

研究 成 果 報 告 書

(国立情報学研究所の民間助成研究成果概要データベース・登録原稿)

研究テーマ (和文)	その場観察単一粒子分光分析法の開発と越境エアロゾルのエイジング過程の定量化		
研究テーマ (英文)	Development of in-situ single particle spectroscopy and quantitative evaluation of atmospheric aging of transboundary aerosols		
研究期間	2020年 ~ 2022 年		研究機関名 金沢大学
研究代表者	氏名	(漢字)	玄 大雄
		(カタカナ)	ゲン マサオ
		(英文)	Masao Gen
	所属機関・職名		金沢大学 理工研究域 フロンティア工学系・助教
共同研究者 (1名をこえる場合は、別紙追加用紙へ)	氏名	(漢字)	松木 篤
		(カタカナ)	マツキ アツシ
		(英文)	Atsushi Matsuki
	所属機関・職名		金沢大学 環日本海域環境研究センター・准教授

概要 (600字~800字程度にまとめてください。)

【単一粒子分光分析法の開発】

反応セルを、セル本体部分には化学的に安定なテフロン材を用いて作製した。反応セルへのガスの導入には、供給・排出するための管(ガス入口、ガス出口)を左右に取り付け、顕微ラマン分光装置からの励起光をサンプル微粒子に入射するための石英窓を上部に付けた。これにより、微粒子をその場観察しながら反応中の微粒子のラマンスペクトルを計測できるようになった。さらに UV 照射光を導入するため、反応セルの下部にも石英窓を設置した。これにより、長時間の反応実験を静止した単一粒子をその場観察しながら反応中の化学組成をリアルタイムかつ大気圧下での定量が可能となった。

【カルボニル化合物の光化学酸化反応】

グリオキサールと硝酸イオンの光化学反応実験を行なった。硝酸イオンの光分解から OH ラジカルが生成し、OH ラジカルとグリオキサールの酸化反応が進行すると予想される。グリオキサールと硝酸との混合系水溶液から、微粒子を発生し、300 nm の UV 照射により酸化反応を開始した。反応中のグリオキサールの酸化生成物をラマンスペクトルから評価し、定量した。さらに反応速度論的に評価するため、独自のボックスモデルを構築、それぞれの反応経路の生成物への寄与を計算し、実験データの再現を試みた。雲粒中でのグリオキサールと OH ラジカル反応機構は良く理解されており、シュウ酸が主な生成物であることが分かっている。ところが、エアロゾル相での反応を再現した本研究では、シュウ酸ではなくギ酸が主成分であることが分かった。

この違いは、エアロゾル相でのグリオキサールの濃度が雲粒中での濃度に比べて数百倍高いため、生成物の分布が変化したためだと考えられる。これは雲粒とエアロゾル相での反応は、その反応系は同じでも、主要な生成物が異なる可能性を示した重要な例である。すなわち、雲粒を再現した実験系(バルク溶液反応)による反応実験からの反応速度定数の情報は、エアロゾル反応系に直接適用できないことを示している。

発表文献（この研究を発表した雑誌・図書について記入してください。）						
雑誌	論文課題	Production of Formate via Oxidation of Glyoxal Promoted by Particulate Nitrate Photolysis				
	著者名	R. Zhang, M. Gen, T.-M. Fu, C. K. Chan	雑誌名	Environmental Science & Technology		
	ページ	5711~5720	発行年	2 0 2 1	巻号	55
雑誌	論文課題	Nitrate Photolysis in Mixed Sucrose- Nitrate- Sulfate Particles at Different Relative Humidities				
	著者名	Z. Liang, R. Zhang, M. Gen, Y. Chu, C. K. Chan	雑誌名	The Journal of Physical Chemistry A		
	ページ	3739~3747	発行年	2 0 2 1	巻号	125
雑誌	論文課題	Nitrite/Nitrous Acid Generation from the Reaction of Nitrate and Fe(II) Promoted by Photolysis of Iron- Organic Complexes				
	著者名	M. Gen, R. Zhang, C. K. Chan	雑誌名	Environmental Science & Technology		
	ページ	15715~15723	発行年	2 0 2 1	巻号	55
雑誌	論文課題	Photochemical Reactions of Glyoxal during Particulate Ammonium Nitrate Photolysis: Brown Carbon Formation, Enhanced Glyoxal Decay, and Organic Phase Formation				
	著者名	R. Zhang, M. Gen, Z. Liang, Y. J. Li, C. K. Chan	雑誌名	Environmental Science & Technology		
	ページ	1605~1614	発行年	2 0 2 2	巻号	56
図書	書名					
	著者名					
	出版社		発行年		総ページ	

英文抄録（100語～200語程度にまとめてください。）

Particulate nitrate photolysis can produce oxidants (i.e., OH, NO₂, and NO₂⁻/HNO₂) in aqueous droplets and may play a potential role in increased atmospheric oxidative capacity. Here, we used glyoxal as a model precursor to examine the role of particulate nitrate photolysis in the formation of secondary organic aerosol from particle-phase oxidation of glyoxal by OH radicals. Particles containing sodium nitrate and glyoxal were irradiated at 300 nm. Interestingly, typical oxidation products of oxalic acid, glyoxylic acid, and higher-molecular-weight products reported in the literature were not found in the photooxidation process of glyoxal during nitrate photolysis in the particle phase. Instead, formic acid/formate production was found as the main oxidation product. At glyoxal concentration higher than 3 M, we found that the formic acid/formate production rate increases significantly with increasing glyoxal concentration. Such results suggest that oxidation of glyoxal at high concentrations by OH radicals produced from nitrate photolysis in aqueous particles may not contribute significantly to SOA formation since formic acid is a volatile species. The present study reveals a new insight into the production of formic acid/formate as well as a sink of glyoxal in the atmosphere, which may partially narrow the gap between model predictions and field measurements in both species.

共同研究者	氏名	(漢字)		
		(カタカナ)		
		(英文)	Shaojie Song	
	所属機関・職名		米国ハーバード大学・博士研究員	
	氏名	(漢字)		
		(カタカナ)		
		(英文)		
	所属機関・職名			
	氏名	(漢字)		
		(カタカナ)		
		(英文)		
	所属機関・職名			
	氏名	(漢字)		
		(カタカナ)		
		(英文)		
	所属機関・職名			
	氏名	(漢字)		
		(カタカナ)		
		(英文)		
	所属機関・職名			
	氏名	(漢字)		
		(カタカナ)		
		(英文)		
	所属機関・職名			
氏名	(漢字)			
	(カタカナ)			
	(英文)			
所属機関・職名				
氏名	(漢字)			
	(カタカナ)			
	(英文)			
所属機関・職名				