

大気中蛍光性バイオエアロゾル粒子のオンライン計測

Online detection of atmospheric fluorescent biological aerosol particles

金谷 有剛*・竹谷 文一・宮川 拓真

Yugo KANAYA, Fumikazu TAKETANI and Takuma MIYAKAWA

国立研究開発法人 海洋研究開発機構 地球環境観測研究開発センター
Research and Development Center for Global Change,
Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology (JAMSTEC)

摘 要

大気中の生物由来一次粒子は「バイオエアロゾル」とも呼ばれ、有機エアロゾルのうちの未把握部分への寄与や、健康・気候気象への影響の観点でも注目されるが、存在量や動態に関する理解は非常に乏しい。その一因として、定量性に優れた測定手法が確立していないことが挙げられる。そうした中でも、生物由来粒子に含まれる物質をターゲットにした「自家蛍光測定法」は、個別粒子の自動連続・迅速測定が可能であるため有力な計測手法の一つとなりつつある。本稿ではその計測原理に触れ、我々や他グループが開発した機器等を概観する。バイオエアロゾル判定条件の吟味や、他の大気中蛍光性粒子との峻別はこの手法の大きな課題であるが、その克服を目指して我々が取り組んでいる、DNA 染色蛍光法との比較検証等に関する最近の成果について述べる。また、都市、越境汚染、外洋性大気での計測例について紹介する。特に、蛍光性バイオエアロゾル粒子の個数濃度レベルや割合について、環境ごとの初期結果を示すとともに、黄砂時のみならず、越境汚染空気塊自体や森林火災ブルームにも高濃度で存在することなど、得られた新知見についても述べる。

キーワード：有機エアロゾル，蛍光特性，大気－生態系物質循環，海洋大気，測定法比較

Key words：organic aerosols, fluorescence property, atmosphere－biosphere interactions, marine atmosphere, measurement method comparison

1. はじめに

生物界から大気へ直接放出される粒子は、生物由来一次粒子 (Primary biological aerosol particles, PBAPs) または「バイオエアロゾル」とも呼ばれる。たとえば、バクテリアなどの生物体そのもの (生死を問わず) やその破片、花粉や胞子、排泄物や滲出物等の粒子が該当する。大気中をエアロゾル粒子としてある程度の時間浮遊するためには、粒子サイズは $10\ \mu\text{m}$ 程度以下に限定されるが、図 1 に示すように、数桁の粒径範囲にわたり、花粉・胞子などの大粒子から、バクテリアやウイルス、タンパク質粒子などのナノ粒子まで、様々なタイプのバイオエアロゾルが大気中に存在すると考えられている (Fröhlich-Nowoisky *et al.*, 2016)。発生源としては植生や土壌を含む陸域が主と考えられるが、海洋表層の生物活動も挙げられる。全球スケールでの総発生源量は年間 $10\text{--}1,000\ \text{Tg}$ と見積もられている

(Després *et al.*, 2012)。その不確かさは 2 桁にも上り、上限値は砂漠等からの土壌ダストや波飛沫などによる海塩粒子の発生量にも匹敵する。

地球環境におけるバイオエアロゾルの動態を研究する科学的意義としては、陸・海の生態系から大気圏にまたがる有機物質の循環や収支の観点で、フラックス及び大気中濃度に関する「量」的な寄与を明らかにすること、地球システムの何らかの機能に及ぼす「質」的な影響を解明することにあるといえよう。まず「量」の面については、大気中の有機エアロゾル全体のうち分子的に未同定な割合は通常 8 割にも上るとされ、少なくともその一部にバイオエアロゾルが寄与しているとの観点で注目される。サイズが $1\ \mu\text{m}$ 超の粒子に限ると、バイオエアロゾルの割合は、都市・郊外域の大気中では 30%、アマゾンの熱帯雨林では 80% にも上ることが報告されている (Huffman *et al.*, 2013; Pöschl *et al.*, 2010)。国内では、北関東郊外における PM2.5 中の有機物に対

受付：2019 年 1 月 28 日，受理：2019 年 4 月 11 日

* 〒 236-0001 神奈川県横浜市金沢区昭和町 3173-25, E-mail : yugo@jamstec.go.jp

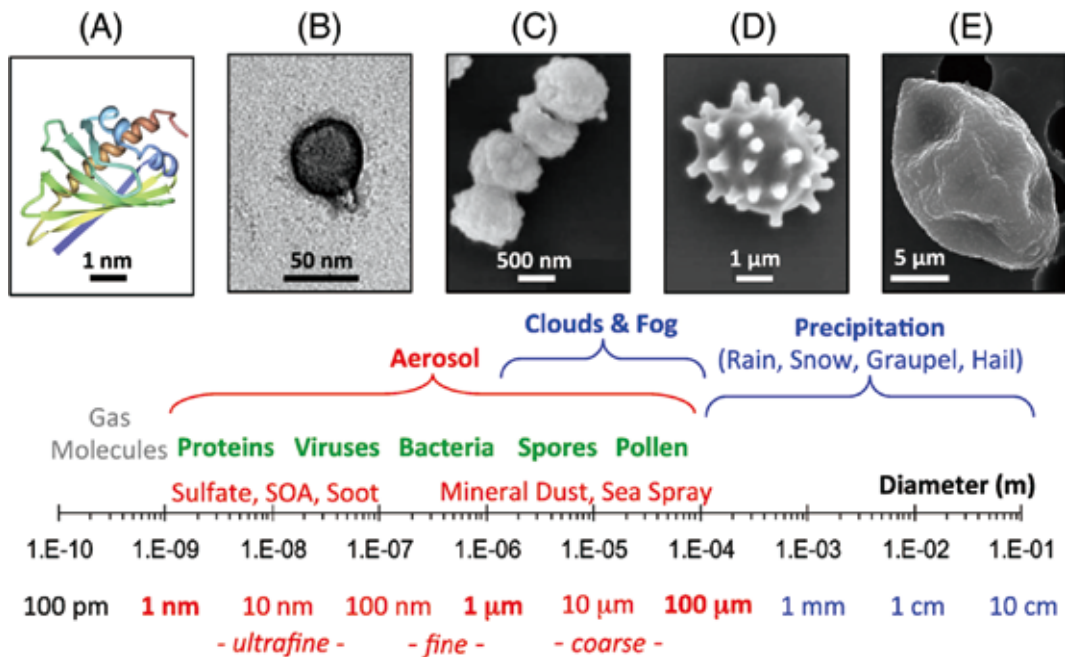


図1 大気バイオエアロゾルの代表的な粒子例と粒径サイズ範囲。(A)タンパク質, (B)ウイルス, (C)バクテリア, (D)胞子, (E)花粉。(出典: Fröhlich-Nowoisky *et al.* (2016))

する発生源解析で、春から秋にバイオエアロゾルの寄与が2~5割に上ると報告されている(熊谷ほか, 2017)。「質」の面では健康・気候/気象とのつながりが注目される。大人が呼吸によって一日に体内に取り込むバイオエアロゾル由来のDNA量は0.1-1 μgにも上るとされ、疾病・疾患やアレルギーなどを引き起こす原因となる。屋外だけでなく、病院・生活空間の室内大気や、薬剤製造クリーンルームでの動態把握・管理も重要である。バイオエアロゾルの一部は比較的高温で氷晶核を形成し(例えばTobo *et al.*, 2013; Hara *et al.*, 2016)、雲降水系に影響する。身近な降雨・降雪などの気象現象への作用に加え、数値モデルで未だ再現することが難しい混合相雲(氷と水滴状の粒が混ざった雲)の維持メカニズム、低層雲による放射収支影響など、気候変動科学の基礎にも深く関わっていることが指摘されている。また、放射性セシウムの担体としてもバイオエアロゾルの陸面からの再飛散が重要となる可能性も指摘されている(Kinase *et al.*, 2018)。以上のように、身近な気象・健康問題から、気候変動など地球規模の巨視的な現象までに対し、バイオエアロゾルが生物・化学・物理プロセスを介して何らかのかかわりを持っているのか、そのメカニズムを探求し系統的な知識体系を構築することが大きな目標となっている。同時に、健康や気候変動は社会的に重要な課題であり、関連する自然科学的な知見には高いニーズがある。

しかしながら、バイオエアロゾルの環境動態に関する知見は現在でも断片的であり、十分な精度で数値モデル化できるレベルには達していない。その一

因として、量及び質を評価するのに適切な計測手法が未発達であることが挙げられる。測定には生物学的な手法(たとえばMaki *et al.*, 2017)等、様々なアプローチがあるが、本稿ではオンライン計測が可能であり個別粒子に関する大量のデータを自動連続で収集できる蛍光法(あるいは自家蛍光法; 染色試薬を用いる方法と区別した呼称)に注目し、その測定原理を紹介するとともに、近年の観測実例を示す。なお本稿では、蛍光性が何らかの波長帯で確認された粒子全体を「蛍光性粒子」(Fluorescent Aerosol Particles)と総称し、その一部で、バイオエアロゾルに期待される複数の波長帯での蛍光が確認された粒子を、「蛍光性バイオエアロゾル粒子」(Fluorescent Biological Aerosol Particles)と区別して称することとする。発生源の分布と大気中輸送、生態系環境や気候気象との相互作用等についても興味深いのが、その点は総説(Fröhlich-Nowoisky *et al.*, 2016)を参照されたい。

2. 蛍光法に基づくバイオエアロゾルの連続計測法と課題

蛍光法において、バイオエアロゾルを単一粒子ごとに識別しながら連続的に計測するのに適した「判定条件」については、後述のように議論の余地があるが、最善慣行として、生物に普遍的な共通物質である、トリプトファン(アミノ酸の一種)、ニコチンアミドアデニンジヌクレオチド(NADH)類(脱水素酵素の補酵素)、リボフラビン(生理活性物質)を指標とし、それらが持つ自家蛍光特性を利用した計測

法が有力となっている。図2には、これらの物質が示す蛍光特性を励起・蛍光マトリックスで示す。例えばトリプトファンは波長260-290 nm付近の紫外光で励起された場合、350-400 nm付近に蛍光を発する。NADH類、リボフラビンはそれぞれ300-370 nm, 350-500 nmの励起光で、400-500 nm, 500-570 nm付近に蛍光を発する。そこでバイオエアロゾル計測装置では、これらに適した励起波長光を照射し、該当する波長帯での蛍光を計測して、期待される蛍光が得られるかどうかを判定条件として用いる。一般的には、これらの波長帯がカバーでき

るように、離散的な1~3バンドでの蛍光計測を行う場合が多いが(バンド型)、一部の機材では、回折格子型の分光器と多素子検出器を用いて広い波長範囲にわたる蛍光を分光し数十チャンネルに分割して計測できるものもある(分光型)。研究機関や大学での開発品だけでなく、すでに市販されているものもある(表1)。測定原理としては、いずれの機器でも、個別粒子を蛍光測定チャンバーに導き、まず連続レーザー光の散乱によってチャンバー中央部への粒子の到来を確認し、その散乱信号をトリガーとして励起紫外パルス光を粒子に照射し、得られる蛍光

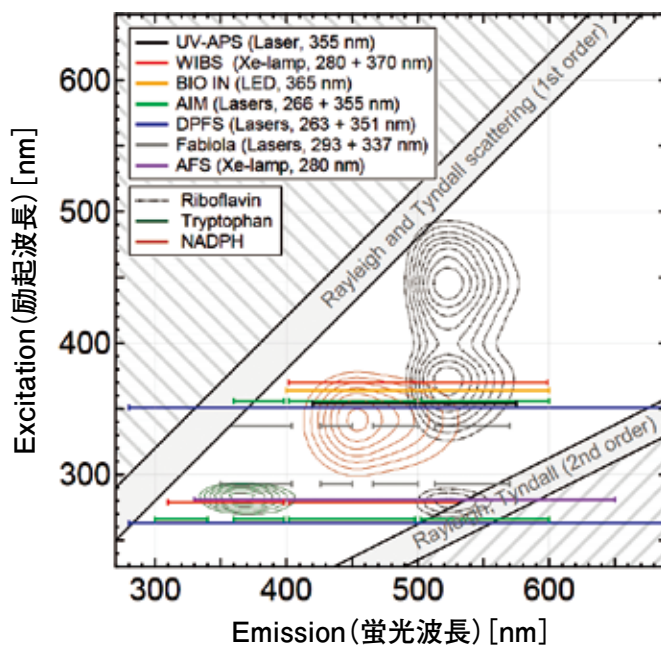


図2 バイオエアロゾルの蛍光計測で指標となるトリプトファン、NADPH、リボフラビンの励起・蛍光マトリックスと、各種装置での励起・蛍光計測波長範囲。(出典：Fröhlich-Nowoisky et al. (2016))

表1 自家蛍光法に基づく大気バイオエアロゾル計測装置。網掛けは本研究で使用した機材。

名称	Bio-LIF	PFS	UVAPS	WIBS-4	BIO-IN	Bio Trak ^{#2}	IMD-A
開発機関または販売者	JAMSTEC	Yale 大	TSI 社	Hertfordshire 大→DMT 社	Goethe 大	TSI 社	Azbil 社
種別	開発品	開発品	市販品	開発品→市販品	開発品	市販品	市販品
測定粒径範囲(μm)	0.5-10	1-10	0.5-15	0.5-20	3-10	0.5-25	0.5-10 超
励起波長(nm)	266 (or 263)	266	355	280, 370 (2 波長 ^{#1})	365	405	405
蛍光検出波長(nm)	【分光型】 300-600 (32ch) 【バンド型】 335-379, 420-500, 500-600 (3 バンド)	【分光型】 280-600 (32ch)	【バンド型】 430-580 (1 バンド)	【バンド型】 310-400, 420-650 (2 バンド ^{#1})	【バンド型】 430-580 (1 バンド)	【バンド型】 430-500, 500-600 (2 バンド)	【バンド型】 450-600 (1 バンド)

^{#1} 励起波長・蛍光バンドの組み合わせで3バンドの信号が取得できる。

^{#2} 後段にて粒子をバルク的に捕集可能。

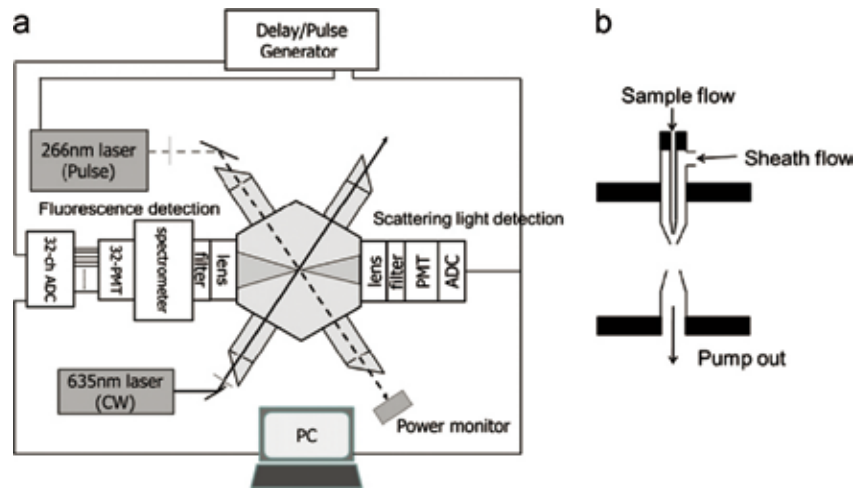


図3 JAMSTECが開発した、単一エアロゾル粒子の蛍光計測装置(分光型)。
a. 光軸断面と信号経路図, b. 粒子導入部。(Taketani *et al.*, 2013)

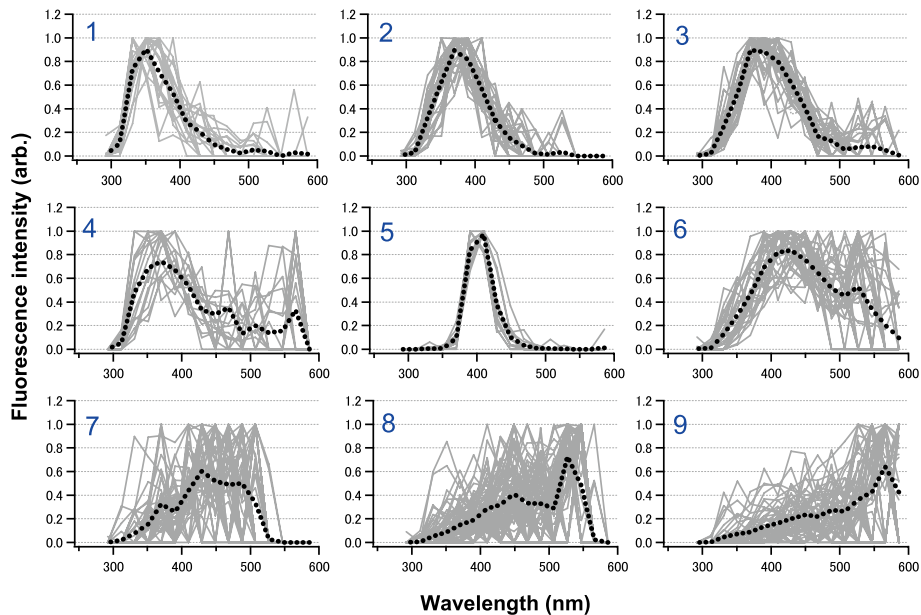


図4 横須賀にて計測された、単一粒子からの蛍光スペクトルのクラスター分析結果。
青数字は本文中のクラスター番号。(Taketani *et al.*, 2013)

を光検出器で計測する。図3aには、一例として我々が開発した分光型機器での光軸断面と信号経路を示す(Taketani *et al.*, 2013)。粒子の到来を検出する散乱信号の強度は、校正のうえで粒径の特定に用いることができる。その精度を高めるには、図3bに示すように、シーズガス流によって粒子を個別レベルで確実に検出部の中央に導入することが重要である。我々は、この独自開発機器のほか、市販品のなかでも、光強度の一次信号が記録でき、励起波長と蛍光波長の組み合わせにより3種のバンドでの蛍光計測ができるWIBS-4(Wideband Integrated Bioaerosol Sensor Version 4)を活用してきた。WIBS-4では、光散乱の非等方性を計測することで、粒子の非球形性に関する形状パラメータ(Asymmetric Factor)を記録できる利点もある。

大気中粒子には、バイオエアロゾル以外にも蛍光を発する成分が存在し、計測の干渉となりうる。たとえば多環芳香族炭化水素や、フミン酸とその類似物質等は環境中の代表的な蛍光性物質である。我々が開発した分光型の装置を用いて大気中粒子の蛍光スペクトルを計測し、334のスペクトルをクラスター解析した結果を見ると(図4)、実に多様な蛍光特性を持つ粒子が実大気中に存在することがわかる(Taketani *et al.*, 2013)。既知粒子の蛍光特性との比較や過去の知見をもとに、クラスター2, 3, 5は芳香族性物質, 6はフミン様物質, クラスター1, 4, 7-9はバイオエアロゾルなどと分類できたものの、確定的な診断は難しい。バンド型機器の場合、こうした詳細なスペクトル特性の情報は得られないため、バイオエアロゾルの判定は更に困難となる。特

に、表1に示した1バンドのみで蛍光計測するタイプの機器では情報が限られる。そのため、森林性大気など、局所的なバイオエアロゾル発生源の影響が確実に卓越し、干渉となりうる他の粒子の影響が大きい環境を選んで計測がなされる場合も多い。

このような弱点を補うためには、より確実に判定することができるDNA染色蛍光法などの手法を併用し、蛍光特性からのバイオエアロゾルの確定的な判定基準を明確にしていくことが一つの戦略となる。DNA染色蛍光法は、蛍光顕微鏡観察などで長く実績があるものであり、オンライン自動計測は難しいものの、原理的にはDNAを保有する粒子であればほぼ見落としなく計測することができる。我々は、細胞生物学などで広く普及している蛍光色素であるDAPI(4',6-diamidino-2-phenylindole)を用いた染色蛍光計測をもとに、オンライン自家蛍光法によるバイオエアロゾル計測を評価している。その結果についても次章で述べる。比較評価の基準としては、ゲノム解析も有効な手段である。従来、分離培養できない微生物割合は99%にも上るともいわれ、絶対数に関する議論の大きな壁となってきたが、この問題は、培養に依存せず網羅的な計測を行う「メタゲノム解析」によってクリアされつつある。遺伝子情報からバイオエアロゾルを種別に分類して計測できる点は魅力である。しかし、前処理などの手間も大きく、エアロゾル環境試料の連続計測への応用はこれからである。

以上をまとめると、自家蛍光法に基づいたバイオエアロゾル計測には、判定基準や標準化等の課題があり、個数濃度の計測値にはおよそ2~5倍程度の大きな不確かさが伴うと推察されるものの、計測の簡便さ、迅速性、自動連続性の面で圧倒的に他法より有利である。そのため、1章で述べたような、有機エアロゾルの未把握分への寄与割合の解明や、健康や気候への影響の解明へ向けた有効なアプローチとみなされている。

3. 計測の実例

この章では、上記の手法をもとに蛍光性エアロゾルを連続測定し、個数濃度レベルやその時空間分布と変動等を解析した結果や、バイオエアロゾル判定法を評価した結果について示す。東京都心での都市大気計測、長崎県・福江島での越境汚染性大気計測、船舶による海洋性大気計測の結果について紹介する。

3.1 東京での計測

2013年2月28日~3月10日、東京都目黒区駒場にて、我々が独自に開発した、バンド型機器(2章及び表1参照)を用いて、大気中の蛍光粒子を計測した。3バンドのうち有意な信号強度(ここでは粒

子が存在しない場合の信号ゆらぎの3倍(3σ)を超えた)が得られたバンド番号をもとに、タイプをFL1, FL2, FL3, FL12, FL23, FL13, FL123と分類した。さらに、FL123については、チャンネル1, 3の強度比が1以上のものをFL123hr, 1未満のものをFL123lrと区別し、計8種に分類した(FL123lrが支配的)。主因子分析に基づいて、分類された蛍光粒子タイプ間の共変関係を探るとともに、同時に計測されたCO(一酸化炭素ガス), NO_x(窒素酸化物ガス), EC(元素状炭素エアロゾル粒子), エアロゾル水溶性イオン成分の濃度との相関から起源を探った(Miyakawa *et al.*, 2015)。

図5aには、解析で得られた主な4因子のうち、第2, 第3因子への寄与が大きかったFL1+FL13, FL12+FL123hrの個数濃度の時間変動を示す。これらは合わせて39%の変動を説明した因子であり、CO, NO_x, ECとの強い正相関から、燃焼起源の粒子、特にPAHを含有する粒子であると解釈した。つまりこれらは蛍光性ではあっても、バイオエアロゾルではないものと解釈した。一方、図5bには、44%の変動を説明した第1因子への寄与が大きかったFL3, FL2+FL23+FL123lrの個数濃度変動を示す。この量は、ミー散乱ライダーでの偏光解消度の解析から得られた非球形粒子(黄砂ダスト等)に由来する量(より具体的には非球形粒子によるエアロゾル光学的厚さのうち地表付近(高度0.12-1 km)の値)や、土壌ダストのトレーサとして有効な、マグネシウムとカルシウム濃度の和とよく相関した。このことから、土壌起源の有機物、特に土壌ダスト粒子に付着した細菌等が検出された可能性が高いと考えた。気象場の情報を用いた後方流跡線解析によると、顕著な濃度増大がみられた3/7-9及び3/10の気塊は、ゴビ砂漠及び関東北部でのダスト発生の影響を受けており、計測された蛍光性バイオエアロゾルもこれらの地域に由来しているものと考えた。

本蛍光測定法は「非破壊方式」であり、装置の後段に別の粒子計測器を配置すると、同一粒子の組成を多角的に分析して、内部混合状態を知ることができる。我々は、レーザー誘起白熱光によるブラックカーボン計測装置を後段に直列的に設置して、上述のバンド型蛍光機器で測定された蛍光性バイオエアロゾルとの内部混合状態を探る計測を行った(Taketani *et al.*, 2015)。2012年10月26~29日に行った同地点(駒場)での測定では、0.4 μm 以上のサイズを持つ43,881個の粒子のうち、蛍光性の粒子(FL)は14.2%, ブラックカーボン(BC)を含む粒子は2.3%, 両者を含む粒子(MIX)は0.3%であった。FL型, MIX型いずれの粒子においても、3バンド全てで有意な蛍光信号を計測した蛍光性バイオエアロゾルがそれぞれ3%, 2%含まれ、間違いなく、それらがブラックカーボンと内部混合している粒子

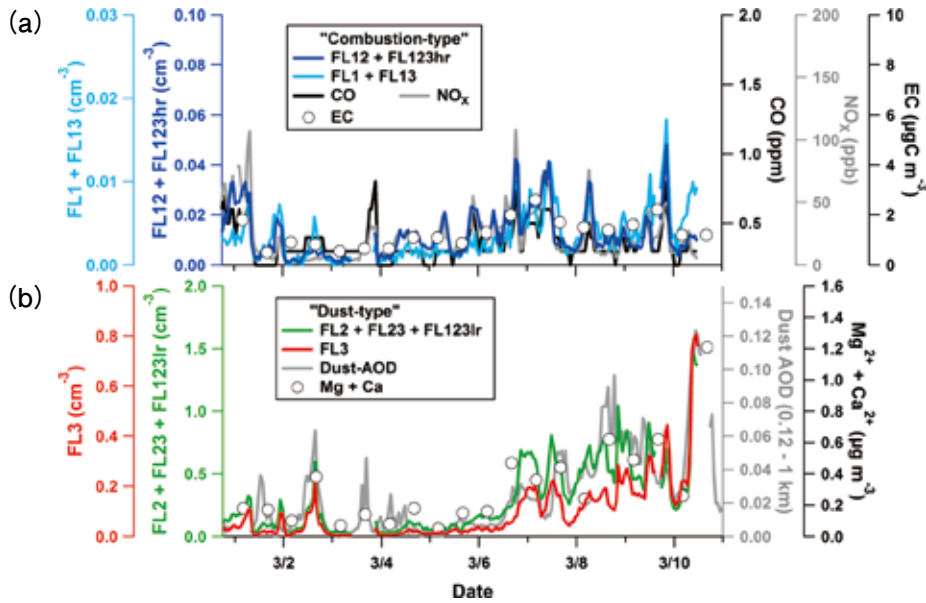


図5 東京都目黒区駒場にて測定された各種蛍光性エアロゾル粒子の個数濃度変動。変動因子ごとにまとめて示す。a：因子2および3，b：因子1。同時に計測された各種トレーサの濃度変動も併せて示す。(Miyakawa *et al.*, 2015)

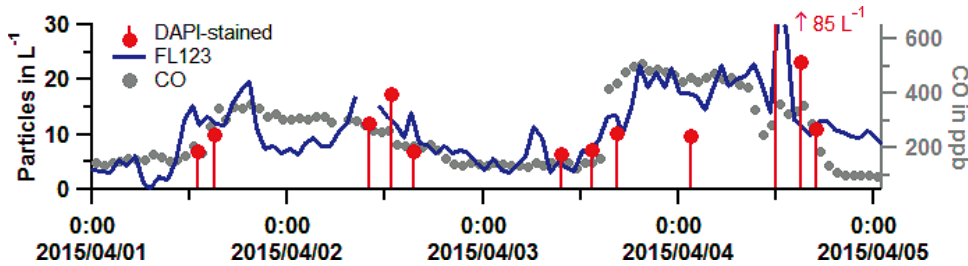


図6 長崎県・福江島にて計測された、蛍光性バイオエアロゾル粒子の個数濃度(青)とDNA染色蛍光法に基づく個数濃度(赤)の時間変動。越境汚染大気の特徴である一酸化炭素(CO)の濃度変動も併せて示す。

が大気中に存在していることが確認された。蛍光特性のパターンやサイズ分布はFL型とMIX型で似通っており、ブラックカーボン粒子と蛍光性バイオエアロゾル粒子の内部混合粒子はランダムな凝集によって形成したものであると考察された。バイオエアロゾルと大気汚染粒子の混合はアレルギー性の増悪をもたらす可能性も指摘されており、単一粒子レベルでの混合状態の計測も意義深い。

3.2 福江島での越境汚染大気計測

2011年9～12月及び2015年3～4月には、アジア大陸から輸送されてくる越境汚染大気での計測を意図して、長崎県福江島において計測を行った。その際の装置にはWIBS-4を用いた。WIBS-4は、励起光との組み合わせで3バンドの蛍光信号を計測するものであり(表1脚注)、3バンドの波長帯等については上述の開発機器の場合とは異なるが、同様に、3バンド全てで蛍光が検出された粒子を蛍光性バイオエアロゾル粒子とみなした。2011年のケースでは、微小(0.8-2.5 μm)及び粗大(2.5 μm 超)粒子をそれぞれ1,800万個、180万個以上検出したうち、蛍光性粒子及び蛍光性バイオ粒子の割合は、微小で

は21%と3%、粗大では48%と16%であった。大陸からの越境輸送が確認された日には、微小粒子での割合が51%、5%へ増大した。2015年の観測期間中には、ブラックカーボン(BC)や一酸化炭素(CO)といった大陸での燃料燃焼起源のトレーサとなる物質濃度の上昇が伴った越境汚染事例が数回観測され、同時に蛍光性粒子の個数濃度も増加した(図6)。このことは2011年の状況と整合的であった。これまで、黄砂などがバイオエアロゾルのキャリアーとして重要であることが示されてきた(たとえば Iwasaka *et al.*, 2009; Murata and Zhang, 2016)が、本研究の結果からは、必ずしも黄砂だけでなく、バイオエアロゾルが汚染空気塊とともに越境輸送されることを示している。

2015年の観測ではさらに、オフライン型のDNA染色蛍光法によって確度の高いバイオエアロゾル計測も間欠的に行い、自家蛍光法による計測値の比較検証を行った。その結果、個数濃度レベルと変動の面で比較的よい一致が確認された(図6)。このような独立した手法の相互比較から、3バンドでの同時蛍光検出が、バイオエアロゾルの判定基準として妥

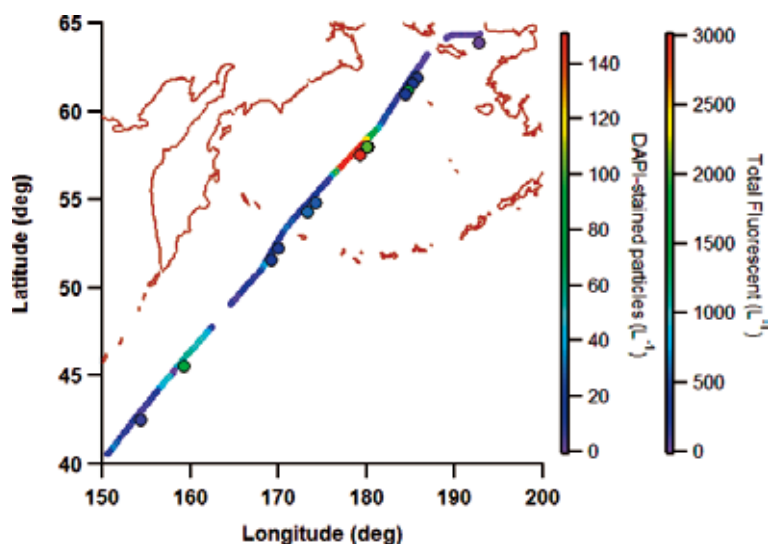


図7 海洋地球研究船「みらい」のMR16-06航海期間中、2016年9月24日～10月2日における航路上の蛍光性エアロゾル粒子(WIBS-4による)及びDNA染色蛍光計測での個数濃度。

当であることがわかった。

3.3 海上での計測

我々は、上述の WIBS-4 を海洋研究開発機構の海洋地球研究船「みらい」に搭載して、外洋大気中の蛍光性バイオエアロゾル計測も幅広く実施してきた。図7には、2016年9～10月のMR16-06航海中、北極から日本への復路において計測された蛍光性粒子の個数濃度を、DNA染色蛍光法で測定した蛍光性バイオエアロゾルの個数濃度結果と合わせて示す。9月24日までは、北極海と同様に低濃度(蛍光性バイオエアロゾルで1個/L程度)で推移した。9月25～26日及び29～30日には、シベリア森林火災からのプルームが、遠くベーリング海及び西部北太平洋へ輸送され、BCの濃度上昇を伴う形で船上で検出された。その際に、蛍光性バイオエアロゾル濃度が200個/Lにまで急上昇した。その濃度レベルや変動は、オフライン型の染色蛍光法で計測された値とよく一致し、3バンド全てでの蛍光検出が、バイオエアロゾル判定の適切な条件であることが再度確かめられた。また、森林火災に伴って、バイオエアロゾルが多く大気中へ放出されることを初めて明らかにした。その実体については、葉などの破片なのか、高温燃焼に伴って巻き上げられた土壌細菌類等なのかなどは解明されておらず、今後の解明が待たれる。一方、南大洋やインド洋など、他の海域で検証した結果では、自家蛍光法による蛍光性バイオエアロゾル個数濃度がDNA染色法と比べ過小となる傾向があり、判定基準に関して全球的な確証が得られたとはいえない段階にある。両法において可測粒径範囲の下限は0.5 μm程度と近いものの、必ずしも十分に一致していないことに起因して、例えば計測下限サイズ付近のバイオエアロゾル粒子が卓越する場合には差異が大きくなる可能性もあるた

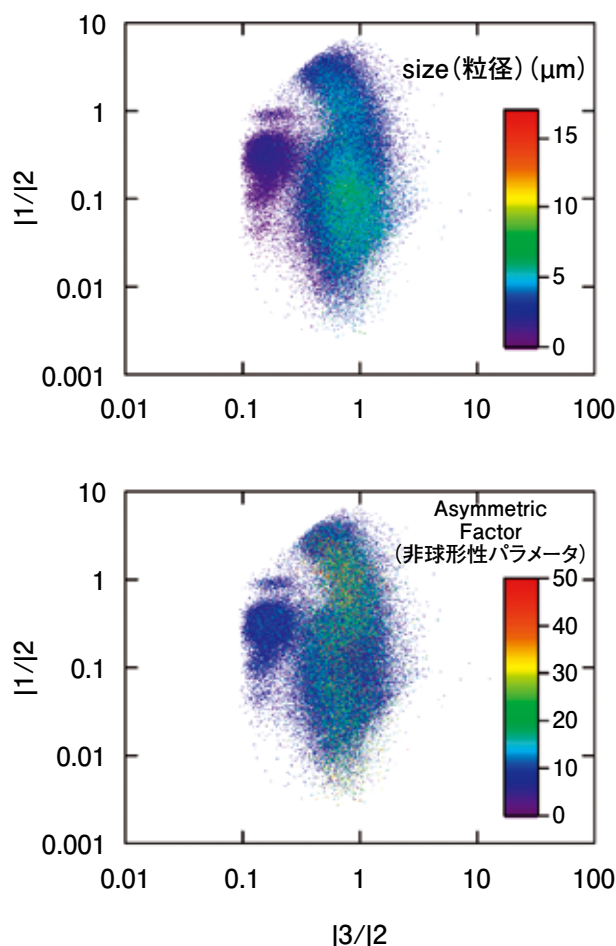


図8 MR11-05航海において WIBS-4 にて計測された蛍光性バイオエアロゾルについて、個別粒子の3バンドでの蛍光強度比($I_{1/2}$, $I_{3/2}$)をプロットしたもの。上図、下図での色はそれぞれ粒径、非球形性パラメータを表す。

め、さらなるキャラクター化が求められる。

2011年夏季に西部北太平洋で行われたMR11-05航海では、WIBS-4での計測からの蛍光性バイオエアロゾル粒子について、個別粒子のバンド毎蛍光強度比(I1/I2, I3/I2)を解析した(図8)。強度比は広い範囲に分布したが、I3/I2比が小さい(0.1-0.2)群と大きい(1に近い)群に区別された。比が小さい粒子群には粒径が小さい特徴も見られ、解析の結果、船の排煙由来の粒子と考えられた。(なお、上記のMR16-06航海の解析においては、風向等により自船の排煙の影響を受けたデータは排除している。)散乱光のパターンから推測される粒子の非球形性パラメータ(Asymmetric Factor, 値が大きいほど非球形性が高い)についても、特徴をもった分布をしている(図8)。このように、蛍光が有意に計測された否かだけでなく、蛍光強度比や粒径、非球形性パラメータについても解析に加えることで、より確定的な判定基準作りや、バイオエアロゾルのさらなる分類、発生源の解析、地球システムでの役割(健康・気象/気候面)の理解向上が達成できると考えられる。

4. まとめと今後の発展性

自家蛍光法に基づいた大気中バイオエアロゾルの計測は、自動連続性、迅速性において優れている。しかしながら他の蛍光性成分の干渉などの課題があり、DNA染色蛍光法などとの比較検証に基づいた担保を取ることが必要である。本稿では、計測原理から、このような検証の実例、都市型・越境汚染・海洋性大気などの多様な環境での計測例と解析までを述べた。今後、森林性大気なども加え、計測データを揃えていき、濃度レベル自体や、濃度変動を支配する環境因子、発生源等を明らかにしていくことが重要である。個別粒子の蛍光特性や粒径、非球形性などの情報は、粒子のさらなる分類や起源解明を可能にする。また、より確かなバイオエアロゾル計数が可能になると、氷晶核形成などを介した雲・放射場・気象気候への結びつきの理解が高まることや、健康影響面で留意すべき粒子タイプの識別などに関して鍵となる情報が得られることも期待される。

バイオエアロゾルは成層圏や大気圏外、果てには宇宙にも存在するのか。生命の起源とのつながりはあるのか。こうした根源的な問いにも応えられる計測技術の発展も望まれる。

謝 辞

本研究は、文部科学省/JSPSの科研費26281018, 18H04143, JST先端計測分析技術・機器開発プログラム機器開発タイプ課題「実時間型エアロゾル多

成分複合分析計の開発(代表者:竹川暢之(首都大学東京教授)」によってサポートされました。

引用文献

- Després, V. R., Huffman, J. A., Burrows, S. M., Hoose, C., Safatov, A. S., Buryak, G., Fröhlich-Nowoisky, J., Elbert, W., Andreae, M. O. and Pöschl & Ruprecht Jaenicke, U. (2012) Primary biological aerosol particles in the atmosphere: a review. *Tellus B*, 64. <https://doi.org/10.3402/tellusb.v64i0.15598>
- Fröhlich-Nowoisky, J., Kampf, C. J., Weber, B., Huffman, J. A., Pöhlker, C., Andreae, M. O., Lang-Yona, N., Burrows, S. M., Gunthe, S. S., Elbert, W., Su, H., Hoor, P., Thines, E., Hoffmann, T., Després, V. R. and Pöschl U. (2016) Bioaerosols in the Earth system: Climate, health, and ecosystem interactions. *Atmospheric Research*, 182, 346-376. <https://doi.org/10.1016/j.atmosres.2016.07.018>
- Hara, K., Maki, T., Kakikawa, M., Kobayashi, F. and Matsuki, A. (2016) Effects of different temperature treatments on biological ice nuclei in snow samples. *Atmospheric Environment*, 140, 415-419.
- Huffman, J. A., Prenni, A. J., DeMott, P. J., Pöhlker, C., Mason, R. H., Robinson, N. H., ... and Pöschl, U. (2013) High concentrations of biological aerosol particles and ice nuclei during and after rain. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13, 6151-6164. <http://dx.doi.org/10.5194/acp-13-6151-2013>
- Iwasaka, K., Shi, G.-Y., Yamada, M., Kobayashi, F., Kakikawa, M., Maki, T., Naganuma, T., Chen, B., Tobo, Y. and Hong C. S. (2009) Mixture of Kosa (Asian Dust) and bioaerosols detected in the atmosphere over the Kosa particles source regions with balloon-borne measurements: possibility of long-range transport. *Air Quality, Atmosphere and Health*, 2, 29-38. <https://doi.org/10.1007/s11869-009-0031-5>
- Kinase, T., Kita, K., Igarashi, Y., Adachi, K., Ninomiya, K., Shinohara, A., Okochi, H., Ogata, H., Ishizuka, M., Toyoda, S., Yamada, K., Yoshida, N., Zaizen, Y., Mikami, M., Demizu H. and Onda Y. (2018) The seasonal variations of atmospheric ^{134,137}Cs activity and possible host particles for their resuspension in the contaminated areas of Tsushima and Yamakiya, Fukushima, Japan. *Progress in Earth and Planetary Science*, 5, 12. <https://doi.org/10.1186/s40645-018-0171-z>
- 熊谷貴美代・田子博・齊藤由倫・一条美和子・飯島明宏(2017)有機マーカーに着目したPM2.5の動態把握と正值行列因子分解モデルによる発生

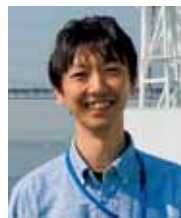
源寄与評価(5-1403), 環境省環境研究総合推進費終了研究等成果報告書. Retrieved from https://www.erca.go.jp/suishinhi/seika/pdf/seika_1_h29/5-1403_2.pdf (2019年1月17日確認)

- Maki, T., Hara, K., Iwata, A., Lee, K. C., Kawai, K., Kai, K., Kobayashi, F., Pointing, S. B., Archer, S., Hasegawa, H. and Iwasaka, Y. (2017) Variations in airborne bacterial communities at high altitudes over the Noto Peninsula (Japan) in response to Asian dust events. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 17, 11877-11897. <https://doi.org/10.5194/acp-17-11877-2017>
- Miyakawa, T., Kanaya, Y., Taketani, F., Tabaru, M., Sugimoto, N., Ozawa, Y. and Takegawa N. (2015) Ground-based measurement of fluorescent aerosol particles in Tokyo in the spring of 2013: Potential Impacts of non-biological materials on autofluorescence measurements of airborne particles. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 120, 1171-1185. <http://doi.org/10.1002/2014JD022189>
- Murata, K. and Zhang, D. (2016) Concentration of bacterial aerosols in response to synoptic weather and land-sea breeze at a seaside site downwind of the Asian continent. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 121, 11636-11647. <http://doi.org/10.1002/2016JD025028>.
- Pöschl, U., Martin, S. T., Sinha, B., Chen, Q., Gunthe, S. S., Huffman, J. A., ... and Andreae M. O. (2010) Rainforest aerosols as biogenic nuclei of clouds and precipitation in the Amazon. *Science*, 329, 1513-1516. <http://dx.doi.org/10.1126/science.1191056>
- Taketani, F., Kanaya, Y., Nakamura, T., Takeda, N., Koizumi, K., Hirayama, N., Miyakawa, T., Pan, X., Moteki, N. and Takegawa N. (2015) Analysis of the mixing State of airborne particles using a tandem combination of laser-induced fluorescence and incandescence techniques. *Journal of Aerosol Science*, 87, 102-110.
- Taketani, F., Kanaya, Y., Nakamura, T., Koizumi, K., Moteki, N. and Takegawa N. (2013) Measurement of fluorescence spectra from atmospheric single submicron particle using laser-induced fluorescence technique. *Journal of Aerosol Science*, 58, 1-8.
- Tobo, Y., Prenni, A. J., DeMott, P. J., Huffman, J. A., McCluskey, C. S., Tian, G., Pöhlker, C., Pöschl, U. and Kreidenweis S. M. (2013) Biological aerosol particles as a key determinant of ice nuclei populations in a forest ecosystem. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 118, 10100-10110.



金谷 有剛/Yugo KANAYA

海洋研究開発機構 地球環境部門 地球表層システム研究センター・センター長代理。2000年東京大学大学院理学系研究科化学専攻修了, 博士(理学)。同年海洋科学技術センター(現・海洋研究開発機構)入所。大気化学・分光計測を専門とし, 大気中の洗剤「OHラジカル」の直接計測やドイツ・ユーリッヒ研究所での相互比較を手掛けた。現場・衛星観測・モデリングを複合したアジア広域大気汚染研究でも原著論文を多数発表。ガス・エアロゾルに加え, 最近では海洋を含む地球環境物質科学を広く展開。国連気候変動に関する政府間パネル(IPCC)第6次評価報告書にてレビューエディターを務める。



竹谷 文一/Fumikazu TAKETANI

海洋研究開発機構 地球環境部門 地球表層システム研究センター・主任研究員。2006年名古屋大学理学研究科素粒子宇宙物理学専攻修了。博士(理学)。同年, 海洋研究開発機構に着任後, レーザー分光を利用した室内実験による未知対流圏大気化学反応の解明, 東アジア域の広域大気汚染物質の陸上観測, 新規大気組成観測機器の開発に従事。近年は, 海洋地球研究船「みらい」を利用した大気組成現場観測を北極海・西部太平洋上などで実施し, ブラックカーボンや窒素化合物などが関わる大気-海洋物質循環研究を展開している。



宮川 拓真/Takuma MIYAKAWA

海洋研究開発機構 地球環境部門 地球表層システム研究センター・研究員。2008年東京大学大学院理学系研究科地球惑星科学専攻修了(理学博士), 約2年間の民間企業における環境計測機器の研究開発職に従事した後, 2010年東京大学先端科学技術研究センター・特任助教を経て, 2013年より現職。大気エアロゾル粒子の化学組成や微物理を明らかにするための質量分析やレーザー分光などに基づく計測手法の研究開発を行い, 特にエアロゾル粒子中の炭素性成分に関心をもち陸上及び海洋上での大気観測に取り組んでいる。

