光吸収

が波長405 nm の全光吸収の20% 程度の寄与を持つことを明らかにした(Nakayama *et al.* 2014)。一方で、米国や中国の都市域での観測においては、人為起源のSOA による光吸収が重要となる例も報告されている。Zhang ら(2011, 2012)は、水溶性有機成分の光吸収測定を行い、植物起源SOA の寄与の大きなアトランタに比べて、人為起源SOA の寄与の大きなロサンゼルスでは、BrC の質量吸収断面積が4-6 倍大きいことを示した。また、Yan ら(2017)は、炭素同位体(<sup>13</sup>C 及び <sup>14</sup>C)と、水溶性及び非水溶性有機物の吸収スペクトル測定を行うことで、冬季の北京においては、石炭などの化石燃料燃焼が、BrC のソースとして重要であることを報告している。

これらの一般大気での観測研究に加えて、室内実験や発生源の近傍での観測により、OA の放出源や生成過程ごとの光学特性(複素屈折率や質量吸収断面積)を決定するとともに、粒子に光吸収性を生じさせる化学種(発色団)を明らかにする試みが進められてきた。図5に、光吸収の大きさに対応する複素屈折率の虚部の波長依存性を、放出源や生成過程ごとに色を変えてプロットした。また、図6に、光吸収性を有する有機エアロゾルの放出源・二次生成過程と発色団の関係の概念図を示した。

バイオマス燃焼起源のPOA やSOA は、波長400 nm 付近で0.01 から0.1 程度の大きな $k$  値を持ち、波長500 nm 以上においても無視できない有意な光吸収性を有することが報告されている(Hoffer *et al.*, 2006; Kirchetetter *et al.*, 2004; Chakrabarty *et al.*, 2010; Lack *et al.*, 2012; Saleh *et al.*, 2013; 2014)。Alexander ら(2008)は、電子顕微鏡とエネルギー損失分光法を組み合わせた手法により、黄海で採取されたバイオマス燃焼起源だと考えられる球状の炭素質粒子(ターボール)の複素屈折率を決定し、波長

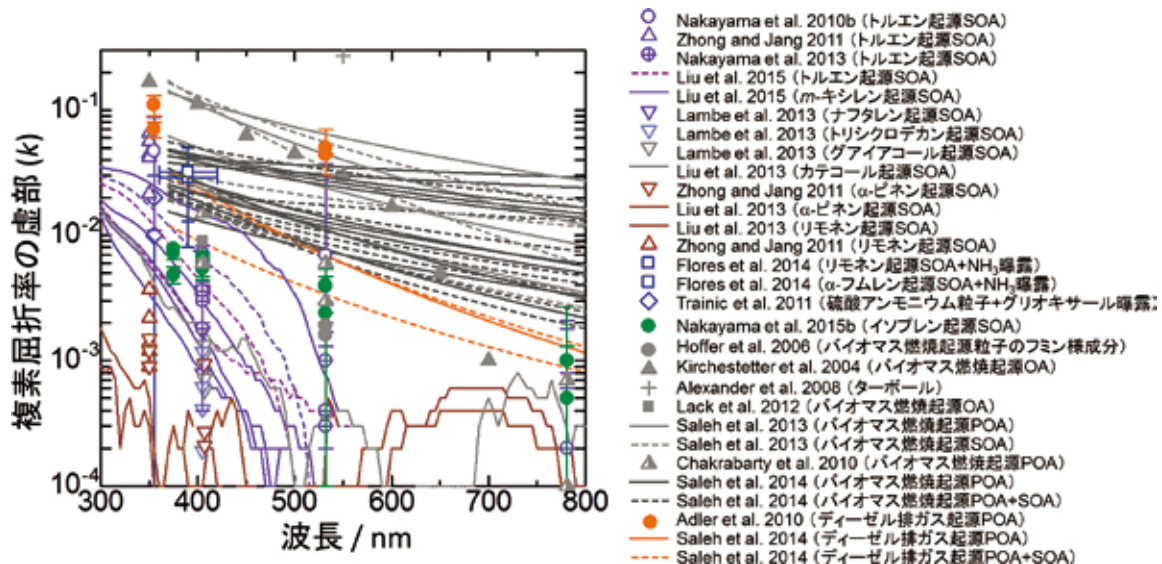


図5 様々な有機エアロゾルの複素屈折率の虚部の波長依存性。

550 nm において 0.27 という BC の 3 分の 1 程度の非常に大きな  $k$  値を報告している。Saleh ら (2014, 2018) は、木材や草、稲わらなどを様々な条件下で燃焼させ、光吸収特性を測定することで、バイオマス燃焼起源の POA の  $k$  値は、燃焼条件により大きく変化し、燻っている場合には、BC に対して OA の割合が大きく、 $k$  値が小さいのに対し、炎を伴って燃焼した場合には、OA の割合が小さく、 $k$  値が大きいことを見出した。また、 $k$  値の増加は、分子量の増加及び揮発性の低下を伴って生じ、BrC から BC への光学特性の変化は連続的であると報告している。一方、Lin ら (2016, 2017) は、木材や草、泥炭を燃焼させた際に発生させた OA について、液体クロマトグラフィで分離した化学種ごとの吸収スペクトルを測定することで、BrC の全光吸収の 50% 程度が、ニトロ芳香族類や多環芳香族の誘導体、ポリフェノールなどの強い光吸収性を有する限られた化学種により生じていることを明らかにした。また、イスラエルでの祭りで発生した木材燃焼起源 OA の可視域の光吸収の 50%-80% がニトロフェノール類などのニトロ芳香族化合物によるものであると報告している。

ディーゼル排ガス起源の OA の  $k$  値については、Adler ら (2010) がディーゼルエンジンの排気中の POA を、水もしくは有機溶媒で抽出後、再粒子化して、光学特性を測定し、波長 355 nm において 0.1 程度の大きな  $k$  値を有することを報告している。一方で、Saleh ら (2014) は、ディーゼル発電機の排気中の POA が Adler らの報告値に比べて 1 桁程度小さな  $k$  値を持ち、照射による変質及び SOA 生成により、OA 全体の  $k$  値が減少すると報告している。また、著者らは、PAS 法によりディーゼル車排ガ

スの光吸収特性をリアルタイムに計測し、高速走行時に光吸収性を有する POA が排出されることを示した (Guo *et al.*, 2014)。しかしながら、車両の種類や後処理システム、運転条件、排出後の Aging 過程や共存気体の違いがディーゼル車やガソリン車、船舶などの排ガス起源の OA の光学特性に及ぼす影響については、未解明である。

これらの発生源に加えて、大気中に放出された個々の VOC から生成する SOA の複素屈折率を決定する研究や、SOA に含まれる発色団を特定する試みも進められている (図 5 及び図 6)。著者らは、光化学チャンバーを用いた室内実験により、光吸収性を有する SOA の複素屈折率を初めて決定し、トルエンが窒素酸化物存在下で OH により酸化され生成する SOA が有意な虚部を有するのに対し、 $\alpha$ -ピネンのオゾン酸化により生成する SOA は有意な虚部を持たないことを示した (Nakayama *et al.*, 2010b)。その後、多くのグループにより様々なタイプの VOC や反応条件下で SOA の複素屈折率が決定されてきた。その結果、一般に、 $\alpha$ -ピネンやリモネンなどの植物起源 VOC から生成する SOA の  $k$  値に比べて (Zhong and Jang, 2011; Liu P. F. *et al.*, 2013), トルエンやキシレンなどの人為起源 VOC が窒素酸化物存在下で OH により酸化され生成する SOA の  $k$  値は大きく (Nakayama *et al.*, 2010b; 2013, Zhong and Jang, 2011; Liu, P. F. *et al.*, 2015), ニトロフェノール類が、その主要な発色団であることが明らかになった (Lin *et al.*, 2015a)。

これらの SOA に加えて、グリオキサールやメチルグリオキサールなどのカルボニル化合物とアンモニアやアンモニウムイオンとの不均一反応や水溶液相反応で生成する SOA が有意な  $k$  値を有し (Trainic

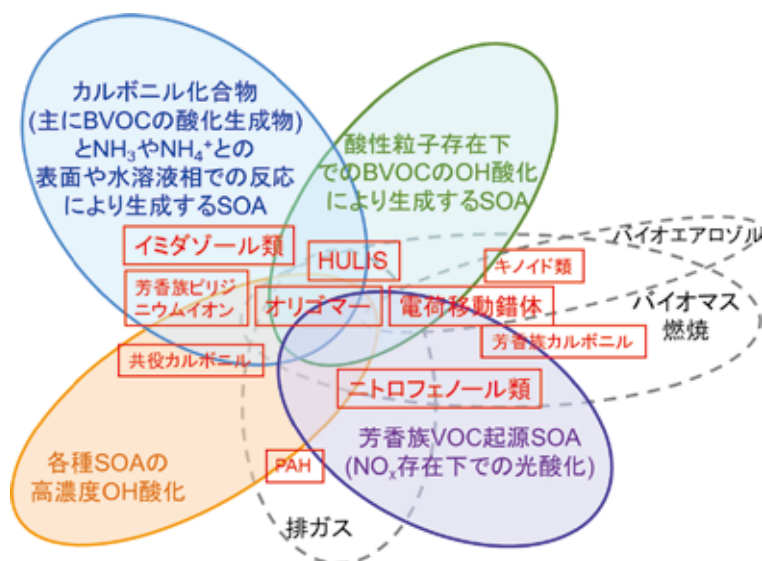


図 6 光吸収性を有する有機エアロゾルの放出源・二次生成過程と発色団の関係の概念図 (BVOC: 植物起源揮発性有機化合物, HULIS: フミン様物質, PAH: 多環芳香族炭化水素)。

*et al.*, 2011; Flores *et al.*, 2014), イミダゾール類などが、その光吸収の要因となっていることが報告されている (Kampf *et al.*, 2012; Lin *et al.*, 2015b)。また、様々な VOC から生成した SOA に高濃度の OH を曝露することで、共役カルボニル化合物が生成し、 $k$  値が増加するという報告もある (Lambe *et al.*, 2013)。さらに著者らは、酸性粒子存在下で放出量が最大の植物起源 VOC であるイソプレンを硫酸酸化物存在下で OH 酸化させた際に生成する SOA も有意な  $k$  値を持つことを明らかにし、酸性粒子表面での不均一反応により生成した不飽和度の高いオリゴマー(多量体)が光吸収を引き起こしている可能性を指摘した (Nakayama *et al.*, 2015b; 2018)。

以上のように、放出源及び生成過程ごとの光学特性や発色団についての知見が蓄積されてきている。今後、それぞれの放出源や生成過程、発色団が、様々な大気環境下どの程度の寄与を持つかや、各発色団が大気中での Aging (老化・変質) により、どの程度の時間で生成もしくは消滅するかを定量的に明らかにしていくことが重要である。

#### 4.3 鉱物ダスト及び人為起源酸化鉄粒子

鉱物ダストによる太陽光(短波放射)や地球放射(長波放射)の光吸収や光散乱は、放射収支に大きな影響を及ぼしていると考えられている。鉱物ダストの光学特性は、ダスト粒子を構成する各鉱物の種類と含有率によって大きく異なることがわかってきており (Moosmüller *et al.*, 2012; Utry *et al.*, 2015; Engelbrecht *et al.*, 2016; Biagio *et al.*, 2017), 酸化鉄の含有率が高いほど、可視及び周辺波長域で、大きな光吸収性を有することが報告されている (Alfaro *et al.*, 2004; Moosmüller *et al.*, 2012; Engelbrecht *et al.*, 2016)。しかしながら、ダスト粒子を構成する鉱物の種類や含有量の多様性に加えて、様々な形状や混合形態の粒子が存在することから、放射影響の推定値には大きな不確実性が存在するのが現状である。

ヘマタイト(赤鉄鋼,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ )やマグネタイト(磁鉄鉱,  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ )などの酸化鉄鉱物は、自然起源の鉱物ダストだけでなく、鉄鋼生産や溶接、自動車(排気ガスやブレーキ粉塵)、石炭や重油の燃焼などの人源活動によっても放出されると考えられている。最近では、レーザー誘起白熱法による BC 及び酸化鉄粒子の粒径及び個数濃度のリアルタイム測定が実施されており、人為起源の酸化鉄粒子による光吸収が、BC に比べて無視できない寄与を持ちうるということが指摘されている (Moteki *et al.*, 2017; Yoshida *et al.*, 2018; Ohata *et al.*, 2018)。

今後、様々な実大気環境下における自然起源の鉱物ダストや人為起源の酸化鉄粒子の寄与を推定するとともに、発生源の違いや大気中での変質過程が、これらの粒子の光学特性に及ぼす影響を解明することが期待される。

#### 5. おわりに

エアロゾル粒子には、多種多様な化学組成や形状、混合形態を有するものがあり、光吸収性粒子については様々な色(光吸収の波長依存性)を持つものがある。近年、分光学的な手法を用いることで、エアロゾル粒子が浮遊した状態で、その光学特性を直接計測することが可能となったことから、特に、他の成分により被覆された BC の光学特性や、BrC の光学特性の理解が進みつつある。一方、大気中での Aging 過程が、エアロゾル粒子の混合状態や混合形態、相状態、化学成分などの物理化学特性の変化を介して光学特性に及ぼす影響など、未解明の問題も多く残されていることから、今後の更なる研究の進展が望まれる。

#### 引用文献

- Adler, G., Abo Riziq, A., Erlick, C. and Rudich, Y. (2010) Effect of intrinsic organic carbon on the optical properties of fresh diesel soot. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 107, 6699–6704. <http://dx.doi:10.1073/pnas.0903311106>
- Alexander, D. T. L., Crozier, P. A. and Anderson, J. R. (2008) Brown carbon spheres in east Asian outflow and their optical properties. *Science*, 321, 833–836. <http://dx.doi:10.1126/science.1155296>
- Alfaro, S. C., Lafon, S., Rajot, J. L., Formenti, P., Gaudichet, A. and Maillé, M. (2004) Iron oxides and light absorption by pure desert dust: An experimental study. *Journal of Geophysical Research*, 109, D08208. <http://dx.doi:10.1029/2003JD04374>
- Andreae, M. O. and Gelencsér, A. (2006) Black carbon or brown carbon? The nature of light-absorbing carbonaceous aerosols. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6, 3131–3148. <http://dx.doi:10.5194/acp-6-3131-2006>
- Backman, J., Schmeisser, L., Virkkula, A., Ogren, J. A., Asmi, E., Starkweather, S., ... and Fiebig, M. (2017) On Aethalometer measurement uncertainties and an instrument correction factor for the Arctic. *Atmospheric Measurement Techniques*, 10, 5039–5062. <https://dx.doi.org/10.5194/amt-10-5039-2017>
- Barkey, B., Paulson, S. and Liou, K. N. (2012) Polar nephelometers for light scattering by ice crystals and aerosols: design and measurements. *Light Scattering Reviews*, 6, 3–37. [https://dx.doi:10.1007/978-3-642-15531-4\\_1](https://dx.doi:10.1007/978-3-642-15531-4_1)
- Biagio, C. D., Formenti, P., Balkanski, Y., Caponi, L.,



- Cazaunau, M., Pangui, E., ... and Doussin, J. -F. (2017) Global scale variability of the mineral dust long-wave refractive index: a new dataset of in situ measurements for climate modeling and remote sensing. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 17, 1901-1929. <https://dx.doi.org/10.5194/acp-17-1901-2017>
- Bond, T. C. and Bergstrom, R. W. (2006) Light absorption by carbonaceous particles: An investigative review. *Aerosol Science and Technology*, 40, 27-67. <http://dx.doi.org/10.1080/02786820500421521>
- Bond, T. C., Doherty, S. J., Fahey D. W., Forster P. M., Berntsen T., DeAngelo B. J., ... and Zender C. S. (2013) Bounding the role of black carbon in the climate system: A scientific assessment. *Journal of Geophysical Research*, 118. <http://dx.doi.org/10.1002/jgrd.50171>
- Cappa, C. D., Onasch, T., Massoli, P., Worsnop, D. R., Bates, T. S., Cross, E. S., ... and Zaveri, R. A. (2012) Radiative absorption enhancements due to the mixing state of atmospheric black carbon. *Science*, 337, 1078-1081. <https://doi.org/10.1126/science.1223447>
- Cappa, C. D., Zhang, X., Russell, L. M., Collier, S., Lee, A. K. Y., Chen, C. -L. ... and Zhang, Q. (2019) Light absorption by ambient black and brown carbon and its dependence on black carbon coating state for two California, USA cities in winter and summer. *Journal of Geophysical Research: Atmosphere*. <http://dx.doi.org/10.1029/2018JD029501> (in press)
- Chakrabarty, R. K., Moosmüller, H., Chen, L.-W. A., Lewis, K., Arnott, W. P., Mazzoleni, C., ... and Kreidenweis, S. M. (2010) Brown carbon in tar balls from smoldering biomass combustion. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10, 6363-6370. <http://dx.doi.org/10.5194/acp-10-6363-2010>
- Engelbrecht, J. P., Moosmüller, H., Pincock, S., Jayanty, R. K. M., Lersch, T. and Casuccio, G. (2016) Technical note: Mineralogical, chemical, morphological, and optical interrelationships of mineral dust re-suspensions. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16, 10809-10830. <http://dx.doi.org/10.5194/acp-16-10809-2016>
- Fierce, L., Bond, T. C., Bauer, S. E., Mena, F. and Riemer, N. (2016) Black carbon absorption at the global scale is affected by particle-scale diversity in composition. *Nature Communications*, 7. <http://dx.doi.org/10.1038/ncomms12361>
- Flores, J. M., Washenfelder, R. A., Adler, G., Lee, H. J., Segev, L., Laskin, J., ... and Rudich, Y. (2014) Complex refractive indices in the near-ultraviolet spectral region of biogenic secondary organic aerosol aged with ammonia. *Physical Chemistry and Chemical Physics*, 16, 10629-10642. <http://dx.doi.org/10.1039/c4cp01009d>
- Guo, X., Nakayama, T., Yamada, H., Inomata, S., Tonokura, K. and Matsumi, Y. (2014) Measurement of the light absorbing properties of diesel exhaust particles using a three-wavelength photoacoustic spectrometer. *Atmospheric Environment*, 94, 428-437. <http://dx.doi.org/10.1016/j.atmosenv.2014.05.042>
- Healy, R. M., Wang, J. M., Jeong, C. H., Lee, A. K. Y., Wills, M. D., Jaroudi, ... and Evans, G. J. (2015) Light-absorbing properties of ambient black carbon and brown carbon from fossil fuel and biomass burning sources. *Journal of Geophysical Research: Atmosphere*, 120, 6619-6633. <http://dx.doi.org/10.1002/2015JD023382>
- Hoffer, A., Gelencsér, A., Guyon, P., Kiss, G., Schmid, O., Frank, ... and Andreae, M. O. (2006) Optical properties of humiclike substances (HULIS) in biomass-burning aerosols. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6, 3563-3570. <http://dx.doi.org/10.5194/acp-6-3563-2006>
- IPCC (2013) *Climate Change 2013: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA.
- Irie, H., Nakayama, T., Shimizu, A., Yamazaki, A., Nagai, T., Uchiyama, A. ... and Y. Matsumi, (2015) Evaluation of MAX-DOAS aerosol retrievals by coincident observations using CRDS, lidar, and sky radiometer in Tsukuba, Japan. *Atmospheric Measurement Techniques*, 8, 2775-2788. <https://dx.doi.org/10.5194/amt-8-2775-2015>
- Kampf, C. J., Jakob, R. and Hoffmann, T. (2012) Identification and characterization of aging products in the glyoxal/ammonium sulfate system —implications for light-absorbing material in atmospheric aerosols. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12, 6323-6333. <http://dx.doi.org/10.5194/acp-12-6323-2012>
- Kirchstetter, T. W., Novakov, T. and Hobbs, P. V. (2004) Evidence that the spectral dependence of light absorption by aerosols is affected by organic carbon. *Journal of Geophysical Research*, 109, D21208. <http://dx.doi.org/10.1029/2004JD004999>
- 工藤 玲 (2014) エアロゾルの光学特性と直接効果. *低温科学*, 72, 113-126.

- Lack, D. A., Langridge, J. M., Bahreini, R., Cappa, C. D., Middlebrook, A. M. and Schwarz, J. P. (2012) Brown carbon and internal mixing in biomass burning particles. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 109, 14802–14807. <http://dx.doi:10.1073/pnas.120657510>
- Lambe, A. T., Cappa, C. D., Massoli, P., Onasch, T. B., Forestieri, S. D., Martin, A. T., ... and Davidovits, P. (2013) Relationship between oxidation level and optical properties of secondary organic aerosol. *Environmental Science & Technology*, 47, 6349–6357. <http://dx.doi:10.1021/es401043j>
- Lan, Z. -J., Huang, X. -F., Yu, K. -Y., Sun, T. -L., Zeng, L. -W. and Hu, M. (2013) Light absorption of black carbon aerosol and its enhancement by mixing state in an urban atmosphere in South China. *Atmospheric Environment*, 69, 118–123. <http://dx.doi:10.1016/j.atmosenv.2012.12.009>
- Laskin, A., Laskin, J. and Nizkorodov, S. A. (2015) Chemistry of atmospheric brown carbon. *Chemical Reviews*, 115, 4335–4382. <http://dx.doi:10.1021/cr5006167>
- Lin, P., Liu, J., Kathmann, S. M., Laskin, J. and Laskin, A. (2015a) Molecular characterization of brown carbon (BrC) chromophores in secondary organic aerosol generated from photo-oxidation of toluene. *Physical Chemistry and Chemical Physics*, 17, 23312–23325. <http://dx.doi:10.1039/C5CP02563J>
- Lin, P., Laskin, J., Nizkorodov, S. A. and Laskin, A. (2015b) Revealing brown carbon chromophores produced in reactions of methylglyoxal with ammonium sulfate. *Environmental Science & Technology*, 49, 14257–14266. <http://dx.doi:10.1021/acs.est.5b03608>
- Lin, P., Aiona, P. K., Li, Y., Shiraiwa, M., Laskin, J., Nizkorodov, S. A. and Laskin, A. (2016) Molecular characterization of brown carbon in biomass burning aerosol particles. *Environmental Science & Technology*, 50, 11815–11824. <http://dx.doi:10.1021/acs.est.6b03024>
- Lin, P., Bluvshstein, N., Rudich, Y., Nizkorodov, S. A., Laskin, J. and Laskin, A. (2017) Molecular chemistry of atmospheric brown carbon inferred from a nationwide biomass burning event. *Environmental Science & Technology*, 51, 11561–11570. <http://dx.doi:10.1021/acs.est.7b02276>
- Liu, P. F., Zhang, Y. and Martin, S. T. (2013) Complex refractive indices of thin films of secondary organic materials by spectroscopic ellipsometry from 220 to 1200 nm. *Environmental Science & Technology*, 47, 13594–13601. <http://dx.doi:10.1021/es403411e>
- Liu, P. F., Abdelmalki, N., Hung, H. -M., Wang, Y., Brune, W. H. and Martin, S. T. (2015) Ultraviolet and visible complex refractive indices of secondary organic material produced by photooxidation of the aromatic compounds toluene and *m*-xylene. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15, 1435–1446. <http://dx.doi:10.5194/acp-15-1435-2015>
- Liu, S., Aiken, A. C., Gorkowski, K., Dubey, M. K., Cappa, C. D., Williams, L. R., ... and Prévôt, A. S. H. (2015) Enhanced light absorption by mixed source black and brown carbon particles in UK winter. *Nature Communications*, 6, 8435. <http://dx.doi:10.1038/ncomms9435>
- Liu, D. T., Whitehead, J., Alfarra, M. R., Reyes-Villegas, E., Spracklen, D. V., Reddington, C. L., ... and Allan, J. D. (2017) Black-carbon absorption enhancement in the atmosphere determined by particle mixing state. *Nature Geoscience*, 10, 184–U132. <http://dx.doi:10.1038/ngeo2901>
- McMeeking, G. R., Fortner, E., Onasch, T. B., Taylor, J. W., Flynn, M., Coe, H. and Kreidenweis S. M. (2014) Impacts of nonrefractory material on light absorption by aerosols emitted from biomass burning. *Journal of Geophysical Research: Atmosphere*, 119, 12272–12286. <http://dx.doi:10.1002/2014jd021750>
- Moosmüller, H., Engelbrecht, J. P., Skiba, M., Frey, G., Chakrabarty, R. K. and Arnott, W. P. (2012) Single scattering albedo of fine mineral dust aerosols controlled by iron concentration. *Journal of Geophysical Research*, 117, D11210. <http://dx.doi:10.1029/2011JD016909>
- Moteki, N., Adachi, K., Ohata, S., Yoshida, A., Harigaya, T., Koike, M. and Kondo, Y. (2017) Anthropogenic iron oxide aerosols enhance atmospheric heating. *Nature Communications*, 8, 15329. <http://dx.doi:10.1038/ncomms15329>
- Müller, T., Laborde, M., Kassell, G. and Wiedensohler, A. (2011) Design and performance of a three-wavelength LED-based total scatter and backscatter integrating nephelometer. *Atmospheric Measurement Techniques*, 4, 1291–1303. <https://dx.doi.org/10.5194/amt-4-1291-2011>
- Nakagawa, M., Nakayama, T., Sasago H., Ueda S., Venables, D. S. and Matsumi Y. (2016) Design and characterization of a novel single-particle polar nephelometer. *Aerosol Science and Technology*, 50, 392–404. <http://dx.doi:10.1080/02786826.2016.1155105>
- Nakajima, T., Yoon, S. -C., Ramanathan V., Shi, G. Y., Takemura, T., Higurashi, A., ... and Schutgens, N.

- (2007) Overview of the Atmospheric Brown Cloud East Asian Regional Experiment 2005 and a study of the aerosol direct radiative forcing in east Asia. *Journal of Geophysical Research*, 112, D24S91. <http://dx.doi:10.1029/2007JD09009>
- Nakayama, T., Hagino, R., Matsumi, Y., Sakamoto, Y., Kawasaki, M., Yamazaki, A., ... and Tonokura, K. (2010a) Measurements of aerosol optical properties in central Tokyo during summertime using cavity ring-down spectroscopy: Comparison with conventional techniques. *Atmospheric Environment*, 44, 3034-3042. <http://dx.doi:10.1016/j.atmosenv.2010.05.008>
- Nakayama, T., Matsumi, Y., Sato, K., Imamura, T., Yamazaki, A. and Uchiyama, A. (2010b) Laboratory studies on optical properties of secondary organic aerosols generated during the photooxidation of toluene and the ozonolysis of  $\alpha$ -pinene. *Journal of Geophysical Research*, 115. <http://dx.doi:10.1029/2010JD014387>
- 中山智喜(2014)「スス・ブラックカーボン粒子：ミクロからマクロまで」関連用語. *エアロゾル研究*, 29, 32.
- Nakayama, T., Sato, K., Matsumi, Y., Imamura, T., Yamazaki, A. and Uchiyama, A. (2013) Wavelength and NO<sub>x</sub> dependent complex refractive index of SOAs generated from the photooxidation of toluene. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13, 531-545. <http://dx.doi:10.5194/acp-13-531-2013>
- Nakayama, T., Ikeda, Y., Sawada, Y., Setoguchi, Y., Ogawa, S., Kawana, K., ... and Matsumi, Y. (2014) Properties of light-absorbing aerosols in the Nagoya urban area, Japan, in August 2011 and January 2012: Contributions of brown carbon and lensing effect. *Journal of Geophysical Research: Atmosphere*, 119, 12,721-712,739. <http://dx.doi:10.1002/2014JD021744>
- Nakayama, T., Suzuki, H., Kagamitani, S., Ikeda, Y., Uchiyama, A. and Matsumi, Y. (2015a) Characterization of a three wavelength photoacoustic soot spectrometer (PASS-3) and a photoacoustic extinctionsmeter (PAX). *Journal of the Meteorological Society of Japan*, 93, 285-308. <http://dx.doi:10.2151/jmsj.2015-016>
- Nakayama, T., Sato, K., Tsuge, M., Imamura, T. and Matsumi, Y. (2015b) Complex refractive index of secondary organic aerosol generated from isoprene/NO<sub>x</sub> photooxidation in the presence and absence of SO<sub>2</sub>. *Journal of Geophysical Research: Atmosphere*, 120, 7777-7787. <http://dx.doi:10.1002/2015JD023522>
- Nakayama, T., Sato, K., Imamura, T. and Matsumi, Y. (2018) Effect of oxidation process on complex refractive index of secondary organic aerosol generated from isoprene. *Environmental Science & Technology*, 52, 2566-2574. <http://dx.doi:10.1021/acs.est.7b05852>
- Ohata, S., Yoshida, A., Moteki, N., Adachi, K., Takahashi, Y., Kurisu, M. and Koike, M. (2018) Abundance of light-absorbing anthropogenic iron oxide aerosols in the urban atmosphere and their emission sources. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 123, 8115-8134. <http://dx.doi:10.1029/2018JD028363>
- Saleh, R., Hennigan, C. J., McMeeking, G. R., Chuang, W. K., Robinson, E. S., Coe, H., ... and Robinson, A. L. (2013) Absorptivity of brown carbon in fresh and photo-chemically aged biomass-burning emissions. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13, 7683-7693. <http://dx.doi:10.5194/acp-13-7683-2013>
- Saleh, R., Robinson, E. S., Tkacik, D. S., Ahern, A. T., Liu, S., Aiken, A. C., ... and Robinson, A. L. (2014) Brownness of organics in aerosols from biomass burning linked to their black carbon content. *Nature Geoscience*, 7, 647. <http://dx.doi:10.1038/ngeo2220>
- Saleh, R, Cheng, Z. and Atwi, K. (2018) The Brown-black continuum of light-absorbing combustion aerosols. *Environmental Science & Technology Letters*, 5, 508-513. <http://dx.doi.org/10.1021/acs.estlett.8b00305>
- Scarnato, B. V., Vahidinia, S., Richard, D. T. and Kirchstetter, T. W. (2013) Effects of internal mixing and aggregate morphology on optical properties of black carbon using a discrete dipole approximation model. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13, 5089-5101. <http://dx.doi:10.5194/acp-13-5089-2013>
- Thamban, N. M., Tripathi, S. N., Moosakutty, S. P., Kuntamukkala, P. and Kanawade, V. P. (2017) Internally mixed black carbon in the Indo-Gangetic Plain and its effect on absorption enhancement. *Atmospheric Research*, 197, 211-223. <https://dx.doi.org/10.1016/j.atmosres.2017.07.007>
- Trainic, M., Abo Riziq, A., Lavi, A., Flores, J. M. and Rudich, Y. (2011) The optical, physical and chemical properties of the products of glyoxal uptake on ammonium sulfate seed aerosols. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11, 9697-9707. <http://dx.doi:10.5194/acp-11-9697-2011>
- Ueda, S., Nakayama, T., Taketani, F., Adachi, K., Matsuki, A., Iwamoto, Y., ... and Matsumi, Y. (2016) Light absorption and morphological

- properties of soot-containing aerosols observed at an East Asian outflow site, Noto Peninsula, Japan. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16, 2525–2541. <http://dx.doi.org/10.5194/acp-16-2525-2016>
- Utry, N., Ajtai, T., Pintér, M., Tombácz, E., Illés, E., Bozóki, Z. and Szabó, G. (2015) Mass-specific optical absorption coefficients and imaginary part of the complex refractive indices of mineral dust components measured by a multi-wavelength photoacoustic spectrometer. *Atmospheric Measurement Techniques*, 8, 401–410. <https://doi.org/10.5194/amt-8-401-2015>
- Wang, Q., Huang, R. -J., Cao, J., Han, Y., Wang, G., Dai, W., ... and Zhou, Y. (2014) Mixing state of black carbon aerosol in a heavily polluted urban area of China: implications for light absorption enhancement. *Aerosol Science and Technology*, 48, 689–697. <http://dx.doi.org/10.1080/02786826.2014.917758>
- Yan, C., Zheng, M., Bosch, C., Andersson, A., Desyaterik, Y., Sullivan, A. P., ... and Gustafsson, Ó. (2017) Important fossil source contribution to brown carbon in Beijing during winter. *Scientific Reports*, 7, 43182. <http://dx.doi.org/10.1038/srep43182>
- Yoshida, A., Ohata, S., Moteki, N., Adachi, K., Mori, T., Koike, M. and Takami, A. (2018) Abundance and emission flux of the anthropogenic iron oxide aerosols from the East Asian continental outflow. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 123, 11194–11209. <http://dx.doi.org/10.1029/2018JD028665>
- Zhang, X., Lin, Y. -H., Surratt, J. D., Zotter, P., Prévôt, A. S. H. and Weber, R. J. (2011) Light-absorbing soluble organic aerosol in Los Angeles and Atlanta: A contrast in secondary organic aerosol. *Geophysical Research Letters*, 38, L21810. <http://dx.doi.org/10.1029/2011GL049385>
- Zhang, X., Liu, J. Parker, E. T., Hayes, P. L., Jimenez, J. L., de Gouw, J. A., ..., and Weber R. J. (2012) On the gas-particle partitioning of soluble organic aerosol in two urban atmospheres with contrasting emissions: 1. Bulk water-soluble organic carbon. *Journal of Geophysical Research*, 117, D00V16. <http://dx.doi.org/10.1029/2012JD017908>
- Zhong, M. and Jang, M. (2011) Light absorption coefficient measurement of SOA using a UV-Visible spectrometer connected with an integrating sphere. *Atmospheric Environment*, 45, 4263–4271. <http://dx.doi.org/10.1016/j.atmosenv.2011.04.082>



中山 智喜 / Tomoki NAKAYAMA

長崎大学大学院水産・環境科学総合研究科(環境科学領域)准教授。兵庫県出身。2001年に神戸大学理学部化学科を卒業後、2006年に名古屋大学大学院理学研究科博士課程を修了、博士(理学)。京都大学大学院工学研究科助手・助教、名古屋大学太陽地球環境研究所(宇宙地球環境研究所)助教・講師を経て、2018年より現職。専門は、大気化学、エアロゾル科学、大気環境科学。大気微量気体やエアロゾル粒子(PM2.5等)の計測装置の開発及び、室内実験・観測研究を行っている。小学校・中学校・高校で大気環境に関する出前授業を行うなど、アウトリーチ活動にも積極的に参画している。