

Environment Research and Technology Development Fund

環境省環境研究総合推進費終了研究等成果報告書

地球温暖化に関わるブラックカーボン放射効果の総合的評価
(2-1403)

平成26年度～平成28年度

Comprehensive Estimates of Black Carbon Radiative Forcing Leading to Global Warming

東京大学
国土交通省気象庁気象研究所
国立研究開発法人国立環境研究所
国立研究開発法人海洋研究開発機構

平成29年5月

環境省
総合環境政策局総務課環境研究技術室
環境保健部環境安全課環境リスク評価室
地球環境局総務課研究調査室

地球温暖化に関わるブラックカーボン放射効果の総合的評価

(2-1403)

I. 成果の概要		
1. はじめに (研究背景等)	i
2. 研究開発目的	ii
3. 研究開発の方法	ii
4. 結果及び考察	iii
5. 本研究により得られた主な成果	ix
6. 研究成果の主な発表状況	x
7. 研究者略歴	xiii
II. 成果の詳細		
(1) BC観測とモデル検証 (東京大学)		
要旨	1
1. はじめに	2
2. 研究開発目的	3
3. 研究開発方法	3
4. 結果及び考察	10
5. 本研究により得られた成果	22
6. 国際共同研究等の状況	24
7. 研究成果の発表状況	25
8. 引用文献	30
(2) エアロゾル混合状態とグローバルモデルによる評価 (国土交通省気象庁気象研究所)		
要旨	31
1. はじめに	32
2. 研究開発目的	32
3. 研究開発方法	33
4. 結果及び考察	36
5. 本研究により得られた成果	44
6. 国際共同研究等の状況	44
7. 研究成果の発表状況	45
8. 引用文献	49
(3) エアロゾル粒径分布と化学組成 (国立研究開発法人国立環境研究所)		
1. 要旨	53
2. はじめに	53
3. 研究開発目的	53
4. 研究開発方法	54
5. 結果及び考察	56
6. 本研究により得られた成果	65
7. 国際共同研究等の状況	66
8. 研究成果の発表状況	66
9. 引用文献	68

(4) 広域エアロゾル観測と領域モデルによる評価 (国立研究開発法人海洋研究開発機構)	
要旨	70
1. はじめに	70
2. 研究開発目的	71
3. 研究開発方法	71
4. 結果及び考察	75
5. 本研究により得られた成果	89
6. 国際共同研究等の状況	90
7. 研究成果の発表状況	91
8. 引用文献	94
III. 英文Abstract	95

課題名 2-1403 地球温暖化に関わるブラックカーボン放射効果の総合的評価

課題代表者名 小池 真 (東京大学大学院理学系研究科)

研究実施期間 平成26～28年度

累計予算額 144,186千円(うち平成28年度:46,985千円)

本研究のキーワード エアロゾル、ブラックカーボン、大気大循環モデル、放射強制力、気候変動予測、越境大気汚染

研究体制

- (1)BC観測とモデル検証 (東京大学)
- (2)エアロゾル混合状態とグローバルモデルによる評価 (国土交通省気象庁気象研究所)
- (3)エアロゾル粒径分布と化学組成 (国立研究開発法人国立環境研究所)
- (4)広域エアロゾル観測と領域モデルによる評価 (国立研究開発法人海洋研究開発機構)

研究協力機関

東京大学、気象庁気象研究所、国立研究開発法人国立環境研究所、
国立研究開発法人海洋研究開発機構

研究概要

1. はじめに(研究背景等)

化石燃料やバイオマスの不完全燃焼に伴い放出される黒色の炭素性エアロゾルであるブラックカーボン(BC)は、大気中や雪氷中において太陽放射を吸収するため地球温暖化効果をもつ。BCは二酸化炭素とメタンに次いで3番目に大きな正の放射強制力をもつ(IPCC第5次報告書)。さらに大気加熱効果によりグローバルな水循環に影響をおよぼす。そのため、BCの放出源、放射特性、大気寿命の支配メカニズムの解明、観測データで検証された気候モデルを用いた温暖化効果とBC削減効果の解明は、温暖化緩和策の立案において重要である。

BCによる温暖化効果は、(1)大気中や雪氷中におけるBC質量濃度と、(2)BC単位質量濃度あたりの太陽放射吸収量(質量吸収断面積)の2つの物理量で決まる。そのためBCの気候影響評価では、これら2つの物理量を支配する素過程の計算手法を観測的知見にもとづいて精緻化し、気候モデルにおけるこれら2つの物理量の予測精度を高めることが本質的に重要である。物理量(1)の推定精度の向上には、BC発生源強度そのものの推定精度の向上を別とすると、大気からの降水によるBCの除去過程の理解と、その過程の数値モデルによる正確な表現が重要である。この大気からのBCの除去過程が、大気中のBC濃度や、発生源から遠方へのBC輸送量を支配するからである。しかしながら、気候モデルにおけるBCの鉛直輸送・湿性除去過程の表現では、BC含有粒子の降水除去メカニズムを大幅に簡略化せざるを得ず、その簡略化法に依存した大きな不確実性が残されている。現在までに、BCの降水除去メカニズムの詳細の観測的知見がないことが本質的な問題である。物理量(2)は、BCを含むエアロゾルの形態(形状・混合状態)に強く依存する。そのため、実大気中のBCの質量吸収断面積を正確に算出するためには、個々のBCを含むエアロゾルの形態の観測的解明と、精密な光学計算手法が必要である。

これら2つのプロセス、すなわちBCの降水による除去過程とBCの光吸収量に深くかかわるのが、BCとBC以外の無機・有機エアロゾル成分との混合状態である。吸湿性を持たない裸の形で排出されたBCは大気中で水溶性成分により被覆される(内部混合することにより吸湿性をもち、雲・降水過程により除去されやすくなる。さらにBCは他成分により被覆されることにより光吸収断面積が増加する(レンズ効果)。さらにBCの削減による放射強制力の変化は、BC以外の成分の削減割合とのバランスによって決まる。これらのことは、BCの放射強制力や削減効果の評価のためには、BC以外のエアロゾル成分を含めた総合的な評価が必要であることを示している。BCは大きな正の放射強制力を持つことから、BCの削減により単純にこの正の放射強制力を減少させることが可能であるとする誤解がある。しかし実際にはBC削減時にその発生源から同時に排出される他のエアロゾル成分(前駆気体)も同時に削減される。この結果、BC以外の太陽放射を散乱し、負の放射強制力をもつエアロゾルもある程度減少する。またBCの混合状態も変化し、BCの降水除去過程や光吸収量も変化する。これらの総合的な評価が必要となる。

以上のように、BCの地球温暖化効果の定量的理解とBC削減効果の評価を達成するためには、現行の気候モデルにおけるBCの降水除去過程と光吸収量の計算における本質的不確実要因を観測・実験・理論的研究に基づいて低減し、その新しい知見を取り入れた気候モデルによる再評価が重要である。

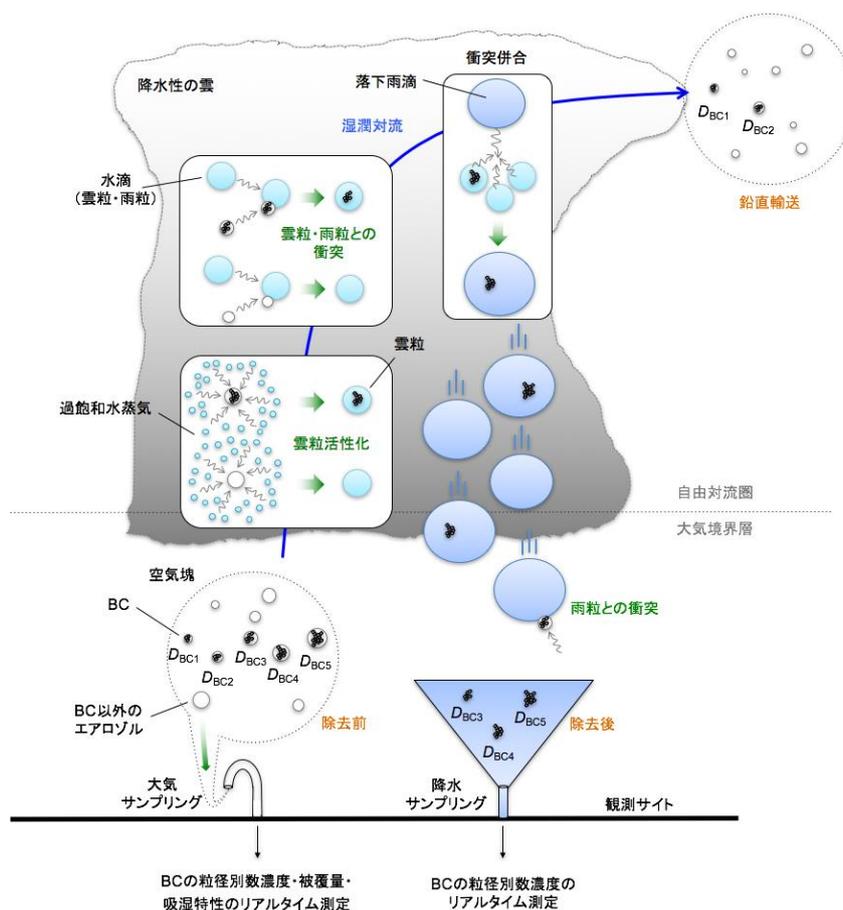
2. 研究開発目的

上記の背景を踏まえた本研究の目的は下記の4項目である。(1)大気中のBC質量濃度のうち、化石燃料・バイオ燃料起源の相対的寄与を観測的に解明する。(2)BCの大気寿命を支配する除去メカニズムを集中観測と長期観測に基づいて解明する。(3)BCの形状・混合状態を観測から明らかにし、さらに個々の複雑形状のBC含有粒子の光吸収特性を高精度で計算できる方法論を開発する。(4)これらの観測的・理論的知見を反映した数値モデル計算によりBC放射強制力とBC削減効果を評価する。

3. 研究開発の方法

(1)BC観測とモデル検証

サブテーマ1では、雲・降水過程におけるBC除去メカニズムを直接観測から同定するため、新たな観測方法論の開発を行った。この方法論は、非水溶性の固体であるBCの質量を粒子のトレーサーとして、どのBC粒径を持つBC含有粒子が優先的に湿性除去されるのかを検出するもので、実際の雲・降水システムの中で起こっているエアロゾル除去メカニズムを同定できる手法として世界初の試みである(図(1)-1)。



図(1)-1: BC含有粒子の除去メカニズムの支配要因を調べるための方法

この観測方法論を、H26年度H27年度にそれぞれ東京と沖縄における地上観測に適用した。このほか、実大気中のBCの混合状態の判別分析手法の開発、BCの被覆成分の吸湿性の観測手法の開発、降水・降雪試料中のBC粒径別数濃度の測定法の開発、複雑形状のBCの光学特性の高精度計算法の開発等も行った。さらに、BCの混合状態や他のエアロゾル成分の素過程を精緻化したモデルを開発し、そのモデルを用いた感度実験により、BC排出削減の温暖化抑制効果を評価する。

(2) エアロゾル混合状態とグローバルモデルによる評価

ブラックカーボン(BC)放射強制力の不確定要因である内部混合BCや他の散乱性・光吸収性エアロゾル粒子の形態や詳細な混合状態に関し、電子顕微鏡観測を用いて解析した。特に、BCを含むエアロゾルの分析に関し、その組成、混合状態、加熱特性、粘性など物理・化学特性を解明する手法の開発を行った。従来の気候モデル(グローバルモデル)が抱えるBCの気候影響評価に関する問題点を克服するために、BCの変質過程(混合状態の時間変化)、降水による除去過程、レンズ効果(光吸収の増大効果)を表現できるように、気象研究所地球システムモデルの改良を実施した。改良したモデルを用いて、全球規模のBCの放射効果を総合的に評価した。

(3) エアロゾル粒径分布と化学組成

平成26年度は、東京での集中観測に参加しエアロゾルの粒径分布や化学組成を測定した。平成26年7月25日から8月15日にかけて、東京大学本郷キャンパス理学部一号館において大気エアロゾルの連続観測を実施した。エアロゾルの観測には走査式モビリティパーティクルサイザー(Scanning Mobility Particle Sizer: SMPS, model 3034, TSI社)および四重極質量分析計搭載型エアロゾル質量分析計(Quadrupole Aerosol Mass Spectrometer: Q-AMS, エアロダイン社)を用い、それぞれエアロゾルの粒径分布と個数濃度、化学組成と化学組成別の粒形分布を計測した。SMPSとQ-AMSの設置場所は異なり、SMPSは理学部一号館の6階に、Q-AMSは12階の室内に設置した。

平成27年度は国立環境研究所沖縄辺戸岬大気・エアロゾル観測ステーションにおいて大気エアロゾルの連続観測を実施した。越境大気汚染などアジア大陸からの影響を受ける時期に観測をすることが適切と考えられるため、観測は平成28年2月、3月に行われた。エアロゾルの粒径分布観測にはワイドレンジパーティクルスペクトロメーター(Wide-range Particle Spectrometer: WPS, model 1094, MSP社)を用い、エアロゾルの化学組成分析にはQ-AMSを用いた。

平成28年度は長崎県五島列島福江島において、アジア大陸からの越境大気汚染が卓越する春季に観測を行い、有機エアロゾルを含む、越境輸送される粒子の化学組成や有機物の酸化について解析を行った。エアロゾルの観測には米国Aerodyne社製のAerosol Chemical Speciation Monitor(ACSM)を用い化学組成を計測した。

(4) 広域エアロゾル観測と領域モデルによる評価

アジア広域大気汚染の視点で、高い地域代表性をもつ長崎県・福江島(32.75° N, 128.68° E, 海拔75m)および台湾Lulin山(23.51° N, 120.92° E, 海拔2862m)において、ブラックカーボンモニターBCM3130(日本カノマックス、COSMOSとして東京大学にて開発された装置)を用いて、信頼度の高いブラックカーボン(BC)質量濃度の通年観測を行い、季節性や長期変動(福江では2009年以降、Lulinでは2013年以降)の解析を行った。濃度変動に影響を及ぼす気象場の変動や湿性除去速度の定量化に関する解析を行った。

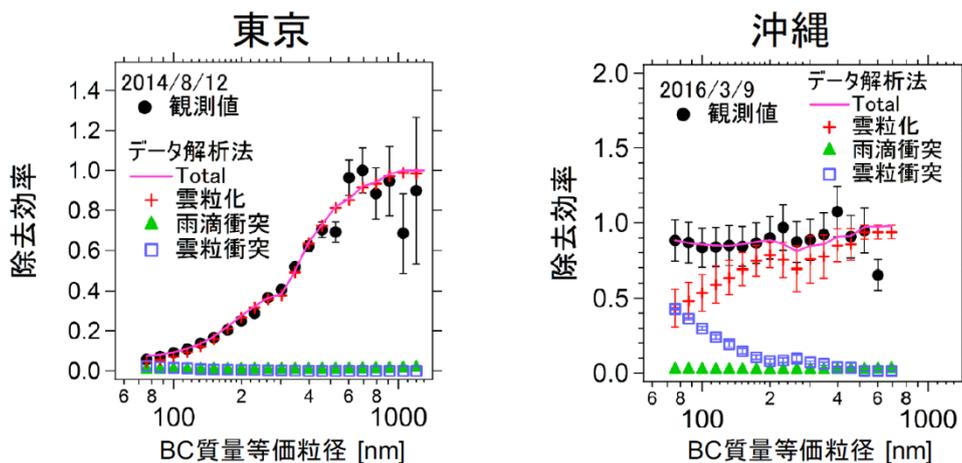
放射性炭素同位体比の分析と、トレーサーとしてのレボグルコサンの分析に基づき、炭素性エアロゾルに関する人為起源(化石燃料燃焼)と自然起源の発生源寄与を観測から推定する方法論を開発した。福江での集中観測実施に加え、東京都心でのサブテマ横断型観測にも参加し、炭素性エアロゾルの起源を明らかにした。

BCの大気中での一連のプロセスを素過程に基づいて計算できるATRASモジュールを実装したアジア領域スケールモデルを開発し、BC数濃度や粒径、個々の粒子の化学組成(混合状態)を表現し、BCの光吸収・大気加熱や大気中の寿命など、BCの気候影響評価において極めて重要な過程の直接的なモデル表現を可能とした。広域観測から得られる知見を元に、領域モデルにおける炭素性エアロゾルの表現を検証し、ブラックカーボンによる放射強制力見積もりや、PM2.5に関する輸送変動過程の理解を向上させるための解析を行った。

4. 結果及び考察

(1) BC観測とモデル検証

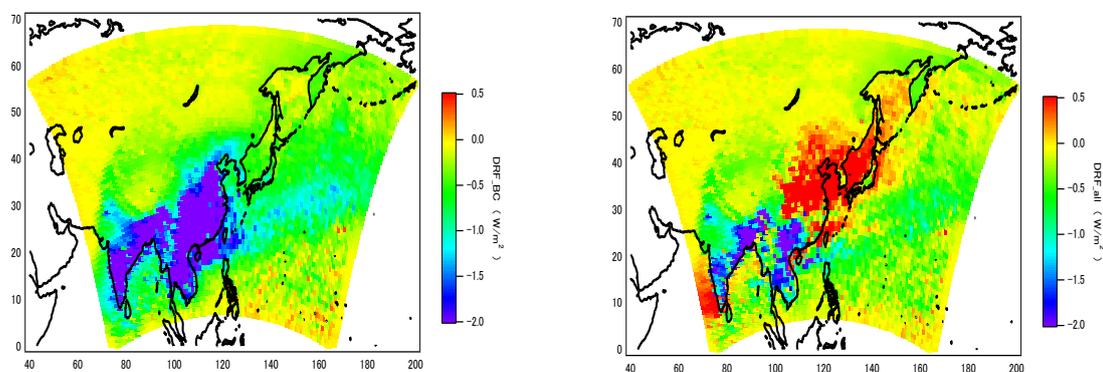
サブテマ1では、実際の降水イベントで観測されたBC湿性除去効率の粒径依存性と、雲パーセルモデルで計算されたBCの粒径別の水滴取り込み割合を比較することにより、その降水イベントで除去されたBC含有粒子が経験した各々の水滴取り込みメカニズムの寄与率を推定する方法論を新たに提唱した。この方法により初めて、湿潤対流におけるBCの湿性除去プロセスの詳細を観測から直接調べることが可能になった。この観測方法論を、H26年度H27年度にそれぞれ東京と沖縄で実施した地上連続観測に適用した。図(1)-2に、東京、沖縄それぞれにおける、ある典型的な一つの降水イベントにおける解析結果を示す。両者ともに観測された除去効率の粒径依存性を、3つの水滴取り込みメカニズムの寄与の和によってよく再現できていることがわかる。



図(1)-2: 東京、沖縄それぞれにおける典型的な降水イベントで観測されたBC除去効率の粒径依存性と、雲パセーセルモデルを用いたデータ解析から算出された各々の除去メカニズムの寄与割合

大気中のBC質量の大部分を占める粒径範囲におけるBC含有粒子の主要な水滴取り込みメカニズムは、場所や降水イベントに依存せず、雲粒活性化であることがわかった。さらに詳細なデータ解析によれば、BC含有粒子のシェルコア比が約1.1~1.2程度よりも小さい発生源近傍のBCでは、雲中の最大化飽和度や被覆成分に依存した様々な除去効率の値をとる一方、発生後ある程度エイジングが進み、シェルコア比の中央値が約1.1~1.2程度よりも大きい被覆量をもつBCでは、最大化飽和度や被覆成分に依存せず、無条件に除去されることが示された。本研究の結果から、気候モデルによるBCの湿性除去/鉛直輸送フラックスの予測性能を向上させるためには、エイジングが進んでいないBCが多い発生源近傍においては、湿潤対流における最大化飽和度推定の精密化だけではなく、BCの被覆成分・被覆量のモデリングの精緻化も重要であることが示された。

本研究で開発・検証されたエアロゾルモデルATRASを用いて、東アジアにおけるBC削減時のエアロゾル直接放射強制力の変化量を計算した。仮想的にBCのみを削減した計算においては、エアロゾル全体としての光吸収量が減少することから、正の放射強制力を減少させる(温暖化を抑制する)ことが分かった。一方において現実には、BC削減時にはその排出源から排出されるBC以外のエアロゾル成分やその前駆気体も削減されることになる。その結果、BC以外の太陽放射を散乱するエアロゾルが減少し、負の放射強制力が減少する(温暖化を増幅する)可能性がある。さらにBCの混合状態の変化により降水除去効率の変化や、被覆による光吸収断面積の増加効果も変化すると考えられる。これらの複合的な変化を、計算結果が検証されている2009年4月をテストケースとして10-45N 70-150Eの領域全体で評価すると、仮想的にBCのみを削減した場合の1/3程度ではあるが、正の放射強制力を減少できることがわかった。これは限定された領域・期間での評価であるが、BCの排出量削減が温暖化対策としてある程度有効である一方、削減がBCのもつ大きな放射強制力をそのまま減少させるわけではないことを示している。発生源別の計算の結果、民生(residential and commercial)が、BC以外の成分も削減される現実的な計算においても正の放射強制力を削減する有効な方策である可能性が示された。これらの結果は、BC削減シナリオを行政レベルで検討する時にきわめて重要である。なお、この数値モデル研究は、サブテーマ4との共同研究の成果である。

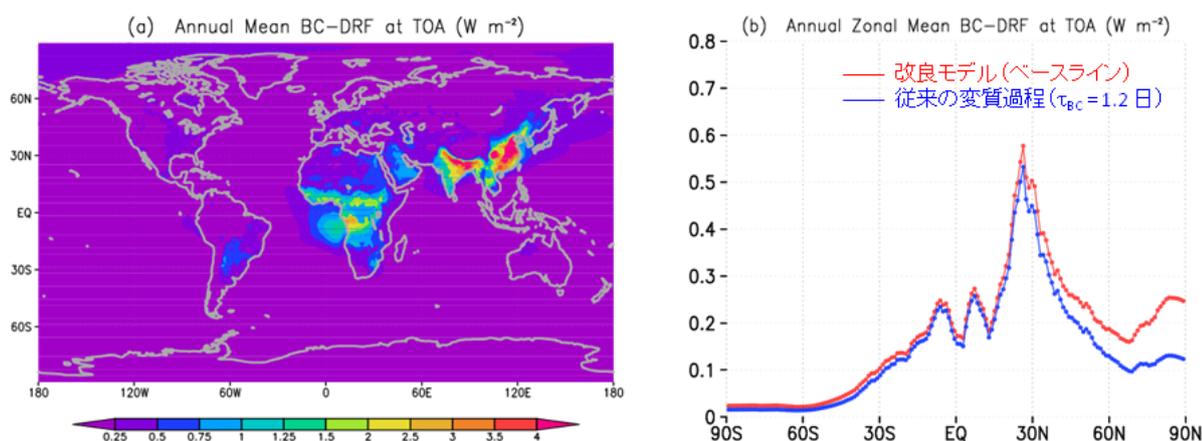


図(1)-3: 本研究で開発されたエアロゾルモデルATRASで計算された、BC削減時のエアロゾル直接放射強制力の変化量。仮想的にBCのみを削減した場合の計算結果(左)と、BC削減時にともに放出されるBC以外の成分も同時に削減される現実的な計算結果(右)。

(2)エアロゾル混合状態とグローバルモデルによる評価

【エアロゾルの電子顕微鏡分析】2014年夏に東京で行われた集中観測、また2016年3月に沖縄県辺戸岬で行われた集中観測に参加し、それぞれ約3週間にわたり連続的に電子顕微鏡用の試料採取を行った。また、過去に行った東アジアでの飛行機観測や東京や能登での地上観測、海外のバイオマス燃焼観測キャンペーンや南米アマゾン地域で採取した試料を本推進費研究目的で分析・解析を行った。その結果、BCを含む光吸収性エアロゾルの挙動を明らかにした。Adachi et al. (2016)では、東京都市大気におけるBCなどの個数濃度や混合状態に関する変化を詳細に解析した。その結果、BCの個数濃度や混合状態は気象条件に大きく左右され、特に弱風状態で濃度が上がり、オキシダント濃度の上昇とともにBCが他エアロゾル成分に被覆され内部混合する過程が進むことが分かった。また、降雨直後には被覆のないBC濃度が上昇した。これらの結果は、電子顕微鏡による1万個を超える粒子組成解析とSingle particle soot photometer (SP2)の組み合わせによって明らかとなったものである。また、BCに加えて光吸収性酸化鉄粒子の存在とその量的変化も明らかとなった。Ueda, Adachi et al. (2016)では、日本海側の観測サイトで得られたBCの挙動とその被覆による光吸収性の変化を解析した。その結果、被覆が多いほどBCの光吸収効率が高まるが、加熱による揮発では有機物の一部が残留し、BCの光吸収効率が正確に評価できていない可能性が分かった。加えて、Bateman, Adachi et al. (2017)ではアマゾン域における光吸収性が示唆される有機物の挙動を明らかにした。また、バイオマス燃焼から発生するBCや有機物の挙動に関しても電子顕微鏡技術開発を含めたデータ解析を行い、それらの粒子のエイジングプロセスについて粒子形成メカニズムを明らかにした。Moteki, Adachi et al. (2017)では、航空機観測で得られた試料中の酸化鉄粒子について、その物理化学的詳細をSP2データに加え電子顕微鏡分析によって明らかにした。

【グローバルモデルによる評価】改良したモデルは、BCの主要な発生源である東アジア域で、BC濃度の季節変動や鉛直分布の観測結果を定量的に再現することができた。またリモート域である北極域では、従来の変質過程スキームを用いた計算では、観測されたBC濃度を過小評価し、季節変化を再現することができなかったのに対し、改良したモデルでは、BCの季節変化の再現性が向上した。また従来の除去過程スキームを用いた計算では、上部・中部対流圏中でBC濃度を過大評価したのに対し、改良したモデルでは、鉛直分布の再現性が向上した。さらにレンズ効果の導入により、地上放射観測と比較して従来大幅に過小評価となっていたBCの光吸収量が増大し、その再現性が向上した。BCの空間分布と光吸収の再現性が向上したモデルを用いて、大気上端における全球平均のBCの直接放射強制力を推定したところ、本研究では、 0.2 W m^{-2} と推定された(2008-2015年平均値)。また従来の手法を用いたモデル計算結果との比較から、BCの直接放射強制力は、レンズ効果の導入により約40%増大し、変質過程の改良により約20%増大することが示唆された。この放射効果の増大は、北半球の中・高緯度において顕著であった。

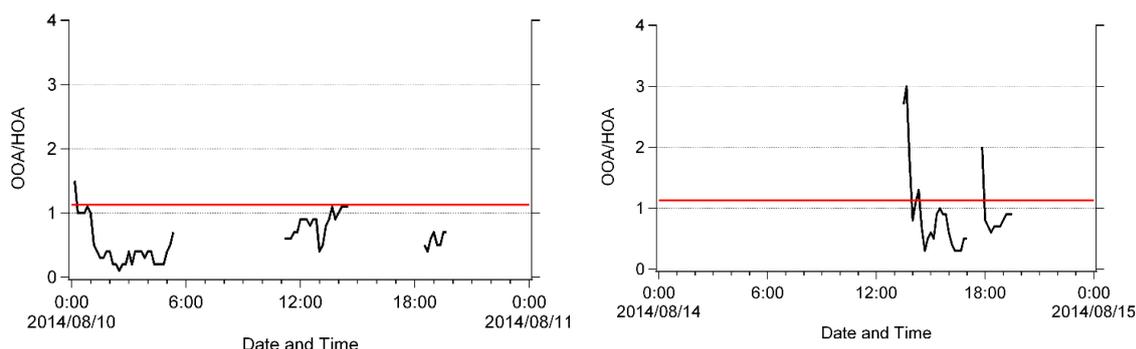


図(2)-1 (a) 改良したモデルで計算された大気上端におけるBCの直接放射強制力(W m^{-2})の水平分布。(b) モデルで計算された帯状平均した大気上端におけるBCの直接放射強制力(W m^{-2})の緯度分布。改良したモデル計算結果を赤色、従来の変質過程スキームを用いた計算結果を青色で示す。2008-2015年の年平均値を示す。Oshima et al. in preparationから引用。

(3)エアロゾル粒径分布と化学組成

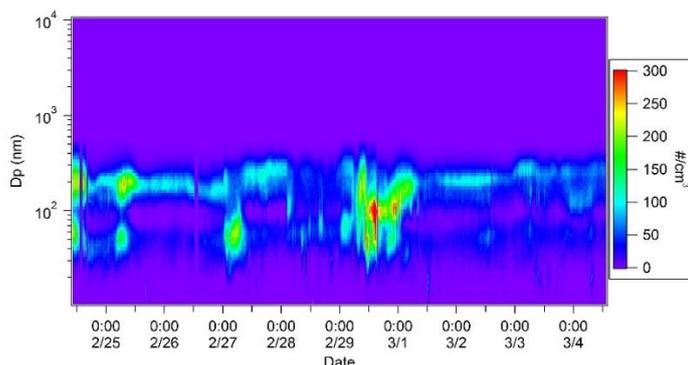
平成26年度の東京での観測結果を解析したところ、大気観測モードにおけるQ-AMSデータの平均を調べたところ、有機物の濃度が最も高く、測定された5成分の合計に対する割合が58.3%を占めていた。大気観測モードのQ-AMS有機物データに対してPositive Matrix Factorization (PMF)法による解析を行った。結果を図2に示す。因子数を2としたところ、因子1が炭化水素様有機エアロゾル(Hydrocarbon-like Organic Aerosol: HOA)と推定された。HOAは質量スペクトルにおいて、 $m/z = 41, 43, 55$ に特徴的なピークがみられる。また、因子2は質量スペクトルでカルボン酸(COO^+)と考えられる $m/z = 44$ に特徴的なピークがみられたので、酸化された有機エアロゾル(Oxygenated Organic Aerosol: OOA)と推定された。これらの因子の強度を調べたところ、平均でHOAが46.9%、OOAが53.1%となっており、ほぼ同程度であった。

降雨時のデータについては、まとまった降雨が観測され、サンプリングライン洗浄時における各成分の濃度(ブランク)が比較的低下した8月10日と8月14日を解析の対象とした。降雨時の各成分の濃度は大気観測モードで計測された濃度に比べて、高くなっているが、特に有機物において、その傾向が顕著であった。8月10日には有機物の割合が80%を超えていた。雨水観測モードにおいてQ-AMSで測定した有機物データに対して、PMF法による解析を行った。因子数を2としたところ、大気観測モードのときと同様に、HOAとOOAと考えられる因子が抽出された。一般的にHOAは疎水的であると考えられ、OOAは水溶性の官能基があるため親水性であると考えられている。降雨時におけるOOAとHOAの比を調べた(図(3)-1)。この結果、14日の降雨の初めにおいて、大気観測モードにおける比(1.13、赤のラインで示した)より高くなっていたことがわかった。降雨の初めには親水性の高い硝酸イオンや非海塩性の硫酸イオンが降水中に多く含まれ、pHの値が低くなるのがこれまでも報告されている。同様に、親水性であるOOAが降雨の初めに雨粒に多く取り込まれたことが考えられる。ただし、その比は急激に下がり、雨水中でもOOAの割合が小さくなっている。降水中でのOOA/HOA比が変化することは、大気中の微粒子の酸化度が一様ではないことを示している。また、有機物においても無機イオン同様その酸化度や親水性の違いにより、雨水への取り込みに差が生じていることを示唆している。さらに、非降雨時の粒子より降雨時の粒子に含まれる有機物のほうがOOAは多いため、雲粒中で酸化が進んでいることが示唆された。



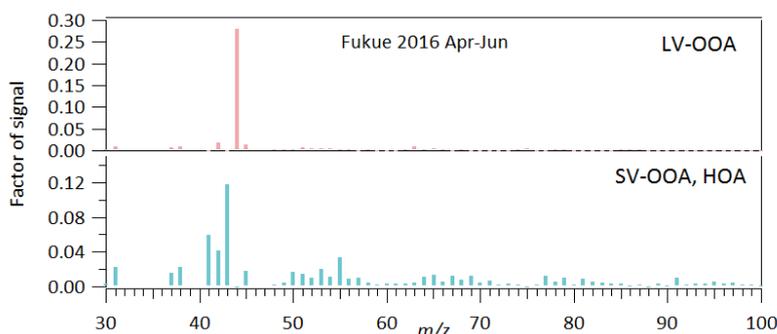
図(3)-1: 降水中の有機物のOOA/HOAの比の時間変化。左は8月10日、右は8月14日の降水における観測

平成27年度に沖縄でWPSを用いて測定された粒径分布の特徴は二峰型であり、直径50nm付近と200nm付近に個数濃度のピークがある。WPSは粗大粒子も測定できるが、黄砂は飛来しておらず、個数濃度は非常に少ない。過去の観測でも沖縄辺戸ステーションでは二峰型の粒径分布がみられており、今回の観測と整合的である。WPSでは直径10nm以上の粒子を測定できるため、新粒子生成が起きているかどうかの判定は難しい面もあるが、これまでのところ、小粒子が成長するいわゆるバナナカーブは見られておらず、新粒子生成は起きていないと考えられる。



図(3)-2: WPSで測定した大気エアロゾルの粒径分布の時間変化

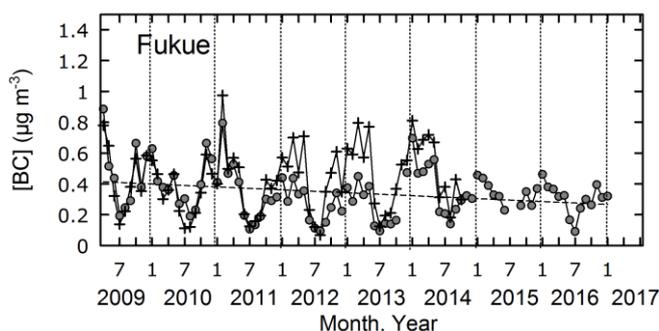
図(3)-3に平成28年度に長崎福江観測所で得られたACSMによるエアロゾル中の有機物に対するPMF法による解析結果を示す。因子数を2としたところ、東京や沖縄とは少し違う結果が得られた。非常に酸化された有機エアロゾル(Low Volatile Oxygenated organic Aerosol: LV-OOA)の質量スペクトルと、少し酸化された有機エアロゾル(Semi Volatile Oxygenated organic Aerosol: SV-OOA)及び炭化水素様有機エアロゾル(Hydrocarbon-like Organic Aerosol: HOA)の混合因子と考えられる質量スペクトルに分離された。東京などの都市部ではHOAの割合が比較的多くSV-OOAと分離されることが多いが、福江は九州地区、韓国、中国から離れており、地元には大きな産業がないため、ある程度酸化された有機化合物が多いと推測される。これは、硫酸イオンの割合が多いことも含め、エアロゾルとしては全体的に親水性が高いと考えられ、雲凝結核になりやすいと考えられる。



図(3)-3: エアロゾルの有機化合物に対するPMF法を用いた解析結果

(4) 広域エアロゾル観測と領域モデルによる評価

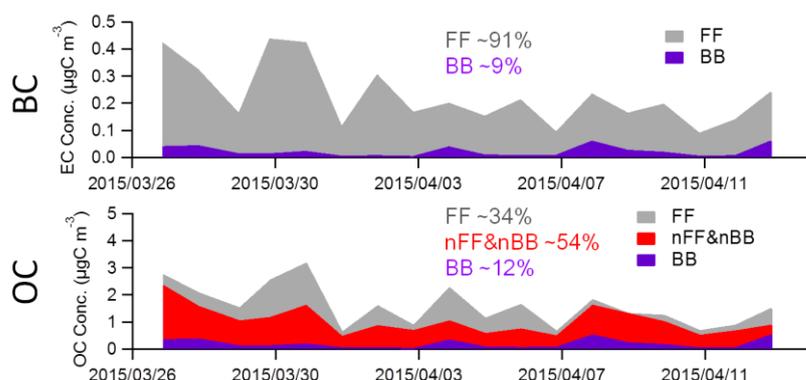
福江では主に中国中東部からの汚染気塊の流入により秋～春に濃度極大となる点を明らかにした。また、2009年から8年間のデータ解析からBC濃度に長期減少傾向がみられることを観測から示し、排出量固定としたCMAQモデルの推移との差異が明確であることから、中国中東部での排出量が減少している可能性を指摘した(図(4)-1)。福江長期観測における $\Delta BC/\Delta CO$ 比の解析から算出されたBCの輸送効率(TE)は、後方流跡線上での降水量を過去72時間積分した「積算降水量(APT)」に対し単調減少し、Stretched exponential 式($TE = \exp(-A1 \times APT^{A2})$)でよく近似できること($A1=0.109 \pm 0.010$, $A2=0.684 \pm 0.039$)、空気塊の起源地域による違いは小さく一般性が高いことを提示した。このようにBCの湿性除去を定量表現できるようになり、数値モデルの検証が可能となった。また、福江での集中観測から、降水に伴うBC含有粒子の微物理特性(サイズ、混合状態)の変化を捉え、レインアウト過程としての理解と整合的であることを示すとともに、微物理量を解像可能な最先端なモデルの検証を将来行う上で有用な知見を提供した。Lulinではインドシナ半島での森林火災により、春季に濃度極大となる季節性を明らかにするとともに、緯度帯の近い火災由来のBCが西風により輸送されてくるメカニズムを明らかにした。



図(4)-1: 福江島におけるBC濃度の月平均値の長期傾向(COSMOSのデータ)。○が観測値、+はWRF/CMAQモデルシミュレーションによる値。

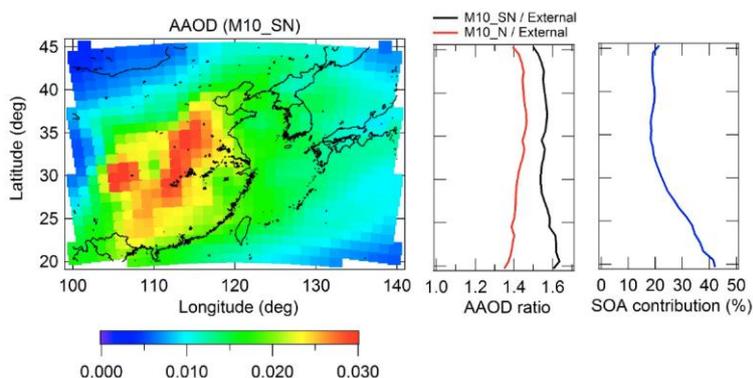
放射性炭素同位体比の観測と、レボグルコサンをバイオマス燃焼のトレーサーとした解析とを初めて複合させたことによって、BC、有機炭素(OC)別で、化石燃料起源・バイオマス燃焼起源・それ以外を分離することが初めて可能となった。このことにより、排出インベントリや、モデルシミュレーション結果におけるBC、OCの起源分類を評価し、化石燃料の寄与が実際にはインベントリやモデル結果より高いことを示唆した。具体的には、東京では、過去約10年間の炭素性エアロゾル(総炭素 TC)に、顕著な放射性炭素同位体比の増加、すなわち、非化石燃料起源の割合の増加が見られ、主に排出規制に起因することを明らかにした。福江に春季に到来するBCの平均的な化石燃料起源の割合は91%程度で、REAS(バージョン2)で推定されている2008年3-4月時点の中国における省別の詳細な燃料別排出統計(66-78%)より高いことを示した。OCについては、化石燃料・バイオマス燃焼でない、陸上植生VOCsや海上放出に由来する寄与が54%も存在することが初めて示唆された。

BCの大気中での一連のプロセスを素過程に基づいて計算できるATRASモジュールを実装したアジア領域スケールモデルを開発し、BC、有機エアロゾル(OA)やPM2.5観測による検証評価を行った。これにより、BC数濃度や粒径、個々の粒子の化学組成(混合状態)を表現でき、BCの光吸収・大気加熱や大気中の寿命など、BCの気候影響評価において極めて重要な過程のモデル表現が大幅に改善された。また、BCの直接放射強制力の推定において、排出源におけるエアロゾルの粒径分布と混合状態のパラメータが重要な役割を果たすこと、モデルにおいてOAを含む変質過程に伴う光吸収量の増大効果(図(4)-3)を十分に表現することが重要とわかった。ATRASモデルに与えるVOC、BC、OCの排出インベントリにおいて、起源を化石燃料起源と非化石燃料起源(バイオマス燃焼、バイオ燃料燃焼、植物起源揮発性物質の放出)に大別し、炭素性エアロゾルの起源を推定で



図(4)-2: 福江でのBC, OC観測値に対する、化石燃料(FF),バイオマス燃焼(BB),自然起源などその他(nFF&nBB)の寄与推定結果。

きるようにし、炭素性エアロゾルの起源をモデルで推定した結果、2009年の春季の福江島における観測値と概ね整合的な割合が得られることがわかった。



図(4)-3: (a) 2009年3~4月における東アジア域のBC光吸収による光学的深さ(AAOD: absorption aerosol optical depth)。(b) 無機・有機エアロゾルの被覆に伴うBCのAAODの増大率の緯度分布。黒色と赤色は有機エアロゾルの生成を考慮した計算としなかった計算の結果を示す。(c) 有機エアロゾルの生成がAAODの増大率に占める割合の緯度分布。

5. 本研究により得られた主な成果

(1) 科学的意義

- ・BCの気候影響の大きさを決める主要項目である、大気中におけるBC質量濃度、BC単位質量濃度あたりの太陽放射吸収量(質量吸収断面積)、また、BCの削減効果の大きさを決める同時に放出されるBC以外のエアロゾルとその前駆気体に起因する放射効果について、以下のような新しい科学的成果を得た。第一に、東アジア広域大気中のBC質量濃度が近年有意な減少傾向にあることを観測から見出し、数値モデルとの比較により、この濃度減少が発生量の減少に起因することを示した。これは、東アジア広域におけるBC排出削減技術向上・環境政策の効果が排出増加要因を相殺していることを実証する初めての結果である。第二に、BCの鉛直輸送量や大気寿命に強く影響を及ぼす大気プロセスである、湿潤対流におけるBC除去過程について、その除去効率が概ね雲底付近における雲粒活性化の段階で決まっていることを観測から実証した。この新たな観測結果により、BC湿性除去の予測性能改善のためには、特に、被覆の薄いBCが多い発生源近傍において、被覆成分と被覆量の予測精度の向上が重要であることを示唆した。第三に、BCの質量吸収断面積に強く影響する他のエアロゾル成分との混合状態について、電子顕微鏡による詳細観察に加え、光吸収の増幅効果が大きく異なる付着形態と被覆形態を単一粒子ごとに判別して観測する方法を開発し、他のエアロゾルと内部混合したBCは9割以上が被覆形態であることを初めて実大気で統計的に実証した。さらに、複雑形状のBC含有粒子の質量吸収断面積を高精度・高速な理論計算法を開発した。第四に、炭素同位体比分析を用いた観測手法により、東アジア広域平均のBC発生源は、化石燃料燃焼起源が9割、バイオマス燃焼起源が1割であることを明らかにした。第五に、BCの混合状態と有機エアロゾルの生成過程を詳細に計算できるエアロゾルモデル ATRASを開発し、それを用いた感度実験により、BC削減時のエアロゾル直接放射強制力の変化量を評価し、東アジア領域全体では正の放射強制力を減少させることを示した。最後に、上記の観測結果をもとに、グローバルモデルにおけるBCの混合状態などの素過程の表現の改良を行った結果、BCの空間分布および光吸収量の再現性が向上し、全球規模のBCの直接放射強制力を定量的に評価することが可能となった。
- ・グローバルモデルでは表現できない詳細なBCの混合状態とその降水除去や光吸収特性影響を表現した数値モデルを使った研究により、アジアでのエアロゾルの光吸収の光学的厚みは、地上放射観測 AERONETと平均で 35%程度で一致することがわかった。多くのグローバルモデルはAERONETと大きな不一致を示しており、本研究の結果はグローバルモデルのBC混合状態の扱いに大きな不確実性があることを示している。またBCのみを削減した計算と、BC削減時にその発生源から同時に排出される他のエアロゾル成分(前駆気体)も同時に削減する現実的な計算により、放射強制力が大きく変化することが明らかとなった。これはBC以外のエアロゾルを総合的に評価することの重要性を示すとともに、大気化学反応やエアロゾルの物理化学過程の非線形的な相互作用も正確に計算することの重要性を示すものである。
- ・東京都心における大気エアロゾルの化学組成と粒径分布、及び、降水中の化学組成を初めて明らかにした。大気エアロゾルと降水中ではともに硫酸イオンと有機物の濃度が高かった。降雨の初期において、降水中の酸化された有機物の割合が高く親水性と考えられ、雲や雨滴に多く取り込まれたと推測される。沖縄辺戸、長崎福江観測所での観測でも酸化された有機物の割合が高く、硫酸イオンも多いことからエアロゾルの輸送中に酸化されていることが明らかとなった。化学組成が雲凝結核特性に大きく寄与していることが明らかとなった。
- ・福江でのBC濃度の長期減少傾向から、中国発生源でのBC排出量低下の可能性を指摘した。またLulinでの春季BCピークに関して、インドシナ半島北部の森林火災から高度上昇したプルームが西風で運ばれてくるメカニズムが明らかになった。このように福江・LulinにおけるBC通年観測データは、世界的に見て精度や信頼度が高いものであり、数値モデルを検証し、重要な発生源である中国やインドシナ半島バイオマス燃焼からのBC排出量とその推移を把握するためのベンチマークとなるデータが長期間得られた。降水によるBC除去速度を福江での長期観測から定量的に評価し、近似式を提案した。数値モデルでのプロセス表現の検証を可能とした。
- ・放射性炭素同位体比の観測と、レボグルコサンをバイオマス燃焼のトレーサーとした解析とを初めて複合させたことによって、BC、有機炭素(OC)別で、化石燃料起源・バイオマス燃焼起源・それ以外を分離することが初めて可能となった。このことにより、排出インベントリや、モデルシミュレーション結果におけるBC、OCの起源分類を評価し、化石燃料の寄与が実際にはインベントリやモデル結果より高いことを示唆した。

(2) 環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

- ・平成26年～28年度にかけて環境省大気モニタリングデータ総合解析ワーキンググループ委員会において、越境大気汚染の影響を受ける九州沖縄地区では硫酸イオンの濃度が高いことを報告した。これらの結果

は平成29年度以降にまとめられる総合解析ワーキンググループの報告書に反映される予定である。

- ・平成26年～28年度にかけて韓国環境省主催のLong-range Transboundary Air Pollutants in Northeast Asia (長距離越境大気汚染)会議に日本側観測代表者として環境省 水・大気環境局 大気環境課からの依頼により出席し、越境大気汚染の影響を受ける九州沖縄地区では硫酸イオンの濃度が高く、越境大気汚染(長距離輸送)の指標として硫酸イオンが活用できることを報告した。

<行政が活用することが見込まれる成果>

- ・IPCC第5次報告書によると、BCの大気上端での正の直接放射強制力は二酸化炭素、メタンに次いで三番目に大きい。しかしその見積もりには大きな不確定性がある。本研究はその不確定性の基本的な要因であるBCと他のエアロゾルの混合状態や、降水により大気からBCが除去される効率を決める因子を観測から明らかにした。この知見をもとに、数値モデルにおける降水に伴うBC除去メカニズムの計算を精緻化することで、放射強制力だけでなく、PM2.5濃度など大気環境因子の予測精度の向上が期待される。
- ・福江・Lulinにおける通年BC観測データは、アジアのBC主要発生源からの排出量の動向を把握する基礎情報として重要である。本研究により、衛星観測が困難なBCについての排出減少・越境汚染減少を示唆する初めてのデータを福江での観測から提供した。今後の削減対策の検討に加え、削減効果の把握・検証の意味でも、信頼度の高い機器による長期濃度観測が政策へもたらす貢献は大きい。BCと有機炭素(OC)それぞれの発生源寄与を、化石燃料燃焼とバイオマス燃焼、OCはさらにそれ以外(植生森林)の寄与に分離可能であることを実証し、福江でのBCは91%化石燃料燃焼起源であることを示した点は、BCやPM2.5の削減対策の精密な議論や、削減効果を詳細に把握し検証していくために有効である。福江で得られた情報はまだ限られているが、エミッションインベントリでの中国でのBC排出について、化石燃料燃焼の寄与割合に上方修正を加える必要性を提唱している。
- ・BCの混合状態を陽に表現する詳細なエアロゾルモデルを開発し、BCの放射強制力やBC排出量削減効果の定量化を行った。この結果、アジアという限定された領域での2009年4月というテストケースでの評価ではあるが、BCの排出量削減が温暖化対策としてある程度有効である一方、削減がBCのもつ大きな放射強制力をそのまま減少させるわけではないことが明らかとなった。正の放射強制力の減少量がBCのもつ放射強制力よりも小さくなってしまふのは、BC削減時に同じ発生源から発生する他の無機・有機エアロゾル(やその前駆気体)も同時に削減され、負の放射強制力も減少してしまうからである。また発生源別の計算の結果、民生(residential and commercial)が、BC以外の成分も削減される現実的な計算においても正の放射強制力を削減する有効な方策である可能性が示された。これらの結果は、BC削減シナリオを行政レベルで検討する時にきわめて重要である。
- ・北極評議会(Arctic Council; AC)の「ブラックカーボンとオゾンの気候影響の評価報告書」作成のための会議(AMAP, Arctic Monitoring and Assessment Programme会議)にも参加し、推進費の成果などを報告した。この報告書では北極評議会加盟国を中心に、ブラックカーボンなどの排出量削減のための勧告の科学的基礎となる内容であり、今後の日本の行政においても検討が必要となる可能性がある。
- ・北極評議会(Arctic Council; AC)のブラックカーボン及びメタン専門家会合(EGMCM, Expert Group on Black Carbon and Methane)に外務省、環境省、文部科学省の要請により出席し、推進費の成果などを報告した。この会議の主目的はブラックカーボン、メタンの排出削減実施の勧告を含む内容の報告書(Summary of Progress and Recommendations)を取りまとめることであった。この報告書は、2017年4月のArctic Council Ministerial MeetingにおいてSAO(Senior Arctic Officials)が各国大臣に提出済みとのことであり、今後、日本の行政においても検討される見込みである。
- ・本研究で得られた知見は、気候モデルへの反映を通じて、次期のIPCCレポートに重要な貢献ができる結果である。開発した高度なエアロゾルモデルでは、課題となってきた有機エアロゾル量やPM2.5のモデル再現についても大幅に改善しており、BCの大気中存量や起源分類、放射影響の見積の精度向上に加えて、有機物やPM2.5の越境汚染対応策の検討に資するものである。本研究で開発した気象研究所地球システムモデルは、第6期結合モデル比較計画(CMIP6)での気候変動予測実験で使用されるため、本研究で得られた成果は、次期IPCCへ直接的に貢献することが期待される。

6. 研究成果の主な発表状況

(1) 主な誌上発表

<査読付き論文> (合計40編。以下に特に重要な28編を記す。)

- 1) M. KOIKE, N. MOTOKI, K. PRADEEP, T. TAKAMURA, N. TAKEGAWA, Y. KONDO, H. MATSUI, A. SHIMIZU, and N. SUGIMOTO: J. Geophys. Res. Atmos., 119, 122-136 (2014), Case study of absorption aerosol

optical depth closure over the East China Sea

- 2) N. MOTEKI, Y. KONDO, and K. ADACHI: *J. Geophys. Res. Atmos.*, 119, 1031–1043 (2014), Identification by single-particle soot photometer of black carbon particles attached to other particles: Laboratory experiments and ground observations in Tokyo
- 3) H. MATSUI, M. KOIKE, Y. KONDO, A. TAKAMI, J. D. FAST, Y. KANAYA, and M. TAKIGAWA: *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 9513–9535 (2014), Volatility basis-set approach simulation of organic aerosol formation in East Asia: implications for anthropogenic-biogenic interaction and controllable amounts
- 4) T. MORI, Y. KONDO, S. OHATA, N. MOTEKI, H. MATSUI, N. OSHIMA, and A. IWASAKI: *J. Geophys. Res. Atmos.*, 119, 10485–10498 (2014), Wet deposition of black carbon at a remote site in the East China Sea
- 5) H. MATSUI, M. KOIKE, Y. KONDO, J. D. FAST, and M. TAKIGAWA: *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 10315–10331 (2014), Development of an aerosol microphysical module: Aerosol Two-dimensional bin module for formation and Aging Simulation (ATRAS)
- 6) B. H. SAMSET, G. MYHRE, H. HERBER, Y. KONDO, S. LI, N. MOTEKI, M. KOIKE, N. OSHIMA, J. P. SCHWARZ, Y. BALKANSKI, S. E. BAUER, N. BELLOUIN, T. K. BERNTSEN, H. BIAN, M. CHIN, T. DIEHL, R. C. EASTER, S. J. GHAN, T. IVERSEN, A. KIRKEVÅG, J.-F. LAMARQUE, G. LIN, X. LIU, J. E. PENNER, M. SCHULZ, Ø. SELAND, R. B. SKEIE, P. STIER, T. TAKEMURA, K. TSIGARIDIS, and K. ZHANG: *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 12465–12477 (2014), Modeled black carbon radiative forcing and atmospheric lifetime in AeroCom Phase II constrained by aircraft observations
- 7) M. IRWIN, Y. KONDO, and N. MOTEKI: *J. Aerosol Sci.*, 80, 86–97 (2015), An empirical correction factor for filter-based photo-absorption black carbon measurements
- 8) Y. KONDO: *Monogr. Environ. Earth Planets*, 3, 1–85 (2015), Effects of black carbon on climate: Advances in measurement and modeling
- 9) S. OHATA, J. P. SCHWARZ, N. MOTEKI, M. KOIKE, A. TAKAMI, Y. KONDO: *J. Geophys. Res.*, 121, 362–381 (2016) Hygroscopicity of materials internally mixed with black carbon measured in Tokyo”
- 10) T. MORI, N. MOTEKI, S. OHATA, M. KOIKE, K.G.-AZUMA, Y. MIYAZAKI, and Y. KONDO: *Aerosol Sci. Technol.*, 50, 242–254 (2016), Improved technique for measuring the size distribution of black carbon particles in liquid water
- 11) K. KAIHO, N. OSHIMA, K. ADACHI, Y. ADACHI, T. MIZUKAMI, M. FUJIBAYASHI, R. SAITO: *Sci. Rep.* 6, 28427, (2016), Global climate change driven by soot at the K-Pg boundary as the cause of the mass extinction
- 12) T. MIYAKAWA, Y. KANAYA, Y. KOMAZAKI, T. MIYOSHI, H. NARA, A. TAKAMI, N. MOTEKI, M. KOIKE, and Y. KONDO: *Aerosol and Air Quality Res* 16, 1603–1614, (2016), Emission regulations altered the concentrations, origin, and formation of carbonaceous aerosols in the Tokyo Metropolitan Area”
- 13) N. MOTEKI : *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.*, 178, 306–314 (2016), Discrete dipole approximation for black carbon-containing aerosols in arbitrary mixing state: A hybrid discretization scheme”
- 14) A. TAKAMI, T. MIYOSHI, S. IREI, A. YOSHINO, K. SATO, A. SHIMIZU, M. HAYASHI, K. HARA, N. KANEYASU, S. HATAKEYAMA : *Aerosol Air Quality Research* 16 (2), 314–322, doi: 10.4209/aaqr.2015.03.0145 (2016), Analysis of organic aerosol in Fukuoka, Japan using a PMF method”
- 15) T. MIYAKAWA, Y. KANAYA, Y. KOMAZAKI, F. TAKETANI, X. PAN, M. IRWIN, and J. SYMONDS: *Atmos. Environ.*, 127, 14–21 (2016), Intercomparison between a single particle soot photometer and evolved gas analysis in an industrial area in Japan: Implications for the consistency of soot aerosol mass concentration measurements
- 16) H. MATSUI: *J. Geophys. Res. Atmos.*, doi:10.1002/2015JD023998 (2016), Black carbon simulations using a size- and mixing-state-resolved three-dimensional model: 1. Radiative effects and their uncertainties
- 17) H. MATSUI: *J. Geophys. Res. Atmos.*, doi:10.1002/2015JD023999 (2016), Black carbon simulations using a size- and mixing-state-resolved three-dimensional model: 2. Aging timescale and its impact over East Asia
- 18) A. TAKAMI, T. MIYOSHI, S. IREI, A. YOSHINO, K. SATO, A. SHIMIZU, M. HAYASHI, K. HARA, N. KANEYASU, S. HATAKEYAMA,: *Aerosol Air Quality Research*, 16 (2), 314–322 (2016), Analysis of organic aerosol in Fukuoka, Japan using a PMF method
- 19) Y. KONDO, N. MOTEKI, N. OSHIMA, S. OHATA, M. KOIKE, Y. SHIBANO, N. TAKEGAWA, and K. KITA: *J.*

- Geophys. Res. Atmos., 121, doi:10.1002/2015JD024479 (2016), Effects of wet deposition on the abundance and size distribution of black carbon in East Asia
- 20) M. KOIKE, N. Asano, H. Nakamura, S. Sakai, T. M. Nagao and T. Y. Nakajima: J. Geophys. Res. Atmos., 121, doi:10.1002/2016JD025375 (2016), Modulations of aerosol impacts on cloud microphysics induced by the warm Kuroshio Current under the East Asian winter monsoon
- 21) H. MATSUI and M. KOIKE: J. Geophys. Res. Atmos., 121, 7161–7171, doi:10.1002/2015JD024671, (2016), Enhancement of aerosol responses to changes in emissions over East Asia by gas-oxidant-aerosol coupling and detailed aerosol processes
- 22) K. ADACHI, N. MOTOKI, Y. KONDO, Y. IGARASHI: J. Geophys. Res. Atmos., doi:10.1002/2016JD025153 (2016), Mixing states of light-absorbing particles measured using a transmission electron microscope and a single-particle soot photometer in Tokyo, Japan
- 23) Y. KANAYA, X. PAN, T. MIYAKAWA, Y. KOMAZAKI, F. TAKETANI, I. UNO, and Y. KONDO: Atmos. Chem. Phys., 16, 10689 – 10705 doi:10.5194/acp-16-10689-2016 (2016), Long-term observations of black carbon mass concentrations at Fukue Island, western Japan, during 2009–2015: constraining wet removal rates and emission strengths from East Asia
- 24) S. OHATA, N. MOTOKI, T. MORI, M. KOIKE, Y. KONDO: Scientific Reports, 6, 34113; doi: 10.1038/srep34113 (2016), A key process controlling the wet removal of aerosols: new observational evidence
- 25) H. MATSUI and M. KOIKE: J. Geophys. Res. Atmos., 121, 7161–7171, doi:10.1002/2015JD024671 (2016), Enhancement of aerosol responses to changes in emissions over East Asia by gas-oxidant-aerosol coupling and detailed aerosol processes
- 26) S. UEDA, T. NAKAYAMA, F. TAKETANI, K. ADACHI, A. MATSUKI, Y. IWAMOTO, Y. SADANAGA and Y. MATSUMI: Atmos. Chem. Phys., 16, 2525–2541 (2016), Light absorption and morphological properties of soot-containing aerosols observed at an East Asian outflow site, Noto Peninsula, Japan
- 27) T. MIYAKAWA, N. OSHIMA, F. TAKETANI, Y. KOMAZAKI, A. YOSHINO, A. TAKAMI, Y. KONDO, Y. KANAYA: Atmos. Chem. Phys. Disc., doi:10.5194/acp-2016-570 (2016), Alteration of the microphysical properties of black carbon through transport in the boundary layer in East Asia
- 28) N. MOTOKI, K. ADACHI, S. OHATA, A. YOSHIDA, T. HARIGAYA, M. KOIKE, and Y. KONDO: Nature Communications, doi:10.1038/ncomms15329 (2017), Anthropogenic iron oxide aerosols enhance atmospheric heating

<査読付論文に準ずる成果発表>

特に記載すべき事項はない。

(2) 主な口頭発表(学会等)(合計87発表。以下に特に重要な19発表を記す。)

- 1) 足立光司、財前祐二、茂木信宏、小池 真、近藤 豊: 第31回エアロゾル科学・技術研究討論会(2014)「東アジアにおける航空機を使ったエアロゾル観測(AForce)プロジェクトで得られた試料の電子顕微鏡分析」
- 2) 大畑祥、茂木信宏、森樹大、小池真、高見昭憲、近藤豊: 日本気象学会2015年度春季大会(2015)「大気・降水同時観測によるブラックカーボン湿性除去の研究」
- 3) 茂木信宏: 日本気象学会2015年度春季大会(2015)「ブラックカーボン含有粒子の光学特性の高精度計算法」
- 4) 大島長、田中泰宙、神代剛、川合秀明、出牛真、小池真、茂木信宏、近藤豊: 日本地球惑星科学連合2015年大会(2015)「ブラックカーボンの変質過程が全球規模のその空間分布と放射効果に及ぼす影響」
- 5) 松井仁志: 日本気象学会2015年度春季大会(2015)「ブラックカーボンとその放射強制力の不確定性: 混合状態解像モデルを用いた感度実験」
- 6) 森樹大、大畑祥、茂木信宏、近藤豊: 日本地球惑星科学連合2015年大会(2015)「水中に含まれるブラックカーボン粒子の測定法の確立と東京地上観測」
- 7) 高見昭憲、三好猛雄、伊禮聡、吉野彩子、林政彦、原圭一郎、兼保直樹、畠山史郎: 粉体工学会2015年度春期研究発表会(2015)「都市および離島における有機エアロゾル測定とPMF解析」
- 8) N. MOTOKI: Electromagnetic & Light Scattering XV 2015, Leipzig, Germany, 2015 “Improved volume

integral equation method for computing optical properties of black carbon-containing aerosol particles”

- 9) T. MORI, N. MOTEKI, S. OHATA, M. KOIKE, K. GOTO-AZUMA, Y. MIYAZAKI, and Y. KONDO : AGU fall meeting, San Francisco, USA, 2015 “Improved technique for measuring the size distribution of black carbon particles in rainwater and snow samples”
- 10) S. OHATA, J. P. SCHWARZ, N. MOTEKI, M. KOIKE, A. TAKAMI, and Y. KONDO : AGU fall meeting, San Francisco, USA, 2015 “Hygroscopicity of materials internally Mixed with black carbon measured in Tokyo”
- 11) T. MIYAKAWA, F. TAKETANI, N. OSHIMA, Y. KOMAZAKI, X. PAN, A. YOSHINO, A. TAKAMI, Y. KONDO, and Y. KANAYA : AGU fall meeting 2015, San Francisco, USA, 2015 “Aging and removal of Black Carbon Measured Using a Single Particle Soot Photometer in East Asia”
- 12) Y. KANAYA, F. TAKETANI, X. PAN, Y. KOMAZAKI, T. MIYAKAWA, H. MATSUI, K. YAMAJI, Z. WANG, L. CHANG, D. KANG, A. TAKAMI, K. IKEDA, H. TANIMOTO, and Y. KONDO: AOGS 2015, Singapore, 2015 “Synthesis of observations of atmospheric black carbon, organics and PM2.5 aerosols over Japan, Korea, and China with numerical simulations to better constrain their emission rates and origins”
- 13) 宮川拓真、金谷有剛、竹谷文一、駒崎雄一、Pan Xiaole, 近藤豊:第56回大気環境学会年会 (2015) 「ブラックカーボンの輸送に対する湿性沈着過程の影響—2015年春季の福江島での大気観測から事例解析—」
- 14) 足立光司:第33回エアロゾル科学・技術研究討論会(2016)「森林火災から発生するエアロゾル粒子」
- 15) N. OSHIMA, T. Y. TANAKA, T. KOSHIRO, H. KAWAI, M. DEUSHI, and M. KOIKE : European Aerosol Conference 2016, 2016 “Black carbon aging and its impact on the spatial distribution and radiative forcing using a MRI global climate model”
- 16) K ADACHI, N MOTEKI, Y KONDO, Y IGARASHI : American Geophysical Union 2016 Fall Meeting, 2016 “Mixing States of Light-absorbing Particles Measured Using a Transmission Electron Microscope and a Single-particle Soot Photometer in Tokyo, Japan”
- 17) 金谷有剛、Xiaole Pan, 宮川拓真、駒崎雄一、竹谷文一、鶴野伊津志、近藤豊:日本地球惑星科学連合2016年大会 (2016) 「福江島における大気中ブラックカーボン質量濃度の長期観測2009-2015: 東アジアからの排出量と湿性除去速度の解析」
- 18) Y. KANAYA, F. TAKETANI, X. PAN, T. MIYAKAWA, Y. KOMAZAKI, I. UNO, Y. KONDO: 14th IGAC Science Conference 2016, Colorado, USA, 2016 “Observations of atmospheric black carbon mass concentrations from East Asia to the open oceans: Constraining emission strengths and wet deposition rates”
- 19) H. MATSUI: American Geophysical Union Fall Meeting 2016, San Francisco, USA, 2016 “Black carbon simulations using a size- and mixing-state-resolved three-dimensional model: Radiative effects and their uncertainties”

7. 研究者略歴

課題代表者: 小池 真

早稲田大学理工学部卒業、理学博士、現在、東京大学大学院理学系研究科准教授

研究分担者

- (1) 2) 近藤 豊
東京大学理学部卒業、理学博士、現在、国立極地研究所研究教育系特任教授
- (2) 1) 五十嵐 康人
筑波大学第一学群自然科学類卒業、理学博士、
現在、気象研究所環境・応用気象研究部第四研究室長
- 2) 大島 長
東京大学理学部卒業、理学博士、
現在、気象研究所環境・応用気象研究部第一研究室主任研究官
- 3) 足立 光司
神戸大学発達科学部卒業、理学博士、
現在、気象研究所環境・応用気象研究部第四研究室主任研究官
- (3) 1) 高見 昭憲、
京都大学工学部卒業、博士(D.Phil.)、
現在、国立環境研究所地域環境研究センター副センター長

- (4)
- 1) 金谷 有剛
東京大学理学部卒業、理学博士、
現在、国立研究開発法人海洋研究開発機構 地球表層物質循環研究分野 分野長代理
 - 2) 滝川 雅之
東京大学理学部卒業、理学博士、
現在、国立研究開発法人海洋研究開発機構 北極環境変動総合研究センター 北極化学物質循環研究ユニット ユニットリーダー
 - 3) 宮川 拓真
東京大学理学部卒業、理学博士、
現在、国立研究開発法人海洋研究開発機構 地球表層物質循環研究分野 研究員
 - 4) 松井 仁志
東京大学理学部卒業、理学博士、
現在、国立研究開発法人海洋研究開発機構 地球表層物質循環研究分野 外来研究員（名古屋大学 大学院環境学研究科 地球環境科学専攻 助教）

2-1403 地球温暖化に関わるブラックカーボン放射効果の総合的評価

(1) BC観測とモデル検証

東京大学 大学院理学系研究科 地球惑星科学専攻 小池真・近藤豊(平成27年度まで)

<研究協力者>

東京大学 大学院理学系研究科 地球惑星科学専攻 茂木信宏・大畑祥
 学校法人東京理科大学 理学部 第一部物理学科 森樹大

平成26(開始年度)～28年度累計予算額：61,013千円（うち平成28年度：19,556千円）

予算額は、間接経費を含む。

[要旨]

メタンについて3番目に大きな放射強制力をもつブラックカーボンBCの排出量削減は、有効な温暖化対策となる可能性がある。しかし我々のこれまでの推進費（2A-1101）の研究成果（環境研究総合推進費 終了成果報告書）も反映されたIPCCレポートやBC気候影響の国際アセスメントにおいて、BCの気候影響（放射強制力）の推定には大きな不確定性があることが示された。本研究では、BCの放射強制力を決める以下の2つの物理量の推定精度向上に資する研究を実施した：（1）大気中や雪氷中におけるBC質量濃度と、（2）BC単位質量濃度あたりの太陽放射吸収量（質量吸収断面積）である。特に重要な物理量（1）の推定精度については、BCの発生源強度以外の最大の不確定要因である、BCが大気から降水により除去されるプロセスを観測的に明らかとした。このために降水中のBC濃度を高精度で測定する技術を確立し、独自の観測手法により降水によるBCの除去効率の支配要因が雲粒活性化のしやすさであることを初めて観測的に明らかにした。特にエイジングが進んでいない発生源近傍におけるBCでは、除去効率が被覆量・被覆成分に依存して大きく変わることが示された。本結果から、発生源近傍におけるBCの被覆量と被覆成分の物理化学過程の計算精緻化が、鉛直輸送/除去フラックスの予測精度の大幅な向上につながることを示唆された。物理量（2）は、BCを含むエアロゾルの形態（形状・混合状態）に強く依存する。本研究ではBCの混合状態の詳細観測法を開発し、内部混合したBC粒子のほぼ全ては被覆形態にあることを観測的に示した。また複雑形状のBC含有粒子の光学特性を高精度に計算する手法を開発した。

これらの研究成果にもとづき、本研究ではグローバルモデルでは表現できない詳細なBC・エアロゾル表現を実現した領域数値モデルにより、BC削減効果をアジア域において見積もった。BCの降水除去効率やBCの光吸収量はBCとBC以外の無機・有機エアロゾル成分との混合状態が重要である。本研究ではBC削減時にその発生源から同時に排出される他のエアロゾル成分（前駆気体）も同時に削減する現実的なシナリオと、BCのみを削減する仮想的なシナリオの2つの計算を実施した。この結果、BC以外のエアロゾル成分も削減される現実的なシナリオでは、中国北部などでは太陽放射を散乱するBC以外のエアロゾルが減少し（負の放射強制力が減少し）、むしろ正の放射強制力が増加することが明らかとなった。しかしながら10-45N 70-150Eの領域全体で評価すると、仮想的にBCのみを削減した場合の1/3程度ではあるが、正の放射強制力を減少できることがわかった。これは限定された領域での2009年4月というテストケースでの評価ではあるが、BCの

排出量削減が温暖化対策としてある程度有効である一方、削減がBCのもつ大きな放射強制力をそのまま減少させるわけではないことを示している。発生源別の計算の結果、民生（residential and commercial）が、BC以外の成分も削減される現実的な計算においても正の放射強制力を削減する有効な方策である可能性が示された。これらの結果は、BC削減シナリオを行政レベルで検討する時にきわめて重要である。なお、この数値モデル研究は、サブテーマ4との共同研究の成果である。

[キーワード]

エアロゾル、ブラックカーボン、湿性除去、直接放射効果、気候変動予測

1. はじめに

メタンについて3番目に大きな放射強制力をもつブラックカーボンBCの排出量削減は、有効な温暖化対策となる可能性がある。しかし我々のこれまでの推進費（2A-1101）の研究成果（環境研究総合推進費 終了成果報告書）も反映されたIPCCレポートやBC気候影響の国際アセスメントにおいて、BCの気候影響（放射強制力）の推定には大きな不確実性があることが示された。

地球温暖化をもたらすBCの放射強制力は、（1）大気中や雪氷中におけるBC質量濃度と、（2）BC単位質量濃度あたりの太陽放射吸収量（質量吸収断面積）の2つの物理量で決まる。そのためBCの気候影響評価では、気候モデルによるこれら2つの物理量の推定精度を向上させることが重要である。物理量（1）の推定精度の向上には、領域ごとの起源別BC放出量と、対流圏中におけるBCの輸送・除去過程をモデルで正確に表現することが必要である。しかし現在の気候モデル計算に用いられている起源別BC放出量のデータベースには化石燃料・バイオ燃料からの相対的寄与の推算法に依存した大きな不確実性がある。さらに気候モデルにおけるBCの鉛直輸送・湿性除去過程の表現では、計算コストの制限から、湿潤対流を経験する空気塊中におけるBC含有粒子の降水除去メカニズムを大幅に簡略化せざるを得ず、その簡略化法に依存した大きな不確実性が残されている。現在までに、BCの降水除去メカニズムの詳細が現場観測に基づいて理解されていないため、簡略化法を改良・検証するために必要な観測的知見がないことが本質的な問題である。物理量（2）は、BCを含むエアロゾルの形態（形状・混合状態）に強く依存する。特に、BCが他成分のエアロゾル粒子内に埋め込まれた形態（被覆形態）では、BC粒子の表面に他成分の粒子が付着した形態（付着形態）よりも効率的に光を吸収する。そのため、実大気中のBCの質量吸収断面積を正確に算出するためには、個々のBCを含むエアロゾルの形態を直接観測から解明する必要がある。さらに、大気中に浮遊している極めて複雑な形状のBC含有粒子の吸収断面積を正確かつ現実的な計算コストで算出するための方法がなく、そのような計算法の開発も必要である。

したがって、BCの地球温暖化効果の定量的理解とBC削減効果の評価を達成するためには、現行の気候モデルにおける物理量（1）、（2）の計算における本質的不確実要因を観測・実験・理論的研究に基づいて低減し、その新しい知見を取り入れた気候モデルによる再評価が重要である。

これら2つの物理量に深くかかわるのが、BCとBC以外のエアロゾル成分との混合状態である。吸湿性を持たない裸の形で排出されたBCは大気中で水溶性成分により被覆される（内部混合することにより吸湿性もち、雲・降水過程により除去されやすくなる。さらにBCは他成分により被覆されることにより光吸収断面積が増加する。さらにBCの削減による放射強制力の変化は、BC

以外の成分の削減割合とのバランスによって決まる。これらのことは、BCの放射強制力や削減効果の評価のためには、BC以外のエアロゾル成分を含めた総合的な評価が必要であることを示している。このBCの総合的な評価は特にBCの削減効果の見積もりにおいて重要である。BCは大きな正の放射強制力を持つことから、BCの削減により単純にこの正の放射強制力を減少させることが可能であるとする誤解がある。しかし実際にはBC削減時にその発生源から同時に排出される他のエアロゾル成分（前駆気体）も同時に削減される。この結果、BC以外の太陽放射を散乱し、負の放射強制力をもつエアロゾルもある程度減少する。またBCの混合状態も変化し、BCの降水除去過程や光吸収量も変化する。これらの総合的な評価が必要となる。

2. 研究開発目的

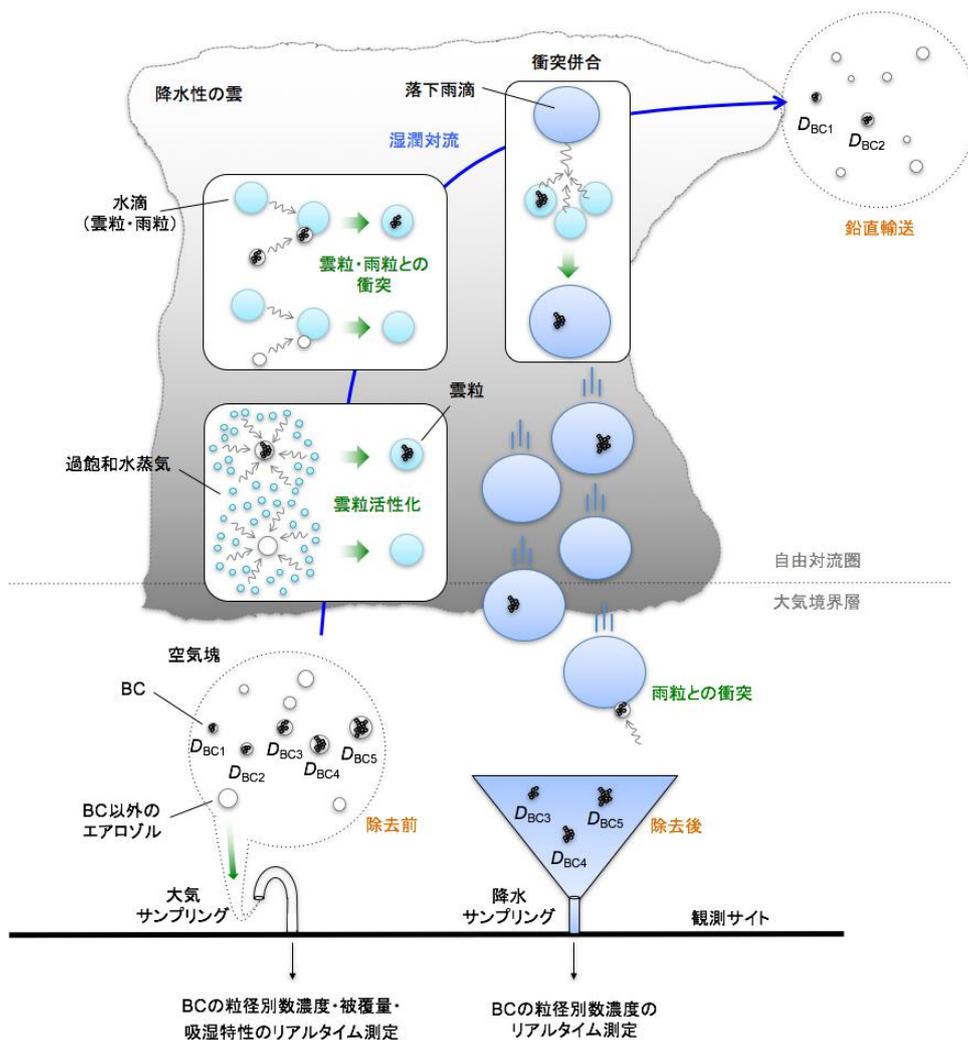
上記の背景を踏まえた本研究の目的は下記の2項目である。（1）湿潤対流における降水によるBCの除去効率の支配因子を観測的に解明する（サブテーマ3との共同）。（2）BCの形状・混合状態を観測から明らかにし、さらに個々の複雑形状のBC含有粒子の光吸収特性を高精度で計算できる方法論を開発する（サブテーマ2との共同）。（4）これらの観測的・理論的知見を反映した数値モデル計算によりBCの放射強制力を評価する（サブテーマ2、4との共同）。

3. 研究開発方法

サブテーマ1では、上記の目的を達成するため、（1）湿潤対流におけるBC含有粒子の除去効率の支配要因を観測から調べるための方法論、（2）BCの混合状態の詳細を観測する方法、（3）個々の複雑形状のBC含有粒子の光学特性を高精度に計算する方法、さらに（4）BC削減時の放射強制力の変化を予測するための数値モデルを新たに開発した。

（1）BC含有粒子の除去効率の支配因子を調べるための方法論

我々は、非水溶性の固体であるBCの質量（またはBCの体積等価粒径、以下単にBC粒径と呼ぶ）を粒子のトレーサーとして、どのBC粒径を持つBC含有粒子が選択的に湿性除去されるのかを観測する方法論を考案した（図(1)-1）（本研究では、エアロゾル粒子のうち粒子内にBCを含むものをBC含有粒子と呼ぶ）。この方法では、湿潤対流を経験する前の地上空気のBCの粒径別数濃度と、地上に落ちてきた降水試料中のBCの粒径別数濃度を比較し、地上空気中のBC含有粒子のうちどのBC粒径をもつ粒子が相対的に多く除去されたのかを検出することができる。

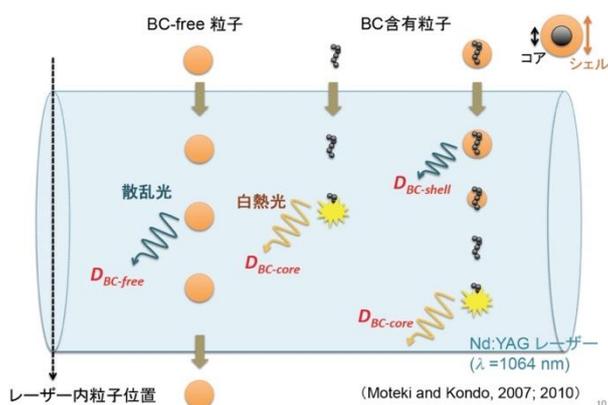


図(1)-1: BC含有粒子の除去効率の支配要因を調べるための方法論の模式図

湿潤対流空気塊中のBC含有粒子の多くは、雲粒活性化、雲粒衝突、雨粒衝突のいずれかのメカニズムで水滴へ取り込まれた後、降水粒子として地上まで落下することで大気中から除去され、いずれのメカニズムも経験しなかったBC含有粒子が自由対流圏へ輸送される。本研究では、雲粒活性化、雲粒衝突、雨粒衝突のメカニズムの起こりやすさの粒径依存性の理論式を精密に考慮した雲パーセルモデルで計算されたBCの粒径別の水滴取り込み割合と、実際の降水イベントで観測されたBCの湿性除去効率の粒径依存性を比較することで、その降水イベントにおけるBC湿性除去においてどの水滴取り込みメカニズムがどの程度支配的かを調べる方法論を新たに提唱した。この方法により初めて、湿潤対流におけるBCの湿性除去プロセスの詳細を観測から直接調べることが可能になった。上記のアイデアを実現するための要素技術として、BC粒径別の被覆の厚さと被覆成分の吸湿性も同時に観測する方法（下記 1）を開発し、さらに降水試料中でBC粒子が分裂したり凝集したりせず、粒径分布が安定であることを実験的に確かめた。さらに、地上空気中のBC含有粒子については粒径別数濃度だけでなく、降水中のBCの粒径別数濃度を観測する方法（下記 2）ことで、降水によって除去されたBC含有粒子の粒径毎の雲粒活性化割合を定量的に計算できるようにした。

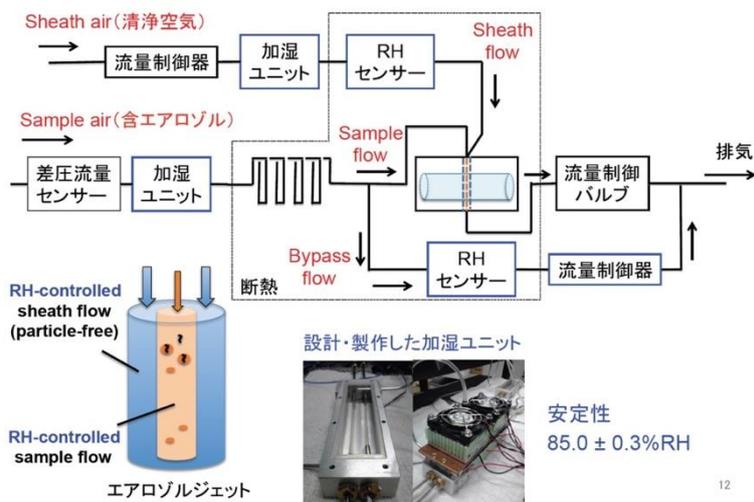
1) BC粒径別の被覆厚と被覆成分を観測する方法

本研究では、個々のBC含有粒子の全体粒径 $D_{BC-shell}$ とBC粒径 $D_{BC-core}$ を同時に測定するために単一粒子レーザー誘起白熱法 (Moteki and Kondo 2007, 2010) を用いた (図(1)-2)。この測定法では、Nd:YAG共振器内レーザーにエアロゾル粒子を導入し、各々の粒子について散乱光と白熱光 (可視帯の熱輻射光) を同時に検出する。散乱光の強度からBC含有粒子の $D_{BC-shell}$ (BC-free粒子の場合はその粒径 $D_{BC-free}$)、白熱光の強度から $D_{BC-core}$ を知る事ができる。最大で毎秒5000粒子を測定することができる。



図(1)-2: BC-free粒子, BC含有粒子の測定手法

単一粒子レーザー誘起白熱法で、個々のBC-free粒子とBC含有粒子の吸湿パラメータ κ も測定できるようにするため、レーザー通過中のエアロゾル粒子の周りの空気の相対湿度RHを制御できる装置を開発した (図(1)-3)。



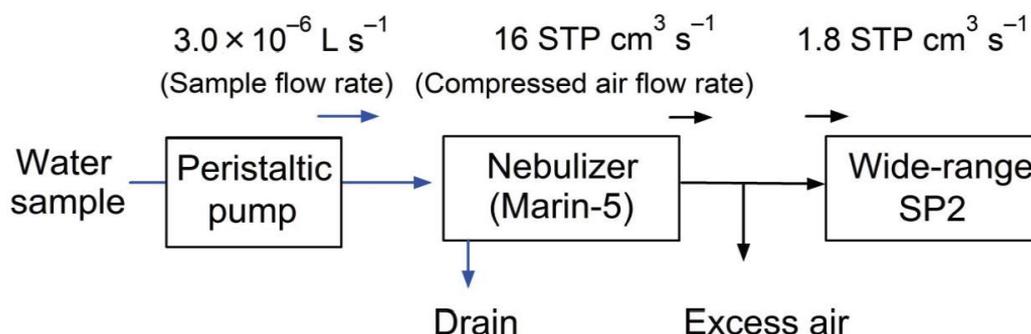
図(1)-3: BC-free粒子, BC含有粒子の吸湿能の測定手法

この装置によりBC含有粒子のBC粒径・全体粒径・吸湿パラメータ κ を測定することができ、これ

らの測定物理量にケーラー理論を適用することで個々のBC含有粒子の臨界過飽和度 S_c （雲粒へのなりやすさ）を求める事ができる。この装置による地上空気中のBC含有粒子の観測で、BCの粒径別数濃度と同時にBC粒径毎の臨界過飽和度の頻度分布を知る事ができる。

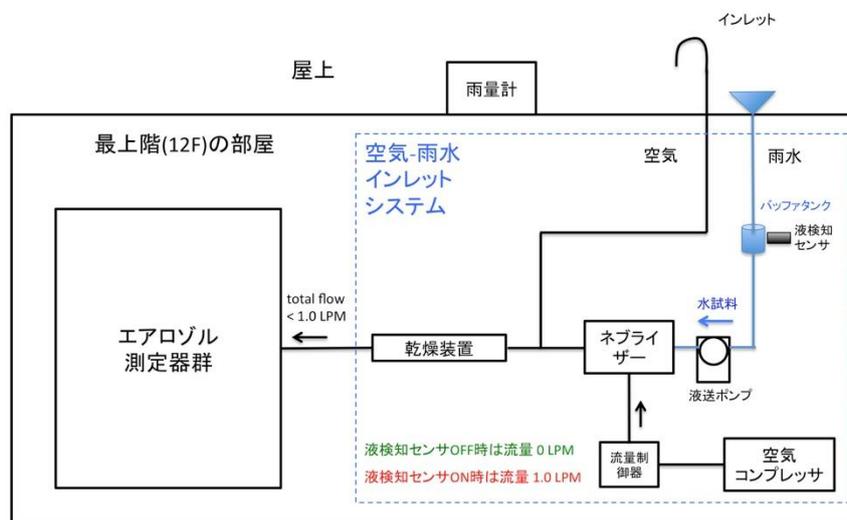
2) 降水中のBCの粒径別数濃度を観測する方法

降水試料中に分散するBC粒子の粒径別数濃度を測定するため、ネブライザー（噴霧装置）で降水試料をエアロゾル化し、レーザー誘起白熱法（SP2）で測定するシステム（図(1)-4）を考案し、理論的・実験的に最適な測定性能を発揮できるようにした。



図(1)-4：降水中のBCの粒径別数濃度の測定システム

さらに、地上空気中と降水試料中のエアロゾルを同時にリアルタイムで観測するため、東京大学理学部1号館の最上階（12F）と屋上に図(1)-5に示すような自動観測システムを設置した。



図(1)-5：大気中と降水中のエアロゾルの同時観測システム

この自動観測システムでは、降水が無いときは地上空気中のエアロゾルを測定し、降水中は雨水をネブライザーで噴霧乾燥し、降水試料中のエアロゾルを測定できる。

これらの観測方法論を、H26年度H27年度にそれぞれ東京と沖縄で実施した地上連続観測に適用し

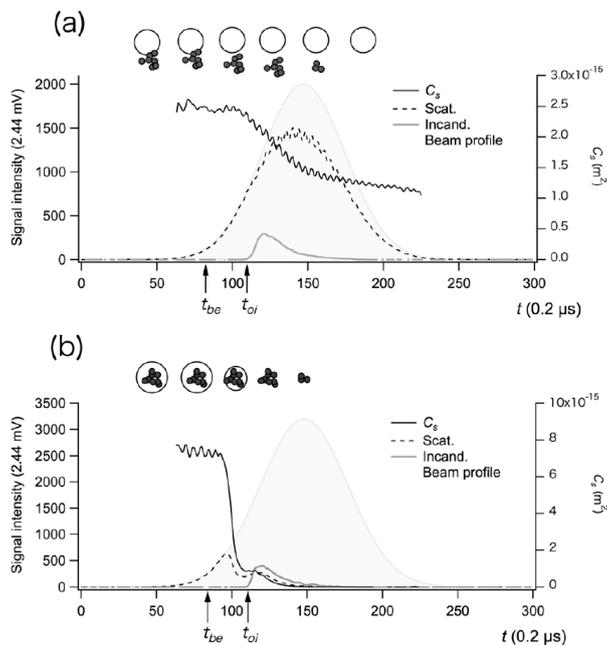
た（図(1)-6）。



図(1)-6: 東京の観測で用いた自動降水採取装置（東大本郷キャンパス理学部1号館:左）と沖縄の観測で用いた手動降水採取装置（沖縄県辺戸岬観測所：右）

（2）BCの混合状態の詳細を観測する方法

レーザー誘起白熱法（SP2）で計測される散乱信号波形を用いてBCの混合状態を、他のエアロゾル粒子にBC粒子が付着した形態（付着形態）と、他のエアロゾル粒子の内部にBC粒子が埋め込まれた形態（被覆形態）の二種類に選別する方法論を開発した。この方法は、BC含有粒子がレーザーを通過する最中の散乱断面積の時間変化が、上記2種の混合形態に依存して異なることを利用したものである。

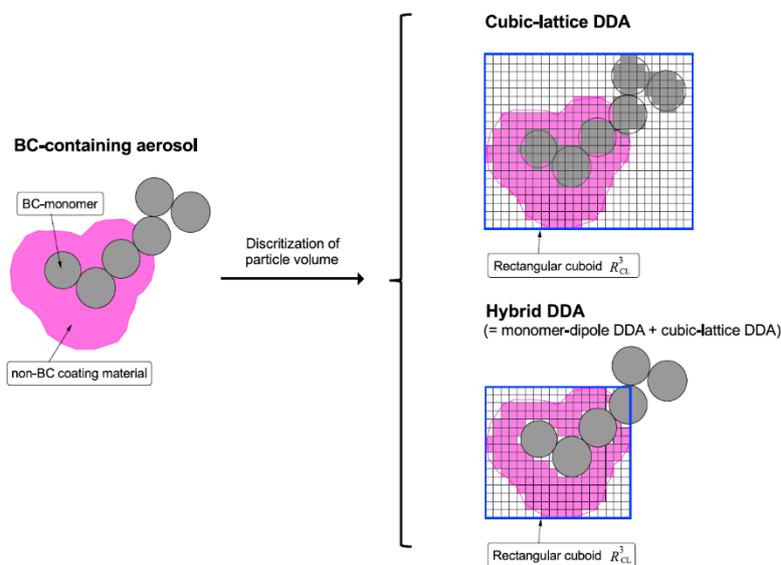


図(1)-7: BC含有粒子の形態とレーザー通過中の時間依存散乱断面積 $C_s(t)$

（3）BC含有粒子の光学特性を計算する方法

電子顕微鏡観察から、大気中のBC含有粒子は、多数の直径40nm程度のBC小球のフラクタル凝

集体に硫酸塩や有機物が被覆あるいは付着した極めて複雑な形態であることがわかっている。このような複雑形態のBC含有粒子の標準試料をBC質量と被覆量がともに既知の条件で実験的に生成することができないため、BC質量吸収断面積を実験から正確に決めることは一般に困難である。そのため、本研究では、任意の粒径・粒子形状・混合状態の条件下でBC質量吸収断面積を正確かつ高速に算出できる厳密な電磁波散乱計算法に、実大気中で観測された個々のBC含有粒子の粒径・粒子形状・混合状態の頻度分布のデータを入力して、現実大気におけるBC質量吸収断面積を算出する方法をとる。従来の非球形粒子のための代表的な電磁波散乱計算法である離散双極子法（Discrete Dipole Approximation: DDA）は、立方一様格子で粒子体積全体を離散化し、各々の離散体積要素を電気双極子とみなした上で、入射電磁波に励起される粒子体積内の電場（内部電場）を数値計算するものである。電磁波散乱の専門家の間では、DDAをBC含有粒子などの強い吸収性粒子に適用すると離散化形状誤差の影響により、吸収が系統的に過大評価されるという問題が知られていた。本研究では、この形状誤差の影響を回避するため、吸収性のBC小球部分の離散化を回避する方法「Hybrid DDA」を提案した（図(1)-8）。



図(1)-8: BC含有粒子の光学特性の計算法における体積離散化の模式図

さらに本研究では、Hybrid DDAにおいてBC小球を一個の電気双極子とみなすことに起因する誤差を緩和するため、小球内の電流の振動成分（電気双極子）だけでなく渦成分（磁気双極子）も同時に考慮する解法coupled electric and magnetic dipoles (CEMD)を採用した「Hybrid CEMD法」を開発した。

（４）BC削減時の放射強制力を計算する方法

本研究ではBCの雲・降水による除去過程や光吸収断面積に深くかかわるBCの混合状態を陽に表現した数値モデルATRASを、領域数値モデルWRF-chemをベースにサブテーマ（４）と共同で開発してきた（Matsui et al., 2014a）。このモデルは、微小エアロゾルの質量の半分程度を占める有機エアロゾルの生成については揮発性に基づく表現方法（VBS法）を採用するとともに（Matsui

et al., 2014b)、BC削減時の新粒子生成の増加を精度良く計算するために数ナノメートルからのエアロゾルを計算するアルゴリズムを実装している。モデル開発の詳細については、サブテーマ(4)において述べる。

本研究では発生源データとして、国際応用システム分析研究所 (IIASA) のECLIPS/GAINSモデルを採用した(Klimont et al., 2016)。まず2010年の発生源データを用いて、モデル計算の検証を実施した。本研究ではこの検証されたモデルを用いてBC削減時の大気上端での直接放射強制力の変化を調べた。IIASAのECLIPS/GAINSモデルでは、2050年の2度緩和シナリオ (世界エネルギー展望、WEO CO2 450ppmシナリオ) データと、2050年における最大可能技術のシナリオデータが提供されている。最大可能技術のシナリオというのは、現在すでに開発されているBC排出量の少ない科学技術を世界中の発生源に適用した場合という仮想的なシナリオである。例えば、薪や石炭を使用した家庭用調理器具を、最新のガスコンロで置き換えるなどである。本研究では、2050年の2度緩和シナリオ計算をベース計算とし、この最大可能技術のシナリオを用いて感度計算を実施した。このBC排出量データを用いた計算では、仮想的にBCのみを削減した場合の計算 (非現実的な計算) と、BC削減時にBCとともに放出されるBC以外の成分も同時に削減される現実的な計算結果の2つを行った。各BC発生源では、BC削減時にBCとともに排出される二酸化硫黄 (SO₂) や揮発性有機化合物 (VOC) も必然的に削減されてしまう。これらの成分は、大気中においてBCを含まない (光を吸収しない) エアロゾルを形成した場合には大気上端において負の放射強制力をもつため、その削減はかえって地球を温暖化する方向に働く。一方これらの成分はBCを被覆することによりレンズ効果 (光吸収断面積の増加効果) を生み出したり (正の放射強制量の増加)、BCの降水による除去効率を高めることにより特に発生源から離れた場所のBC量を減少させる (正の放射強制量の減少)。このため放射強制力の変化は非線形となり、その定量化には本研究で用いたような詳細なエアロゾルモデルが不可欠である。本研究ではエアロゾル削減時の直接放射強制力の変化量 (ΔDRF) を評価するために、Gahn(2013)にならない雲の変化などの影響を受けないような以下の評価方法を採用した。

BCのみ削減時

$$\Delta DRF_{BC} = (F_{2050_BC} - F_{2050_BC_clean}) - (F_{2050} - F_{2050_clean})$$

全てのエアロゾルを削減時

$$\Delta DRF_{all} = (F_{2050_all} - F_{2050_all_clean}) - (F_{2050} - F_{2050_clean})$$

ここでFは大気上端 (TOA) での上向き短波放射フラックスであり、各添え字の意味は下記のとおりである。

F2050	: 2050年ベース計算
F2050_clean	: 上記と同じ。ただし、エアロゾルの散乱・吸収を無視
F2050_BC	: 2050年の最大可能技術によるBCのみ削減時
F2050_BC_clean	: 上記と同じ。ただし、エアロゾルの散乱・吸収を無視
F2050_all	: 2050年の最大可能技術による全てのエアロゾルを削減時
F2050_all_clean	: 上記と同じ。ただし、エアロゾルの散乱・吸収を無視

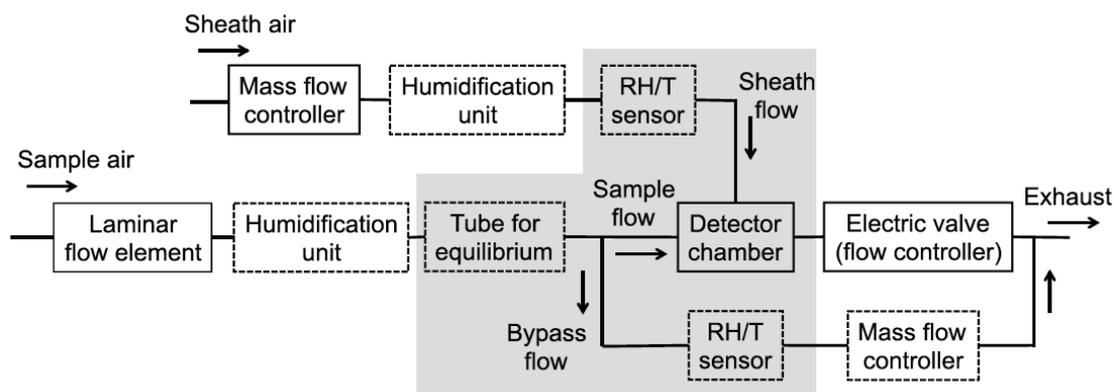
4. 結果及び考察

(1) BC含有粒子の除去効率の支配因子の観測

まず観測に必要な要素技術の開発成果について説明し、次に観測結果と考察を述べる。

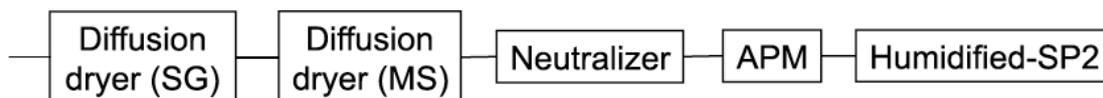
1) BC粒径別の被覆厚と被覆成分の吸湿性を観測する方法 (要素技術)

BC含有粒子の雲粒活性化のしやすさを定量評価するためには、被覆成分の量だけではなくその吸湿性を観測する必要がある。BCの被覆成分の吸湿性を直接観測するため、レーザー誘起白熱法による単一BC粒子測定装置(SP2)のサンプルエアーの湿度を制御し、吸湿状態におけるBC含有粒子の散乱断面積と、BCコア粒径を同時に測定できる装置 Humidified-SP2 (h-SP2) を開発した(図(1)-9)。



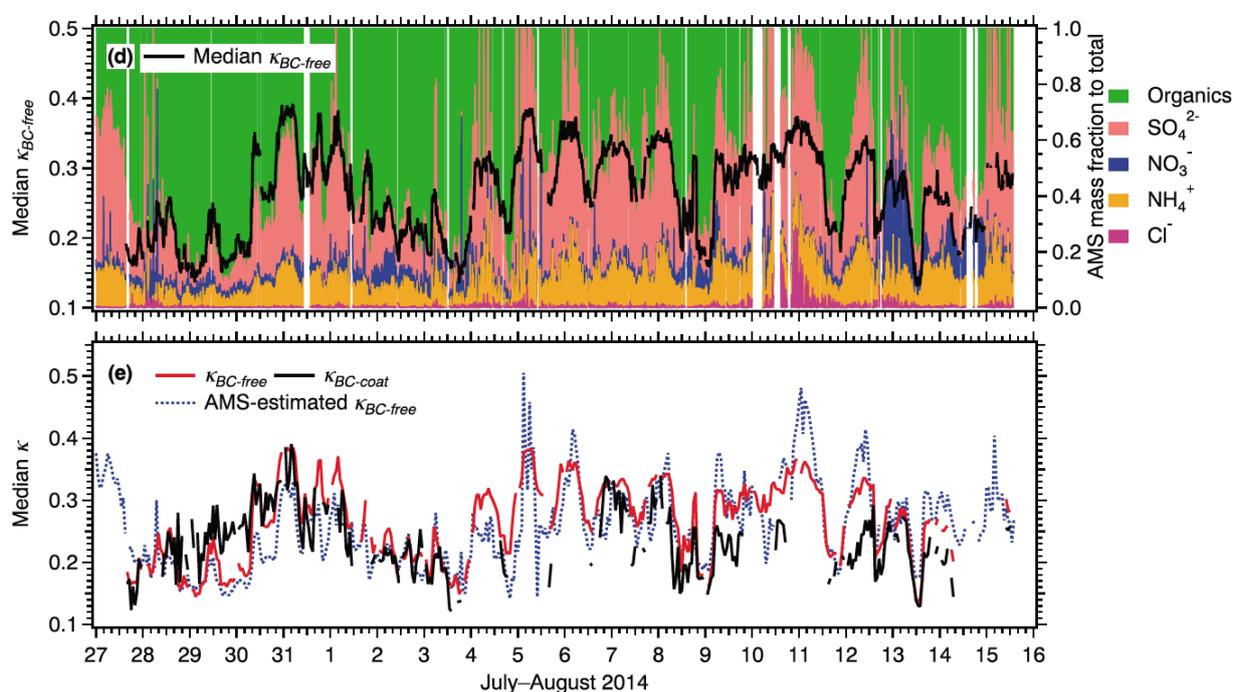
図(1)-9: 吸湿状態のBC含有粒子を測定するためのh-SP2の概略図

さらに、BCを含まない粒子(BC-free粒子)とBC含有粒子両者について、粒子全体の吸湿性を決める非BC成分の吸湿パラメータ κ の値を観測する方法を開発した(図(1)-10)。



図(1)-10: BCの被覆成分の吸湿パラメータを測定するシステム APM-h-SP2

この方法は、Humidified-SP2とエアロゾル質量分級装置(APM)を直列に接続し、乾燥状態の粒子質量が既知の条件下で、吸湿状態の粒径を測定するものである。上記の測定法を東京の大気観測に適用し、BC-free粒子、BC被覆成分の吸湿パラメータと、Q-AMS(サブテーマ3)によるBC以外のエアロゾル化学組成質量比の時系列データを取得した(図(1)-11)。

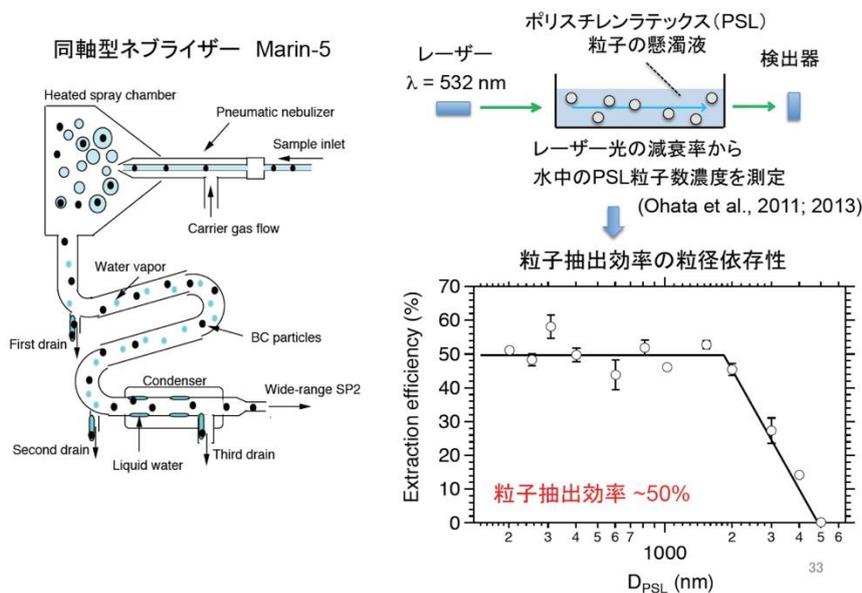


図(1)-11: 東京において観測した、BC-free粒子の吸湿パラメータとエアロゾル化学組成（上）と、吸湿パラメータの観測値と化学組成に基づいた推算値の比較。

この図の結果は、BC被覆成分の吸湿パラメータ κ はBC-free粒子の吸湿パラメータ κ とほぼ等しく、さらにその κ の値はエアロゾルのバルク化学組成から推算可能であることを示している。エアロゾルの内部混合が比較的進んでいない発生源近傍の東京でもこのような結果が得られたことから、エイジングが進んだ下流域あるいは発生源から遠方(すなわちグローバルにはほぼ全領域)のBC含有粒子では、ほぼ正確に被覆成分の吸湿性がバルク化学組成から推算可能であることを示唆するものである。この結果は、Q-AMS等によるバルク化学組成とSP2等による乾燥状態のBC被覆量の観測データさえあれば、ほぼ正確にBC含有粒子の吸湿性と雲凝結核能を予測できることを示すものである。これは、降水除去の支配要因の観測研究だけではなく、数値モデルにおける計算精緻化の設計や、検証のためにも重要な結果である。

2) 降水中のBCの粒径別数濃度を観測する方法 (要素技術)

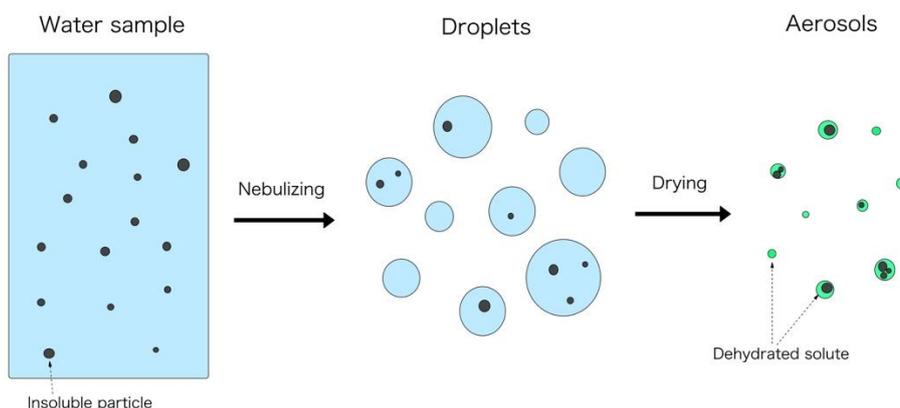
【実験】降水中のBCの粒径別数濃度を観測するために、ネブライザーで降水試料からBCをエアロゾルとして空气中に抽出したのち、単一粒子レーザー誘起白熱法でBCの粒径別数濃度を測定する。我々は、水中の数密度が既知のポリスチレンラテックス(PSL)粒子分散水を作成する方法を考案した。その方法で作成した濃度が既知のPSL粒子分散水の測定を行い、PSL粒径毎にネブライザーの粒子化効率を評価した (図(1)-12)。



図(1)-12: ネブライザーの粒子化効率の決定

本研究で用いるネブライザーMarin-5については、直径 $2\mu\text{m}$ 以下の粒子は粒子化効率が50%であり、直径 $2\mu\text{m}$ 以上の粒子では粒径の増大とともに粒子化効率が下がることが分かった。大気中・降水中では粒径が $2\mu\text{m}$ を超える大きなBC粒子はほとんどないため、降水中のBC粒径分布の観測は50%の一定粒子化効率で行えることが示された。

【理論】ネブライザーで噴霧される霧粒に複数のBC粒子が含まれる場合、その霧粒が乾燥するときに1つの大きなBC含有粒子となるため、空気中で観測されるBCの粒径分布は、水中における真の粒径分布よりも大きくなる傾向がある(図(1)-13)。この効果を正しく考慮した測定を行うために、霧粒の粒径別数濃度を実験的に決定しておき、その霧粒の粒径分布と観測される空気中のBCの粒径分布から、水中のBCの粒径分布を推定するためのインバージョンアルゴリズムを開発した(Moteki and Mori 2015)。このアルゴリズムの計算によれば、典型的な東京の雨水中のBC数密度(数十 $\mu\text{g L}^{-1}$ 以下)では、1つのMarin-5で生成される大きさの霧粒に複数のBC粒子が含まれる確率は小さく、空気中で観測されるBCの粒径分布と水中におけるBCの真の粒径分布との差は無視できる事が分かった。

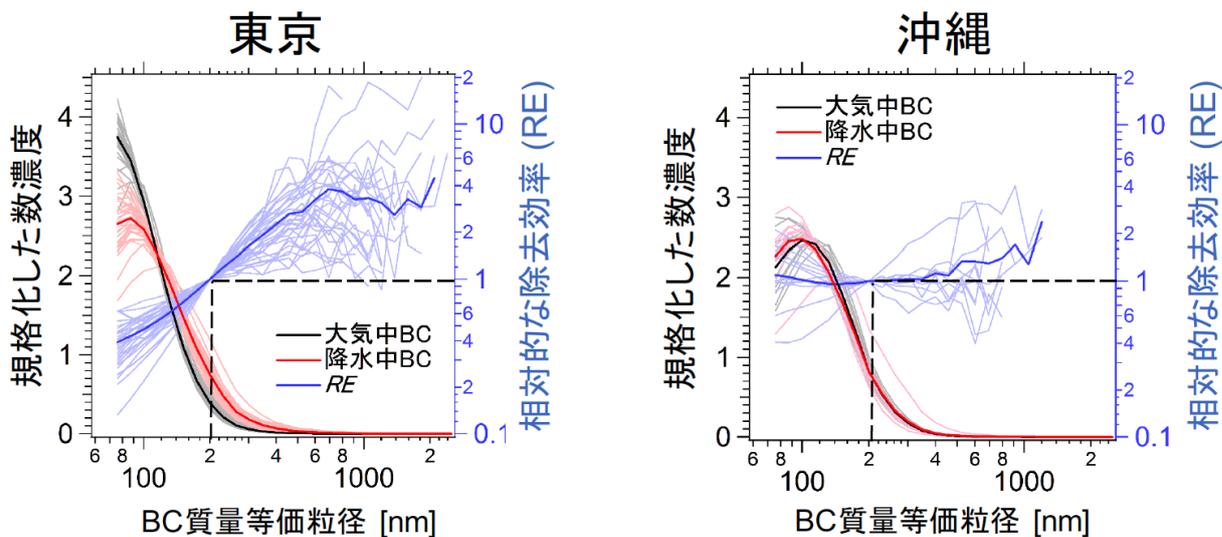


図(1)-13: ネブライザーによる粒子化に伴うBC粒径分布の変化

この理論研究により、ネブライザーを用いた方法により水中のBCの粒径分布を精密に測定できる事がしめされた。

3) BC含有粒子の除去効率の支配因子の観測 (観測結果)

東京と沖縄における地上観測で得られた、各降水イベントにおける大気中と降水中のBCの粒径分布と、そこから導出された湿性除去効率の粒径依存性図(1)-14に示した。

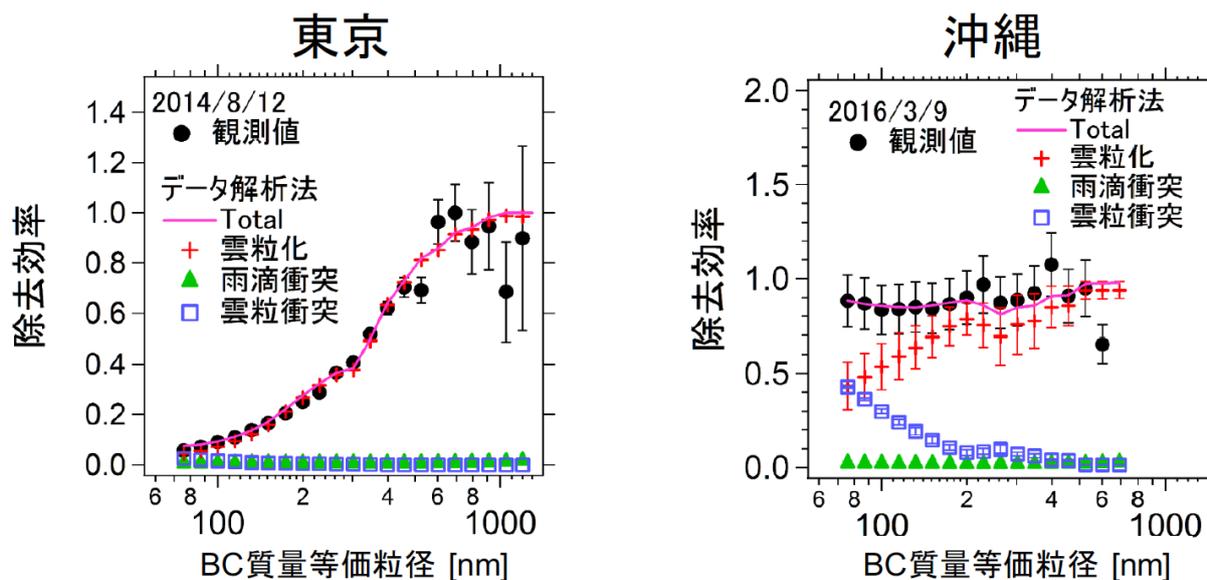


図(1)-14: 各降水イベントにおける大気中と降水中のBC粒径別数濃度と、その比によって定義されるBCの相対的な湿性除去効率の観測結果。細線は各々の降水イベントの結果、太線は全イベント平均結果を表す。

東京における除去効率が平均的に顕著な粒径依存性（大粒径ほど除去効率が大きい傾向）を持つのに対し、沖縄における除去効率は平均的に粒径依存性をほとんど持たないという観測結果が得られた。東京における湿性除去効率の粒径依存性はイベント毎のばらつきが大きいもののどのイベントでも粒径に対して単調増加する傾向が見られた、また沖縄においてもある1つの降水イベン

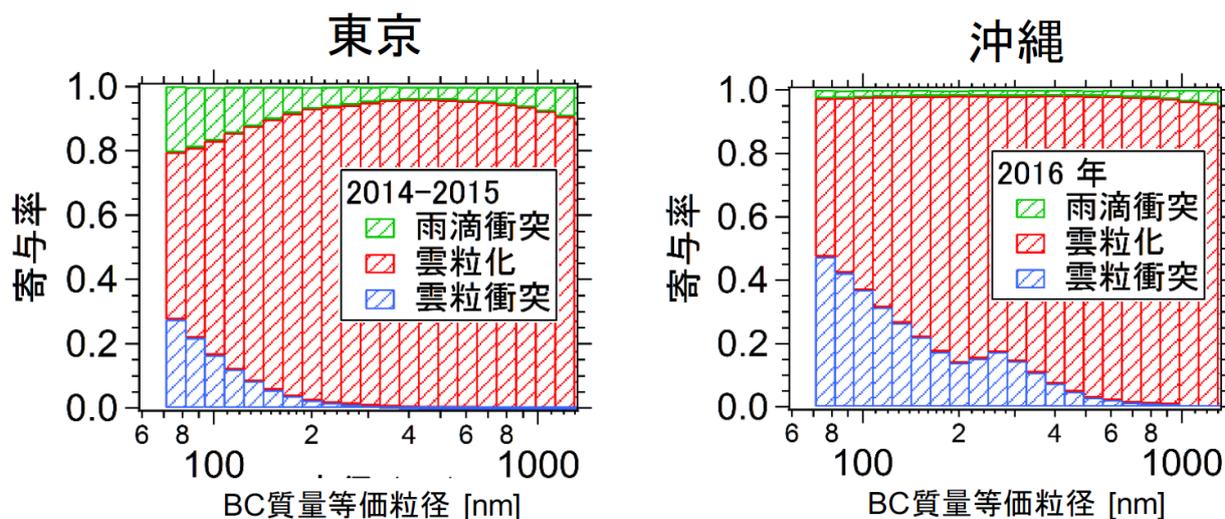
トでは、東京と同様の顕著な粒径依存性が見られた。

これらの観測された除去効率の粒径依存性に基づいて、除去されたBCが経験した水滴取り込みメカニズムの相対的寄与を、雲パーセルモデルを用いた独自のデータ解析法から見積もった。このデータ解析法では、地上空気中におけるBCや全エアロゾルの粒径別数濃度と化学組成の観測データ、BCの被覆量の観測データ、降水強度の観測データ、その他気温や水蒸気などの気象データを、BC含有粒子が経験しうる3つの水滴取り込みメカニズム（雲粒活性化、雲粒衝突、雨粒衝突）の理論式を考慮した雲パーセルモデルに入力し、BC除去効率の粒径依存性の観測値を最も良くモデルで再現できるような、上昇流速度と雲中滞在時間の2つのフリーパラメータを多数の試行錯誤計算により決定する。この2つのフリーパラメータが決定されたモデル条件における、雲粒活性化、雲粒衝突、雨粒衝突の3つの相対的寄与を調べた。図(1)-15に、東京、沖縄それぞれにおける、ある典型的な一つの降水イベントにおける解析結果を示す。両者ともに、観測された除去効率の粒径依存性を、3つの水滴取り込みメカニズムの寄与の和によってよく再現できていることがわかる。沖縄では粒径依存性がほとんどないため、粒径依存性の情報に基づいて上昇流速度と雲内滞在時間の2つのフリーパラメータを狭い範囲に制約することができない。そのため、図(1)-5において、データ解析結果のエラーバーが東京よりも沖縄の方が大きくなっている。



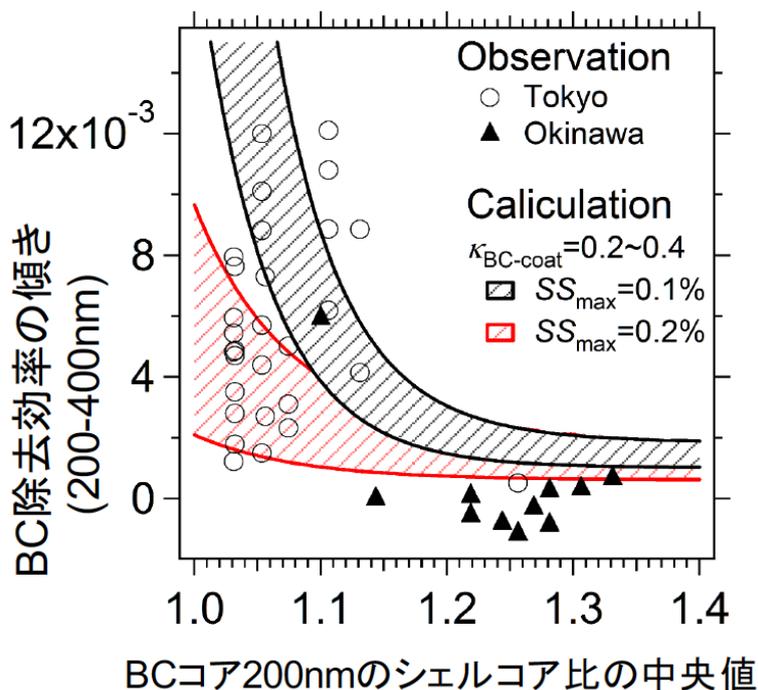
図(1)-15: 東京、沖縄それぞれにおける典型的な降水イベントで観測されたBC除去効率の粒径依存性と、雲パーセルモデルを用いたデータ解析から算出された各々の除去メカニズムの寄与割合

東京、沖縄それぞれにおける全降水イベントを平均した、各々の水滴取り込みメカニズムの寄与率のBC粒径依存性を図(1)-16に示した。この結果から、東京、沖縄いずれにおいても、大気中のBC質量の大部分を占める直径70-1000nmの粒径範囲におけるBCの主要な水滴取り込みメカニズムは、雲粒活性化であることがわかった。ただし、BC数濃度には大きく寄与する直径100nm以下のBCの除去には、雲粒活性化だけでなく、雲粒や雨滴との衝突も無視できない可能性が示唆された。



図(1)-16: 東京、沖縄それぞれの全降水イベントにわたる、各々の除去メカニズムの寄与率の平均値

BCの水滴取り込みメカニズムのうち雲粒活性化が支配的な条件下では、BC除去効率の粒径依存性の強さ（図(1)-4におけるREの傾き）が、湿性除去の度合いの指標となる。すなわち、粒径依存性が少ないほど、湿潤対流を経験する空気塊中のBC質量うち、除去される割合が大きいことを表す。以下に示すように、個々の降水イベントにおけるBC除去効率の傾きの大きさは、その降水イベントにの降水開始前に地上で観測されたBCの被覆の厚さに対してある明瞭な相関関係を持つことが明らかになった。図(1)-17に、東京、沖縄で観測された各々の降水イベントにおけるBC除去効率の傾き（BC直径200-400nm）とBC粒径200nmにおける被覆の厚さ（シェルコア比）の散布図を示した。BCの被覆がある値よりも厚い（図ではシェルコア比約1.15以上）の時は、東京と沖縄いずれにおいても除去効率の傾きがゼロに近いことがわかる。一方BCの被覆の厚さが薄い（シェルコア比約1.15未満）の時は、東京と沖縄いずれにおいても除去効率はゼロよりも大きく、イベント毎のばらつきが大きいことがわかる。



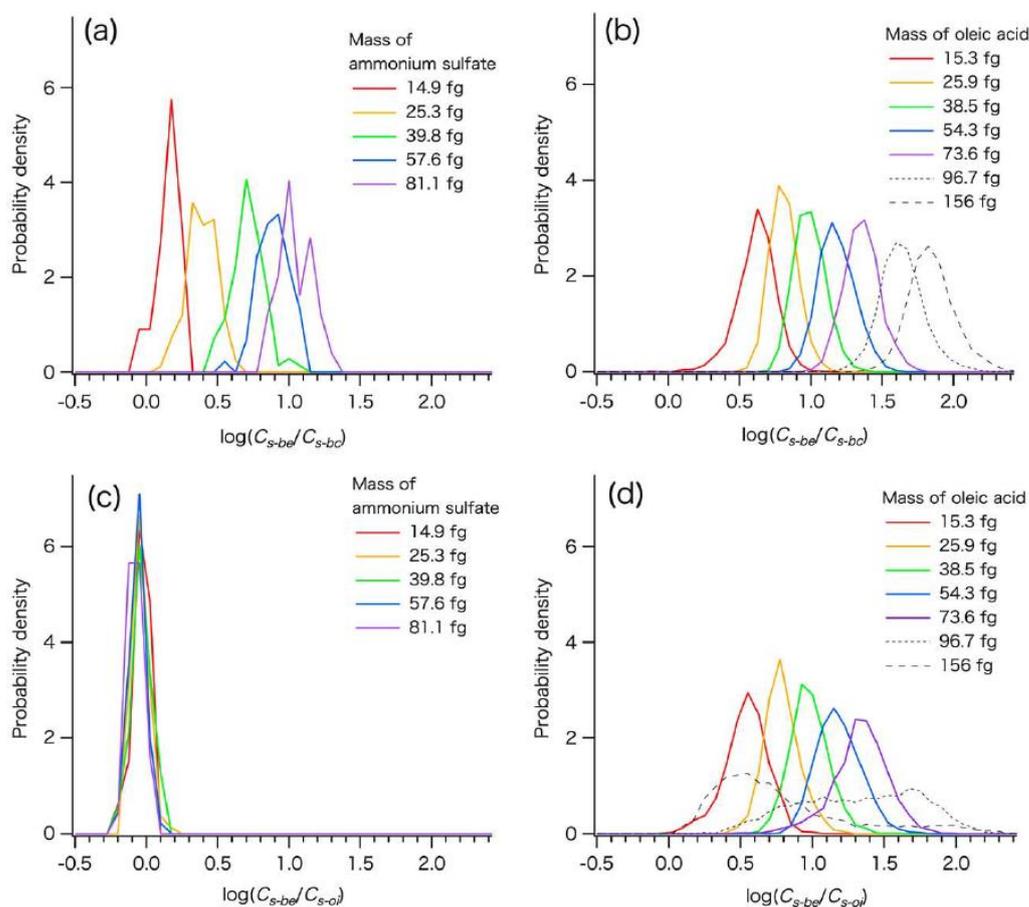
図(1)-17: 各降水イベントで観測された、BC除去効率の傾き（BC粒径依存性の強さ）とBCの被覆の厚さの中央値の散布図。雲粒活性化が支配的な除去メカニズムであるとし、雲中の最大過飽和度が0.1%または0.2%の条件下で被覆成分の吸湿性について現実的な範囲を仮定したときの理論値を帯状領域で示した。

図(1)-17には、水滴取り込みメカニズムが雲粒活性化のみであると仮定した場合のBC除去効率とシェルコア比の関係の理論曲線を重ねて表示した。この理論曲線は、BCコア直径200nmにおけるシェルコア比の中央値が約1.1～1.2程度よりも小さいようなBC被覆量では、BCの除去効率の傾きが一般に降水イベント毎に異なる最大化飽和度や被覆成分の吸湿性に依存した正の値をとるが、BC被覆量がそれよりも大きいと、最大化飽和度や被覆成分の吸湿性にほとんど依存せずにゼロに近い値をとることを表している。これらの理論曲線は、観測されたBC除去効率の傾きの値の分布のBC被覆量依存性をうまく説明するものである。

図(1)-17の結果は、湿潤対流を経験する空気塊中のBC質量除去効率は、BCコア直径200nmにおけるシェルコア比の中央値が約1.1～1.2程度よりも小さい発生源近傍のBCでは、雲中の最大化飽和度や被覆成分に依存した様々な値をとる一方、発生後ある程度エイジングが進み、BCコア直径200nmにおけるシェルコア比の中央値が約1.1～1.2程度よりも大きい被覆量をもつBCでは、最大化飽和度や被覆成分に依存せず、ほぼ全て除去されることを示している。本研究の結果から、気候モデルによるBCの湿性除去/鉛直輸送フラックスの予測性能を向上させるためには、エイジングが進んでいない（BCコア直径200nmにおけるシェルコア比の中央値が約1.1～1.2程度未満の）BCが多い発生源近傍においては、湿潤対流における最大化飽和度推定の精密化だけではなく、BCの被覆成分・被覆量のモデリングの精緻化も必要であることが示された。

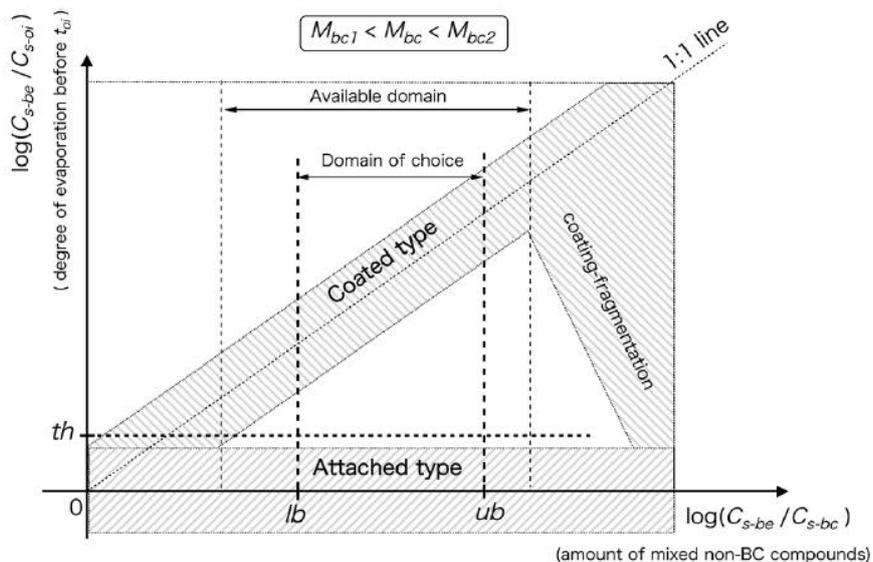
(2) BCの混合状態の詳細観測

単一粒子レーザー白熱法 (SP2) で測定される散乱信号を元にBCの混合状態を判別するためのアルゴリズムを開発するため、その元となる室内実験を行った。この実験では、被覆形態と付着形態それぞれの混合形態を持つBC含有粒子について、被覆体積あるいは付着粒子の体積、BC質量の全てを制御して発生できるシステムを構築し、被覆量や付着粒子の大きさに対して、散乱信号がどのように応答するかを詳細に調べた。特に、レーザー中に粒子が侵入してから蒸発を開始する前の散乱断面積 C_{s-be} 、粒子中に含まれるBCが白熱を開始する時点における散乱断面積 C_{s-oi} 、BC質量から経験的に推定したBC粒子そのものの散乱断面積 C_{s-bc} の3つの測定量に注目した。これら3つの測定量の比が、付着形態については付着粒子（硫酸アンモニウム粒子）の質量、被覆形態については被覆物質（オレイン酸）の質量を変えた時にどのように応答するかを調べた結果を図(1)-18に示す。



図(1)-18: 人工的に発生させたBC含有粒子について、SP2で計測された散乱断面積の比の頻度分布

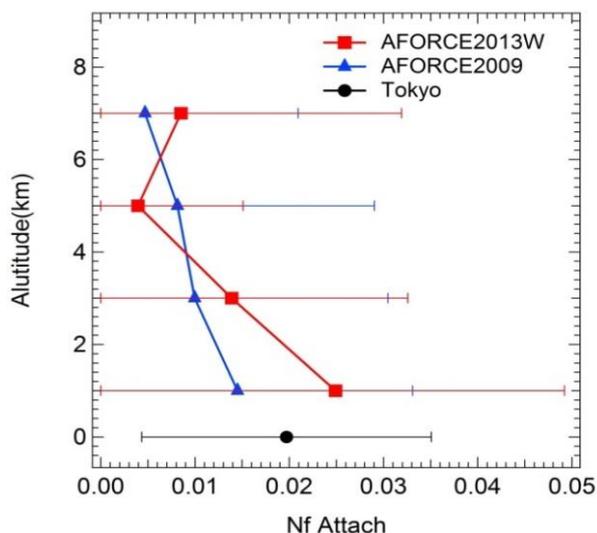
この実験結果を元に、BC含有粒子を被覆形態(coated type)と付着形態(attached type)に判別するためのアルゴリズムを開発した。そのアルゴリズムの模式図を図(1)-19に示した。ハッチのかかった部分は、BC含有粒子が観測されうる領域である。



図(1)-19: SP2で測定される散乱断面積の情報から、BC含有粒子の混合状態を判別するアルゴリズム。

この模式図によれば、ある適した範囲の (C_{s-be}/C_{s-bc}) の値を持つBC含有粒子については、適当な (C_{s-be}/C_{s-oi}) の値の閾値を設けることで、被覆形態と付着形態を曖昧さなく互いに判別できることを示している。本研究では、実大気中のBC含有粒子でこれら2形態を判別できることを確認した。

図(1)-20は、過去に行われた東アジア上空の航空機観測AFORCE2009, 2013と、今回のBC-CARE Tokyoにおいて観測されたNf_Attachの平均値を示した。



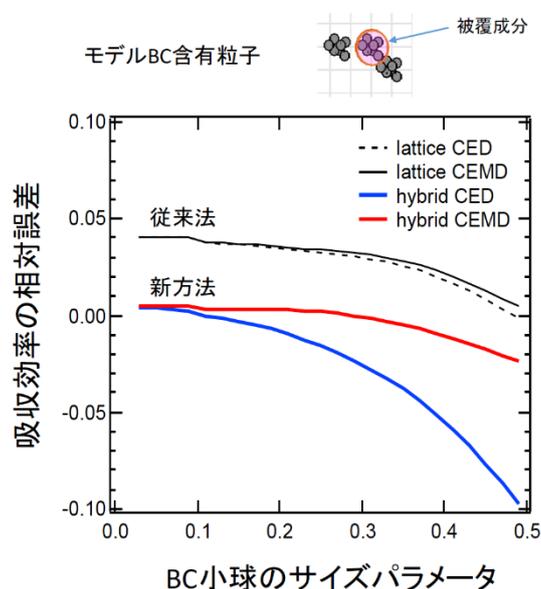
図(1)-20: 付着形態BC数割合(Nf Attach)の高度分布 (平均値±標準偏差)

これは $D_{BC-core} = 200 \text{ nm}$ かつ他成分の体積割合がある程度大きなBC含有粒子についての結果であ

る。実大気中のBC含有粒子では付着形態は2~3%程度であることがわかった。この観測結果から、数値モデルの放射計算においてBCと他のエアロゾルが内部混合を考慮する場合、被覆形態を仮定することが現実的であることが示された。

(3) 個々の複雑形状のBC含有粒子の光学特性を高精度計算

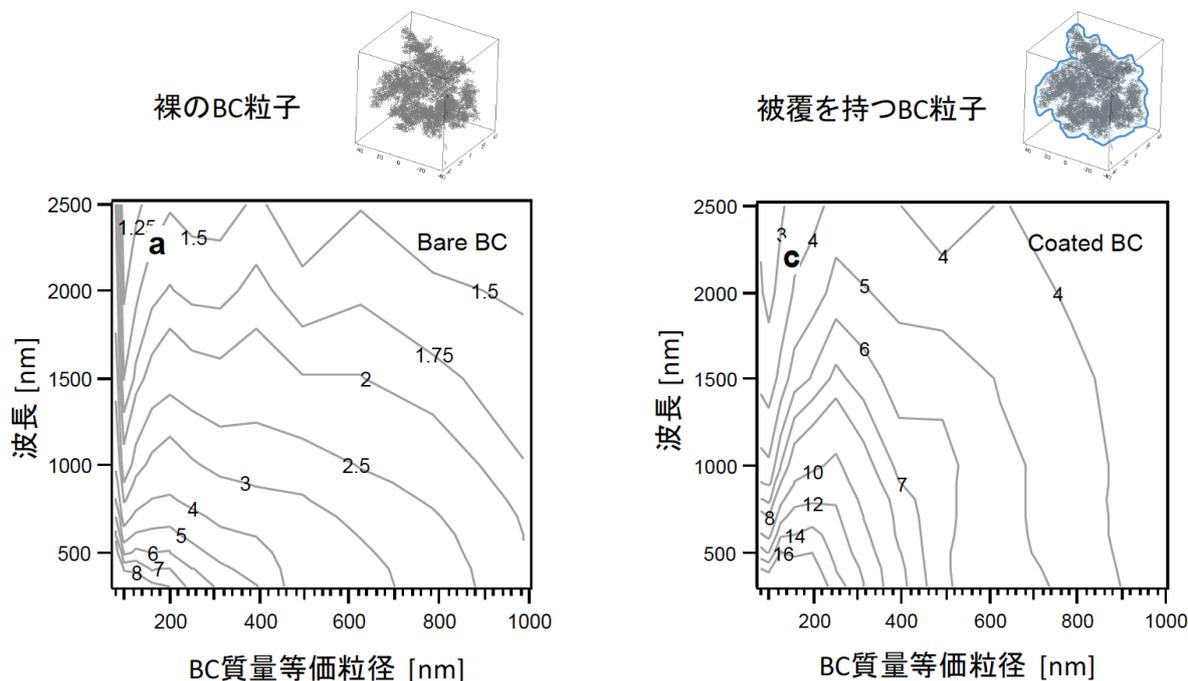
開発した離散双極子法の精度を評価するため、Superposition T-matrix法による散乱問題の厳密解が存在する球のみからなる幾何学形状をもつモデルBC含有粒子についてベンチマーク計算を行った(図(1)-21)。この図では、一様立方格子による離散化で電気双極子のみを考慮した通常のDDA解法(lattice CED)と電気・磁気双極子を考慮した解法(lattice CEMD)、Hybrid離散化で電気双極子のみ考慮した場合(hybrid CED)と電気・磁気双極子を考慮した場合(hybrid CEMD)の計4通りのDDA計算法について、吸収効率の厳密解に対する相対誤差を示した。ここでは一様立方格子の格子間隔はBC小球直径の1/5とした。



図(1)-21: 図中のモデルBC含有粒子について計算した吸収効率の、離散双極子法の厳密解に対する相対誤差のサイズパラメータ依存性

横軸はモデルBC含有粒子の波長に対する相対的スケールであり、モデル粒子を構成するBC小球のサイズパラメータである。従来のDDAで採用されていた一様立方格子による離散化(lattice CED, lattice CEMD)では、サイズパラメータがゼロに近づく長波長極限でも吸収効率は厳密解に収束せず、一定の正の系統誤差が残る。図には示していないが、この長波長極限の系統誤差の大きさは離散化格子間隔に強く依存する。これは強い吸収性物質からなる粒子について例外なく起こる従来のDDA法の原理的問題である。一方、本研究で考案したHybrid離散化(lattice CED, lattice CEMD)では、長波長極限における系統誤差が解消している。CEMD(赤線)はCED(青線)にくらべ、サイズパラメータの増大ともなう誤差の増加が抑制されている事がわかる。図(1)-8に例示されたように、新たに開発した「Hybrid CEMD」は、任意のBC含有粒子について、従来のDDA法に比べて広い波長領域にわたり安定な精度で吸収特性を計算できると考えられる。

Hybrid CEMD法を用いて、現実的なフラクタル凝集体形状のBC含有粒子の質量吸収断面積 $[m^2/g]$ を、大気放射において重要な範囲のBC質量等価粒径と光波長にわたり計算した結果を図(1)-22に示した。



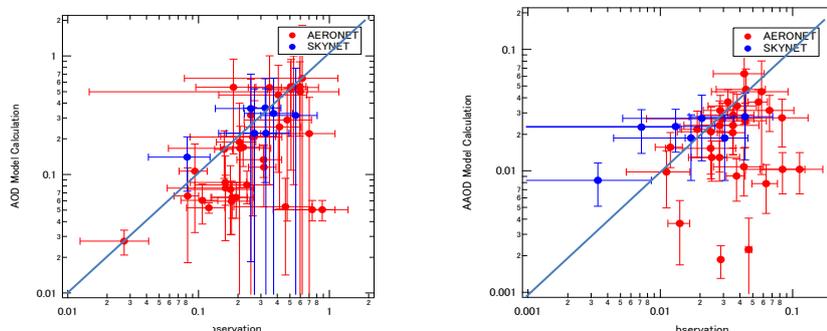
図(1)-22: 新たに開発したHybrid CEMD法で計算された、BC含有粒子の質量吸収断面積 $[m^2/gBC]$ 。直径40nmのBC小球のフラクタル次元2.8の凝集体を仮定した。裸の場合（左）と、東アジア上空における観測値と同程度の厚さの被覆を持つ場合（右）。

裸のBC粒子に比べ、東アジア上空における観測値と同程度に厚い被覆を持つBC含有粒子は、全ての粒径と波長領域において2倍程度大きな質量吸収断面積を持つことが示された。このような波長・粒径・混合状態に依存したこれまでにない詳細な質量吸収断面積のデータを用いることにより、気候モデルにおけるBCによる大気加熱率計算や、吸収性エアロゾルのリモートセンシングアルゴリズムの精度向上が期待される。

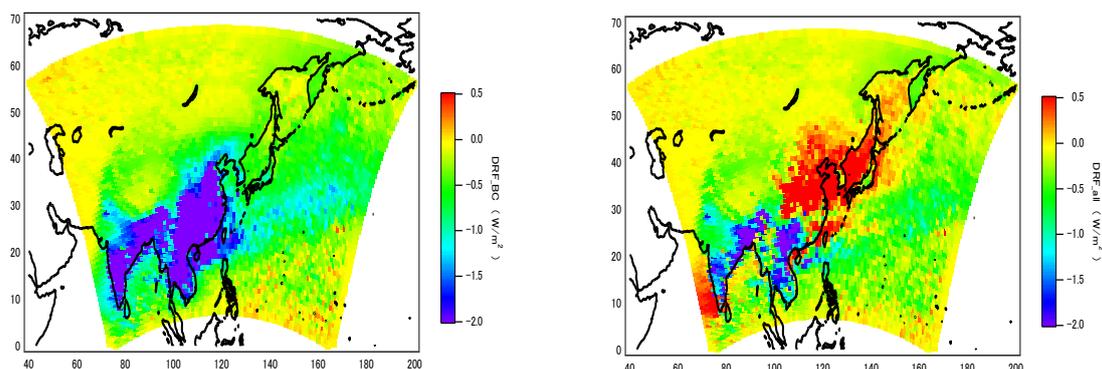
(4) 数値モデルを用いたBC削減時の放射強制力の変化予測

IIASAのECLIPS/GAINSの2010年の発生源データを用いて、本研究で開発されたエアロゾルモデルATRASで計算されたBCなどのエアロゾルの計算を検証した。この結果、2009年4月に黄海・東シナ海で実施されたA-FORCE-2009航空機観測（Oshima et al., 2012, 2013, Matsui et al., 2013）で得られたBCの平均的な高度分布や、BCの降水除去の比率の指標である輸送効率を、比較的よく再現できていることが確認できた。BC濃度の絶対値は発生源データにも依存する量であるが、輸送効率は基本的にモデルで表現されたプロセスのみに依存する物理量であり、その妥当性を確認することができた。また地上の放射観測ネットワークであるアメリカ航空宇宙局（NASA）のAERONETや日本が主体となったSKYNETとの比較をアジア域における観測を対象として実施した結果、微小エアロゾルの光学的厚み（AOD）と微小エアロゾルの光吸収の光学的厚み（AAOD）ともに2009年4月平均で35%程度で一致することがわかった（図(1)-23）。多くのグローバルモデルは時期などは異なるもののアジアに

におけるAERONETのAAODを1/3から1/6しか説明できないということが報告されているが（Bond et al., 2013）、本研究で開発されたエアロゾルモデルと本研究で採用した発生源データでは、より観測と整合的であることが確認された。



図(1)-23: 数値モデル計算結果と、AERONETおよびSKYNET放射観測で得られた微小エアロゾルの光学的厚み（AOD、左図）と微小エアロゾルの光吸収の光学的厚み（AAOD、右図）との比較。



図(1)-24: 本研究で開発されたエアロゾルモデルATRASで計算された、BC削減時のエアロゾル直接放射強制力の変化量。仮想的にBCのみを削減した場合の計算結果（左）と、BC削減時にともに放出されるBC以外の成分も同時に削減される現実的な計算結果（右）。

この検証された数値モデルを用いて、BC削減時のエアロゾル直接放射強制力の変化量を計算した。図(1)-24には、BC削減時のエアロゾル直接放射強制力の変化量を示した。仮想的にBCのみを削減した計算においては、エアロゾル全体としての光吸収量が減少することから、正の放射強制力を減少させる（温暖化を抑制する）ことが分かる。一方において現実には、BC削減時にはその排出源から排出されるBC以外のエアロゾル成分やその前駆気体も削減されることになる。この効果を総合的に評価すると、中国北部などを中心にBC削減時にはむしろ正の放射強制力が増加する領域が見られることが明らかとなった。今回計算した領域全体で見ると正の放射強制力が減少する領域の方が広く、またその減少量の絶対値も大きい。この結果、10-45N 70-150Eの領域全体で評価すると正の放射強制力を -0.31 W m^{-2} 減少させることが明らかとなった。この減少量は仮想的にBCのみを削減した場合の -1.14 W m^{-2} の1/3程度であった。これは限定された領域での2009年4月というテストケースでの評価ではあるが、BCの排出量削減が温暖化対策としてある程度有効である一方、削減がBCのもつ大きな放

射強制力をそのまま減少させるわけではないことを示している。このことは、BC削減シナリオを行政レベルで検討する時にきわめて重要である。

このような行政レベルでのBC削減効果についてより現実的に評価するために、BC発生源ごとにBCのみの削減とBC以外の成分も含めた削減の両方の計算を実施した。この結果、民生（residential and commercial）が、BC以外の成分も削減される現実的な計算においても正の放射強制力を削減する有効な方策であることが明らかとなった（表(1)-1）。一方、輸送（surface transportation）は、BCを削減するとエアロゾル全体ではむしろ正の放射強制力を増加させることがわかった。これらは発生源ごとのBCとBC以外の成分との発生量の比率などによるものと思われる（Matsui and Koike, 2016）。本研究により家庭の調理器具などの近代化などがBC削減による地球温暖化対策として有効である可能性が示唆された。

表(1)-1: 各種発生源の削減時における放射強制力の変化(2009年4月 10-45N 70-150E) ($W m^{-2}$)

	BCのみを削減	BCとともに排出される成分も削減
全て削減	-1.14	-0.31
民生（residential and commercial）のみ削減	-0.52	-0.37
輸送（surface transportation）のみ削減	-0.21	+0.75
工業（industry combustion and processing）のみ削減	-0.06	+0.03
発電所（Power plants, energy conversion, extraction）のみ削減	+0.01	+0.21
バイオマス燃焼（open biomass burning）のみ削減	-0.09	-0.06

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

BC質量濃度の空間分布の数値シミュレーションにおける大きな不確実要因であった湿潤対流における鉛直輸送/湿性除去過程について、BCの除去効率の支配要因を初めて観測的に明らかにした。雲粒活性化のプロセスが輸送/除去の割合を支配していることが示された。特に、エンジンが進んでいない発生源近傍におけるBCでは、除去効率が被覆量・被覆成分に依存して大きく変わることが示唆された。本結果から、発生源近傍におけるBCの被覆量と被覆成分の物理化学過程の計算精緻化が、湿潤対流に伴う鉛直輸送/湿性除去フラックスの予測精度向上につながることを期待される。さらに、BCを含むエアロゾルのうち、付着形態は被覆形態に比べ無視できるくらい少ないことを観測的に示し、現実的な形態のBC含有粒子の光学特性の高精度計算法を開発した。このことにより、今後、数値モデルにおいてBCの湿性除去過程の計算精度を上げるためには、雲粒活性化を支配する（1）雲の中での最大過飽和度と（2）BC含有粒子の雲凝結核能を決める被覆量と被覆成分の計算を精緻化することが重要であることが示された。このことはBCの放射強制力やBC排出量の削減効果の定量化のためには、BCの混合状態を陽に表現可能な詳細なエアロゾルモデルを用いる必要があることを示している。

多くのグローバルモデルは、アメリカ航空宇宙局（NASA）の地上の放射観測ネットワークであるAERONETのアジアにおけるエアロゾルの光吸収の光学的厚み（AAOD）を1/3から1/6しか説

明できないということが報告されている。この原因として、放射観測からのAAOD推定そのものの不確定性やBCの発生源の不確定性もあると考えられるが、本研究ではグローバルモデルでは表現できない詳細なBCの混合状態とその降水除去や光吸収特性影響を表現した数値モデルを使った研究により、アジアのAAODは平均で35%程度で一致することがわかった。このことは、現在のグローバルモデルのBC混合状態の扱いに大きな不確定性があることを示している。またBCのみを削減した計算と、BC削減時にその発生源から同時に排出される他のエアロゾル成分（前駆気体）も同時に削減する現実的な計算により、放射強制力が大きく変化することが明らかとなった。これはBC以外のエアロゾルを総合的に評価することの重要性を示すとともに、大気化学反応やエアロゾルの物理化学過程の非線形的な相互作用も正確に計算することの重要性を示すものである。

（2）環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

特に記載すべき事項はない。

<行政が活用することが見込まれる成果>

計画全体として、大気エアロゾルの雲生成・降水過程への影響を評価するための基本的知見を提供した。また現在のグローバルモデルでは表現できない詳細なエアロゾルモデルにより、BC削減時の放射強制力の総合的な評価は、今後の行政で活用が見込まれる。

- BCは二酸化炭素、メタンについて3番目に大きな正の放射強制力をもつため、その排出量削減は有効な温暖化対策となる可能性がある。本研究では、現在のグローバルモデルでは表現できない詳細なエアロゾルモデルを使った本研究の計算により、BC排出量の削減がBCのもつ大きな正の放射強制力をそのまま減少させるわけではないが、BC削減が温暖化対策としてある程度有効であることが明らかとなった。正の放射強制力の減少量がBCのもつ放射強制力よりも小さくなってしまうのは、BC削減時に同じ発生源から発生する他の無機・有機エアロゾル（やその前駆気体）も同時に削減され、負の放射強制力も減少してしまうからである。また発生源別の計算の結果、民生（residential and commercial）が、BC以外の成分も削減される現実的な計算においても正の放射強制力を削減する有効な方策であることが明らかとなった。これらの結果は、BC削減シナリオを行政レベルで検討する時にきわめて重要である。
- 2015年9月29日から10月1日にフィンランドのヘルシンキ大学で開催されたPACES（air Pollution in the Arctic: Climate, Environment and Societies）国際ワークショップ（IGAC/IGBP）に招待され出席した。極域気候変動に影響を及ぼす短寿命気候汚染物質（SLCP）に関する研究を国際的に推進していく中で、本研究の成果を生かして日本が積極的に関与することにより、行政で活用が見込まれる科学的成果のとりまとめが期待される。この計画には北極評議会（Arctic Council; AC）が深く関わっており、同時期に開かれた「ブラックカーボンとオゾンの気候影響の評価報告書」を作成する北極評議会の会議（AMAP, Arctic Monitoring and Assessment Programme会議）にも参加した。この報告書では北極評議会加盟国を中心に、ブラックカーボンなどの排出量削減のための勧告の科学的基礎となる内容であり、今後の日本の行政においても検討が必要となる可能性がある。
- 2016年2月27日から28日にアイスランドのレイキャビクのアメリカ大使館で開催された「北極評

議会 第1回ブラックカーボン及びメタン専門家会合（EGMCM, Expert Group on Black Carbon and Methane）」に外務省、環境省、文部科学省の要請と承認を経た上で出席した。アメリカ、カナダ、デンマーク、フィンランド、アイスランド、ノルウェー、ロシア、スウェーデン、AAC, ACAP, フランス、イギリス、イタリア、日本、ポーランド、韓国、スペイン、EU、ACから28名の代表が出席した。この会議の主目的は「ブラックカーボン、メタンの排出削減に関するこれまでの知見・理解のまとめと、AC国を中心とする削減実施の勧告を含む内容の報告書

（Summary of Progress and Recommendations）を取りまとめることであった。この文書を作成するという点においては、参加者の合意に達した。会議では文書の形式や内容について詳細な議論がなされた。AC国やオブザーバー国の役割についての議論も項目ごとに行われた。削減に関するオブザーバー参加国の責務については今後の議題とした。このようにSLCPの気候・健康影響評価や削減の方策についての国際的な取り組みが進行する中で、本推進費で得られた成果により日本が国際貢献することができた。この報告書は、2017年4月のArctic Council Ministerial MeetingにおいてSAO（Senior Arctic Officials）が各国大臣に提出済みとのことであり、今後、日本の行政においても検討される見込みである。

6. 国際共同研究等の状況

- ・本研究で得られた成果や実績に基づき、北極評議会のブラックカーボンとメタンの専門家グループ（Expert Group on Black Carbon and Methane (EGBCM)）会議に、日本の代表として出席した。この会議の主目的は「ブラックカーボン、メタンの排出削減に関するこれまでの知見・理解のまとめと、北極評議会の国々を中心とする削減実施の勧告を含む内容の報告書（Summary of Progress and Recommendations）を取りまとめることである。報告書作成においては、本研究で得られた知見に基づいて、ブラックカーボンの移動発生源（mobile sources of black carbon）の執筆に大きく貢献した。また本研究で得られた成果や実績に基づき、北極評議会の北極モニタリング・アセスメント・プログラム（Arctic Monitoring and Assessment Programme）への今後の積極的な貢献が求められた。
- ・エアロゾルの数値モデル計算では、国際応用システム分析研究所（IIASA）のKlimont博士との共同研究によりBCなどの排出量データを提供いただいた。
- ・台湾国立大学と共同で、台湾のLulin山の頂上にある大気観測所（高度約3 km）でブラックカーボンの濃度を連続的に測定した。春季に東南アジアのバイオマス燃焼により発生したブラックカーボンが輸送されて、この地域でブラックカーボンの濃度が毎年増大することを見出した。また同じ場所でアメリカの大気海洋庁のグループが別の方法でブラックカーボンの測定を行ったので、両方の観測を比較した。
- ・国立極地研究所は北極科学サミット週間（ASSW）2015の開催に主導的役割を果たした。これは、国際北極科学委員会（IASC）の主催、日本学術会議の共同主催で、2015年4月23日から30日の間、富山国際会議場（富山市）で世界27カ国から708名の参加のもと開催された。ASSWは毎年開催される北極科学に関する世界最大のイベントであり、日本での開催は初めてであった。前半の4日間IASCなどの諸委員会の会合が開かれ各分野での今後の研究課題や北極研究の推進に関する議論のみならず、北極における科学研究の社会への貢献のあり方や、重要性の高い研究課題を国際協力により推進する方策などの議論が活発に行われた。ここで、推進費の研究で開発された大

気中及び降水中のブラックカーボンの測定法と、北極での測定結果について2件の報告を行い、多くの研究者の注目を集めた、交流を深めた。

- ・国立極地研究所は「第6回極域科学シンポジウム」を2015年11月16日（月）～11月19日（木）に、開催した。「北極温暖化増幅とその影響 —GRENE 北極気候変動プロジェクトと新しい方向性—」をテーマに特別セッションを設定した。ここでも、小池、近藤らは推進費の研究で開発された大気中及び降水中のブラックカーボンの測定法と、北極での測定結果について2件の報告を行い、北極の気候に及ぼすブラックカーボンの影響についての最新の知見を発表し、多くの研究者と議論した。
- ・国立極地研究所は2016年2月26日に「エアロゾル—雲相互作用に関する研究会」を開催した。この研究集会には、エアロゾル—雲相互作用に関して、様々な異なるアプローチ（現地観測、衛星観測、室内実験、数値実験など）で取り組んでいる研究者が集まり、これまでの各々の研究をわかりやすく解説し、意見交換を行なった。推進費で行ったアジアでの航空機観測による研究から中国で排出されたブラックカーボンが自由対流圏に効率よく輸送されるためには、水蒸気量の比較的少ない冬季の対流活動による上方輸送が重要であるとの結果を始めて示した。またアジアのブラックカーボンが北極に運ばれる経路についても議論を行った。エアロゾルの気候影響の研究を活発に行っている中堅研究者との交流を深め、推進費研究を発展させる重要な機会となった。
- ・イギリスのマンチェスター大学と共同でブラックカーボンの測定法の比較とアジアから北極に輸送される経路に関する共同研究を行った。研究成果は2017年に国際誌に出版された。
- ・これまで観測で得られたブラックカーボンを含むエアロゾルのデータをデータアーカイブとして整備する国際共同研究に参加してきた。このデータベースはイギリスのリーズ大学が中心となってアメリカ、ドイツ、スイス、スウェーデンを含む10の研究機関のエアロゾルなどのデータを収録し広く公開するものである。これを通して関連する我々のデータは一般に公開された。またこのデータベースに関する論文がアメリカ気象学会誌BAMSで印刷中である。
- ・2016年の5-6月にNASAを中心とするアメリカと韓国の研究機関が韓国で大型の航空機観測を実施した。東京大学・国立極地研究所のグループはこの観測に主に地上観測を中心にアメリカの大気海洋庁（NOAA）と共同で参加した。2017年2月にはNOAAの研究者が東京大学を訪問し、取得されたデータの解析を議論した。
- ・2016年よりフィンランドの環境省の環境研究所のKaarle Kupiainen博士とEGBCMの報告書の作成を通してブラックカーボンの排出インベントリーや規制に関する議論を継続してきた。Kupiainen博士を2017年2月に日本に招聘し、日本とフィンランドの2国間の共同研究に合意した。今後ブラックカーボンに関する共同研究について6月に関係者の会合を持つことになった。
- ・2017年2月に東京でフィンランド大使館の主催で日本とフィンランドの2国間の科学協力に関する集まりがあった。ブラックカーボンを含むエアロゾルの研究をフィンランドの環境省と協力して進めることについての議論を行い、今後、環境研究においてフィンランドと連携していくことを確認した。

7. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<論文（査読あり）>

- 1) M. KOIKE, N. MOTEKI, K. PRADEEP, T. TAKAMURA, N. TAKEGAWA, Y. KONDO, H. MATSUI, A. SHIMIZU, and N. SUGIMOTO: *J. Geophys. Res. Atmos.*, 119, 122-136 (2014), Case study of absorption aerosol optical depth closure over the East China Sea
- 2) N. MOTEKI, Y. KONDO, and K. ADACHI: *J. Geophys. Res. Atmos.*, 119, 1031-1043 (2014), Identification by single-particle soot photometer of black carbon particles attached to other particles: Laboratory experiments and ground observations in Tokyo
- 3) H. MATSUI, M. KOIKE, Y. KONDO, A. TAKAMI, J. D. FAST, Y. KANAYA, and M. TAKIGAWA: *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 9513-9535 (2014), Volatility basis-set approach simulation of organic aerosol formation in East Asia: implications for anthropogenic-biogenic interaction and controllable amounts
- 4) T. MORI, Y. KONDO, S. OHATA, N. MOTEKI, H. MATSUI, N. OSHIMA, and A. IWASAKI: *J. Geophys. Res. Atmos.*, 119, 10485-10498 (2014), Wet deposition of black carbon at a remote site in the East China Sea
- 5) H. MATSUI, M. KOIKE, Y. KONDO, J. D. FAST, and M. TAKIGAWA: *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 10315-10331 (2014), Development of an aerosol microphysical module: Aerosol Two-dimensional bin module for foRmation and Aging Simulation (ATRAS)
- 6) B. H. SAMSET, G. MYHRE, H. HERBER, Y. KONDO, S. LI, N. MOTEKI, M. KOIKE, N. OSHIMA, J. P. SCHWARZ, Y. BALKANSKI, S. E. BAUER, N. BELLOUIN, T. K. BERNTSEN, H. BIAN, M. CHIN, T. DIEHL, R. C. EASTER, S. J. GHAN, T. IVERSEN, A. KIRKEVÅG, J.-F. LAMARQUE, G. LIN, X. LIU, J. E. PENNER, M. SCHULZ, Ø. SELAND, R. B. SKEIE, P. STIER, T. TAKEMURA, K. TSIGARIDIS, and K. ZHANG: *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 12465-12477 (2014), Modeled black carbon radiative forcing and atmospheric lifetime in AeroCom Phase II constrained by aircraft observations
- 7) N. TAKEGAWA, N. MOTEKI, N. OSHIMA, M. KOIKE, K. KITA, N. OSHIMA, A. SHIMIZU, N. SUGIMOTO, and Y. KONDO: *J. Geophys. Res.*, 119, 13474-13488 (2014), Variability of aerosol particle number concentrations observed over the western Pacific in the spring of 2009
- 8) M. IRWIN, Y. KONDO, and N. MOTEKI: *J. Aerosol Sci.*, 80, 86-97 (2015), An empirical correction factor for filter-based photo-absorption black carbon measurements
- 9) N. MOTEKI, and T. MORI: *J. Aerosol Sci.*, 83, 25-31 (2015), Theoretical analysis of a method to measure size distributions of solid particles in water by aerosolization
- 10) Y. Kondo: *Monogr. Environ. Earth Planets*, 3, 1-85 (2015), Effects of black carbon on climate: Advances in measurement and modeling
- 11) L. M. ZAMORA, R. A. KAHN, M. J. CUBISON, G. S. DISKIN, J. L. JIMENEZ, Y. KONDO, G. M. MCFARQUHAR, A. NENES, K. L. THORNHILL, A. WISTHALER, A. ZELENYUK, and L. D. ZIEMBA: *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 715-738 (2016), Aircraft-measured indirect cloud effects from biomass burning smoke in the Arctic and subarctic
- 12) S. OHATA, J. P. SCHWARZ, N. MOTEKI, M. KOIKE, A. TAKAMI, Y. KONDO: *J. Geophys. Res.*, 121, 362-381 (2016), Hygroscopicity of materials internally mixed with black carbon measured in Tokyo
- 13) A. YOSHIDA, N. MOTEKI, S. OHATA, T. MORI, R. TADA, P. DAGSSON-WALDHAUSEROVÁ, and Y. KONDO : *Aerosol Sci. Technol.* 50, i-iv (2016), Detection of light-absorbing iron oxide particles using a modified single-particle soot photometer
- 14) T. MORI, N. MOTEKI, S. OHATA, M. KOIKE, K.G.-AZUMA, Y. MIYAZAKI, and Y. KONDO: *Aerosol Sci. Technol.*, 50, 242-254 (2016), Improved technique for measuring the size distribution of black carbon particles in liquid water
- 15) T. MIYAKAWA, Y. KANAYA, Y. KOMAZAKI, T. MIYOSHI, H. NARA, A. TAKAMI, N. MOTEKI, M. KOIKE, and Y. KONDO: *Aerosol and Air Quality Res* 16: 1603–1614, (2016), Emission regulations altered the concentrations, origin, and formation of carbonaceous aerosols in the Tokyo Metropolitan Area
- 16) N. MOTEKI : *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.*, 178, 306-314 (2016), Discrete dipole approximation for black carbon-containing aerosols in arbitrary mixing state: A hybrid discretization scheme
- 17) Y. KONDO, N. MOTEKI, N. OSHIMA, S. OHATA, M. KOIKE, Y. SHIBANO, N. TAKEGAWA, and K. KITA: *J. Geophys. Res. Atmos.*, 121, doi:10.1002/2015JD024479 (2016), Effects of wet deposition on the abundance and sizedistribution of black carbon in East Asia
- 18) M. KOIKE, N. ASANO, H. NAKAMURA, S. SAKAI, T. M. NAGAO and T. Y. NAKAJIMA: *J. Geophys. Res. Atmos.*, 121, doi:10.1002/2016JD025375 (2016), Modulations of aerosol impacts

on cloud microphysics induced by the warm Kuroshio Current under the East Asian winter monsoon

- 19) H. MATSUI and M. KOIKE: *J. Geophys. Res. Atmos.*, 121, 7161–7171, doi:10.1002/2015JD024671 (2016), Enhancement of aerosol responses to changes in emissions over East Asia by gas-oxidant-aerosol coupling and detailed aerosol processes
- 20) K. ADACHI, N. MOTOKI, Y. KONDO, Y. IGARASHI: *J. Geophys. Res. Atmos.*, doi:10.1002/2016JD025153 (2016), Mixing states of light-absorbing particles measured using a transmission electron microscope and a single-particle soot photometer in Tokyo, Japan
- 21) Y. KANAYA, X. PAN, T. MIYAKAWA, Y. KOMAZAKI, F. TAKETANI, I. UNO, and Y. KONDO: *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 10689 - 10705 doi:10.5194/acp-16-10689-2016 (2016), Long-term observations of black carbon mass concentrations at Fukue Island, western Japan, during 2009–2015: constraining wet removal rates and emission strengths from East Asia
- 22) S. OHATA, N. MOTOKI, T. MORI, M. KOIKE, Y. KONDO: *Scientific Reports*, 6, 34113; doi: 10.1038/srep34113 (2016), A key process controlling the wet removal of aerosols: new observational evidence
- 23) H. MATSUI and M. KOIKE: *J. Geophys. Res. Atmos.*, 121, 7161–7171, doi:10.1002/2015JD024671 (2016), Enhancement of aerosol responses to changes in emissions over East Asia by gas-oxidant-aerosol coupling and detailed aerosol processes
- 24) 塚川佳美、東久美子、近藤豊、杉浦幸之助、大畑祥、森樹大、茂木信宏、小池真、平林幹啓、Remi Dallmayr: *雪氷*, 78, 6, (2016), アラスカ積雪中のブラックカーボンの緯度分布
- 25) 三隅良平、岩崎杉紀、道端拓朗、竹見哲也、山下克也、佐藤陽祐、當房豊、大畑祥、橋本明弘、折笠成宏、田尻拓也、村上正隆: *天気*, 63, 11, (2016), 第17回国際雲・降水会議 (ICCP2016) の報告
- 26) N. MOTOKI, K. ADACHI, S. OHATA, A. YOSHIDA, T. HARIGAYA, M. KOIKE, and Y. KONDO: *Nature Communications*, doi:10.1038/ncomms15329, (2017), Anthropogenic iron oxide aerosols enhance atmospheric heating
- 27) C. L. REDDINGTON, K. S. CARSLAW, P. STIER, N. SCHUTGENS, H. COE, D. LIU, J. ALLAN, J. BROWSE, K.J. PRINGLE, L.A. LEE, M. YOSHIOKA, S.J. JOHNSON, L.A. REGAYRE, D. V. SPRACKLEN, G. W. MANN, A. CLARKE, M. HERMANN, S. HENNING, H. WEX, T. B. KRISTENSEN, W. R. LEITCH, U. POESCHL, D. ROSE, M. O. ANDREAEE, J. SCHMALT, Y. KONDO, N. OSHIMA, J. P. SCHWARZ, A. NENES, B. ANDERSON, G. C. ROBERTS, J. R. SNIDER, C. LECK, P. K. QUINN, X. CHI, A. DING, J. L. JIMENEZ and Q. ZHANG : *Bull. Amer. Meteor. Soc.* doi:10.1175/BAMS-D-15-00317.1 (2017), THE GLOBAL AEROSOL SYNTHESIS AND SCIENCE PROJECT (GASSP) Measurements and modelling to reduce uncertainty

<査読付論文に準ずる成果発表>

特に記載すべき事項はない。

<その他誌上発表（査読なし）>

特に記載すべき事項はない。

(2) 口頭発表（学会等）

- 1) 森樹大、近藤豊、茂木信宏、大畑祥、松井仁志、岩崎綾、友寄喜貴、嘉手納恒：日本地球惑星科学連合2014年大会 (2014) 「夏季の沖縄県辺戸岬における降水中のブラックカーボン粒子濃度の支配要因」
- 2) 森樹大、近藤豊、茂木信宏：第20回大気化学討論会 (2014) 「水中に分散したブラックカーボン粒子の粒径分布の測定法の研究」
- 3) 大島長、田中泰宙、小池真、茂木信宏、近藤豊：第31回エアロゾル科学・技術研究討論会 (2014) 依頼講演 「ミクロから全球スケールまでのブラックカーボンのモデル研究」
- 4) 足立光司、財前祐二、茂木信宏、小池真、近藤豊：第31回エアロゾル科学・技術研究討論会 (2014) 「東アジアにおける航空機を使ったエアロゾル観測 (AForce) プロジェクト

で得られた試料の電子顕微鏡分析」

- 5) 松井仁志、小池真、近藤豊、高見昭憲、金谷有剛、滝川雅之：日本地球惑星科学連合2014年大会(2014) 「VBS法を用いた有機エアロゾルモデルの開発と検証：アジア域における人為・自然起源の相互作用」
- 6) 松井仁志、小池真、近藤豊、高見昭憲、金谷有剛、滝川雅之：日本気象学会2014年度春季大会(2014) 「アジア域の有機エアロゾル生成の人為・自然起源相互作用:VBSモデルの開発と検証」
- 7) Y. KANAYA, H. MATSUI, F. TAKETANI, X. PAN, Y. KOMAZAKI, K. IKEDA, K. YAMAJI, Z. WANG, L. CHANG, D. KANG, A. TAKAMI, H. TANIMOTO, and Y. KONDO: 13th Quadrennial ICACGP Symposium & 13th IGAC Science Conference on Atmospheric Chemistry (2014) “Mass concentrations of organic aerosol and PM2.5 in East Asia reproduced by using volatility base-set approach in the WRF-Chem model”
- 8) 大畑祥、茂木信宏、森樹大、小池真、高見昭憲、近藤豊：日本気象学会2015年度春季大会(2015)「大気・降水同時観測によるブラックカーボン湿性除去の研究」
- 9) 茂木信宏：日本気象学会2015年度春季大会(2015)「ブラックカーボン含有粒子の光学特性の高精度計算法」
- 10) 茂木信宏、青木大佳：日本気象学会2015年度春季大会(2015)「不純物粒子を含む水雲の光学特性の高精度・高速な近似計算法」
- 11) 大島長、田中泰宙、神代剛、川合秀明、出牛真、小池真、茂木信宏、近藤豊：日本気象学会2015年度春季大会(2015)「全球モデルによるブラックカーボンの変質過程とその空間分布と放射効果への影響」
- 12) 大島長、田中泰宙、神代剛、川合秀明、出牛真、小池真、茂木信宏、近藤豊：日本地球惑星科学連合2015年大会(2015)「ブラックカーボンの変質過程が全球規模のその空間分布と放射効果に及ぼす影響」
- 13) N. OSHIMA, T. Y. TANAKA, T. KOSHIRO, H. KAWAI, M. DEUSHI, M. KOIKE and Y. Kondo : 14th Aero Com Workshop, 2015 “Impact of black carbon aging on its spatial distribution and radiative effect using a MRI global aerosol model”
- 14) N. OSHIMA, T. Y. TANAKA, T. KOSHIRO, H. KAWAI, M. DEUSHI, M. KAJINO, and M. KOIKE : The 13th International Conference on Atmospheric Sciences and Applications to Air Quality (ASAAQ13), 2015 “Impact of the micro-scale aging process of black carbon on its global-scale spatial distribution and radiative effect”
- 15) 大島 長、田中泰宙、神代 剛、川合秀明、出牛 真、小池 真、茂木信宏、近藤 豊：日本地球惑星科学連合2015年大会(2015)「ブラックカーボンの変質過程が全球規模のその空間分布と放射効果に及ぼす影響」
- 16) 大畑祥、茂木信宏、森樹大、小池真、高見昭憲、近藤豊：日本地球惑星科学連合2015年大会(2015)「東京におけるブラックカーボン含有粒子の吸湿特性と湿性除去の測定」
- 17) 森樹大、大畑祥、茂木信宏、近藤豊：日本地球惑星科学連合2015年大会(2015)「水中に含まれるブラックカーボン粒子の測定法の確立と東京地上観測」
- 18) 茂木信宏：日本地球惑星科学連合2015年大会(2015) “Volume Integral Equation Method Optimized for Black Carbon-Containing Aerosol Particles”
- 19) N. MOTOKI: Electromagnetic & Light Scattering XV 2015, Leipzig, Germany, 2015 “Improved volume integral equation method for computing optical properties of black carbon-containing aerosol particles”
- 20) Y. KONDO, P. R. SINHA, M. KOIKE, and J. UKITA : ISAR-4, Toyama, Japan, 2015 “Effects of black carbon on the climate of the Arctic - Current studies and future planning -”
- 21) P. R. SINHA, Y. KONDO, J. OGREN, A. JEFFERSON, M. KOIKE : ISAR-4, Toyama, Japan, 2015 “Seasonal variations of black carbon and aerosol optical properties over Barrow in the Arctic”
- 22) Y. KONDO and M. KOIKE : 1st PACES Workshop, Helsinki, Finland, 2015 “Aerosol and Cloud Observations during ArCS”

- 23) Y. OGAWA, K. GOTO-AZUAMA, K. SUGIURA, Y. KONDO, S. OHATA, T. MORI, N. MOTEKI, M. HIRABAYASHI, and H. ENOMOTO : The 6th symposium on polar science, National Institute of Polar Research, Tokyo, Japan, 2015 “Spatial variations of black carbon and insoluble particles in snow in Alaska”
- 24) P. R. SINHA, Y. KONDO, J. OGREN, A. JEFFERSON, M. KOIKE: The 6th symposium on polar science, National Institute of Polar Research, Tokyo, 2015 “Spatial variations of black carbon and insoluble particles in snow in Alaska, Multi-year measurements of black carbon aerosol over Barrow and Ny-Alesund in the Arctic”
- 25) T. MORI, N. MOTEKI, S. OHATA, M. KOIKE, K. GOTO-AZUMA, Y. MIYAZAKI, and Y. KONDO : AGU fall meeting, San Francisco, USA, 2015 “Improved technique for measuring the size distribution of black carbon particles in rainwater and snow samples”
- 26) S. OHATA, J. P. SCHWARZ, N. MOTEKI, M. KOIKE, A. TAKAMI, and Y. KONDO : AGU fall meeting, San Francisco, USA, 2015 “Hygroscopicity of materials internally Mixed with black carbon measured in Tokyo”
- 27) 金谷有剛、宮川拓真、竹谷文一、駒崎雄一、潘小樂、近藤豊：第56回大気環境学会年会（2015）「長崎県福江島での長期連続観測からみたBC/CO比：起源地域と降水の影響」
- 28) 宮川拓真、金谷有剛、竹谷文一、駒崎雄一、Pan Xiaole, 近藤豊：第56回大気環境学会年会（2015）「ブラックカーボンの輸送に対する湿性沈着過程の影響—2015年春季の福江島での大気観測から事例解析—」
- 29) 近藤 豊、中緯度から北極へのエアロゾルの輸送と降水除去、国立極地研究所・研究集会（2016）「エアロゾル-雲相互作用」
- 30) P.R. SINHA, Y.KONDO, M. KOIKE, S. OHATA, N. MOTEKI, T. MORI, K. AZUMA, and Y. TSUKAGAWA, GRENE 研究報告会, 2016 “Measurement of refractory black carbon mass concentrations in falling and deposited snow in the Arctic”
- 31) N. OSHIMA, T. Y. TANAKA, T. KOSHIRO, H. KAWAI, M. DEUSHI, and M. KOIKE : Goldschmidt 2016, 2016 “Aging processes of black carbon and its impact on the global-scale radiative forcing”
- 32) K ADACHI, N MOTEKI, Y KONDO, Y IGARASHI : American Geophysical Union 2016 Fall Meeting, 2016 “Mixing States of Light-absorbing Particles Measured Using a Transmission Electron Microscope and a Single-particle Soot Photometer in Tokyo, Japan”
- 33) 森樹大、大畑祥、茂木信宏、小池真、近藤豊：日本地球惑星科学連合大会（2016）「ブラックカーボン粒子の湿性除去過程の観測的研究」
- 34) 小池真、新野宏：日本地球惑星科学連合2016年大会（2016）「航空機観測による気候・地球システム科学研究の推進」
- 35) S. OHATA, N. MOTEKI, T. MORI, M. KOIKE, and Y. KONDO: International Conference on Clouds and Precipitation 2016, Manchester, UK, 2016 “Wet removal of black carbon aerosols controlled by their cloud condensation nuclei activity”
- 36) Y. Kanaya, F. Taketani, X. Pan, T. Miyakawa, Y. Komazaki, I. Uno, Y. Kondo: 14th IGAC Science Conference 2016, Colorado, USA, 2016 “Observations of atmospheric black carbon mass concentrations from East Asia to the open oceans: Constraining emission strengths and wet deposition rates”
- 37) 小池真、高橋暢宏、日本気象学会2016年度秋季大会（2016）「航空機観測による気候・地球システム科学研究の推進：気象学会の研究計」
- 38) M. KOIKE, M. SHIOBARA, AND J. UKITA : Japan-AWI workshop, University of Tokyo, Japan, 2016 “Cloud microphysics measurements in Ny-Alesund and relationship with aerosols”
- 39) M. KOIKE, S. MORIMOTO, M. TAKIGAWA, and ARCS ACFA SCIENCE TEAM : The 7th symposium on polar science, National Institute of Polar Research, Tokyo, Japan, 2016 “Research activities on atmospheric climate forcers in the Arctic”
- 40) A. YOSHIDA, N. MOTEKI, S. OHATA : American Geophysical Union Fall Meeting 2016, San Francisco, USA, 2016 “Classification and Quantification of light-absorbing iron oxide particles using a modified single-particle soot photometer”

(3) 知的財産権

特に記載すべき事項はない。

(4) 「国民との科学・技術対話」の実施

- ・2014, 2015, 2016年 東京大学オープンキャンパスにてブラックカーボン測定器などの展示し、推進費の研究成果などについてわかりやすく解説を実施
- ・東京大学オープンキャンパスにて講演「地球温暖化とエアロゾル:微粒子は気候を変えるのか?」
2014年8月6日、高校生を中心に約70名が聴講
- ・東京大学主催、高校生のための春休み講座2014講演、地球温暖化とエアロゾル、2014年4月3日、高校生を中心に約50名が聴講
- ・私立西武学園文理小学校にて講演、科学者の使命と高い志 -子供達が生きる21世紀の地球は-、
2014年5月31日、小学生、約100名が聴講
- ・東京大学主催、高校生のための東京大学オープンキャンパス2014講演、地球温暖化とエアロゾル、
2014年8月7日、高校生約70名が聴講
- ・私立西武学園文理高等学校にて講演し推進費の研究成果などについてわかりやすく解説、地球温暖化とエアロゾル、
2014年11月1日、高校生約100名が聴講
- ・一般公開シンポジウム「PM2.5の実態と健康影響・気候影響」第26回東京大学環境安全研究センターシンポジウム、
2016年12月20日、約80名が聴講

(5) マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項はない。

(6) その他

近藤豊 日本学士院賞受賞 (平成27年度)

8. 引用文献

特に記載すべき事項はない。

(2) エアロゾル混合状態とグローバルモデルによる評価

国土交通省気象庁気象研究所	環境・応用気象研究部	第四研究室	五十嵐 康人
国土交通省気象庁気象研究所	環境・応用気象研究部	第一研究室	大島 長
国土交通省気象庁気象研究所	環境・応用気象研究部	第四研究室	足立 光司

< 研究協力者 >

国土交通省気象庁気象研究所	環境・応用気象研究部	第四研究室	梶野 瑞王
国土交通省気象庁気象研究所	予報研究部	第四研究室	財前 祐二

平成26～28年度累計予算額：25,322千円（うち、平成28年度予算額：8,450千円）

予算額は、間接経費を含む。

[要旨]

【エアロゾルの電子顕微鏡分析】2014年夏に東京で行われた集中観測、また2016年3月に沖縄県辺戸岬で行われた集中観測に参加し、それぞれ約3週間にわたり連続的に電子顕微鏡分析用の試料採取を行った。また、過去に行った東アジアでの飛行機観測や東京や能登での地上観測、海外のバイオマス燃焼観測キャンペーンや南米アマゾン地域で採取した試料を本推進費研究に活用する目的で分析・解析した。その結果、ブラックカーボン（BC）を含む光吸収性エアロゾルの挙動を明らかにした。Adachi et al. (2016)¹⁾では、東京都市大気におけるBCなどの個数濃度や混合状態に関する変化を詳細に解析した。その結果、BCの個数濃度や混合状態は気象条件に大きく左右され、特に弱風状態で濃度が上がり、オキシダント濃度の上昇とともにBCが他エアロゾル成分に被覆され内部混合する過程が進むことが分かった。また、降雨直後には被覆のないBC濃度が上昇した。これらの結果は、電子顕微鏡による1万個を超える粒子組成解析とSingle particle soot photometer（SP2）の組み合わせによって得たものである。また、BCに加えて光吸収性酸化鉄粒子の存在とその量的変化も明らかとなった。Ueda, Adachi et al. (2016)²⁾では、日本海側の観測サイトで得られたBCの挙動と被覆による光吸収性の変化を解析した。その結果、被覆が多いほどBCの光吸収効率が高くなるが、加熱による揮発では有機物の一部が残留し、BCの光吸収効率が正確に評価できていない可能性が分かった。加えて、Bateman, Adachi et al. (2017)³⁾では南米アマゾン域における光吸収性が示唆される有機物の挙動を明らかにした。また、バイオマス燃焼から発生するBCや有機物の挙動に関しても電子顕微鏡による分析技術開発を進めて新たなデータ解析を行い、それらの粒子のエイジングプロセスを明らかにした。Moteki, Adachi et al. (2017)⁴⁾では、航空機観測で得られた試料中の酸化鉄粒子について、その物理化学的詳細をSP2データに加え電子顕微鏡分析によって明らかにした。

【グローバルモデルによる評価】従来の気候モデル（グローバルモデル）が抱えるBCの気候影響評価に関する問題点を克服するために、BCの変質過程（混合状態の時間変化）、降水による除去過程、レンズ効果（光吸収の増大効果）を表現できるように、気象研究所地球システムモデルの改良を実施した。改良したモデルは、BCの主要な発生源である東アジア域で、BC濃度の季節変動や鉛直分布の観測結果を定量的に再現することができた。またリモート域である北極域では、従

来の変質過程スキームを用いた計算では、観測されたBC濃度を過小評価し、季節変化を再現することができなかったのに対し、改良したモデルでは、BCの季節変化の再現性が向上した。また従来の除去過程スキームを用いた計算では、上部・中部対流圏中でのBC濃度を過大評価したのに対し、改良したモデルでは、鉛直分布の再現性が向上した。さらにレンズ効果の導入により、地上放射観測と比較して従来大幅に過小評価となっていたBCの光吸収量が増大し、その再現性が向上した。BCの空間分布と光吸収の再現性が向上したモデルを用いて、大気上端における全球平均のBCの直接放射強制力を推定したところ、本研究では、 0.2 W m^{-2} と推定された(2008-2015年平均値)。また従来の手法を用いたモデル計算結果との比較から、BCの直接放射強制力は、レンズ効果の導入により約40%増大し、変質過程の改良により約20%増大することが示唆された。この放射効果の増大は、北半球の中・高緯度において顕著であった。

[キーワード]

電子顕微鏡、ブラックカーボン (BC)、混合状態、全球モデル、変質過程、除去過程、放射効果

1. はじめに

ブラックカーボン (BC) は、二酸化炭素、メタンに次いで、三番目に大きい正の放射強制力を持つ可能性が指摘されている⁵⁾。しかしながら、気候影響評価に使用されている気候モデル(グローバルモデル)は、地上放射観測により得られたBCの光吸収量を3倍程度過小評価しており、BCの放射影響評価には大きな不確定性が含まれている⁶⁾。また地上・航空機観測との比較によると、気候モデルによるBCの鉛直分布の再現性は不十分であり⁷⁾、全球規模でのBCの空間分布の推定にも大きな不確定性が含まれている⁸⁾。

BCは、化石燃料・植物由来燃料・バイオマス等の不完全燃焼過程によって大気中に排出される。BCは、疎水性粒子として大気中に排出されるが、排出後の時間経過とともに他の水溶性エアロゾル成分と内部混合して (BCの混合状態の変化、または下記BCコアの被覆増加)、親水性粒子へと変換される (BCの変質過程)⁹⁾。BCは、無機・有機エアロゾル成分に覆われ内部混合することで、光吸収量が増大する (レンズ効果)¹⁰⁾。一方、BCが水溶性無機・有機エアロゾル成分に覆われ内部混合すると雲凝結核特性を持つようになり、降水による除去を受けやすくなって、大気中の寿命が短くなる (除去過程)¹¹⁾。このため、気候モデルでBCの放射効果の推定精度を向上させるためには、BCの混合状態を観測から解明し、これらの諸過程 (BCの変質過程、レンズ効果、除去過程など) のモデルでの表現を向上させる必要がある。

そこで本サブ課題では、電子顕微鏡などによる観測および分析を実施し、BCと他エアロゾル成分の混合状態や物理化学特性などの動態を把握する。また、気象研究所地球システムモデルの開発・改良・検証を実施し、モデルでBCの混合状態が重要となる諸過程を表現することで、高い信頼性でBCの放射効果を推定する。

2. 研究開発目的

本研究では、東アジア域でエアロゾル粒子の採取を行い、電子顕微鏡分析によりBCやその他のエアロゾルの混合状態や物理化学特性を明らかにする。また観測により得られた知見に基づき、気象研究所地球システムモデルの開発・改良を実施する。世界各地の地上および航空機観測との

比較により、モデル計算結果の検証を行い、検証したモデルにより、全球規模のBCの放射効果を総合的に評価する。

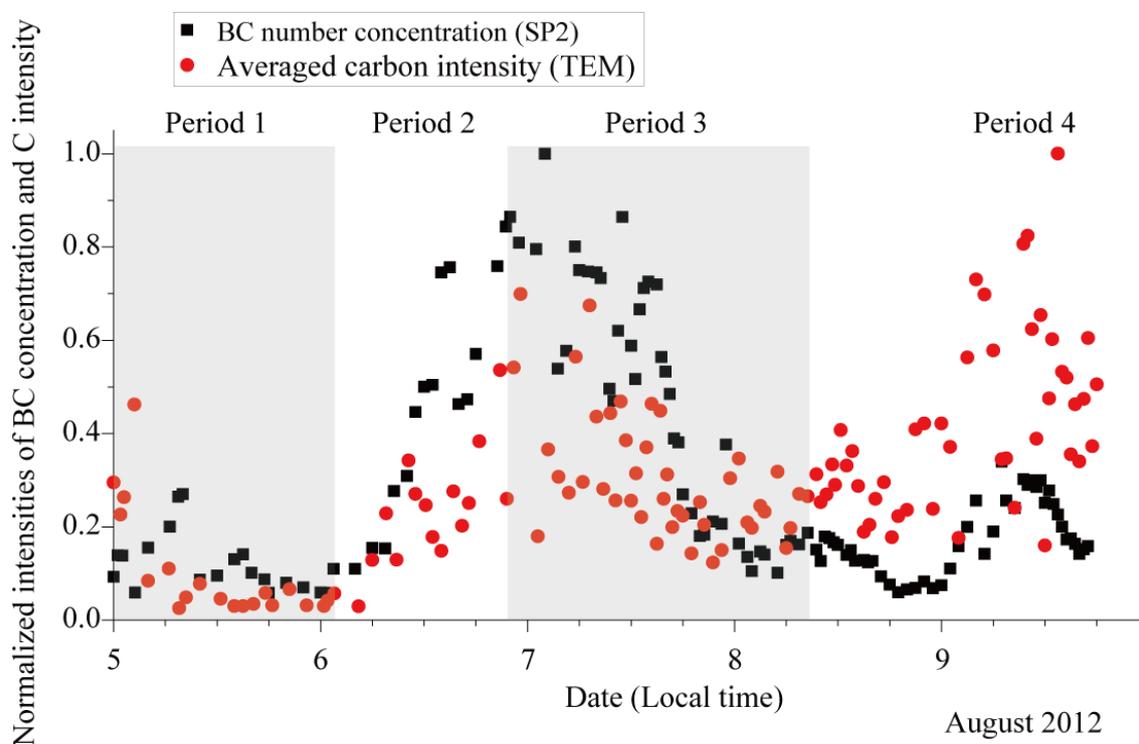
3. 研究開発方法

(1) エアロゾルの電子顕微鏡分析

SP2とのBC成分分析比較

電子顕微鏡を用いてBC及びその他のエアロゾル成分の組成、混合状態、形態などを測定し、Single Particle Soot Photometer (SP2)などの機器によるデータとの比較を行った。この結果は、連続観測機器ほどには多数のデータを得ることが困難な電子顕微鏡観測データの代表性を検証するとともに、SP2のBC混合状態結果の精度確認にも重要である。

東京都内で行った集中観測の結果、BC混合状態に関して、電子顕微鏡とSP2の間で7日0時ごろと9日12時ごろの濃度上昇期間において、観測データの一致が見られた(図(2)-1)。これは、フィルタ採取試料を形態及び化学分析する電子顕微鏡分析と、大気中粒子を連続的に光学分析するSP2という、BCの異なる物理化学特性を測定する機器との初めての比較であり、両者の測定が同一の物質(BC)を測定していることを初めて確認したデータである。一方、定量的な評価では、両者の間に相違がみられ、電子顕微鏡サンプラーの捕集効率やSP2検出効率等に改善の余地があることが明らかとなった。このデータの詳細についてはAdachi et al. (2016)¹⁾において論文発表を行い、詳細な議論を公表した。また、本研究で明らかとなった両観測機器の定量評価については今後の課題としてさらなる実験観測を行う予定である。

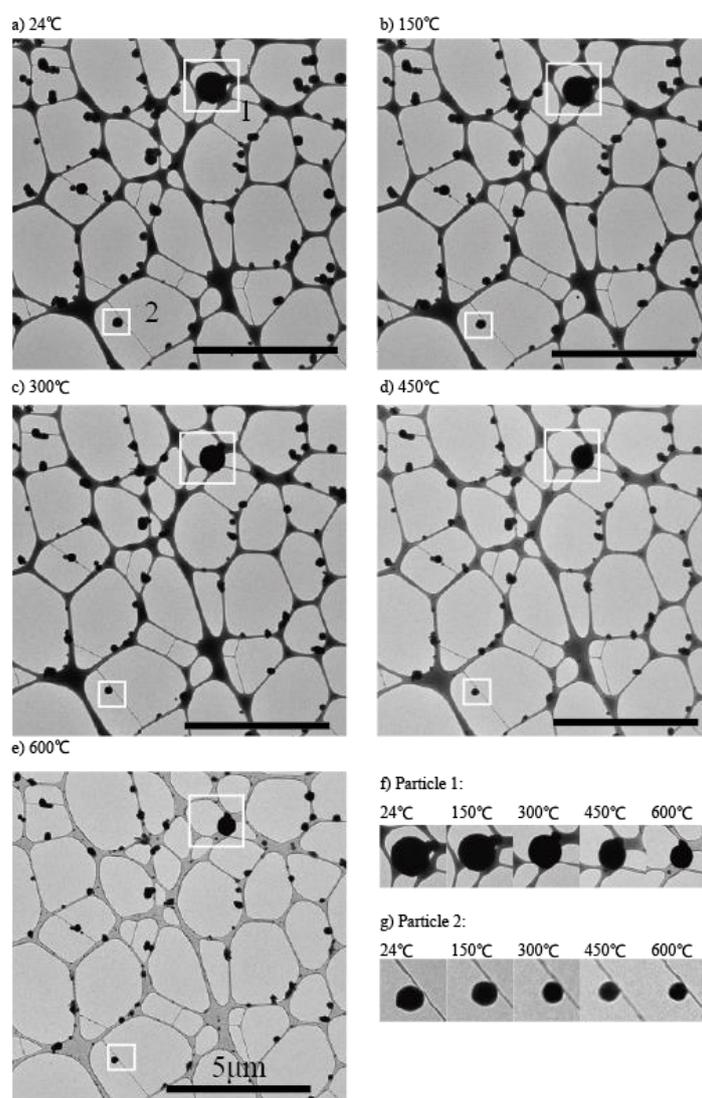


図(2)-1：電子顕微鏡分析で見積もられたすす濃度（平均炭素量）とSP2で得られたBC濃度の比較。Adachi et al. (2016)¹⁾中の図5。

電子顕微鏡を用いた粒子加熱実験技術開発

BCと同時に発生する有機エアロゾルの加熱特性を電子顕微鏡で検証するため、試料加熱技術の開発を行った。この技術は、電子顕微鏡の試料フォルダを観察中に直接加熱する手法であり、成分ごとの気化温度が測定できる。温度は、蒸発温度が既知な金属や有機物を標準とし、到達温度の確認を行い、10%程度の精度で温度上昇が600°C以上まで行われていることを確認した。

野外試料を用いた実験の結果、BCを被覆する硫酸塩は200°C以下で気化するのに比べ、一部の有機物は600°Cでの高温でも残留物が残るという結果が得られた（図(2)-2）。この結果は、BCの被覆によるレンズ効果を調べるときに、200°Cないし300°Cで被覆物が全て取り除かれるという仮定の下でのレンズ効果の見積もりは、一部の有機物に対しては過小評価になることを示唆している。この内容は、いくつかの国際学会で発表し、現在論文執筆中である。

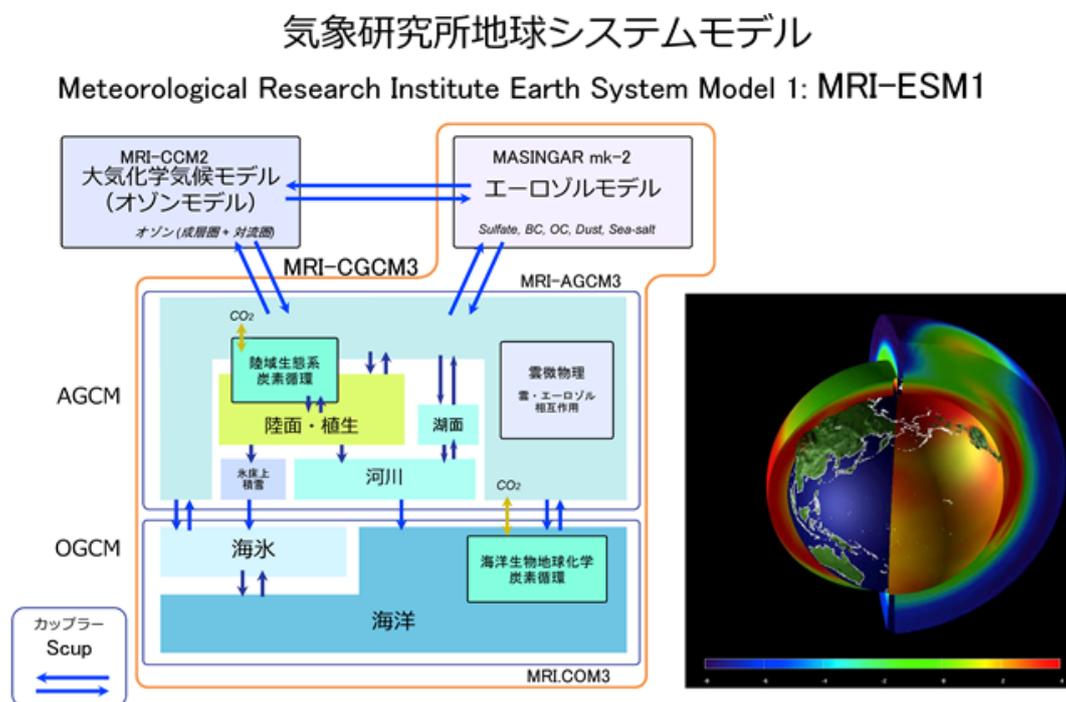


図(2)-2：加熱フォルダを用いて、バイオマス燃焼からの有機物を加熱した例。600度まで加熱しても残る有機物が確認された。Adachi et al. in preparationから引用。

(2) 全球モデルによる評価

気象研究所地球システムモデルの開発

これまでに気象研究所では、気候変動に関する政府間パネル（IPCC）における第5期結合モデル比較計画CMIP5（Coupled Model Intercomparison Project Phase 5）に参加することで、気候変動予測に対して貢献をしてきた。図(2)-3に、気象研究所地球システムモデルMRI-ESM1¹²⁾の構成模式図を示す。このモデルは大気大循環モデルMRI-AGCM3、海洋大循環モデルMRI.COM3、エアロゾルモデルMASINGAR mk-2¹³⁾、大気化学気候モデルMRI-CCM2¹⁴⁾から構成され、各モデルコンポーネントはカップラーライブラリScup (Simple Coupler)¹⁵⁾で結合される。



図(2)-3：気象研究所地球システムモデル(MRI-ESM1)の構成模式図。気象研究所のホームページから引用。

気象研究所では、気象研究所地球システムモデルMRI-ESM1に数多くの改良を実施することで、第6期結合モデル比較計画CMIP6に向けた新しいバージョンのモデルMRI-ESM2を開発中である。この取り組みの中で、本研究では、従来の気候モデルが抱えるエアロゾルに関する問題点を克服するために、特にBCに関するモデル手法について、大きく分類して3種類の改良を実施した。

第一に、BCの混合状態の変化を物理化学法則に基づき表現できるように、エアロゾルの微物理過程の改良を行った（変質過程スキームの改良）。具体的には、BCが疎水性から親水性へと変換される変質過程について、従来は一定値の時定数（ $\tau_{BC} = 1.2$ 日）を用いて表現していたのに対し、本研究では疎水性BCの被覆速度に依存する変換速度を表現するパラメタリゼーションを導入・改良することで、大気環境に応じて変化するBCの変質過程を定量的に表現することが可能となった¹⁶⁾。

第二に、エアロゾル粒子の降水による除去過程をより現実的に表現できるように、エアロゾル

の湿性沈着過程の改良を行った（除去過程スキームの改良）。従来はエアロゾルの積雲対流による鉛直輸送と降水による除去過程を独立して扱っていたのに対し、本研究では鉛直輸送と除去過程を統合的に扱うように、積雲対流パラメタリゼーション¹⁷⁾にエアロゾルの除去過程を新たに組み込むことで、エアロゾルが降水除去を経ながら鉛直輸送される様子を表現することが可能となった。

第三に、BCが他エアロゾル成分と内部混合することで、BCの光吸収量が増大する効果を表現できるように、エアロゾルの放射過程を改良した（レンズ効果の導入）。従来はBCと他エアロゾル成分の内部混合を考慮せず、BC単体（被覆なし）での放射効果を計算していたのに対し、本研究では親水性BCについては硫酸塩エアロゾルとの内部混合を仮定することで、被覆による光吸収の増大効果（レンズ効果）を扱えるようにした。エアロゾルの吸湿特性や混合状態の表現においては、電子顕微鏡分析などにより得られた知見をモデルに反映させるとともに、エアロゾル光学特性の計算においては、BCをコア、その周りを覆う他エアロゾル成分をシェルとして扱う、コア・シェル型のミー散乱理論を新たに導入した¹⁸⁾。

気象研究所地球システムモデルによる計算

改良した気象研究所地球システムモデルを用いて、2008-2015年の期間について、モデル計算を実施した。計算は2006年12月から実施し、最初の約1年間はスピニアップ期間とした。本研究では、現実的な海面水温を表現するために、海洋モデルは結合させず、外部境界データとして海面水温データ（COBESST）を与える計算を行った。また現実的な気象場を表現するために、気象庁再解析データ（JRA-55）を用いて束縛をかける計算（ナッジング）を実施した。モデルの水平解像度は約110 km（TL159）、鉛直解像度は80層（上端0.01 hPa）に統一した。モデルに与える排出源データは、人為起源物質はMACCity（月平均）¹⁹⁾、森林火災起源物質はGFAS（日平均）²⁰⁾のデータを用いた。また、改良したモデルによる計算（ベースライン）に加えて、BCの変質過程、除去過程、レンズ効果の改良の効果を推定するために、それぞれの表現を従来の方法に戻したモデル計算を感度実験として実施した。

4. 結果及び考察

（1）エアロゾルの電子顕微鏡分析

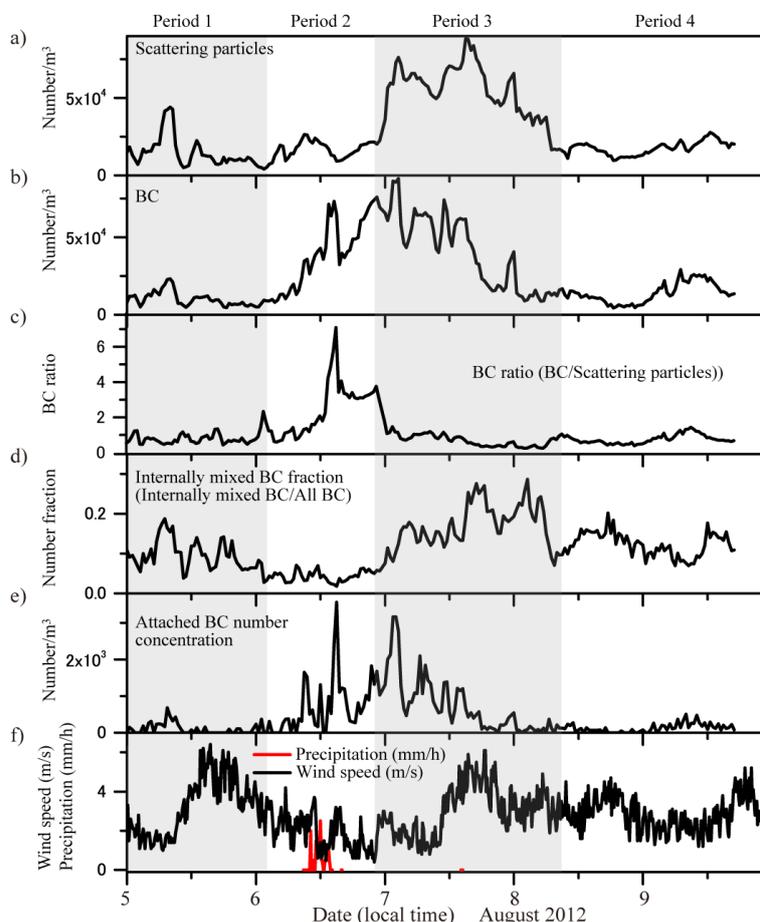
本推進費研究では、日本各地や海外における観測で得られた試料の分析にかかわった。本報告では、論文発表を行った解析結果を中心に報告する。

東京での集中観測結果

東京の都市大気において集中観測を行い、電子顕微鏡とSP2を用いたBCの個数濃度変化や混合状態変化に関する観測を行った。両機器による観測データの比較は「3. 研究開発方法」において詳述した。また、この東京での観測結果はAdachi et al. (2016)¹⁾にて論文発表済みである。

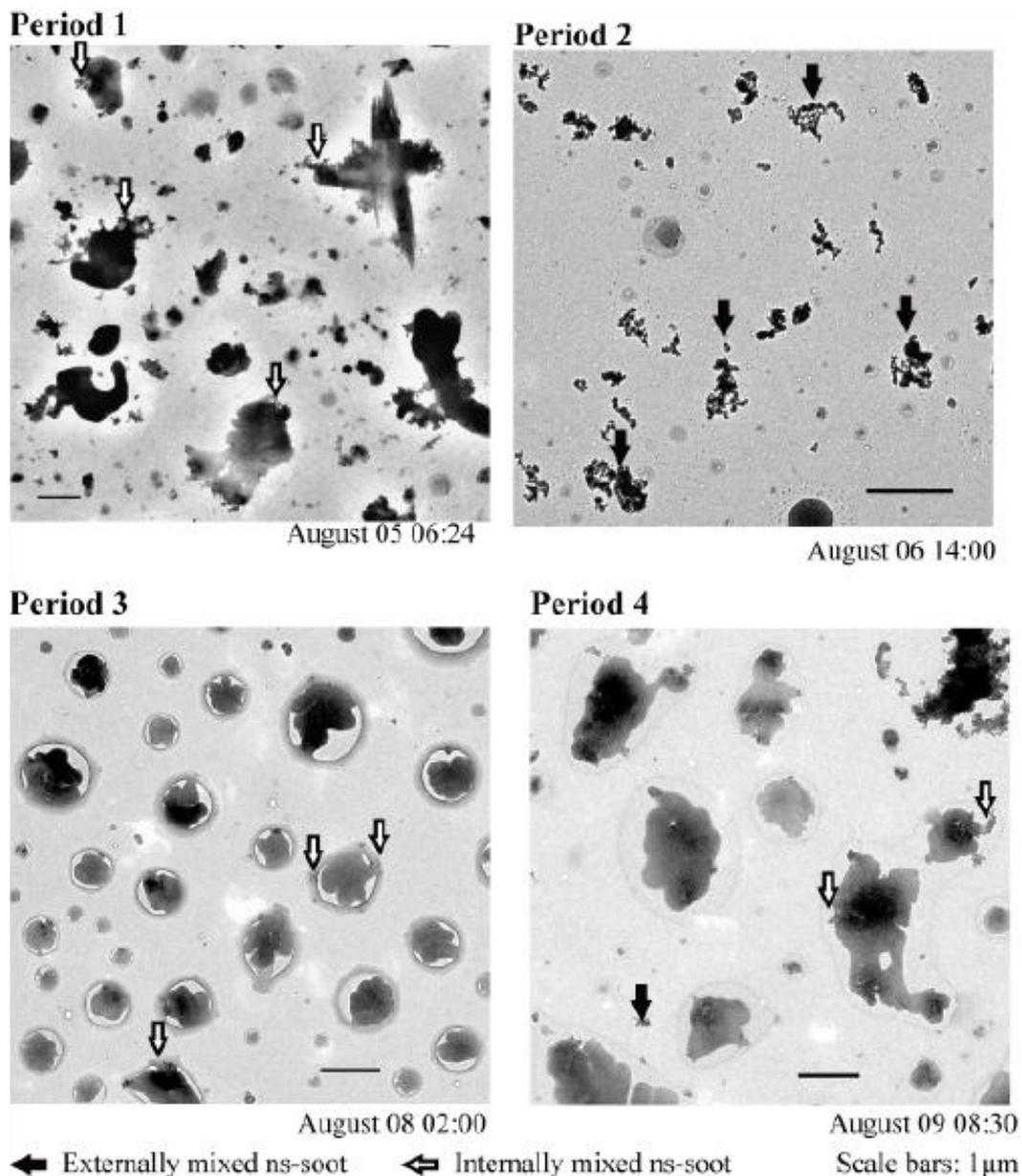
東京での観測期間（夏季）において、BCの濃度及び混合状態に関し、空気塊の起源や輸送経路の違いにより4つの期間に区分した（図(2)-4）。これらの期間では、1）南方からの海洋を経由した空気塊が卓越した期間、2）風が弱まりBC濃度上昇がみられた期間、3）2次粒子の生成によってBCの内部混合粒子の割合が高まった期間、4）北からの空気塊が卓越した期間、といった特徴

がみられた。特に、期間3ではオキシダント濃度の上昇と二次生成粒子の濃度上昇に関して相関がみられ、大気化学反応による硫酸塩等の生成がBC表面でも進み、BC被覆率の上昇をもたらしていることが明らかとなった。



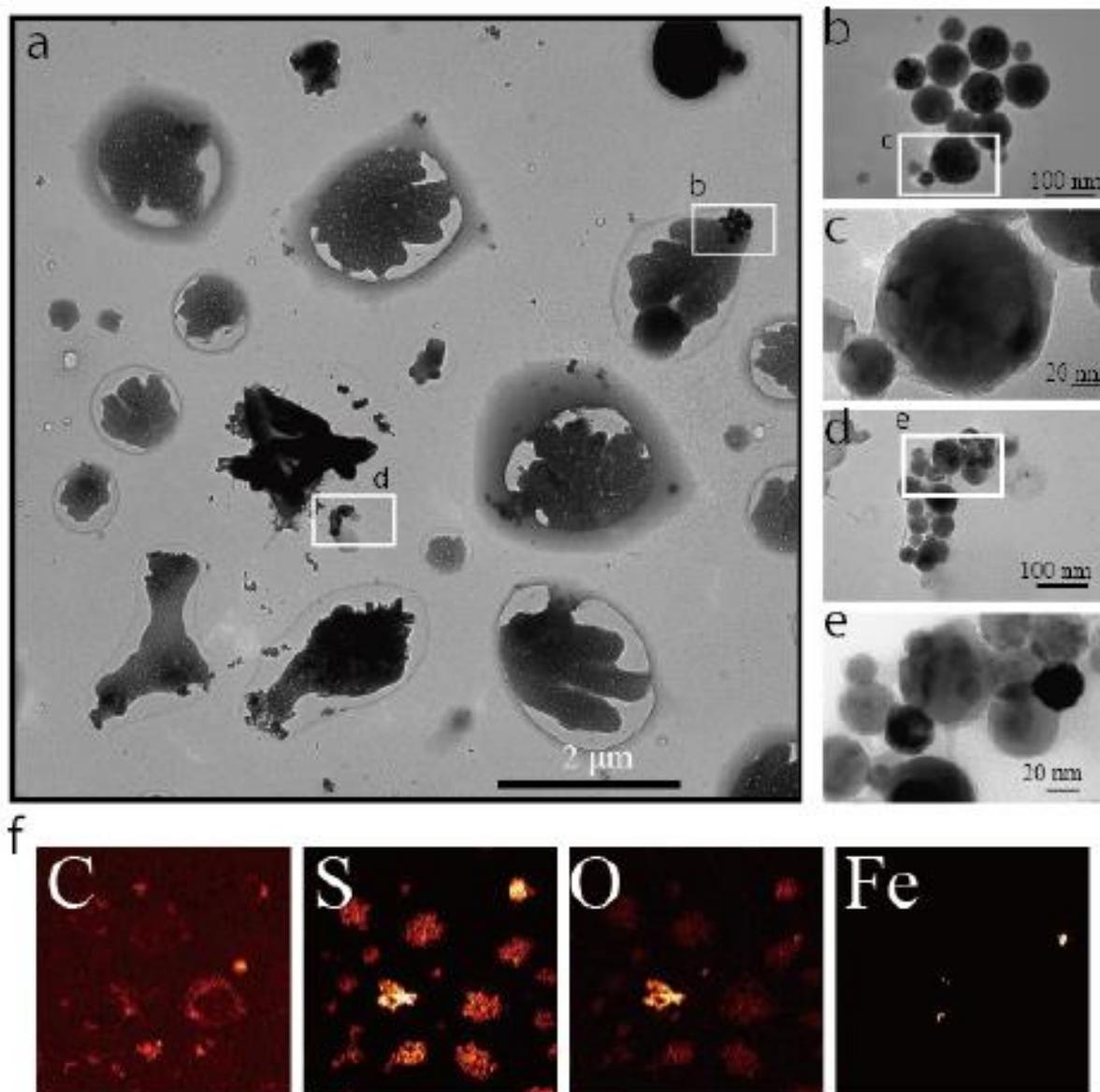
図(2)-4：SP2を用いた粒子混合状態の変化及び風速・降水量変化。a) 光散乱性粒子の個数濃度変化、b) BC粒子の個数濃度変化、c) 全粒子におけるBC粒子の割合の変化、d) 内部混合BC粒子割合の変化、e) 付着型BC粒子濃度変化、f) 観測期間中の風速及び降水量。Adachi et al. (2016)¹⁾中の図2。

図(2)-4で分類した各期間で観察したエアロゾル粒子の電子顕微鏡写真を示す(図(2)-5)。SP2で見られた混合状態と同様の混合状態の変化が確認され、特に期間2において被覆のないBC粒子が多く見られた。混合状態を電子顕微鏡分析での“被覆を受けていないBC粒子数”/“全BC粒子数”で示すと、期間2が52%で最も低く、被覆が進んだ期間3は88%であった。この結果は、SP2で計測した内部混合粒子の濃度上昇期間をよく説明する。



図(2)-5：東京で採取されたエアロゾル粒子の各期間における電子顕微鏡像の例。白抜き矢印は内部混合BC粒子を示す。黒塗り矢印は外部混合BC粒子（被覆がないBC粒子）を示す。Adachi et al. (2016)¹⁾中の図3。

東京で行った観測では、光吸収性エアロゾル粒子としてBCに加えて酸化鉄が確認された（図(2)-6）。これらの酸化鉄は、100ナノメートル程度の球状粒子の凝集体で、その形態的特徴はBC粒子に似ているが、化学組成分析の結果から、鉄と酸素から構成される粒子であることが確認された。この形態的特徴からこれらの粒子は、高温によって発生した人為起源粒子である可能性が示唆される。Moteki et al. (2017)⁴⁾では、黄海上空で行った航空機観測中での試料からも多数の酸化鉄粒子が発見されたことを報告した。これらの粒子は電子顕微鏡解析の結果、磁鉄鉱であることが示唆され、その大気中での存在割合や挙動に関しさらに詳細な解析を進めていく必要がある。

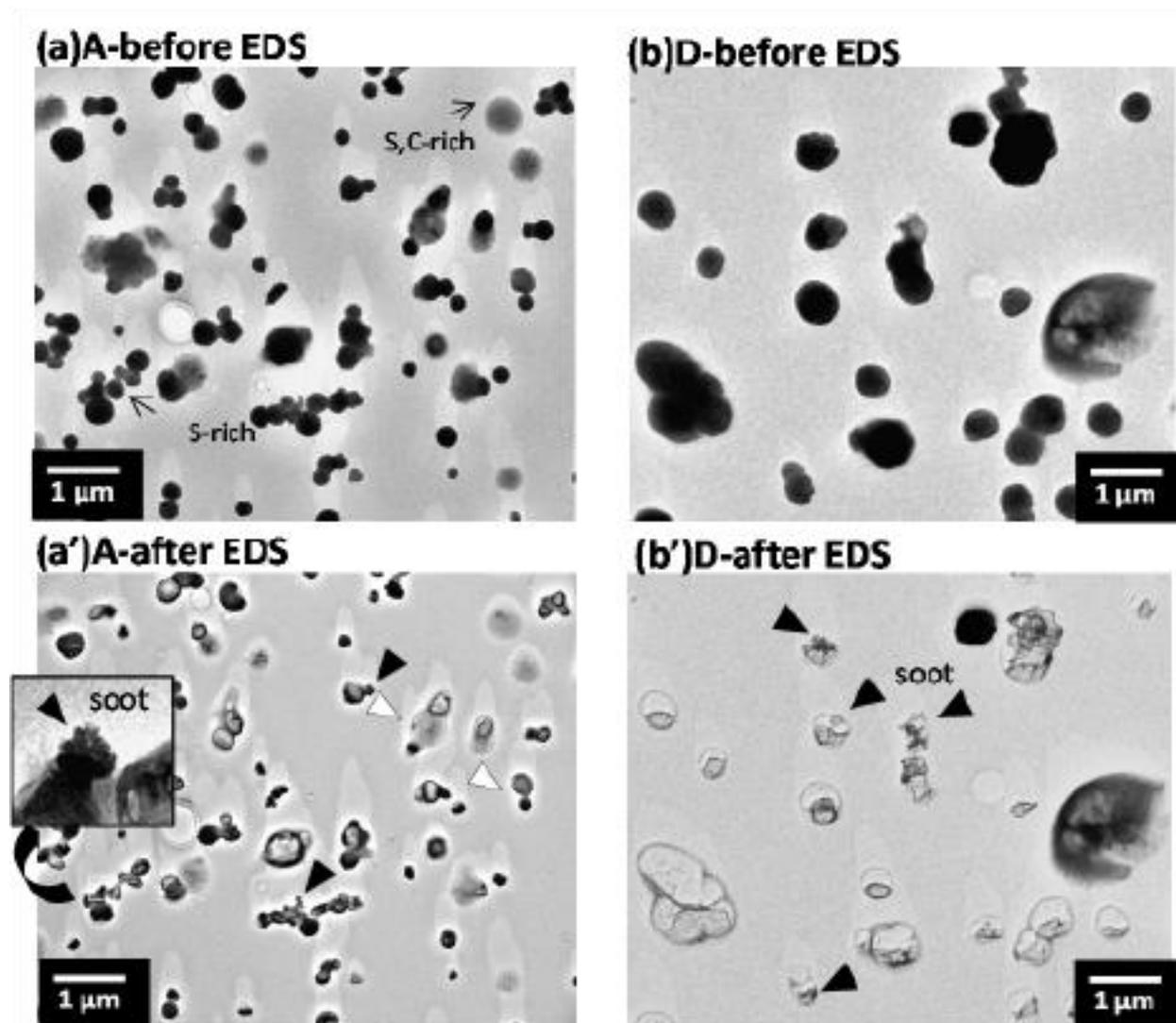


図(2)-6：東京での観測期間中に見られた酸化鉄粒子の例。a) 電子顕微鏡画像。b), d)は画像a)中に白枠で示した酸化鉄を含む粒子の拡大図を示す。c), e)はそれぞれ画像b), d)中の拡大像を示す。f)は a)領域の元素分布を示す。硫酸塩に有機物の被覆がある粒子中に酸化鉄粒子が存在することが分かる。Adachi et al. (2016)¹⁾中の図7。

石川県能登半島にある観測サイト分析結果

石川県能登半島にある観測サイトにおいて、BCなどのエアロゾル粒子の集中観測を行った (Ueda et al., 2016)²⁾。能登半島は中国大陸からのエアロゾル粒子が日本の影響を受けずに飛来するのが観測できる地点であり、東アジアの代表的な粒子を観測することができる。本研究では本集中観測で得られた試料をもとに、特に電子顕微鏡を用いたBCの混合状態にかかわる観測を行った。BCを含有するエアロゾルを電子顕微鏡分析することで、その被覆成分の組成と、内部に包埋されたBCを分析することができる (図(2)-7)。その結果、BCを含む粒子の割合、被覆成分の組成、

エアロゾルの形状などの分類を行い、エアロゾルの物理化学特性と、光学特性の関係が明らかとなった。とくに、本観測期間においてはBCの被覆効果による光吸収効率は1.3倍にも及ぶことが分かった。また、その成分は硫酸塩が主要であることもわかった。

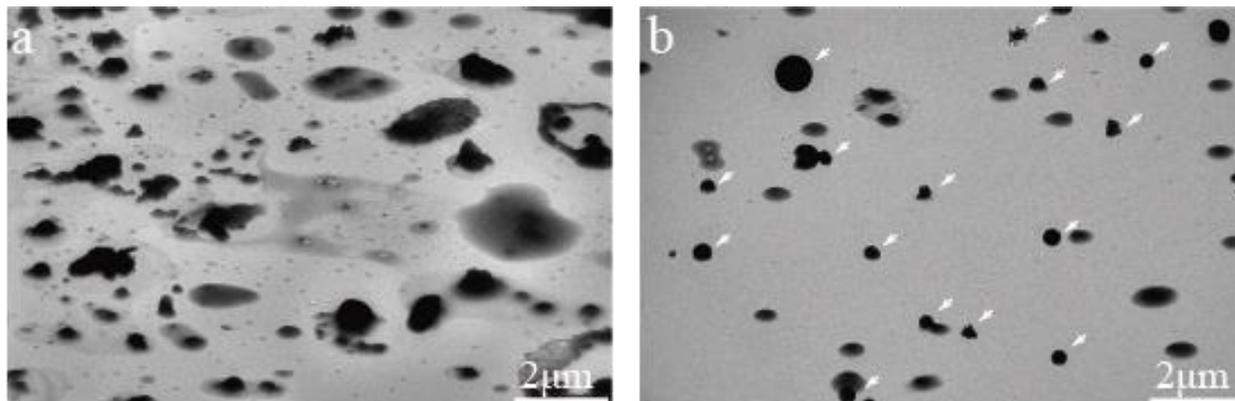


図(2)-7：能登半島で採取されたエアロゾル粒子の例。下の図は上の図と同じ領域で、硫酸塩を電子線で気化させて、内部混合BC粒子を詳細に観測した。Ueda et al. (2016)²⁾中の図7。

アマゾンでの集中観測試料分析結果

BCや有機物などのエアロゾル粒子の粘性（固体か液体か）は、粒子の大気化学反応速度や光吸収特性を見積もるうえで重要である。特に、エアロゾルがインパクターの捕集板上で跳ね返る割合を求めた「跳ね返り係数」は、粒子が固体もしくは液体で大気中に存在するかを見積もるのに有用である。Batemen, Adachi, et al. (2016)³⁾では、南米アマゾンでの観測を通じて主に有機物粒子の跳ね返り特性を計測した。その観測で、電子顕微鏡を用いた試料観測を行い、実際にエアロゾル粒子が液体であるか固体であるかの特定を行った（図(2)-8）。図(2)-8左では、跳ね返り係数が小さい液滴が多いと推測される試料において電子顕微鏡観察を行った例である。傾斜をかけて斜

めから試料を観察すると、液体状の物質がフィルタ上に捕集されていることが分かる。一方、図(2)-8右側の図では固体粒子が多いと推測される試料を観察したものであり、フィルタ上でも固形の丸い形を維持した有機エアロゾル粒子が多く見つかった。このことから、電子顕微鏡を用いた観察が、エアロゾルが固体か液体かを判定するのに有効なツールであることが確認された。液体の有機物はBCと混合しやすく、逆に固体粒子はBCと混合しない、もしくは混合した場合においても光学特性を変化させる影響は少ないと考えられる。今後は、エアロゾルの物理特性と光学特性の詳細な比較が必要と考えられる。



図(2)-8：アマゾンで採取したエアロゾル粒子の固体液体判別を行った観察例。左図は液体粒子が多いと判定された時期に採取した粒子の電子顕微鏡画像。右の図は固体粒子が多いと判定された時期の電子顕微鏡画像。矢印は、固体有機粒子を示す。Bateman et al. (2016)³⁾中の図5。

この章では電子顕微鏡を用いた分析が論文となった成果について報告した。そのほかに、東京や辺戸岬での集中観測にも参加し、多くの興味深い結果が得られつつある。特に、SP2との比較を多くの空気塊で行っており、解析を進めつつある。また、本研究で得られたエアロゾル粒子の個別粒子分析に基づいた物理・化学特性は、モデルグループにフィードバックされ、数値シミュレーションの素過程の検証やパラメータ化などでモデルの精度向上に用いられている。

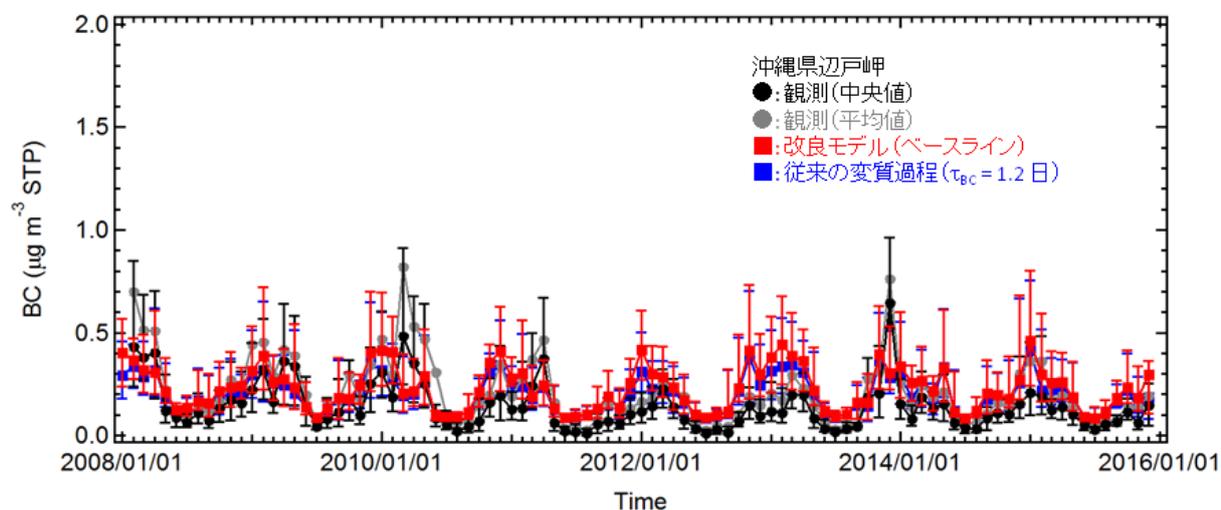
(2) 全球モデルによる評価

ブラックカーボンの空間分布の評価

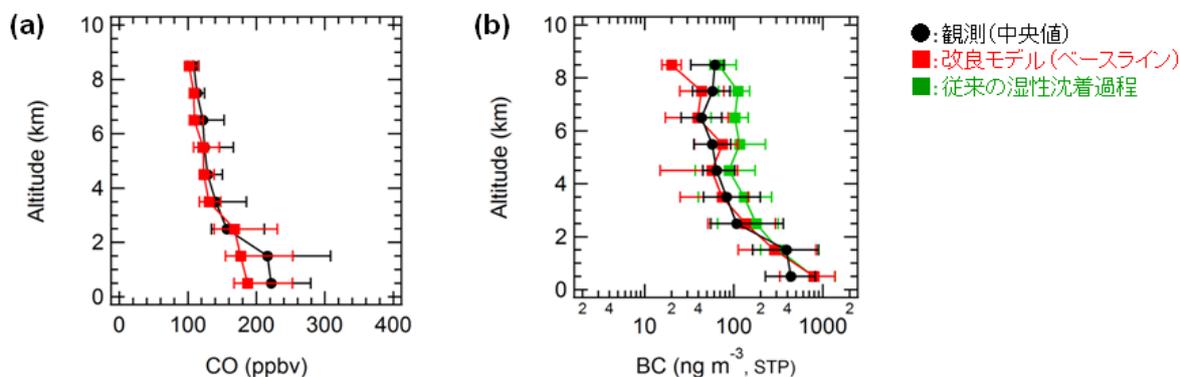
これまでに実施された地上・航空機観測で得られたデータと改良した気象研究所地球システムモデルによる計算結果との比較を行うことで、BCの空間分布の再現性について評価を進めた。世界のBCの主要な発生源である東アジア域とリモート域である北極域において、BC質量濃度の時間変動のモデル結果を観測結果と比較した。東アジア域の地上（沖縄県辺戸岬）においては、改良したモデルによる計算と従来の変質過程スキームを用いた計算の両方とも、観測されたBCの季節変動（冬季・春季における濃度増大と夏季における濃度減少）を再現することができた（図(2)-9）。一方、北極域の地上（アラスカ州バロー）においては、従来の変質過程スキームを用いた計算では、観測されたBCの季節変動（冬季・春季における濃度増大）を再現することができなかったのに対し、改良したモデルでは、BC濃度の季節変化の再現性が向上した。BCの変質過程は、湿性沈

着による除去を効率的に受ける親水性BCの存在量を決定するため、これらの結果は、モデルに導入した変質過程スキームの妥当性を示すとともに、北極域でのBCの季節変化を決める上で変質過程が重要な役割を果たすことを示唆している。

次に、航空機観測データを用いて、東アジア域と熱帯域におけるBC質量濃度および一酸化炭素(CO)濃度の鉛直分布のモデル結果を観測結果と比較した。COは降水による除去を受けないため、数日間の時間スケールでの同じ空気塊にあるエアロゾル・微量物質の輸送過程を検証するためのトレーサーとして使用できる。東アジア域においてはA-FORCE (Aerosol Radiative Forcing in East Asia) 航空機観測²¹⁾、熱帯域においてはHIPPO (HIAPER (High-Performance Instrumented Airborne Platform for Environmental Research) Pole-to-Pole Observations) 航空機観測²²⁾により得られたデータを使用した。東アジア域(黄海・東シナ海)においては、従来の湿性沈着過程スキームを用いた計算では、上部・中部対流圏中でBC濃度を過大評価したのに対し、改良したモデルでは、鉛直分布の再現性が向上し、また観測されたCO濃度の鉛直分布を再現することができた(図(2)-10)。熱帯域(太平洋)においても、従来の湿性沈着過程を用いた計算では、対流圏全域でBC濃度を大幅に過大評価したのに対し、改良したモデルでは、鉛直分布の再現性が向上し、また観測されたCO濃度の鉛直分布を再現することができた。これらの結果は、モデルに導入した湿性沈着過程および輸送過程スキームの妥当性を示すとともに、上部・中部対流圏中のBC濃度を定める上では、積雲対流に伴うエアロゾルの湿性沈着過程が重要な役割を果たすことを示唆している。



図(2)-9： 沖縄県辺戸岬におけるBC質量濃度の時間変動の地上観測（丸印）とモデル計算結果（四角印）の比較。観測は、各月における中央値と25,75パーセンタイル（黒色）と平均値（灰色）を示す。モデル結果は、改良したモデル計算結果（赤色）と従来の変質過程スキームを用いた計算結果（青色）の各月における中央値と25,75パーセンタイルを示す。Oshima et al. in preparationから引用。

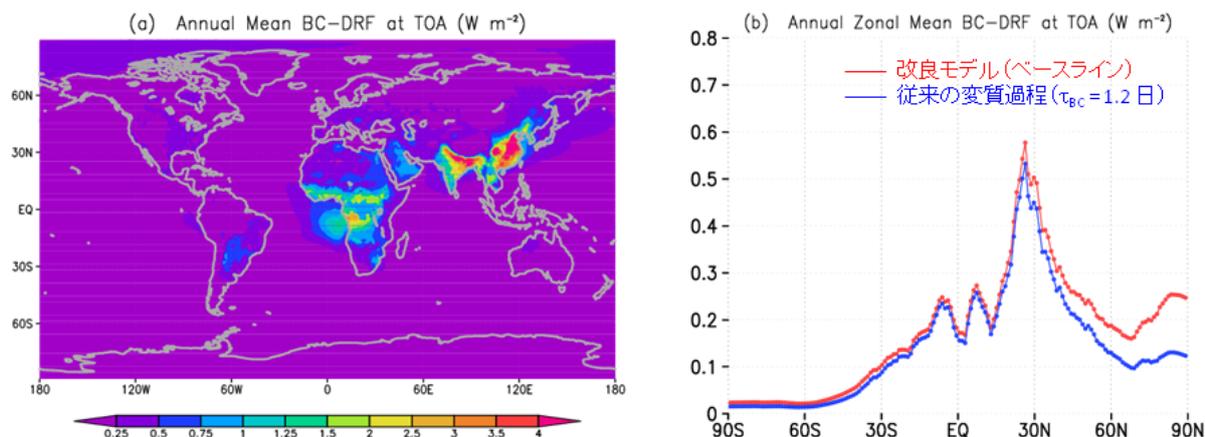


図(2)-10： A-FORCE航空機観測（2009年3-4月に黄海・東シナ海域で実施）により得られた鉛直分布（黒色丸印）とモデル計算結果（四角印）の比較。(a) CO濃度、(b) BC質量濃度。各高度レンジにおける中央値と25、75パーセンタイルを示す。改良したモデル計算結果を赤色、従来の湿性沈着過程スキームを用いた計算結果を緑色で示す。Oshima et al. in preparation から引用。

ブラックカーボンの放射効果の評価

エアロゾルの放射特性の再現性を検証するために、地上放射観測データとモデル計算結果の比較を行った。この比較では、2008-2015年の世界各地におけるAERONET (Aerosol Robotic Network) 観測により得られたエアロゾルの光学的厚さ (AOD, Aerosol Optical Depth) と光吸収に伴うエアロゾルの光学的厚さ (AAOD, Absorption Aerosol Optical Depth) から算出された月平均値を用いた。改良したモデルは、AODとAAODの空間分布のパターンを再現するとともに、全平均値同士の比較では、AODを約20%、AAODを約30%の過小評価に収まった (図は省略)。これらの結果は、モデルでのエアロゾルの放射特性の再現性の妥当性を示すとともに、モデルにレンズ効果を導入することにより、従来大幅に過小評価したBCの光吸収量が增大し、その再現性が向上したことを示唆している。

BCの空間分布と光吸収の再現性が向上したモデルを用いて、大気上端におけるBCの直接放射強制力とその帯状平均を推定した結果を図(2)-11に示す。本研究では、BCの直接放射強制力の全球平均値は、 0.2 W m^{-2} と推定された (2008-2015年平均値)。最新の研究における全球規模のBCの直接放射強制力は、米国ハーバード大の全球モデルでは 0.19 W m^{-2} と推定され²³⁾、世界の13種類のモデルが参加した全球エアロゾルモデル相互比較実験では 0.17 W m^{-2} と推定されており²⁴⁾、本研究で推定された値はこれらの値と同程度であった。また、従来の手法を用いたモデル計算結果との比較から、BCの直接放射強制力は、内部混合に伴うレンズ効果の導入により約40%増大し、変質過程の改良により約20%増大することが示唆された。これらの結果は、BCの混合状態が全球規模の放射効果に大きな影響を及ぼすことを示唆している。また、BCの放射効果の増大は、北半球の中・高緯度において顕著であった。これらの結果は、気候変動に脆弱な北極域において、最新の気候モデルを用いてBCの気候影響を再評価する必要があることを示唆している。



図(2)-11: (a) 改良したモデルで計算された大気上端におけるBCの直接放射強制力($W m^{-2}$)の水平分布。(b) モデルで計算された帯状平均した大気上端におけるBCの直接放射強制力($W m^{-2}$)の緯度分布。改良したモデル計算結果を赤色、従来の変質過程スキームを用いた計算結果を青色で示す。2008-2015年の年平均値を示す。Oshima et al. in preparationから引用。

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

BCの混合状態や物理化学特性に関し電子顕微鏡による分析・解析から得た情報は、電子顕微鏡でしか得られないものも含み、他の測定機器との比較観測を行うことで、高い時間分解能を持ったエアロゾルの物理・化学特性変化が明らかとなる。特に、個別粒子単位でのBCやその被覆成分などの組成、粘性（液体か固体化の判別）、加熱特性など、今回の研究で新たに得ることができたパラメータが多く、その科学的意義は大きい。

本研究で開発した気候モデルでは、従来大きな不確定性を抱えたエアロゾル諸過程の計算手法の改良を行ったため、モデルのBCの空間分布および光吸収量の再現性が向上し、全球規模のBCの直接放射強制力を定量的に評価することが可能となった。本研究により得られた成果は、今後の気候モデルによるエアロゾルの気候影響を評価する上で基盤となることが期待される。

(2) 環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

特に記載すべき事項はない。

<行政が活用することが見込まれる成果>

本研究で開発した気象研究所地球システムモデルは、第6期結合モデル比較計画(CMIP6)での気候変動予測実験で使用されるため、本研究で得られた成果は、次期IPCCへ直接的に貢献することが期待される。

6. 国際共同研究等の状況

特に記載すべき事項はない。

7. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<論文(査読あり)>

- 1) B. H. SAMSET, G. MYHRE, A. HERBER, Y. KONDO, S.-M. LI, N. MOTTEKI, M. KOIKE, N. OSHIMA, J. P. SCHWARZ, Y. BALKANSKI, S. E. BAUER, N. BELLOUIN, T. K. BERNTSEN, H. BIAN, M. CHIN, T. DIEHL, R. C. EASTER, S. J. GHAN, T. IVERSEN, A. KIRKEVÅG, J.-F. LAMARQUE, G. LIN, X. LIU, J. E. PENNER, M. SCHULZ, Ø. SELAND, R. B. SKEIE, P. STIER, T. TAKEMURA, K. TSIGARIDIS, and K. ZHANG: *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 12465-12477 (2014), Modelled black carbon radiative forcing and atmospheric lifetime in AeroCom Phase II constrained by aircraft observations
- 2) T. MORI, Y. KONDO, S. OHATA, N. MOTTEKI, H. MATSUI, N. OSHIMA, and A. IWASAKI: *J. Geophys. Res. Atmos.*, 119, 10,485–10,498 (2014), Wet deposition of black carbon at a remote site in the East China Sea
- 3) S. UEDA, T. NAKAYAMA, F. TAKETANI, K. ADACHI, A. MATSUKI, Y. IWAMOTO, Y. SADANAGA and Y. MATSUMI: *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 2525-2541 (2016), Light absorption and morphological properties of soot-containing aerosols observed at an East Asian outflow site, Noto Peninsula, Japan
- 4) Y. KONDO, N. MOTTEKI, N. OSHIMA, S. OHATA, M. KOIKE, Y. SHIBANO, N. TAKEGAWA, and K. KITA: *J. Geophys. Res. Atmos.*, 121, 4691-4712 (2016), Effects of wet deposition on the abundance and size distribution of black carbon in East Asia
- 5) K. KAIHO, N. OSHIMA, K. ADACHI, Y. ADACHI, T. MIZUKAMI, M. FUJIBAYASHI, R. SAITO: *Sci. Rep.* 6, 28427(2016), Global climate change driven by soot at the K-Pg boundary as the cause of the mass extinction
- 6) K. ADACHI, N. MOTTEKI, Y. KONDO, Y. IGARASHI: *J. Geophys. Res. Atmos.*, 121, 9153-9164, (2016), Mixing states of light-absorbing particles measured using a transmission electron microscope and a single-particle soot photometer in Tokyo, Japan
- 7) A. P. BATEMAN, Z. GONG, T.H. HARDER, S. S.DE SÁ, B. WANG, P. CASTILLO, S. CHINA, Y. LIU, R. E. O'BRIEN, B. B. PALM, H.-W. SHIU, G. G. CIRINO, R. THALMAN, K. ADACHI, M. L. ALEXANDER, P. ARTAXO, A. K. BERTRAM, P. R. BUSECK, M. K. GILLES, J. L. JIMENEZ, A. LASKIN, A. O. MANZI, A. SEDLACEK, R. A. F. SOUZA, J. WANG, R. ZAVERI, and S. T.MARTIN : *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 1759-1773 (2017), Anthropogenic influences on the physical state of submicron particulate matter over a tropical forest.
- 8) N. MOTTEKI, K. ADACHI, S. OHATA, A. YOSHIDA, T. HARIGAYA, M. KOIKE, and Y. KONDO: *Nature Communications*, Anthropogenic iron oxide aerosols enhance atmospheric heating. (Accepted)
- 9) C. L. REDDINGTON, K. S. CARSLAW, P. STIER, N. SCHUTGENS, H. COE, D. LIU, J. ALLAN, J. BROWSE, K.J. PRINGLE, L.A. LEE, M. YOSHIOKA, S.J. JOHNSON, L.A. REGAYRE, D. V. SPRACKLEN, G. W. MANN, A. CLARKE, M. HERMANN, S. HENNING, H. WEX, T. B.

KRISTENSEN, W. R. LEAITCH, U. POESCHL, D. ROSE, M. O. ANDREAE, J. SCHMALE, Y. KONDO, N. OSHIMA, J. P. SCHWARZ, A. NENES, B. ANDERSON, G. C. ROBERTS, J. R. SNIDER, C. LECK, P. K. QUINN, X. CHI, A. DING, J. L. JIMENEZ and Q. ZHANG : Bull. Amer. Meteor. Soc.(2017), THE GLOBAL AEROSOL SYNTHESIS AND SCIENCE PROJECT (GASSP) Measurements and modelling to reduce uncertainty (in press) doi:10.1175/BAMS-D-15-00317.1

<査読付論文に準ずる成果発表>

特に記載すべき事項はない

<その他誌上発表（査読なし）>

- 1) 佐藤圭、江波進一、藤谷雄二、古山昭子、伏見暁洋、猪俣敏、桑田幹哲、持田陸宏、森野悠、中山智喜、大島長、坂本陽介、高見昭憲、上田佳代、吉野彩子、白岩学: エアロゾル研究、31 (1), 59-62 (2016) 「JSPS-DFG セミナー「大気エアロゾルの物理化学特性ならびにその大気質および健康への影響」参加報告」
- 2) 佐藤圭、江波進一、藤谷雄二、古山昭子、伏見暁洋、猪俣敏、桑田幹哲、持田陸宏、森野悠、中山智喜、大島長、坂本陽介、高見昭憲、上田佳代、吉野彩子、白岩学: 大気化学研究、34, 41-43 (2016) 「JSPS-DFG セミナー「大気エアロゾルの物理化学特性ならびにその大気質および健康への影響」の参加報告」

(2) 口頭発表（学会等）

- 1) 大島長、近藤豊、小池真、茂木信宏、竹川暢之、北和之、中村尚：日本地球惑星科学連合 2014 年大会（2014）依頼講演
「航空機によるエアロゾルの観測とモデル研究」
- 2) 大島長、田中泰宙、小池真、茂木信宏、近藤豊：第 31 回エアロゾル科学・技術研究討論会（2014）依頼講演
「ミクロから全球スケールまでのブラックカーボンのモデル研究」
- 3) 足立光司、財前祐二、茂木信宏、小池 真、近藤 豊：第 31 回エアロゾル科学・技術研究討論会（2014）
「東アジアにおける航空機を使ったエアロゾル観測（AForce）プロジェクトで得られた試料の電子顕微鏡分析」
- 4) K. ADACHI : International Aerosol Conference, 2014
“Mixing states of aerosol particles from various environment: transmission electron microscopy analysis”
- 5) N. OSHIMA, M. KOIKE, Y. KONDO, H. NAKAMURA, N. MOTOKI, H. MATSUI, N. TAKEGAWA, and K. KITA : 13th International Global Atmospheric Chemistry Science Conference, 2014
“Vertical transport mechanisms of black carbon over East Asia in spring during the A-FORCE aircraft campaign”
- 6) N. OSHIMA, M. KOIKE, Y. KONDO, H. NAKAMURA, N. MOTOKI, H. MATSUI, N. TAKEGAWA, and K. KITA : 2014 AGU fall meeting, 2014

- “Vertical transport and removal of black carbon over East Asia in spring during the A-FORCE aircraft campaign”
- 7) K. ADACHI, H. ISHIMOTO, G. ZHAOHENG, A. BATEMAN, S. MARTIN, G.G. C. DA SILVA, P. ARTAXO, A. SEDLACEK, and P.R. BUSECK : American Geophysical Union 2014 Fall Meeting, 2014
 “Single-particle analyses of compositions, morphology, and viscosity of aerosol particles collected during GoAmazon2014”
- 8) 大島長、田中泰宙、神代剛、川合秀明、出牛真、小池真、茂木信宏、近藤豊：日本気象学会 2015 年度春季大会（2015）
 「全球モデルによるブラックカーボンの変質過程とその空間分布と放射効果への影響」
- 9) 大島長、田中泰宙、神代剛、川合秀明、出牛真、小池真、茂木信宏、近藤豊：日本地球惑星科学連合 2015 年大会（2015）
 「ブラックカーボンの変質過程が全球規模のその空間分布と放射効果に及ぼす影響」
- 10) K. ADACHI : Japan Geoscience Union Meeting 2015, 2015
 “Evaporation of aerosol particles upon heating in a transmission electron microscope”
- 11) Y. IGARASHI, K. NISHIGUCHI, K. KITA : 9th Asian Aerosol Conference, 2015
 “Challenges of High Time Resolution Direct Observation of Aerosol Metal Elements in the Field by Using Gas-Conversion ICP-MS”
- 12) Y. IGARASHI, K. ADACHI, Y. ZAIZEN, M. KAJINO : 9th Asian Aerosol Conference, 2015
 “Trials for Electron-Microscopic Aerosol Database II”
- 13) M. KAJINO, M. DEUSHI, N. OSHIMA, T. MAKI, Y. INOMATA, K. SATO, A. TAKAMI, and S. HATAKEYAMA : 9th Asian Aerosol Conference, 2015
 “Modeling Northeast Asian aerosol mass, size, chemistry, and mixing type”
- 14) K. ADACHI, P. R. BUSECK, A. SEDLACEK, L. KLEINMEN, D. CHAND : 9th Asian Aerosol Conference, 2015
 “Evolution and micro physical properties of biomass-burning aerosol particles”
- 15) M. KAJINO, M. DEUSHI, N. OSHIMA, T. MAKI, Y. INOMATA, K. SATO, A. TAKAMI and S. HATAKEYAMA : AOGS 12th Annual Meeting, 2015
 “Modeling northeast Asian aerosol mass, size, chemistry, and mixing type”
- 16) 五十嵐康人、西口講平、萩野浩之、木名瀬健、北和之：2015 年度日本地球化学会年会（2015）
 「ICP-MS 直接エアロゾル元素分析による野外観測の試み」
- 17) 梶野瑞王、出牛真、大島長、眞木貴史、関山剛、工藤玲、五十嵐康人、猪股弥生、佐藤啓市、高見昭憲、畠山史郎、入江仁士、Pradeep Khatri、三上正男：第 56 回大気環境学会年会（2015）
 「NHM-Chem による我が国におけるエアロゾルの物理・化学・光学特性および関連ガスの整合的再現性評価について」
- 18) N. OSHIMA, T. Y. TANAKA, T. KOSHIRO, H. KAWAI, M. DEUSHI, M. KOIKE and Y. Kondo : 14th Aero Com Workshop, 2015
 “Impact of black carbon aging on its spatial distribution and radiative effect using a MRI global aerosol model”

- 19) 梶野瑞王、出牛真、大島長、眞木貴史、関山剛、工藤玲、五十嵐康人、佐藤陽祐、猪股弥生、佐藤啓市、高見昭憲、嶋山史郎、入江仁士、Pradeep Khatri、三上正男：日本気象学会 2015 年度秋季大会（2015）
「NHM-Chem による我が国におけるエアロゾルの物理・化学・光学特性および関連ガスの整合的再現性評価と最適化について」
- 20) M. KAJINO, Y. IGARASHI, Y. ZAIZEN, K. ADACHI, M. DEUSHI, N. OSHIMA, R. KUDO, T. SEKIYAMA, T. MAKI, Y. INOMATA, K. SATO, A. TAKAMI, S. HATAKEYAMA, and H. IRIE : The 13th International Conference on Atmospheric Sciences and Applications to Air Quality (ASAAQ13), 2015
“Toward consistent prediction of physical, chemical, and optical properties of aerosols, gases and precipitation in Northeast Asia”
- 21) N. OSHIMA, T. Y. TANAKA, T. KOSHIRO, H. KAWAI, M. DEUSHI, M. KAJINO, and M. KOIKE : The 13th International Conference on Atmospheric Sciences and Applications to Air Quality (ASAAQ13), 2015
“Impact of the micro-scale aging process of black carbon on its global-scale spatial distribution and radiative effect”
- 22) Y. IGARASHI, K. NISHIGUCHI, H. HAGINO, T. KINASE and K. KITA : The 13th International Conference on Atmospheric Sciences and Applications to Air Quality (ASAAQ2015), 2015
“Challenges of High Time Resolution Direct Observation of Aerosol Metal Elements in the Field by Using Gas-Conversion ICP-MS II”
- 23) K. ADACHI : The 13th International Conference on Atmospheric Sciences and Applications to Air Quality (ASAAQ2015), 2015
“Chemical and Physical Properties of Individual Aerosol Particles Using Transmission Electron Microscopy to Improve Atmospheric Models”
- 24) N. OSHIMA : JSPS-DFG Workshop on Aerosols, 2015
“Aging of black carbon and its impact on the spatial distribution and radiative effect using a MRI global model”
- 25) 足立光司：構造・組織のハイレゾ分析に基づく地球惑星物質科学（2015）
「大気エアロゾルの構造組成分析で明らかにする地球気候」
- 26) K. ADACHI, P.R BUSECK : The International Chemical Congress of Pacific Basin Societies 2015 (Pacifichem), 2015
“Imaging the interiors of individual aerosol particles using transmission electron microscopy”
- 27) N. OSHIMA, T. Y. TANAKA, T. KOSHIRO, H. KAWAI, M. DEUSHI, and M. KOIKE : Goldschmidt 2016, 2016
“Aging processes of black carbon and its impact on the global-scale radiative forcing”
- 28) K. ADACHI, A. J. SEDLACEK III, L. KLEINMAN, P.R. BUSECK : Goldschmidt 2016, 2016
“Abundance and formation of tar ball particles from biomass burning”
- 29) 梶野瑞王、佐藤陽祐：日本気象学会 2016 年度春季大会（2016）
「雲微物理過程のエアロゾル均一核形成の不確定性に対する感度」

- 30) 梶野瑞王ほか：日本気象学 2016 年度会春季大会（2016）
「エアロゾル湿性除去過程に関する物理・化学同時観測」
- 31) M. KAJINO, K. SATO, C.H. KIM, J. J. LEE, J.H. LIM, A. TAKAMI, H. UEDA: 13th Annual Meeting Asia Oceania Geosciences Society, 2016
“Source-receptor relationship of PM2.5 over East Asia and its validation based on size and chemical speciation measurements”
- 32) 五十嵐康人、梶野瑞王、足立光司、財前祐二、関山剛：第33回エアロゾル科学・技術研究討論会（2016）
「電子顕微鏡データの活用：エアロゾルデータベース構築の試み3」
- 33) 足立光司：第33回エアロゾル科学・技術研究討論会（2016）
「森林火災から発生するエアロゾル粒子」
- 34) N. OSHIMA, T. Y. TANAKA, T. KOSHIRO, H. KAWAI, M. DEUSHI, and M. KOIK : European Aerosol Conference 2016, 2016
“Black carbon aging and its impact on the spatial distribution and radiative forcing using a MRI global climate model”
- 35) 大島長、海保邦夫、足立光司、足立恭将、水上拓也、藤林 恵、齊藤諒介：第 22 回大気化学討論会（2016）
「小惑星衝突により発生したすすによる気候変動 -恐竜などの大量絶滅の可能性」
- 36) K ADACHI, N MOTEKI, Y KONDO, Y IGARASHI : American Geophysical Union 2016 Fall Meeting, 2016
“Mixing States of Light-absorbing Particles Measured Using a Transmission Electron Microscope and a Single-particle Soot Photometer in Tokyo, Japan”

（3）知的財産権

特に記載すべき事項はない。

（4）「国民との科学・技術対話」の実施

特に記載すべき事項はない。

（5）マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項はない。

（6）その他

足立光司、日本エアロゾル学会 奨励賞,2016年8月

[電子顕微鏡を用いた個別粒子単位での形態、混合状態、物理化学特性に関する研究]

8. 引用文献

- 1) K. Adachi, N. Moteki, Y. Kondo, Y. Igarashi: J. Geophys. Res. Atmos., 121, 9153-9164, (2016)

- “Mixing states of light-absorbing particles measured using a transmission electron microscope and a single-particle soot photometer in Tokyo, Japan”
- 2) S. Ueda, T. Nakayama, F. Taketani, K. Adachi, A. Matsuki, Y. Iwamoto, Y. Sadanaga and Y. Matsumi: *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 2525-2541 (2016)
 “Light absorption and morphological properties of soot-containing aerosols observed at an East Asian outflow site, Noto Peninsula, Japan”
 - 3) A. Bateman, Gong, Z., Harder, T. H., de Sá, S. S., Wang, B., Castillo, P., China, S., Liu, Y., O'Brien, R. E., Palm, B. B., Shiu, H.-W., Cirino, G. G., Thalman, R., Adachi, K., Alexander, M. L., Artaxo, P., Bertram, A. K., Buseck, P. R., Gilles, M. K., Jimenez, J. L., Laskin, A., Manzi, A. O., Sedlacek, A., Souza, R. A. F., Wang, J., Zaveri, R., and Martin, S. T.: *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 1759-1773 (2017)
 “Anthropogenic influences on the physical state of submicron particulate matter over a tropical forest”
 - 4) N. Moteki, K. Adachi, S. Ohata, A. Yoshida, T. Harigaya, M. Koike, and Y. Kondo: *Nature Communications*
 “Anthropogenic iron oxide aerosols enhance atmospheric heating”(Accepted)
 - 5) T. F. Stocker, D. Qin, G.-K. Plattner, M. Tignor, S. K. Allen, J. Boschung, A. Nauels, Y. Xia, V. Bex and P. M. Midgley (eds.): Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, 1535 pp (2013)
 “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”
 - 6) Bond, T. C., Doherty, S. J., Fahey, D. W., Forster, P. M., Berntsen, T., DeAngelo, B. J., Flanner, M. G., Ghan, S., Karcher, B., Koch, D., Kinne, S., Kondo, Y., Quinn, P. K., Sarofim, M. C., Schultz, M. G., Schulz, M., Venkataraman, C., Zhang, H., Zhang, S., Bellouin, N., Guttikunda, S. K., Hopke, P. K., Jacobson, M. Z., Kaiser, J. W., Klimont, Z., Lohmann, U., Schwarz, J. P., Shindell, D., Storelvmo, T., Warren, S. G., Zender, C. S.: *J. Geophys. Res.*, doi:10.1002/jgrd.50171, (2013)
 “Bounding the role of black carbon in the climate system: A scientific assessment”
 - 7) Koch, D., Schulz, M., Kinne, S., McNaughton, C., Spackman, J. R., Balkanski, Y., Bauer, S., Berntsen, T., Bond, T. C., Boucher, O., Chin, M., Clarke, A., De Luca, N., Dentener, F., Diehl, T., Dubovik, O., Easter, R., Fahey, D. W., Feichter, J., Fillmore, D., Freitag, S., Ghan, S., Ginoux, P., Gong, S., Horowitz, L., Iversen, T., Kirkevåg, A., Klimont, Z., Kondo, Y., Krol, M., Liu, X., Miller, R., Montanaro, V., Moteki, N., Myhre, G., Penner, J. E., Perlwitz, J., Pitari, G., Reddy, S., Sahu, L., Sakamoto, H., Schuster, G., Schwarz, J. P., Seland, O., Stier, P., Takegawa, N., Takemura, T., Textor, C., van Aardenne, J. A., and Zhao, Y.: *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 9001-9026 (2009)
 “Evaluation of black carbon estimations in global aerosol models”
 - 8) Shindell, D. T., Chin, M., Dentener, F., Doherty, R. M., Faluvegi, G., Fiore, A. M., Hess, P., Koch, D. M., MacKenzie, I. A., Sanderson, M. G., Schultz, M. G., Schulz, M., Stevenson, D. S., Teich, H., Textor, C., Wild, O., Bergmann, D. J., Bey, I., Bian, H., Cuvelier, C., Duncan, B. N., Folberth, G., Horowitz, L. W., Jonson, J., Kaminski, J. W., Marmer, E., Park, R., Pringle, K. J., Schroeder, S., Szopa, S., Takemura, T., Zeng, G., Keating, T. J., and Zuber, A.: *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 5353-5372,

- doi:10.5194/acp-8-5353-2008 (2008)
 “A multi-model assessment of pollution transport to the Arctic”
- 9) Oshima, N., M. Koike, Y. Zhang, Y. Kondo, N. Moteki, N. Takegawa, and Y. Miyazaki: *J. Geophys. Res.*, 114(D6), doi:10.1029/2008JD010680, (2009a)
 “Aging of black carbon in outflow from anthropogenic sources using a mixing state resolved model: Model development and evaluation”
- 10) Jacobson, M. Z. : *Geophys. Res. Lett.*, 27(2), 217–220, doi:10.1029/1999GL010968(2000)
 “A physically-based treatment of elemental carbon optics: Implications for global direct forcing of aerosols”
- 11) Stier, P., J. H. Seinfeld, S. Kinne, J. Feichter, and O. Boucher: *J. Geophys. Res.*, 111, D18201, doi:10.1029/2006JD007147(2006)
 “Impact of nonabsorbing anthropogenic aerosols on clear-sky atmospheric absorption”
- 12) Yukimoto, S., Y. Adachi, M. Hosaka, T. Sakami, H. Yoshimura, M. Hirabara, T. Y. Tanaka, E. Shindo, H. Tsujino, M. Deushi, R. Mizuta, S. Yabu, A. Obata, H. Nakano, T. Koshiro, T. Ose, and A. Kitoh: *J. Meteorol. Soc. Jpn.*, 90A, 23-64, (2012)
 “A New Global Climate Model of the Meteorological Research Institute: MRI-CGCM3 —Model Description and Basic Performance —”
- 13) Tanaka, T. Y., K. Orito, T. T. Sekiyama, K. Shibata, M. Chiba, and H. Tanaka: *Papers in Meteor. and Geophys.* 53(4), 119-138, (2003)
 “MASINGAR, a global tropospheric aerosol chemical transport model coupled with MRI/JMA98 GCM: Model description”
- 14) Deushi, M., K. Shibata: *Papers in Meteor. and Geophys.* 62, 1-46, (2011)
 “Development of a Meteorological Research Institute Chemistry-Climate Model version 2 for the Study of Tropospheric and Stratospheric Chemistry”
- 15) Yoshimura, H and Yukimoto, S: *Pap. Met. Geophys.*, 59, 19-29, (2008)
 “Development of a Simple Coupler (Scup) for Earth System Modeling”
- 16) Oshima, N. and M. Koike: *Geosci. Model Dev.*, 6, 263-282, doi:10.5194/gmd-6-263-2013 (2013)
 “Development of a parameterization of black carbon aging for use in general circulation models”
- 17) Yoshimura, H., R. Mizuta, and H. Murakami: *Mon. Wea. Rev.*, 143, 597–621, doi:10.1175/MWR-D-14-00068.1(2015)
 “A spectral cumulus parameterization scheme interpolating between two convective updrafts with semi Lagrangian calculation of transport by compensatory subsidence”
- 18) Oshima, N., M. Koike, Y. Zhang, Y. Kondo: *J. Geophys. Res.*, 114(D18), doi: 10.1029/2008JD011681, (2009b)
 “Aging of black carbon in outflow from anthropogenic sources using a mixing state resolved model: 2. Aerosol optical properties and cloud condensation nuclei activities.”
- 19) Lamarque, J.-F., Bond, T. C., Eyring, V., Granier, C., Heil, A., Klimont, Z., Lee, D., Liousse, C., Mieville, A., Owen, B., Schultz, M. G., Shindell, D., Smith, S. J., Stehfest, E., Van Aardenne, J., Cooper, O. R., Kainuma, M., Mahowald, N., McConnell, J. R., Naik, V., Riahi, K., and van Vuuren,

- D. P.: *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 7017-7039, doi:10.5194/acp-10-7017-2010, (2010)
“Historical (1850–2000) gridded anthropogenic and biomass burning emissions of reactive gases and aerosols: methodology and application”
- 20) Kaiser, J. W., Heil, A., Andreae, M. O., Benedetti, A., Chubarova, N., Jones, L., Morcrette, J.-J., Razinger, M., Schultz, M. G., Suttie, M., and van der Werf, G. R.: *Biogeosciences*, 9, 527-554, doi:10.5194/bg-9-527-2012(2012)
“Biomass burning emissions estimated with a global fire assimilation system based on observed fire radiative power”
- 21) Oshima, N., Y. Kondo, N. Moteki, N. Takegawa, M. Koike, K. Kita, H. Matsui, M. Kajino, H. Nakamura, J. S. Jung, and Y. J. Kim: *J. Geophys. Res.*, 117, D03204, doi:10.1029/2011JD016552, (2012)
“Wet removal of black carbon in Asian outflow: Aerosol Radiative Forcing in East Asia (A-FORCE) aircraft campaign”
- 22) Wofsy, S. C., H. S. Team, T. Cooperating Modellers, and T. Satellite: *Phil. Trans. Math. Phys. Eng. Sci.*, 369(1943), 2073–2086, doi:10.1098/rsta.2010.0313(2011)
“HIAPER Pole-to-Pole Observations (HIPPO): Fine-grained, global-scale measurements of climatically important atmospheric gases and aerosols”
- 23) Wang, Q., D. J. Jacob, J. R. Spackman, A. E. Perring, J. P. Schwarz, N. Moteki, E. A. Marais, C. Ge, J. Wang, and S. R. H. Barrett: *J. Geophys. Res. Atmos.*, 119, 195–206, doi:10.1002/2013JD020824(2014)
“Global budget and radiative forcing of black carbon aerosol: Constraints from pole-to-pole (HIPPO) observations across the Pacific”
- 24) Samset, B. H., Myhre, G., Herber, A., Kondo, Y., Li, S.-M., Moteki, N., Koike, M., Oshima, N., Schwarz, J. P., Balkanski, Y., Bauer, S. E., Bellouin, N., Berntsen, T. K., Bian, H., Chin, M., Diehl, T., Easter, R. C., Ghan, S. J., Iversen, T., Kirkevåg, A., Lamarque, J.-F., Lin, G., Liu, X., Penner, J. E., Schulz, M., Seland, Ø., Skeie, R. B., Stier, P., Takemura, T., Tsigaridis, K., and Zhang, K.: *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 12465-12477, doi:10.5194/acp-14-12465-2014(2014)
“Modelled black carbon radiative forcing and atmospheric lifetime in AeroCom Phase II constrained by aircraft observations”

(3) エアロゾル粒径分布と化学組成

国立研究開発法人国立環境研究所	地域環境研究センター	高見 昭憲
(同)		三好猛雄 (平成26年度のみ)
(同)		奈良英樹 (平成26年度のみ)

平成26～28年度累計予算額：25,740千円（うち平成28年度：8,449千円）

予算額は、間接経費を含む。

【要旨】

東京都心における大気エアロゾルの化学組成と粒径分布を明らかにした。また降水試料に対して初めてオンラインシステムでエアロゾル質量分析計（AMS）を使用することにより、降水中の化学組成を同時に測定した。その結果、大気エアロゾルと降水中ではともに硫酸イオンと有機物の濃度が高く、化学組成にあまり差がないことが判明した。一方、降雨の初期において、降水中には酸化された有機物の割合が高く、大気中では親水性と考えられ、雲や雨滴に多く取り込まれたと推測される。アジア大陸からの影響を受ける沖縄辺戸ステーション、長崎福江観測所で観測を実施し、エアロゾルの粒径分布や化学組成の測定を行った。沖縄辺戸、長崎福江島での観測では、酸化された有機物の割合が多く、硫酸イオンも多いことからエアロゾルの輸送中に酸化されていることが明らかとなった。このような化学組成のうち無機イオンと有機物の割合が吸湿成長因子を支配しており、結果として化学組成が雲凝結核特性に大きく寄与していることが明らかとなった。

【キーワード】

黒色炭素、硫酸アンモニウム、有機物、Q-AMS

1. はじめに

黒色炭素（Black Carbon : BC）は二酸化炭素、メタンに次いで3番目に大きな正の放射強制力を持つ。BCは石炭燃焼、自動車排気、調理、森林火災などから排出されるが、大気中に排出されたBCは硫酸アンモニウム、硝酸アンモニウムなどの無機物や有機物などに被覆され混合したエアロゾルとなる。被覆されたBCを含むエアロゾルは親水性となり、吸湿特性が高くなり、雲凝結核特性が高くなる。その結果、降水によって除去される。BCの降水による除去過程を理解するためには、大気中のエアロゾルに含まれる、無機・有機物の化学組成を観測する必要がある。

我々は2003年以降エアロゾル質量分析計を用いて、大気中のエアロゾルの化学組成を高い時間分解能で分析してきた。今回の課題では大気エアロゾル、及び、降水に含まれる無機・有機物の化学組成分析を行う。

2. 研究開発目的

BCの被覆、雲凝結核特性、降水による除去過程の理解、及び、モデルシミュレーションの高精度化に貢献するため、サブテーマ1と協力して、東京都市部や離島などにおいて大気エアロゾル、及び、降水に含まれる無機・有機物の化学組成を明らかにする。

3. 研究開発方法

(1) 東京での観測

平成26年度は、東京での集中観測に参加しエアロゾルの粒径分布や化学組成を測定した。平成26年7月25日から8月15日にかけて、東京大学本郷キャンパス理学部一号館において大気エアロゾルの連続観測を実施した。エアロゾルの観測には走査式モビリティパーティクルサイザー(Scanning Mobility Particle Sizer: SMPS, model 3034、TSI社)および四重極質量分析計搭載型エアロゾル質量分析計(Quadrupole Aerosol Mass Spectrometer: Q-AMS、エアロダイナ社)を用い、それぞれエアロゾルの粒径分布と個数濃度、化学組成と化学組成別の粒形分布を計測した。SMPSとQ-AMSの設置場所は異なり、SMPSは理学部一号館の6階に、Q-AMSは12階の室内に設置した。

SMPSは静電分級器(Differential Mobility Analyzer : DMA)と、凝縮核粒子個数濃度測定器

(Condensation Nuclear Counter : CPC)から構成される。DMAは二重円筒の間に空気を流すとともに電荷をもつエアロゾルを導入し、10kVまでの高電圧をかけて静電気力と空気の流れによる力

(Drag Force) のつり合いによって粒径を分級する装置である。また、CPCはブタノールの飽和蒸気にエアロゾルを通過させ、粒径を大きくして光散乱法によって粒子の個数濃度を計測する装置である。SMPSを設置した6階では室外大気をダイアフラムポンプにより吸引・採取しており、Nafionガスドライヤーを通じることで予め除湿された粒子およびガスが室内のマニホールドへと供給されている。このマニホールドから各種装置が試料大気を採取しており、SMPSは1 L/minの流量でマニホールドから試料大気を吸引した。SMPSでは10.4 nmから469.8 nmまでの粒径範囲を3分かけて54チャンネルでスキャンし、4回のスキャンで得られた各粒径における個数濃度の平均値を12分ごとに出力した。

Q-AMSによるエアロゾルの化学組成計測は以下の通りである^{1,2)}。まずQ-AMSに導入された大気は、エアロダイナミックレンズを用いて粒子とガス成分に分離され粒子ビームを形成する。粒子ビームは約600°Cに加熱した蒸発器に衝突し、600°Cで気化する物質は70eVの電子衝撃法によりイオン化し、四重極質量分析計で各質量数のシグナルを測定する。質量スペクトルのうち、窒素などのガス成分や、硫酸イオン、硝酸イオンなどの無機成分をまず同定し、シグナル全体から同定された成分を引いた残りを有機物とした。直径350nmの硝酸アンモニウム粒子をQ-AMSに導入し、その時のシグナルを測定して質量濃度に変換した。Q-AMSではチョッパーから検出器までの粒子の飛行時間を測定することにより、粒径分布を測定できる。粒径既知のポリスチレンラテックス粒子の飛行時間を測定し、飛行時間と粒径の校正曲線を作成する。その校正曲線をもとに、粒子の密度を考慮に入れ飛行時間から粒径分を算出した。

12階におけるエアロゾル計測では、非降雨時には大気エアロゾルを、降雨時には降水中に存在する成分をQ-AMSをはじめとする各種装置へと導入するインレットシステムが用いられた。非降雨時には6階の大気採取システム同様、屋上に設置された大気採取口から試料大気をダイアフラムポンプで吸引・採取し、Nafionガスドライヤーを通じることで除湿した大気を約0.1 L/minの流量でQ-AMSへと導入した(大気観測モード)。降雨時には屋上に設置された降水サンプラーによって降雨が集水され、集水された降水サンプルは12階に設置された降水タンクに採水される。タンクへの採水量は液面センサーでモニターされており、採水量が5 mLを超えるとペリスターポンプが起動し、タンク内に採水された降水が噴霧装置へと0.1 mL/minの流量で導入される。この際、Q-AMS

のインレット流路が大気観測モードから変更される。噴霧装置によって粒子化された降水サンプルがQ-AMSへと導入され、降水サンプル中の各成分の質量濃度および空気力学的粒径が計測される(雨水観測モード)。計測は10分間隔で行われた。また、捕集効率(CE: Collection Efficiency)については、同時に行われたフィルター観測との比較により、1が妥当であるとした。IE_NO₃は2.8e-7、RIE_NH₄は4.5であった。

降水時における有機化合物の酸化について、Positive Matrix Factorization (PMF) 法³⁾を用いて解析を行った。PMF法とは、因子分解法の一つであり、ここではQ-AMSによって観測されたエアロゾル中の有機物の質量スペクトルの特徴を明らかにするため用いた。有機物の質量スペクトルにおいては、酸化された有機物はカルボン酸のフラグメントCOO⁺に対応する質量数(m/z) 44に大きなピークが現れる。一方であまり酸化されていない場合にはC₄H₇⁺、C₄H₉⁺など炭化水素のフラグメントがm/z=55、57に現れる。これら特徴的なフラグメントパターンを用いて、シグナルがマイナスにならないという制約条件の下で、有機物のスペクトルをいくつかの因子に分解する方法がPMF法である。

(2) 沖縄辺戸岬における観測

平成27年度は、アジア大陸からの影響を受ける空間的代表性の高い観測点で観測を実施し、エアロゾルの粒径分布や化学組成の測定を行い、有機エアロゾルモデル検証のための基礎的データを収集した。そこで、これまでの観測実績^{2,4,5)}から、東シナ海の中心に位置し、周囲を海に囲まれているため、空間的代表性が高いと考えられる国立環境研究所沖縄辺戸岬大気・エアロゾル観測ステーションにおいて大気エアロゾルの連続観測を実施した。越境大気汚染などアジア大陸からの影響を受ける時期に観測をすることが適切と考えられるため、観測は平成28年2月、3月に行われた。エアロゾルの粒径分布観測にはワイドレンジパーティクルスペクトロメーター (Wide-range Particle Spectrometer: WPS、model 1094、MSP社)を用い、エアロゾルの化学組成分析にはQ-AMSを用いた。WPSは直径480nmまでのエアロゾルはSMPSと同様にDMAとCPCで測定し、それより大きい粒径は光学式粒子計測器 (Light scattering Particle Spectrometer: LPS) で測定した。10 nmから480 nmまでの粒径範囲では48チャンネルでスキャンし分級し、520nmから10 μ mまでは24チャンネルに分けて測定した。大気観測では、PM₁₀の共通のインレットにWPSを接続して行った。Q-AMSによるエアロゾル計測では、PM_{2.5}カットサイクロンを用いて粗大粒子を除去し、Q-AMSに大気エアロゾルを導入するインレットシステムを用いた。粒子の質量濃度はTapered Element Oscillating Microbalance (TEOM) を用いて測定した。TEOMは水晶振動子上に粒子を捕集し、水晶振動子の振動数が質量に依存して変化することにより、粒子質量を測定する。PM_{2.5}カットサイクロンで粗大粒子をカットし、微小粒子 (PM_{2.5}) の質量濃度を測定した。気温、気圧、湿度、降水などをバイサラ社のWXT520を用いて測定した。

一般に公開されている後方流跡線計算モデル (NOAA HYSPLIT)⁶⁾、大気汚染物質濃度分布計算モデル (CFORS)⁷⁾などを用いて、大気汚染物質の輸送状況や、東シナ海域の濃度分布などを計算した。

(3) 長崎福江島における観測

平成28年度は、北部九州 (福江など) での粒子の化学組成データを追加で取得し、データを整理したうえで有機エアロゾルモデルの検証やBC放射強制力評価のための基礎的データをモデルグループに提供した。そこで、これまで都市の代表としての東京都心部、東アジアのリモートな地

域の代表としての沖縄辺戸岬での観測を行ってきたので、平成28年度は長崎県五島列島福江島において、アジア大陸からの越境大気汚染が卓越する春季に観測を行い、有機エアロゾルを含む、越境輸送される粒子の化学組成や有機物の酸化について解析を行った。

エアロゾルの観測には米国Aerodyne社製のAerosol Chemical Speciation Monitor(ACSM)を用い化学組成を計測した。ACSMによるエアロゾル計測⁸⁾では、PM_{2.5}カットサイクロンを用いて粗大粒子を除去し、ACSMに大気エアロゾルを導入するインレットシステムを用いた。ACSMは原理的にはQ-AMSとほぼ同じであるが、粒径分布は測定できない。直径300nmの硝酸アンモニウム粒子を用いてACSMに導入し、その時のシグナルを測定して質量濃度に変換した。質量スペクトルのうち、窒素などのガス成分や、硫酸イオン、硝酸イオンなどの無機成分をまず同定し、シグナル全体から同定された成分を引いた残りを有機物とした。粒子の質量濃度はTEOMを用いて測定した。PM_{2.5}カットサイクロンで粗大粒子をカットし、微小粒子 (PM_{2.5}) の質量濃度を測定した。

4. 結果及び考察

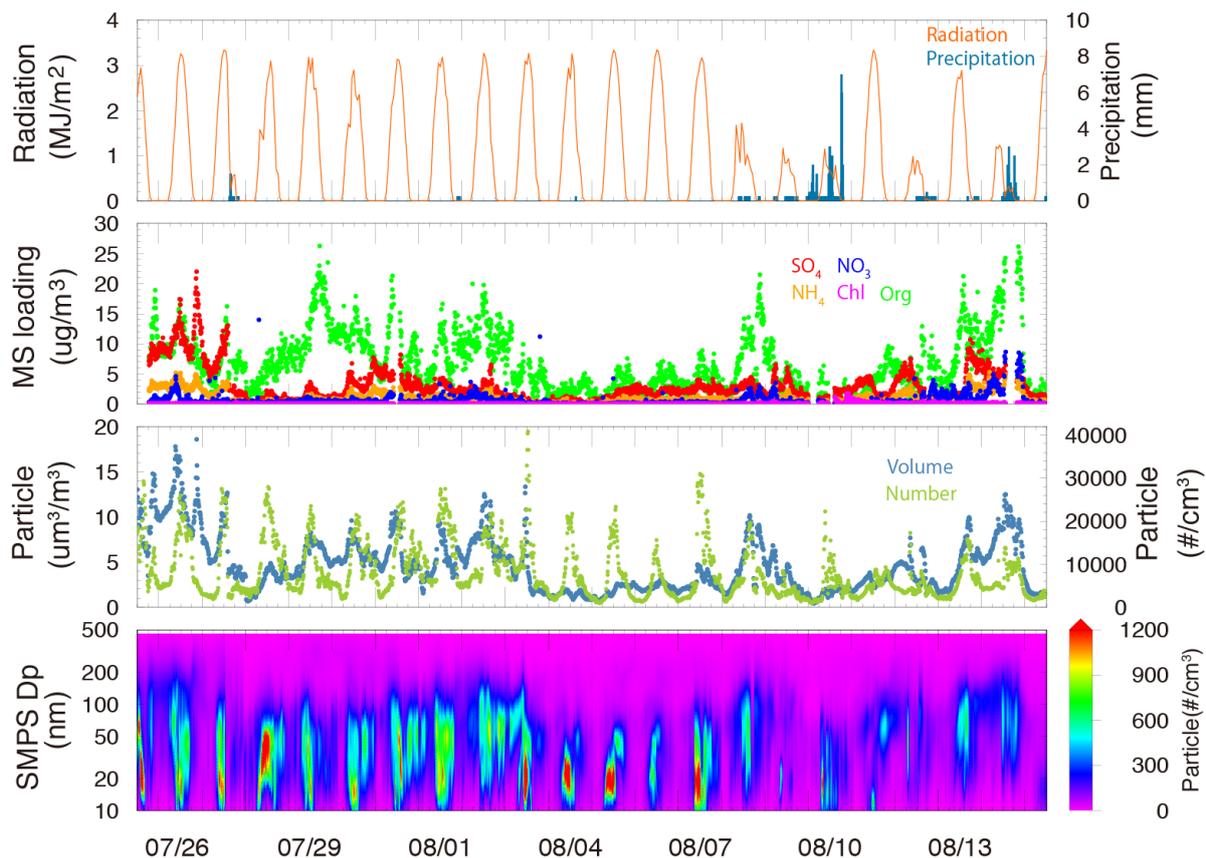
(1) 東京での観測

平成26年夏季に東京大学理学部一号館で行われた観測の結果を示す。図(3)-1に、7月25日12時から8月15日12時までの大気観測モード時のQ-AMSによって計測された化学組成別(アンモニウムイオン、硝酸イオン、硫酸イオン、塩化物イオン、有機物)の質量濃度(2段目)、SMPSによって計測されたエアロゾル個数濃度とその粒径分布(3段目と4段目)の時系列変化を日射量、降水量(1段目)とともに示す。大気観測モードと雨水観測モードとで、Q-AMSにより観測された各成分の濃度が大きく異なっていたため、ここでは大気観測モードにおける計測結果のみを示した。また、日射量と降水量のデータは気象庁によって公表されている東京の気象観測地点(観測当時、東京都千代田区大手町に所在)における日射量(1時間値)と降水量(10分値)のデータを参照した。観測期間は日射量、降水量に基づいて、観測が開始された7月25日から8月7日までのほとんど降雨が観測されなかった前半期間、8月8日から観測が終了した8月15日までの降雨が頻繁に観測された後半期間の二つの期間に大別された。前半期間では一度、7月27日に、後半期間では8月10、12、14日に1時間の降水量が0.5 mmを超える降水イベントが観測された。特に、8月10日には台風が日本列島を通過したことに起因して非常に強い降雨が観測された。

観測期間中、SMPSで計測された個数濃度は約1,000から40,000個/cm³、粒径は200 nm以下の範囲で変動を示した。観測の前半期間では、個数濃度は日射量と強い相関関係を示し、日中に最大、夜間に最小となる日変動が見られた。また、粒径分布は50 nm以下を中心として観測されており、日中に粒径が最小、夜間に最大となる日変動が見られた。これらの結果は観測したエアロゾルに対し日中の近郊の発生源からの直接放出、あるいは二次生成粒子からの寄与が大きいことを示唆している。前半期間の7月27日の夕方に観測された降水イベント中では個数濃度と粒径分布に大きな変化は見られなかったが、降水の数時間前に起こった風向の大きな変化に対応して個数濃度が大きく減少したことが観測された。後半期間では前半期間に対して明瞭な日射量との相関関係が見られなくなり、日平均の個数濃度も前半期間に対して減少した。前半の降雨イベント時と同様、降雨に対応する個数濃度や粒径分布の変化は見られず、風向の変化に対応した個数濃度の変化が見られた。

大気観測モードにおけるQ-AMSデータの平均を調べたところ、有機物の濃度が最も高く、測定

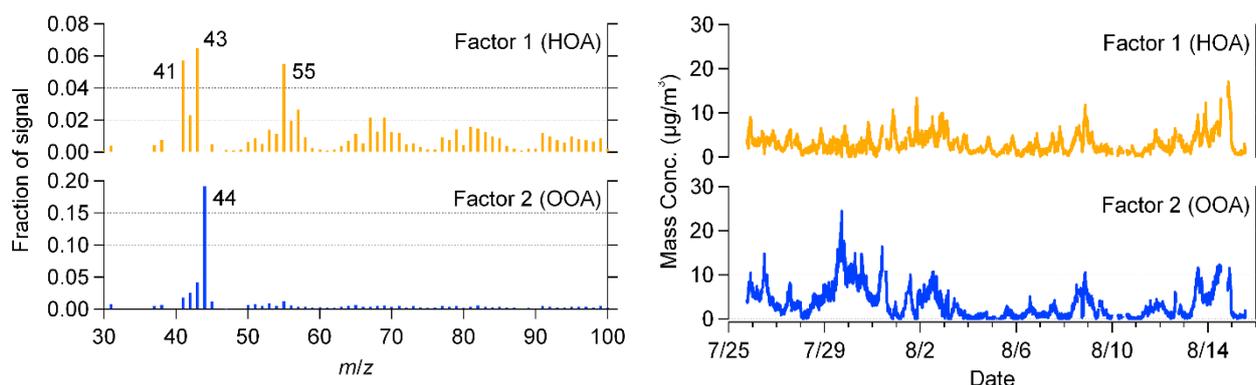
された5成分の合計に対する割合が58.3%を占めていた(表(3)-1)。これはリモート地域に位置する国立環境研究所辺戸岬大気・エアロゾル観測ステーションにおいて得られた硫酸イオンが65.5%、有機物が19.0%という結果(2003年10月から2004年7月までの平均値)⁴⁾と傾向が異なっていた。大気観測モードのQ-AMS有機物データに対して、PMF法による解析を行った(図(3)-2)。因子数を2としたところ、因子1が炭化水素様有機エアロゾル(Hydrocarbon-like Organic Aerosol



図(3)-1: 東京大学理学部1号館での観測によって得られたデータの概要
(Q-AMSのデータは大気観測モードのみ)

表(3)-1: 大気観測モードにおいて、Q-AMSにより計測されたエアロゾル中の各成分の平均濃度($\mu\text{g}/\text{m}^3$)と合計に対する割合(カッコ内、%)

アンモニウムイオン	硝酸イオン	硫酸イオン	塩化物イオン	有機物	合計
1.1 (9.5)	0.6 (5.4)	3.0 (26.1)	0.1 (0.7)	6.7 (58.3)	11.6

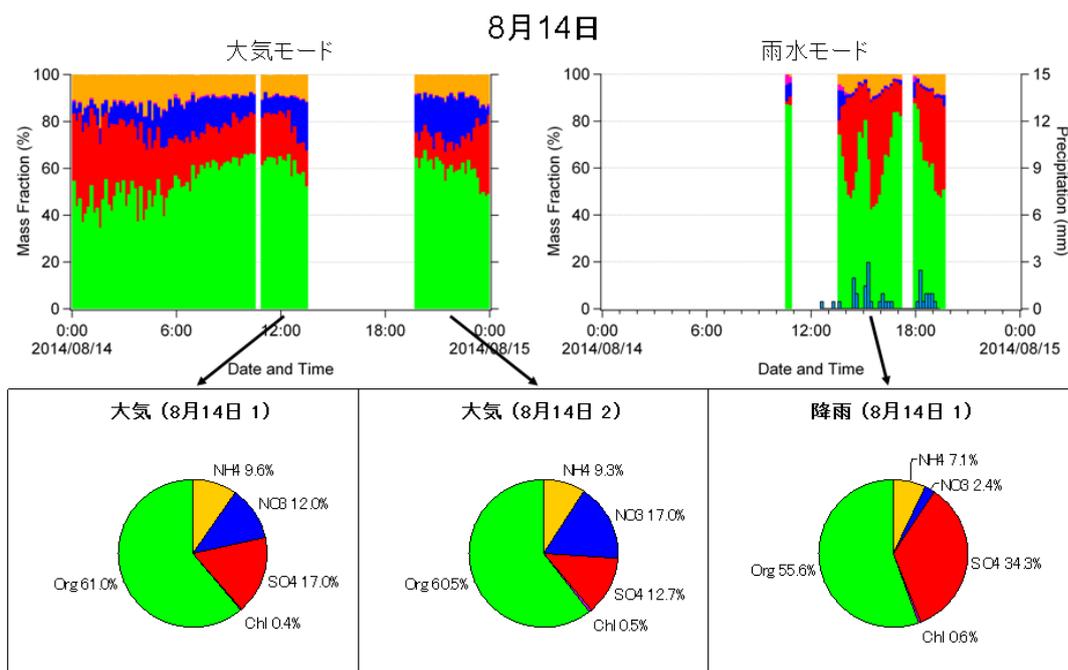
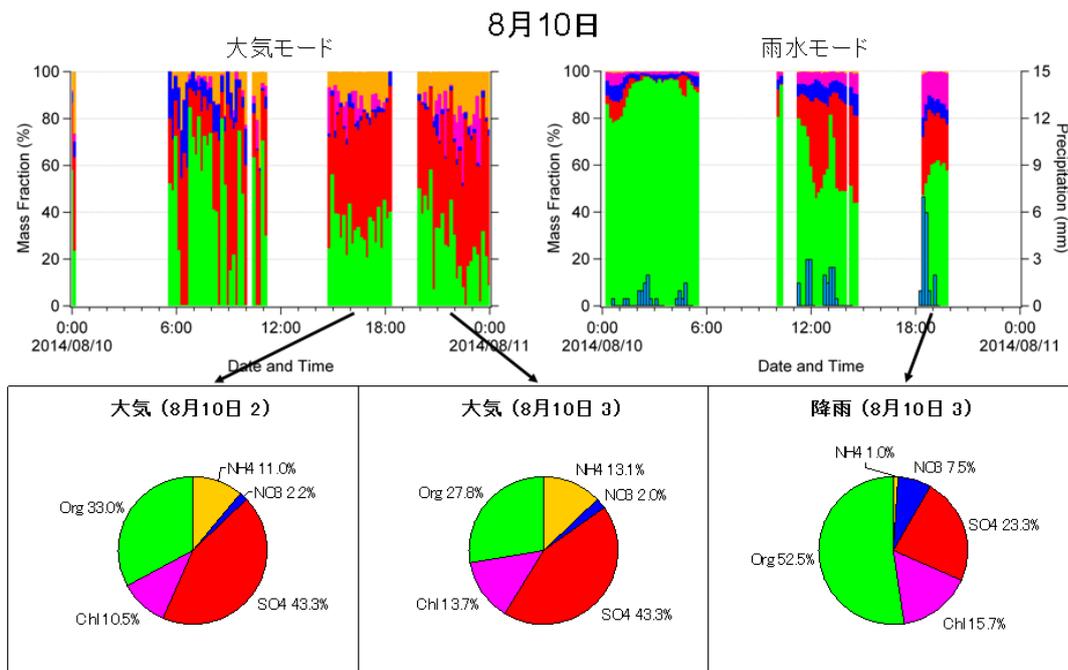


図(3)-2: 大気観測モードのQ-AMS有機物データに対するPMF解析結果

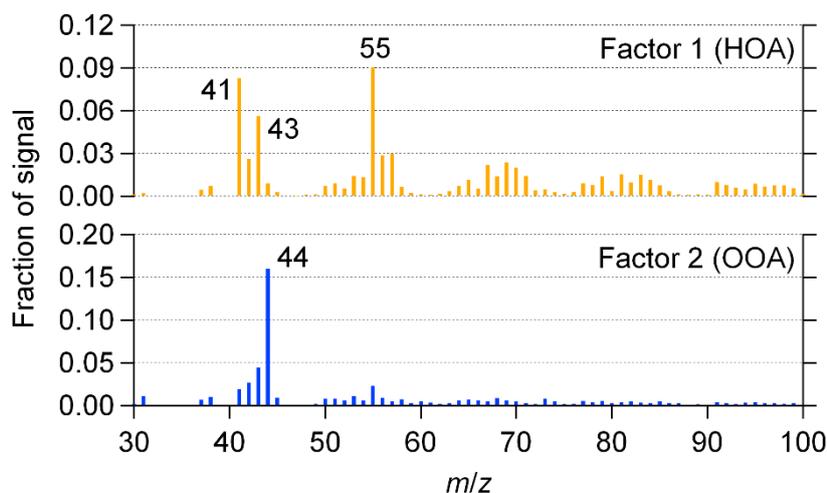
: HOA) と推定された。HOAは図(3)-2に示すように質量スペクトルにおいて、 $m/z = 41$ 、 43 、 55 に特徴的なピークがみられる。また、因子2は質量スペクトルでカルボン酸 (COO^+) と考えられる $m/z = 44$ に特徴的なピークがみられたので、酸化された有機エアロゾル (Oxygenated Organic Aerosol: OOA) と推定された。これらの因子の強度を調べたところ、平均でHOAが46.9%、OOAが53.1%となっており、ほぼ同程度であった。因子強度の変動については、OOAが7月29日から30日にかけて、大きくなっていることがわかった。これが長距離輸送に由来する場合、硫酸イオン濃度も高くなることが予想されたが、今回のケースにおいて、そのような結果は得られなかった。降雨時のデータについては、まとまった降雨が観測され、サンプリングライン洗浄時における各成分の濃度(ブランク)が比較的低くなった8月10日と8月14日を解析の対象とした。表(3)-2にQ-AMSにより計測された降水サンプル中の各成分の質量濃度および合計に対する割合を降水イベントごとに示す。降雨時の各成分の濃度は大気観測モードで計測された濃度に比べて、高くなっているが、特に有機物において、その傾向が顕著であった。8月10日0時から5時20分には有機物の割合が80%を超えていた。

表(3)-2: Q-AMSにより計測された降水サンプル中の各成分の濃度($\mu\text{g}/\text{m}^3$)と合計に対する割合(カッコ内、%)

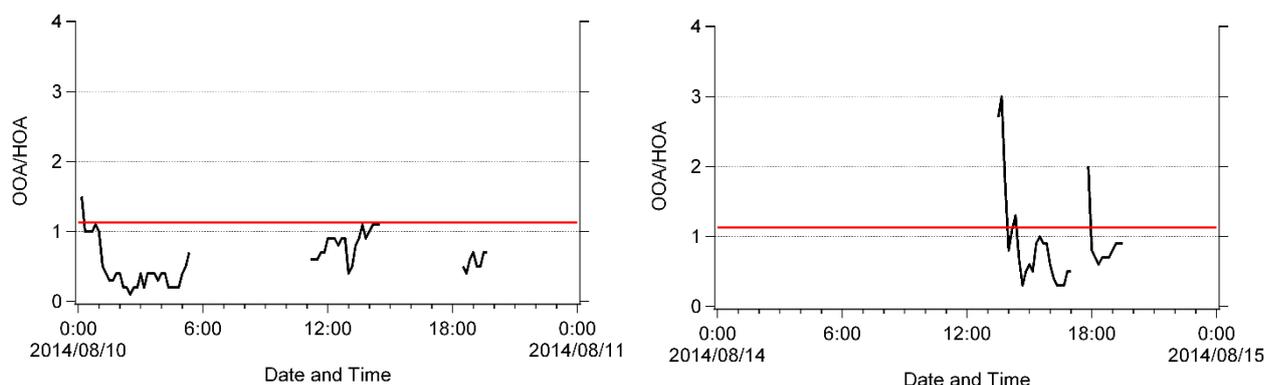
日時	アンモニウムイオン	硝酸イオン	硫酸イオン	塩化物イオン	有機物	合計
8/10 0:00-5:20	1.2 (0.5)	9.2 (4.0)	14.2 (6.1)	5.9 (2.5)	201.9 (86.9)	232.4
8/10 11:00-14:30	1.3 (0.5)	17.6 (7.5)	74.5 (31.9)	13.9 (5.9)	126.2 (54.0)	233.5
8/10 18:10-19:40	3.2 (1.0)	24.9 (7.5)	77.9 (23.3)	52.4 (15.7)	175.2 (52.5)	333.6
8/14 13:20-17:00	19.2 (7.1)	6.4 (2.4)	92.4 (34.3)	1.7 (0.6)	149.8 (55.6)	269.5
8/14 17:40-19:30	10.0 (6.5)	2.5 (1.6)	49.3 (32.1)	0.4 (0.3)	91.1 (59.4)	153.4



図(3)-3: Q-AMSによって計測された各成分のマスフラクション(上: 8月10日、下: 8月14日; 黄: アンモニウムイオン、青: 硝酸イオン、赤: 硫酸イオン、ピンク: 塩化物イオン、緑: 有機物)



図(3)-4-a: 降水中の有機物のPMF法による質量スペクトルの解析結果。



図(3)-4-b: 降水中の有機物のOOA/HOAの比の時間変化。左は8月10日、右は8月14日の降水における観測

図(3)-3は各成分のマスフラクションを調べた結果である(上側が8月10日、下側が8月14日)。それぞれにおいて、マスフラクションの時系列変化を大気観測モードと雨水観測モードに分け、雨水観測モードの図には降水量のデータを合わせて示した。円グラフはそれぞれの観測モードにおける各期間の平均のマスフラクションである。降雨の前後における化学組成の変化について調べた。その結果、非常に強い降雨が観測された8月10日18時10分から19時40分前後(円グラフの[大気8月10日2]と[大気8月10日3])、比較的、長時間にわたり降雨が観測された8月14日13時20分から19時30分前後(円グラフの[大気8月14日1]と[大気8月14日2])において、顕著な違いは見られなかった。ただし、8月10日11時から14時30分にかけての降雨では降水量が多いときに有機物の割合が高く、8月14日13時20分から17時にかけての降雨では降水量が多いときに硫酸イオンの割合が高くなっており、降雨の強度に対応して化学組成が変化している様子が観測された。

東京での降雨時の観測結果についても解析を行った。雨水観測モードにおいてQ-AMSで測定した有機物データに対して、PMF法による解析を行った(図(3)-4-a,b)。因子数を2としたところ、大

気観測モードのときと同様に、HOAとOOAと考えられる因子が抽出された。一般的にHOAは疎水的であると考えられ、OOAは水溶性の官能基があるため親水性であると考えられている。

8月10日と8月14日の降雨時におけるOOAとHOAの比を調べた。この結果、14日の降雨の初めにおいて、大気観測モードにおける比(1.13、赤のラインで示した)より高くなっていたことがわかった。降雨の初めには親水性の高い硝酸イオンや非海塩性の硫酸イオンが降水中に多く含まれ、pHの値が低くなるのがこれまでも報告されている⁹⁾。同様に、親水性であるOOAが降雨の初めに雨粒に多く取り込まれたことが考えられる。ただし、その比は急激に下がり、雨水中でもOOAの割合が小さくなっている。降水中でのOOA/HOA比が変化することは、大気中の微粒子の酸化度が一様ではないことを示している。また、有機物においても無機イオン同様その酸化度や親水性の違いにより、雨水への取り込みに差が生じていることを示唆している。さらに、非降雨時の粒子より降雨時の粒子に含まれる有機物のほうがOOAは多いため、雲粒中で酸化が進んでいることが示唆された。

(2) 沖縄辺戸岬における観測

沖縄辺戸ステーションで平成28年2月末から3月初めにWPS、Q-AMSを用いて観測した大気エアロゾルの粒径分布、PM2.5質量濃度と化学組成濃度の時間変化を示す(図(3)-5-a, b)。またこの期間の硫酸イオンの粒径分布の時間変化も示す(図(3)-5-c)。

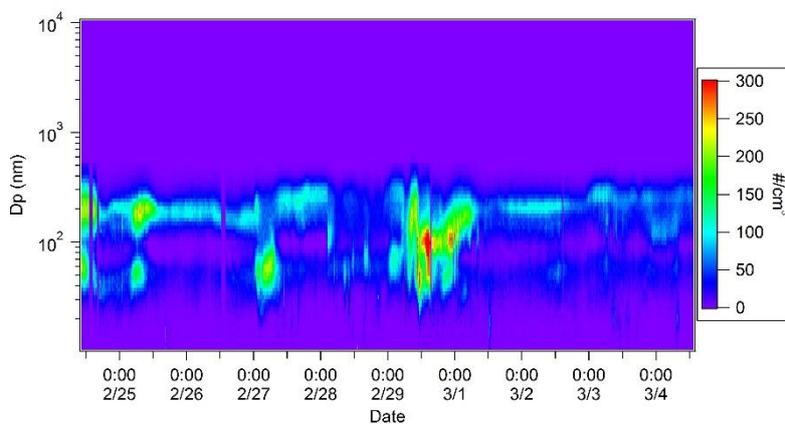
WPSで測定された粒径分布の特徴は二峰型であり、直径50nm付近と200nm付近に個数濃度のピークがある。WPSは粗大粒子も測定できるが、これまでのところ黄砂は飛来しておらず、個数濃度は非常に少ない。過去の観測でも沖縄辺戸ステーションでは二峰型の粒径分布がみられており⁵⁾、今回の観測と整合的である。WPSでは直径10nm以上の粒子を測定できるため、新粒子生成が起きているかどうかの判定は難しい面もあるが、これまでのところ、小粒子が成長するいわゆるバナナカーブは見られておらず、新粒子生成は起きていないと考えられる。

Q-AMSでの測定では、過去の測定同様、主要成分は有機物、硫酸イオンであった。また、この期間降雨はほぼ観測されなかった。TEOMで測定したPM2.5の質量濃度を図(3)-5-bに示した。時間変動がほぼ一致しており、両者の測定はおおむね整合的である。ただし、2月29日にはTEOMは $40 \mu\text{g m}^{-3}$ を超えており、Q-AMSは過小評価している可能性はある。硫酸イオン、硝酸イオン、塩化物イオンとアンモニウムイオンの濃度からイオンバランスを計算した結果、アンモニウムイオンが過小であった。図(3)-5-cに硫酸イオンの粒径分布の時間変化を示す。硫酸イオンは常に200-400nm付近にピークが現れており、WPSで測定した二峰性のピークのうち大きいほうは硫酸イオンなどを含むバックグラウンドに常時存在している粒子と考えられる。

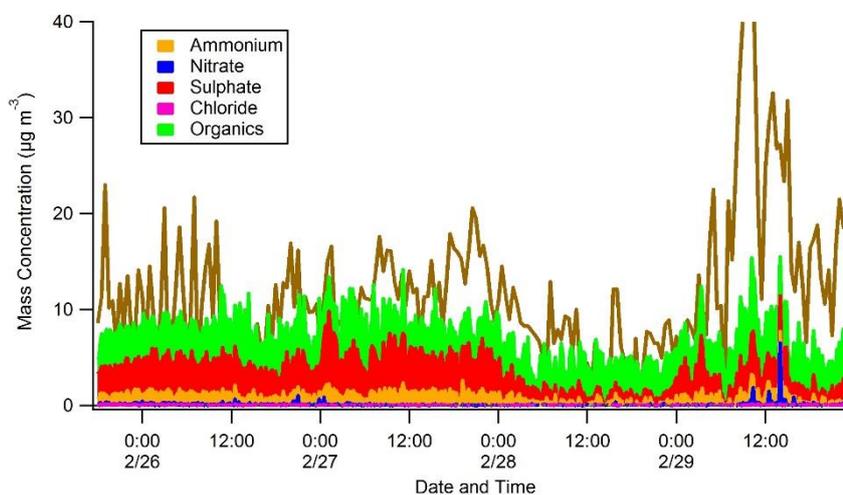
2月29日月曜日にTEOMの観測で高濃度の事例が観測されている。WPSの測定でも非常に高濃度の粒子が観測され、12時ごろから約2時間程度継続しておりTEOMの観測と整合的である。同じ時刻のQ-AMSデータでは硫酸イオンと硝酸イオンの濃度が高い。長距離輸送される粒子の場合、硝酸イオンは粗大粒子側に分布するため、この硝酸イオンはローカルな排出の影響を受けた可能性がある。

この時のNOAA HYSPLITによる後方流跡線の計算、CFORSモデルによる計算(図(3)-6)によると、後方流跡線の計算では上海など中国中部沿岸付近から機会が飛来しており、またCFORSの計算結果でも中国大陸から硫酸イオンが移流し、沖縄付近に流れ込んでいた。2月29日はローカル

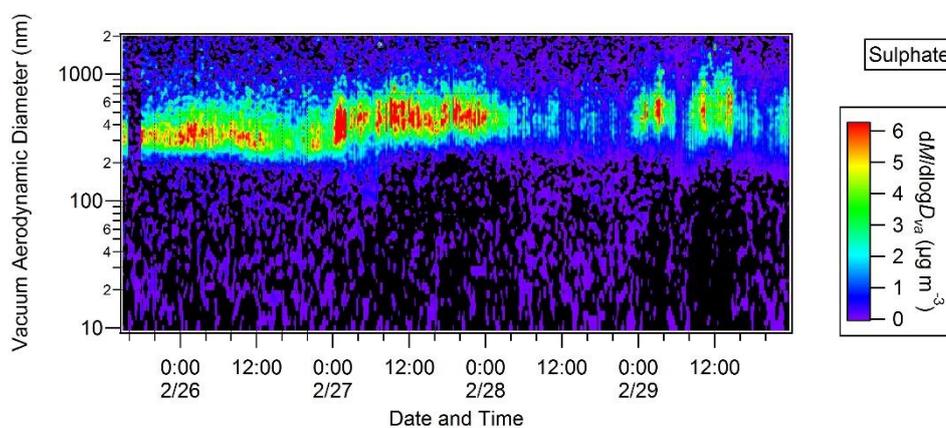
な影響が多少ある可能性は否定できないが、基本的には越境大気汚染の影響を受けていると考えられる。



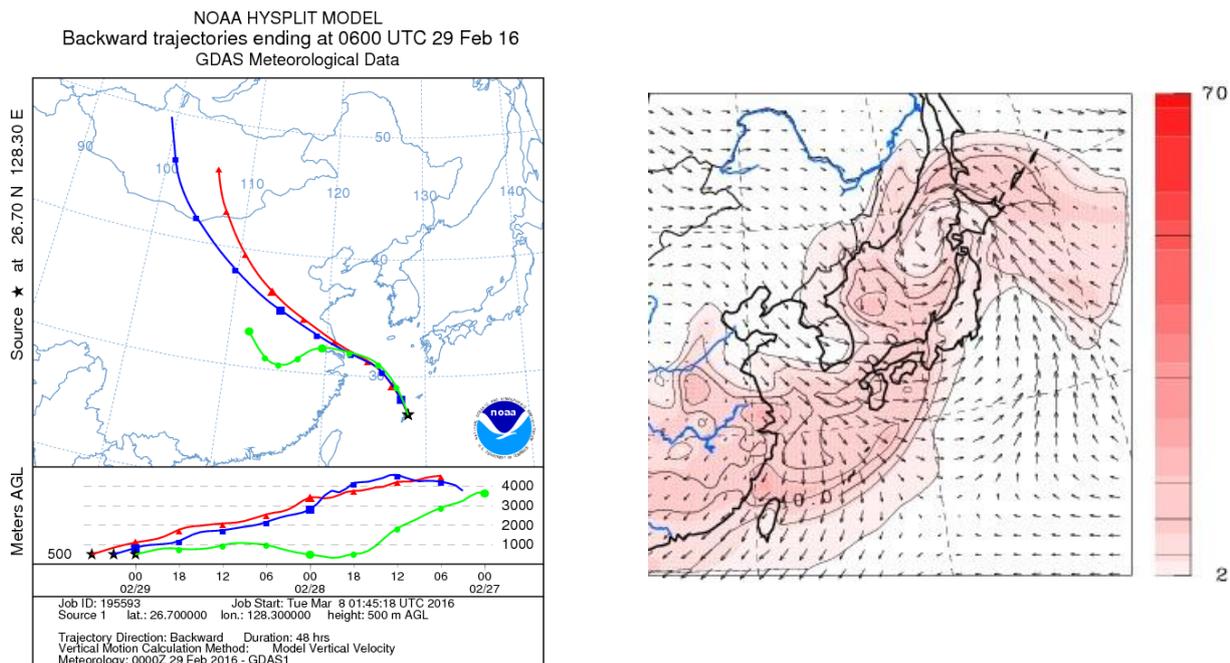
図(3)-5-a: WPSで測定した大気エアロゾルの粒径分布の時間変化



図(3)-5-b: Q-AMSで測定した大気エアロゾルの粒径分布の時間変化と、TEOMで測定したPM2.5の質量濃度の時間変化



図(3)-5-c: Q-AMSで測定した硫酸イオンの粒径分布。ただし、ここでの粒径は真空中の大気動力学の粒径で示している。

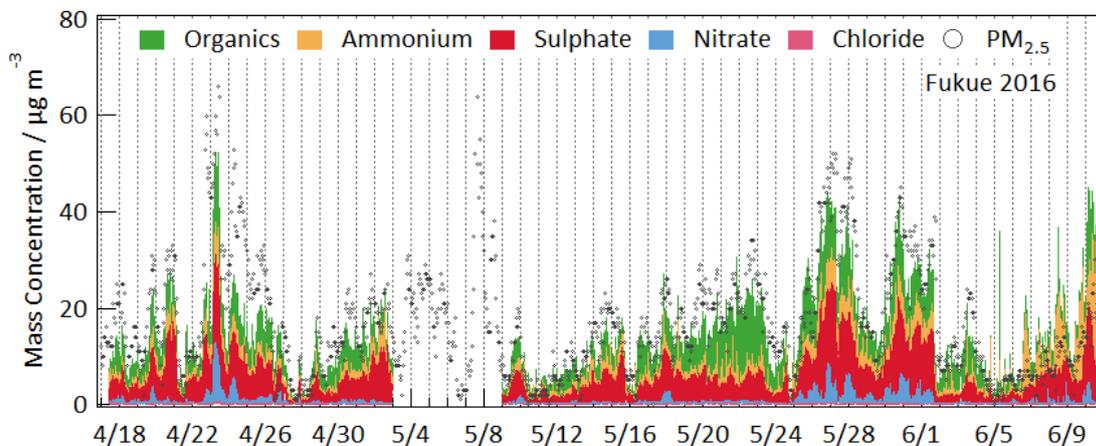


図(3)-6: 左 : NOAA HYSPLITモデルで計算した後方流跡線。起点は辺戸岬上空500mで、平成28年2月29日15時から3時間ごとに3本流跡線を計算した。右 : 「九州大・環境研CFORS」(<http://www-cfors.nies.go.jp>)で計算された、2月29日の地上付近の硫酸イオン (sulphate) の濃度分布。領域について一部改変。右のバーの色は図中の地上付近の硫酸イオンの濃度を示す。単位は $\mu \text{ gm}^{-3}$ 。

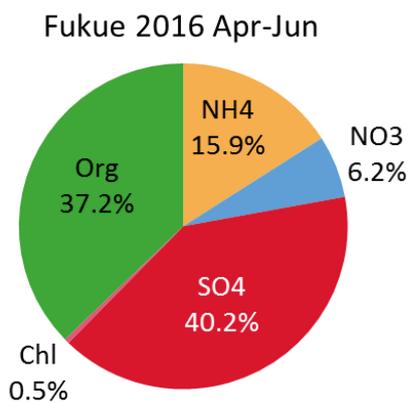
(3) 長崎福江島における観測

長崎県五島列島福江島に設置されている福江観測所において2016年4月から6月初めにかけてACSMを用いて観測した大気エアロゾルの化学組成濃度の時間変化を示す(図(3)-7)。5月3日から5月8日はインレットが詰まり測定が中断した。図(3)-8にこの期間で平均した各成分の割合を示す。ACSMの測定では、過去の測定同様、主要成分は有機物、硫酸イオンであった。TEOMで測定したPM2.5の質量濃度も図(3)-7に載せた。TEOMはPM2.5、Q-AMSはPM1であるため、TEOMの濃度はQ-AMSの各成分を積み上げた濃度より低くなっているが、時間変動も一致しており、両者の測定はおおむね整合的であった。図(3)-9にPMF法による解析結果を示す。因子数を2としたところ、東京や沖縄とは少し違う結果が得られた。非常に酸化された有機エアロゾル(Low Volatile Oxygenated organic Aerosol: LV-OOA)の質量スペクトルと、少し酸化された有機エアロゾル(Semi Volatile Oxygenated organic Aerosol: SV-OOA)及び炭化水素様有機エアロゾル (Hydrocarbon-like Organic Aerosol: HOA) の混合因子と考えられる質量スペクトルに分離された。ここでLV-OOA (Factor 1) は $m/z=44$ に特徴的なフラグメントを持ち、SV-OOAとHOAの混合した因子 (Factor 2) は $m/z=43$ 、55に特徴的なフラグメントを持つ有機物のスペクトルである。東京などの都市部ではHOAの割合が比較的多くSV-OOAと分離されることが多いが、福江は九州地区、韓国、中国から離れており、地元には大きな産業がないため、ある程度酸化された有機化合物が多いと推測される。これは、硫酸イオンの割合が多いことも含め、エアロゾルとしては全体的に親水性が高いと考えられ、雲

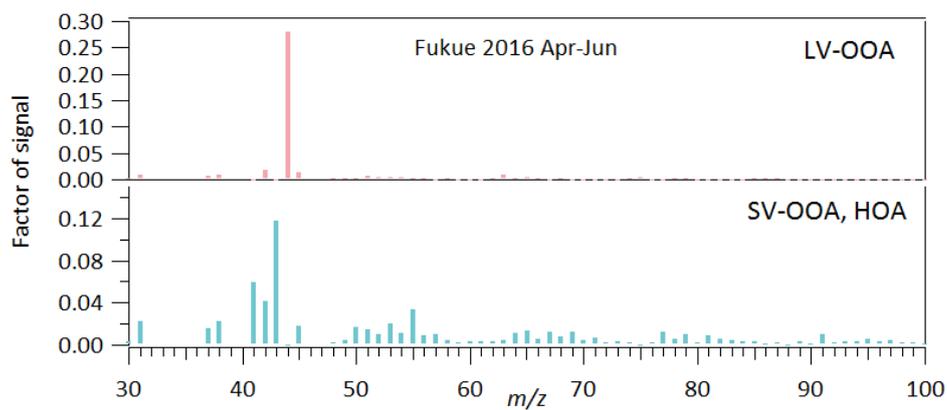
凝結核になりやすいと考えられる。



図(3)-7: 長崎県福江島におけるエアロゾル化学組成の観測結果



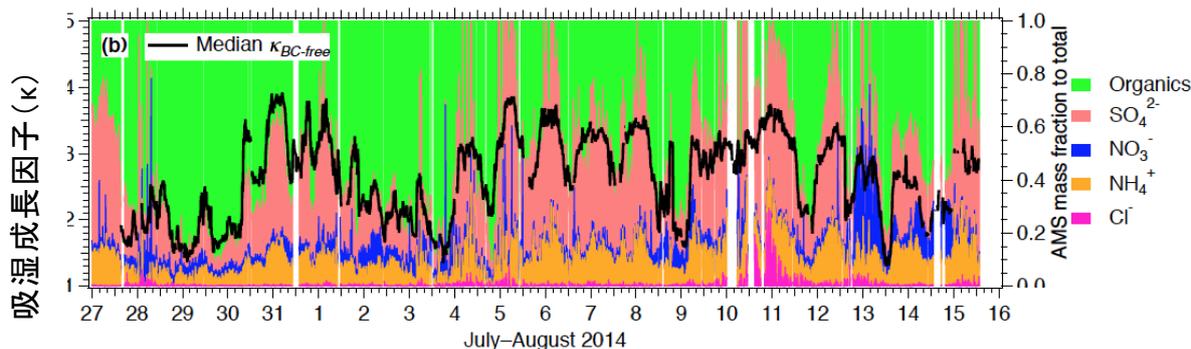
図(3)-8: 観測期間におけるエアロゾル化学組成の平均的な割合



図(3)-9: エアロゾルの有機化合物に対するPMF法を用いた解析結果

(4) 吸湿特性と化学組成について (サブテーマ1の結果を引用)

サブテーマ1と共同で、エアロゾルの吸湿特性と化学組成の関係を検討したところ、雲凝結核特性を決める吸湿成長因子は、硫酸イオン、硝酸イオン、アンモニウムイオンなどの無機物と有機物の質量比に対して良い相関があることが明らかとなった(図(3)-10)。このことから、BCの雲になりやすさ(雲粒化)を決める吸湿成長因子は、BCと混合する他のエアロゾルの化学組成が決められていることが明らかとなった。



図(3)-10: エアロゾルの化学組成と吸湿成長因子の関係。

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

東京都心における大気エアロゾルの化学組成と粒径分布を明らかにした。また降水試料に対して初めてオンラインシステムでエアロゾル質量分析計(AMS)を使用することにより、降水中の化学組成を同時に測定した。その結果、大気エアロゾルと降水中ではともに硫酸イオンと有機物の濃度が高く、化学組成にあまり差がないことが判明した。一方、降雨の初期において、降水中のHOAに対するOOAの割合が高く、大気中で酸化された有機物を含むエアロゾルは親水性と考えられ、雲や雨滴に多く取り込まれたと推測される。アジア大陸からの影響を受ける空間的代表性の高い観測点(沖縄辺戸ステーション、長崎福江観測所)で観測を実施し、エアロゾルの粒径分布や化学組成の測定を行った。沖縄辺戸、長崎福江島での観測では、OOAが因子として抽出され、硫酸イオンも多いことからエアロゾルの輸送中に酸化されていることが明らかとなった。このような化学組成のうち無機イオンと有機物の割合が吸湿成長因子を支配しており、結果として化学組成が雲凝結核特性に大きく寄与していることが明らかとなった。

(2) 環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

- 1) 平成26年~28年度にかけて環境省大気モニタリングデータ総合解析ワーキンググループ委員会に参加し、越境大気汚染の総合的解析方法を検討した。その際に東京や沖縄などで観測したエアロゾルの化学組成に基づいて、越境大気汚染の影響を受ける九州沖縄地区では硫酸イ

オンの濃度が高いことを報告した。これらの結果は今年度以降にまとめられる総合解析ワーキンググループの報告書に反映される予定である。

- 2) 平成26年～28年度にかけて韓国環境省主催のLong-range Transboundary Air Pollutants in Northeast Asia（長距離越境大気汚染）会議に日本側観測代表者として環境省 水・大気環境局大気環境課からの依頼により出席し、越境大気汚染の現状について意見を述べた。その際に沖縄で観測したエアロゾルの化学組成に基づいて、越境大気汚染の影響を受ける九州沖縄地区では硫酸イオンの濃度が高く、越境大気汚染（長距離輸送）の指標として硫酸イオンが活用できることを報告した。これらの結果をもとに、H26-28年度には高見が日中韓での共同観測を行う会議の座長を務め、観測場所や観測時期などを議論し、共同観測の実行計画をとりまとめた。

<行政が活用することが見込まれる成果>

- 1) The 2nd ABC-SLCP Symposium (2014年7月21-23日、東京大学)が開催され、日本の環境省、UNEP、ABC、CCACの代表者らが一堂に会し、最新の研究について報告するとともに、今後の活動計画について議論した。その成果は、今後の環境政策の立案の基礎として活用されることが期待される。

6. 国際共同研究等の状況

特に記載すべき事項はない。

7. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<論文（査読あり）>

- 1) 三好猛雄、高見昭憲、伊禮聡、キムセヨン、瀬戸章文、近藤豊：エアロゾル研究, 30, 62-67 (2015), 沖縄県辺戸岬および長崎県福江島におけるエアロゾル個数濃度の粒径分布
- 2) T. OKUDA, H. YAMAZAKI, K. HATOYA, N. KANEYASU, A. YOSHINO, A. TAKAMI, K. FUNATO, K. INOUE, C. NISHITA, K. HARA, M. HAYASHI: Atmosphere, accepted 2016.2.17 (2016), Factors controlling the variation of aerosol surface area concentrations measured by a diffusion charger in Fukuoka, Japan.
- 3) A. TAKAMI, T. MIYOSHI, S. IREI, A. YOSHINO, K. SATO, A. SHIMIZU, M. HAYASHI, K. HARA, N. KANEYASU, S. HATAKEYAMA: Aerosol Air Quality Research, 16 (2), 314-322, doi: 10.4209/aaqr.2015.03.0145 (2016), Analysis of organic aerosol in Fukuoka, Japan using a PMF method.
- 4) I. CHANDRA, S. KIM, T. SETO, Y. OTANI, A. TAKAMI, A. YOSHINO, S. IREI, K. PARK, T. TAKAMURA, N. KANEYASU, S. HATAKEYAMA: Atmospheric Environment, 141, 30-40 (2016), New particle formation under the influence of the long-range transport of air pollutants in East Asia.

<査読付論文に準ずる成果発表>

特に記載すべき事項はない。

<その他誌上発表（査読なし）>

- 1) 「みんなが知りたいPM_{2.5}の疑問25」（日本エアロゾル学会編、成山堂書店、高校生以上対象）において、その一部を執筆した。

(2) 口頭発表（学会等）

- 1) 三好猛雄、高見昭憲、伊禮聡：日本地球惑星科学連合2014年大会（2014）「沖縄県辺戸岬および長崎県福江島におけるエアロゾル個数濃度の粒径分布」
- 2) A. TAKAMI, K. SHIMADA, A. FUSHIMI, K. TANABE, N. KANEYASU, S. HASEGAWA, T. ISHIDA AND S. HATAKEYAMA: Asia Oceania Geosciences Society (AOGS) 11th Annual Meeting, 2014 “Long-term Measurements of Elemental and Organic Carbon at Cape Hedo Okinawa, Japan”
- 3) 三好猛雄、高見昭憲、定永靖宗、伊禮聡、清水厚、佐藤圭、吉野彩子、坂東博、畠山史郎：第31回エアロゾル科学・技術研究討論会（2014）「沖縄辺戸岬における微小粒子の粒子質量と化学組成の長期観測」
- 4) 三好猛雄、高見昭憲、伊禮聡、キムセヨン、瀬戸章文：第20回大気化学討論会（2014）「長崎県福江島において観測された新粒子生成イベントについて」
- 5) A. YOSHINO, A. TAKAMI, N. KANEYASU, S. HATAKEYAMA, K. HARA, M. HAYASHI: European Aerosol Conference 2015, 3AAP_P136, 2015 “Analysis of organic aerosol measured at urban and rural sites in Japan.”
- 6) A. YOSHINO, A. TAKAMI, T. MIYOSHI, S. IREI, K.SATO, A. SHIMIZU, N. KANEYASU, S. HATAKEYAMA, K. HARA, M. HAYASHI: 9th Asian Aerosol Conference, P1-008, 2015 “Analysis of chemical composition of fine aerosols measured at urban and rural sites in northern part of Kyushu, Japan.”
- 7) 高見昭憲、三好猛雄、伊禮聡、吉野彩子、林政彦、原圭一郎、兼保直樹、畠山史郎：粉体工学会 2015 年度春期研究発表会、同講演要旨集 p.88（2015）「都市および離島における有機エアロゾル測定とPMF解析」
- 8) A. YOSHINO, A. TAKAMI, K. UEDA: JSPS-DFG Workshop on Aerosols "Physicochemical Properties of Atmospheric Aerosols and their Effects on Air Quality and Public Health", Max Planck Institute for Chemistry, Mainz, 2015 “Observations of chemical composition of fine aerosol in Japan for emidemiology study.”
- 9) 高見昭憲、吉野彩子：福岡から診る大気環境研究所研究会、福岡大学中央図書館ホール（2015）「福岡市におけるエアロゾル化学組成と質量濃度の連続観測」
- 10) 高見昭憲、吉野彩子：第33回エアロゾル科学・技術研究討論会、A07（2016）「沖縄辺戸岬におけるPM_{2.5}質量濃度測定と化学組成分析」
- 11) I. CHANDRA, F. LI, T. SETO, Y. OTANI, N. HAMA, A. YOSHINO, A. TAKAMI, N. TAKEGAWA: The 33rd annual meeting and symposium on aerosol sciece & technology, C06, 2016 “Observation of atmospheric nanoparticles using TSI-1nm- SMPS at Fukue Island, Japan.”
- 12) 永靖宗、高治諒、坂東博、吉野彩子、高見昭憲、伊禮聡：第33回エアロゾル科学・技術研究討論会、P18（2016）「長崎県福江島における大気汚染物質の越境輸送に関する事例解析」

(3) 出願特許

特に記載すべき事項はない。

(4) 「国民との科学・技術対話」の実施

- 2) 埼玉県技術士会主催で、その会員の会社員など約30名に対し、大気エアロゾル、PM_{2.5}、気候影響、健康影響について約2時間講演した。平成26年11月6日 埼玉県 さいたま市
- 3) 国立環境研究所主催「夏の一般公開」において、粒子個数濃度測定を一般市民（子供から大人まで）に行ってもらい、同時に、PM_{2.5}の解説などを行い、大気エアロゾルに関して啓発を行った。平成28年7月21日 茨城県 つくば市 約400名来場
- 4) スーパーサイエンスハイスクールに指定されている茗溪学園高等学校1年生約100名を対象に講義を行った。茗溪学園SSH講義 平成28年7月8日 私立茗溪学園高等学校(茨城県つくば市) タイトル「PM_{2.5}と越境大気汚染とその影響」
- 5) 環境基礎講座において関西・四国の自治体の環境研究所や行政関係者の方々（22名）に対し、PM_{2.5}などの国内および越境大気汚染とその影響について解説した。
国立環境研究所・環境基礎講座：平成28年6月16日、大阪府立環境農林水産総合研究所
タイトル「東アジアの大気汚染 PMとオゾンの話」

(5) マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項はない。

(6) その他

特に記載すべき事項はない。

8. 引用文献

- 1) Jayne, J. et al. (2000) Development of an aerosol mass spectrometer for size and composition analysis of submicron particles. *Aerosol Sci. Technol.* 33:49-70
- 2) Takami, A. et al. (2007) Transport of anthropogenic aerosols from Asia and subsequent chemical transformation. *J. Geophys. Res.* 112:D22S31
- 3) Ulbrich, I.M. et al. (2009) Interpretation of organic components from positive matrix factorization of aerosol mass spectrometric data. *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 2891–2918, doi: 10.5194/acp-9-2891-2009
- 4) 三好猛雄ら, (2013) エアロゾル質量分析計により沖縄県辺戸岬において観測されたエアロゾル化学組成の特徴, 大気環境学会誌, 48, 1-11
- 5) 三好猛雄 ら (2015) 沖縄県辺戸岬および長崎県福江島におけるエアロゾル個数濃度の粒径分布, エアロゾル研究, 30, 62–67
- 6) Draxler, R.R.; Rolph, G.D. (2012), HYSPLIT (HYbrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory) Model Access via NOAA ARL READY Website (<http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT.php>). NOAA Air Resources Laboratory, Silver Spring, MD.
- 7) Uno, I., et al., (2003) Regional chemical weather forecasting system CFORS: Model descriptions and analysis of surface observations at Japanese island stations during the ACE-Asia experiment, *J.*

Geophys. Res., 108(D23), 8668, doi:10.1029/2002JD002845

- 8) Ng, N.L. et al., (2011) An Aerosol Chemical Speciation Monitor (ACSM) for Routine Monitoring of the Composition and Mass Concentrations of Ambient Aerosol, *Aerosol Science and Technology*, 45, 770–784
- 9) 小林賢ら, (2007)「岡山市街地における定量分割採取による降水の化学成分特性」環境技術, 36, 580-588

(4) 広域エアロゾル観測と領域モデルによる評価

国立研究開発法人海洋研究開発機構

地球表層物質循環研究分野

金谷有剛・宮川拓真・滝川雅之・松井仁志(平成27年度まで)

平成26～28年度累計予算額：32,111千円（うち平成28年度：10,530千円）

予算額は、間接経費を含む。

[要旨]

ブラックカーボン(BC)の重要な発生源である中国やインドシナ半島森林火災域を含む東・東南アジア地域に関して、広域代表性を持つ福江島、Lulin（台湾）において、品質が担保された高精度装置を用いて長期観測を実施した。濃度レベルや季節・年々変動の特徴を明らかにするとともに、福江では長期減少傾向から、中国発生源でのBC排出量低下の可能性を指摘した。福江での6年間のデータを統計的に解析し、BCの湿性除去速度を積算降水量のstretched exponential decay関数として表現できることを定量的に示し、数値モデルの評価を可能にした。Lulinでは緯度帯の近いインドシナ半島北部の春季火災由来のBCが西風により輸送されてくるメカニズムを明らかにした。放射性炭素同位体比の観測と、レボグルコサンをバイオマス燃焼のトレーサーとした解析とを初めて複合させたことによって、BC、有機炭素(OC)別で、化石燃料起源・バイオマス燃焼起源・それ以外を分離することが初めて可能となった。このことにより、排出インベントリや、モデルシミュレーション結果におけるBC、OCの起源分類を評価し、化石燃料の寄与が実際にはインベントリやモデル結果より高いことを示唆した。また、水抽出と熱分離を組み合わせ、BCのみを抽出してから放射性炭素同位体比を測定する方法も開発した。NASAの航空機観測KORUS-AQの際に観測データを発信し、国際共同解析を行った。BCの大気中での一連のプロセスを素過程に基づいて計算できるATRASモジュールを実装したアジア領域スケールモデルを開発した。これにより、BC濃度や粒径、個々の粒子の化学組成（混合状態）を表現でき、BCの光吸収・大気加熱や大気中の寿命など、BCの気候影響評価において極めて重要な過程のモデル表現が大幅に改善された。また、BCの直接放射強制力の推定において、排出源におけるエアロゾルの粒径分布と混合状態のパラメータが重要な役割を果たすこと、モデルにおいて変質過程に伴う光吸収量の増大効果を十分に表現することが重要とわかった。BCに加えて有機エアロゾル(OA)やPM_{2.5}の再現性も向上した。

[キーワード]

長期観測、放射性炭素同位体比、起源解析、領域規模化学輸送モデル、有機エアロゾル

1. はじめに

ブラックカーボン(BC)は正の放射強制力を持つ物質として知られ、人為起源の巨大発生源と考えられる中国や、春季に大規模な森林火災が発生するインドシナ半島を含む「東・東南アジア地域」は、BCの広域濃度分布や動態を明らかにする必要性が極めて高い地域であると考えられる。

しかしながら、その時空間変動の支配要因には、排出、疎水性から親水性への変化、大気輸送、湿性沈着などの多くの過程が含まれるため複雑であり、それぞれのプロセス理解や数値モデルでの表現は不十分なままである。このような困難さを乗り越え、起源別の排出量の情報を含む収支や気候影響を明らかにして、IPCCやCCAC (Climate and Clean Air Coalition)などに貢献してゆくためには、まずは、信頼度の高い計測手法を用いた長期観測データを蓄積し、同位体などの新たな切り口で発生源を解析すること、十分な統計量のデータに基づいて湿性沈着速度などを解析すること、素過程が表現できる革新的な数値モデルを開発し、それに基づいて放射強制力を解析することなどが求められている。

2. 研究開発目的

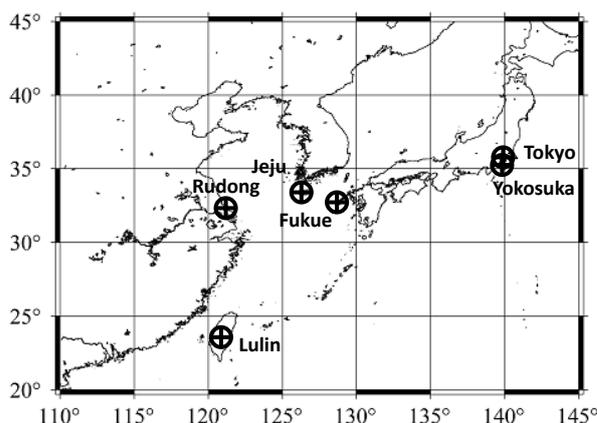
アジア広域大気汚染の視点で、地域代表性の高い台湾Lulin山、および長崎県・福江島において、信頼度の高いブラックカーボンの広域観測データを取得し、季節変動の傾向や長期的な変動傾向を明らかにするとともに、放射性炭素同位体比の分析に基づき、炭素性エアロゾルに関する人為起源（化石燃料燃焼）と自然起源の発生源寄与を観測から推定することを第一の目的とした。その際に、広域での結果との比較のために、東京都心でのサブテーマ横断型観測に参加し、炭素性エアロゾルの起源などについて明らかにすることも目標とした。第二に、BCの大気中での一連のプロセスを素過程に基づいて計算できるATRASモジュールを実装したアジア領域スケールモデルを開発し、BC数濃度や粒径、個々の粒子の化学組成（混合状態）を表現し、BCの光吸収・大気加熱や大気中の寿命など、BCの気候影響評価において極めて重要な過程のモデル表現を大幅に改善することを目標とした。第三に、上記の観測とモデリングを統合し、広域観測から得られる知見を元に、領域モデルにおける炭素性エアロゾルの表現を検証し、ブラックカーボンによる放射強制力見積もりや、PM_{2.5}の変動過程の理解を向上させることを目的とした。

3. 研究開発方法

(1) 広域エアロゾル観測

1) 福江での長期観測

東アジア広域でのブラックカーボン(BC)の時空間変動の実態を把握するため、秋～春に中国大陸の発生源の影響を強く受ける福江島(32.75°N, 128.68°E, 海拔75m)において、通年観測を実施した。サイクロンによってPM₁粒子を選別したのちに、BC質量濃度をブラックカーボンモニターBCM3130(日本カノマックス、COSMOSとして東京大学にて開発された装置)によって連続計測した。フィルター捕集部の前段に300°Cに加熱したプレヒーターを用いることにより、BCと大気中で共存する他の揮発性エアロゾル成分を気化させ、BC粒子のコーティングや散乱効果による影響を最小化した。平行して、マルチアングル計測により、散乱性粒子の影響を極力抑えるMAAP5012(Thermo Fisher Scientific)によるBC質量濃度の計測も行い、信頼性を高めた。また、一酸化炭素濃度の計測(48C、Thermo Environment)も同時に行い、BC、CO濃度の相関関係を用いて、BCのみに影響する湿性除去過程の解析を行った。観測された空気塊の後方流跡線が経由した地域や、経路上で積算された過去3日間の降水量との対応関係を解析し、発源地域の影響や、降水によるBCの除去を検討した。後方流跡線解析には、NOAAのNCEP GDAS1気象場に基づくHysplit(<http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT.php>)を用い、福江島観測所上空500mを出発地点とした計



図(4)-1：本サブ課題にて観測を実施した地点
と、過去の観測データを使用した地点。

算を6時間毎に行った。PM_{2.5}質量濃度の測定もハイブリッドモニタSHARP5030 (Thermo Fisher Scientific)を用いて行い、合わせて解析に用いた。これらの観測は本課題実施期間(2014～2016年度)を通じて行われ、過去に環境研究総合推進費S-7などで実施してきた観測期間(2009年度より)と合わせ、約8年間にわたるデータを解析した。過去に2009年に福江島にて、2010年に中国江蘇省・如東(Rudong、図(4)-1)にて、また2012年に韓国済州島(Jeju、図(4)-1)にて行ったPM_{2.5}の主要成分観測データについても、モデルの評価の際に用いた。

2)Lulinでの長期観測

東アジア亜熱帯域においてバックグラウンド大気の計測が可能であり、春先にはインドシナ半島におけるバイオマス燃焼の影響を受けた気塊が到来する台湾の鹿林(Lulin)山(23.51°N、120.92°E、海拔2862m)においてもブラックカーボンモニター3130(日本カノマックス)を用いた長期観測を実施した。屋上に設置したサイクロン(PM₁、空気力学粒径1μmで50%透過)を通した大気を16.7lpmで室内まで引き込み、そのうちの一部をCOSMOSに対して分岐している。データは1分の時間分解能で取得しているが、データスクリーニング(フィルター交換直後の異常値など)の後に、1時間値として取りまとめる。Lulin山のような山岳観測サイトにおいては、山谷風に起因する大気組成の日変化が存在する。日中は谷からの風が卓越し、大気下層から上層に輸送されるため、台湾国内のローカル排出の影響を受ける。自由対流圏のデータを解析するためには、下層の影響を受ける日中データを取り除く必要がある。この影響は若干の季節変化があるが、概ね現地時間の0時から6時までであれば、下層の影響を受けていない自由対流圏のデータを解析できる。森林火災の影響を見るために、現地時間0-6時までを抽出して、データの解析を行った。

(2) 集中観測と放射性炭素同位体比の計測

1) 東京(文京区)/神奈川(横須賀市)/福江島(長崎県)における集中観測

発生源近傍を対象として、東京都文京区(東京大学本郷キャンパス: 35.71°N、139.76°E)及び神奈川県横須賀市(海洋研究開発機構横須賀本部: 35.32°N、139.65°E)において、越境大気汚染を対象として、長崎県五島市(福江島大気観測施設: 32.75°N、128.68°E)において、装置の評価

のための相互比較実験（横須賀2014年6月、福江島2015年3-4月）と放射性炭素同位体比測定のためのサンプル捕集（東京2014年7-8月、横須賀2014年10月）を行った。また、春季の福江島における大気観測においては、東アジア域の気象場の変動（低気圧の東進）と境界層内のBCの微物理量（サイズ・混合状態）の変化を結びつけることも意図した。各観測の位置は図(4)-1に記載した。

横須賀における観測では、単一すす粒子分析装置（SP2, Droplet Measurement Technologies, Ltd.）と元素状/有機炭素分析装置（EC/OC計、Sunset Laboratory, Inc.）の相互比較を実施した。EC/OC計は連続的に運転させ、昇温プロトコル（OCとECの分離法）は、IMPROVE法を採用した。また、福江島においては、SP2とCOSMOSの比較を実施した。これらは異なる測定原理に基づくBC測定に整合性があるかを検証するための実験であり、データ質そのものを検証することを大きな目的としている。SP2を用いた計測においては、すべてPM_{2.5}のサイクロン（URG）を利用し、粗大な粒子を除去した後に、装置に導入している。SP2のデータ質の確保には高精度の較正が必須である。その際の機器構成については、先行研究を参考にしつつ、再度検討した（Miyakawa et al., 2016bに記載）ので、以下に簡単に示す。ネブライザーと乾燥器を組合せた粒子発生器より生じたBC粒子を微分型移動度分析器（DMA）により、粒子径ごとに選別し、SP2に導入した。DMAで選別したBCの粒子径と粒子質量は、別途DMAとエアロゾル質量分級器（APM）を用いて関係付けた。BC質量とSP2が検出するBC由来白熱光信号の関係から、BC質量濃度を換算した。本研究計画内では推奨される較正用の標準物質であるフラーレンすす（FS）粒子以外の候補も検討した。

文京区（2014年夏）、横須賀（2014年秋）、福江島（2015年春）においては、大気サンプリングを実施し、主に総炭素成分（ブラックカーボン+有機炭素）を対象に、放射性炭素同位体比の分析を実施した。すべてのサンプリングは、花粉や土壌由来の微生物などが混入しないように、粒径2.5 μm以下のみを捕集するように慣性インパクトを装着したハイボリウムサンプラー（HV500F、柴田科学）を用いた。また、すべての石英フィルターは事前に、900°Cで3時間焼き出しを行い、揮発性有機化合物の吸着によるポジティブアーティファクトを最小化した。

2) 放射性炭素同位体比の計測

放射性同位体比の分析に関しては、Miyakawa et al. (2016a)にて記載しているが、以下に簡単に流れを示す。エアロゾル炭素を捕集した石英フィルター（直径110 mmの4分の1を使用）を石英管に酸化銅とサルフィックスともに封入し、真空引きし、封入された炭素分は500°Cで30分、850°Cで2時間加熱され、二酸化炭素（CO₂）へ酸化・気化される。CO₂は精製され、鉄を触媒に水素で還元し、グラファイトに変換する。グラファイトのタブレットを加速器質量分析計にセットし、安定同位体¹³Cとともに放射性同位体¹⁴Cの（¹²Cに対する）濃度を計測した。また、これらの濃度は、アメリカ国立標準技術研究所から提供された標準物 シュウ酸の測定値に対する相対値として計測する。さらに現代炭素比率（Percent Modern Carbon, pMC）もしくはpMC/100で定義されるF¹⁴C (Fraction Modern)へ換算し、大気CO₂との交換が生じる植物に由来する炭素の影響を議論する。フィルター上に吸着する揮発性有機化合物は、多くて約30 μgCと見積もられる。典型的に500–1000 μgCの炭素を含んだ試料を対象としたので、気体成分による干渉は小さいと考えられる。BCのみに対して放射性炭素同位体比測定を実施するために、BCの抽出法の開発を実施した。手法の要領は、分析対象のフィルターをmilli-Q水に導入し、一時間ほど振とうして水溶性のOC（WSOC）を水層に移す。その後、フィルターに残留した非水溶性のOCとBCをEC/OC計を利用し、純ヘリウム

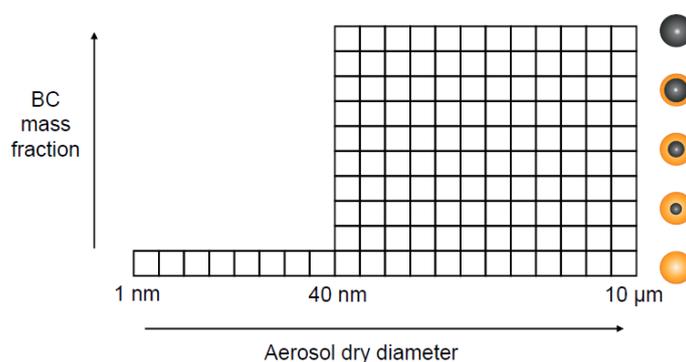
雰囲気下において、870°Cまで加熱し、OCを蒸発させ、残留する炭素分をBCとする。この過程での典型的なBC回収率は約70%であった。

福江島における集中観測時に採取したフィルターから、バイオマス燃焼の良い指標であるとされるレボグルコサンを定量した。Wang and Kawamura (2005)と同じ手法により分析を行った。簡単な流れは、サンプルを捕集した石英フィルターからジクロロメタンによりレボグルコサンを抽出し、濃縮乾固ののちにピリジン、TMCS/BFSTAを添加して誘導体化（カルボキシル基、ヒドロキシル基をトリメチルシリルエステル化）を行い、GC-MSで分析を実施した。また、バイオマス燃焼時のレボグルコサンとOCおよびECの放出比率を知るために、過去に中国江蘇省の如東県(Rudong)において実施した集中観測（Pan et al., 2012）時に観測されたバイオマス燃焼捕集された石英フィルター上のエアロゾルを同じ手法で分析して得られたレボグルコサン・EC/OCの結果も参照する。Rudongにおける観測サイト(32.25°N、121.37°E)の位置は図(4)-1に記載した。

(3) 領域スケールの化学輸送モデルの開発

まず、有機成分の揮発性の変化を表現した領域スケールモデルを開発した。有機エアロゾルは大気中の微小粒子の主要な寄与を占め、直接・間接効果の両面で重要な役割を果たすとともに、BCとの相互作用によってBCの光吸収量や除去過程に対しても影響を及ぼすと考えられる。しかし、その生成過程は非常に複雑であるため、大気中での有機エアロゾル濃度とその気候・健康影響の見積もりには依然として大きな不確実性がある。近年になって、これまで考えられてこなかった有機エアロゾルの前駆気体（半揮発性・中間揮発性の有機化合物、S/IVOC）とその酸化過程が発見され、これらを考慮した新しい有機エアロゾルモデルの概念が提唱された（Volatility basis set、VBS）。本研究では、この手法に基づいた有機エアロゾルモデルを開発し、領域3次元モデルWRF-chemに導入した（Matsui et al., 2014a）。

VBSモデルの特徴の1つは、有機化合物の揮発性に注目することである。同程度の揮発性を持った化合物を1つのグループ化した成分として考え、その大気中での連続的な酸化過程を計算する。S/IVOCを表現するために、298Kにおいて $10^{-2} \sim 10^6 \mu\text{g m}^{-3}$ の飽和濃度を持つ有機化合物について、



図(4)-2: エアロゾル統合モデルATRASで用いたモデル表現。横軸がエアロゾルの乾燥直径（20ビン）、縦軸がBCの混合状態（10ビン）を示す。同じ粒径に対して、BCのみを含む粒子、BCを含まない粒子、8つの異なった内部混合粒子（BCとそれ以外の成分の両方を含む粒子）を表現する。凝縮・凝集過程を理論に基づき計算し、それに伴う粒径・混合状態の変化を直接計算する。

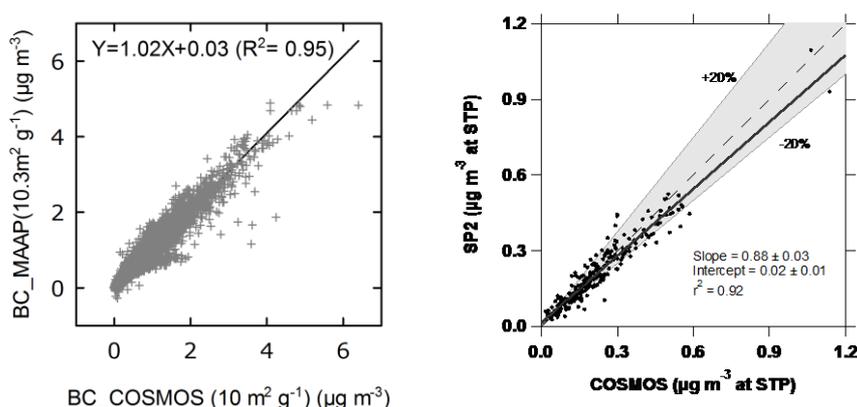
1桁ごとに1つのグループ化した成分を用いた。S/IVOCは直接放出および大気中でのVOCの酸化反応によって生成される。前者は1次有機エアロゾルと同様の排出源を持つと仮定し、先行研究などを基にその排出量および排出時の揮発性を設定した。後者については、SAPRC99の気相反応メカニズムを用い、高分子アルカン、高分子アルケン、芳香族、イソプレン、テルペン類の濃度およびこれらの成分からのS/IVOCの生成を計算する。SAPRC99ではその他のVOC、NO_x、O₃やOHラジカルの濃度も計算される。このOH濃度を用い、S/IVOCの各成分のOHラジカルによる酸化および揮発性の低下を計算する。S/IVOCは各成分について気相とエアロゾル相の2つの変数を扱う。そして、気相とエアロゾル相の平衡過程を仮定し、気相とエアロゾル相の各成分の濃度を計算する。VBSモデル全体では気体成分53変数、エアロゾル成分53変数を用いた。

次に、これまで開発してきたBC混合状態モデル (Matsui et al., 2013a)、新粒子生成モデル (Matsui et al., 2011, 2013b)、有機エアロゾルモデル (Matsui et al., 2014a) を統合し、同時に計算できるエアロゾルモデルを開発した (Matsui et al., 2014b)。このモデルでは、2次元ビン法を用い、エアロゾルの粒径とBCの混合状態の両方を陽に解像する。粒径1nmから表現することで新粒子生成を解像し、粒径40 nm以上の粒子については10個の混合状態ビンを用いBC混合状態を解像する(図(4)-2)。このモデルでは、BCの大気中への放出、大気中での変質過程、大気中からの除去過程、またこれらのBCの過程に関係する新粒子生成や有機エアロゾル生成といった微物理・化学過程を理論に基づき計算する。変質過程については、無機・有機成分の凝縮および粒子同士の衝突・併合過程(凝集)によるBCの粒径・混合状態の変化を理論に基づき計算する。それによって、無機・有機成分の被覆によるBCの光吸収量の増大効果、雲凝結核特性の変化(疎水性BCから親水性BCへの変化)、といったBCの気候影響評価において極めて重要になる過程についても、パラメタリゼーションなどの簡略化をすることなく直接計算することが可能である。

4. 結果及び考察

(1) 広域エアロゾル観測

広域での測定結果を示す前に、本課題においてBC計測手法として用いたBCM3130(COSMOS)、



図(4)-3：福江島におけるBCM3130(COSMOS)とMAAP(右)、SP2(左)間のBC計測濃度値の比較。

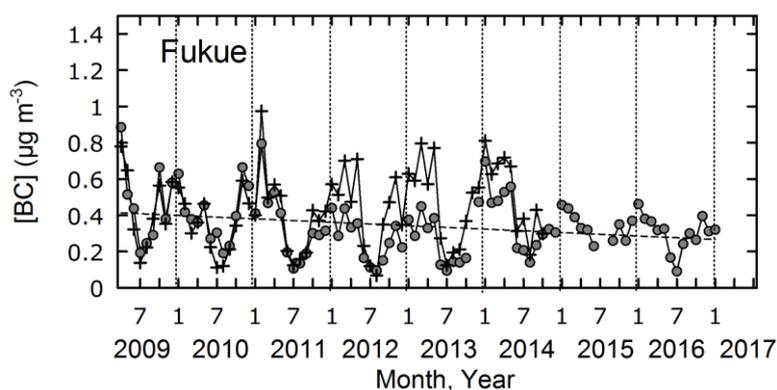
MAAP5012、SP2について、福江島において相互比較を実施し、互換性の検討を行った結果をまず図(4)-3に示す。機種間で非常に強い正相関がみられ、回帰直線の傾きから12%以内での一致が確認された。世界的にみると、BC計測機器の機種間の相互比較では4倍近い差が認められる場合もあることが報告されているなか、本研究においてこのような良好な結果を得たのは、BCに対する選択性の観点で、用いた機種を選択が適切であったことを意味する。具体的には、大気中に共存する散乱性の粒子の影響（コーティングの影響を含む）を排除することが重要であり、BCM3130ではプレヒーターによって除去すること、MAAP5012ではマルチアングル計測によって補正すること、SP2では白熱光の測定によって影響を排除することによって、それぞれ実現している結果であると考察される。

また本研究では、集中観測に用いたSP2とECOC計の間のBC計測値の整合性についても、横須賀で評価し、論文にとりまとめた。まず、SP2の較正を再検討した。SP2の白熱光信号と導入したBCの単一粒子あたりの質量の関係性（感度曲線）を、横須賀の大気中BC、FS、それ以外にアセチレンガスを燃やして生成した「すす」粒子であるカーボンブラック（CB、Alfa Aesar製）に関して調べた。横須賀においても、先行研究の通り、FS粒子がもっとも大気中に浮遊するBC粒子と同じ感度曲線を示したが、CBについても大きな差はなく、（20%以下）FSの代替物質としての可能性を示した。

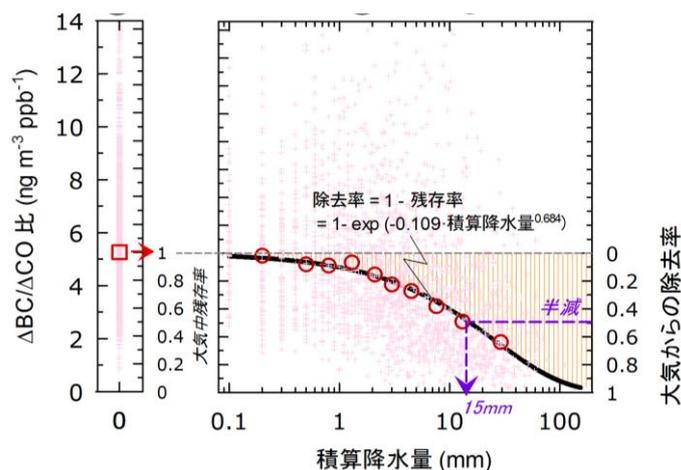
横須賀におけるSP2が示すBC(rBC)とEC/OC計が示すEC（Optical-/Thermal-EC）を比較した。Optical-ECはEC/OC計内で光吸収を測定することで得られるBCと定義的に近い測定パラメータである。SP2によるrBCとEC/OC計によるOptical-ECは良い一致を示すとともに、相関係数も非常に高い。（傾き = 1.08、 $r^2 = 0.96$ ）一方で、IMPROVE方式で定量されたThermal-ECとrBCの比較は相関係数もやや悪く、（ $r^2 = 0.66$ ）約2倍程度差があることがわかった。この差はSP2の不確定性（各種測定パラメータ、較正など）を大きく超えている。この要因を検討したところ、Thermal-EC定量に際して選択する分析中の昇温プロトコルの違いが大きく寄与することがわかった。横須賀において、同時期にハイボリュームエアサンプラーを用いて粒子を捕集したフィルターに対して、IMPROVE方式とNIOSH方式の2種のプロトコルを用いてThermal-ECを定量し、プロトコル間の比較を行った。その結果、NIOSH対IMPROVEの比は、平均的に1.5であった。この比率は先行研究でも2程度（1~4）になることが知られており、横須賀での観測に固有な結果ではない。この差を加味すると、rBCとThermal-ECは良い一致を示す。工業地域に位置する横須賀における観測サイトにおいては、従来まで頻繁に計測されてきたECと、近年発展が進んでいるSP2によるrBCは昇温プロトコルによる系統差を考慮すれば、不確定性の範囲内で同一の計測をしているとみなすことができる。また、上述した福江島におけるSP2と光吸収測定に基づくCOSMOSの比較についても、こうした高度な較正に基づいて良好な結果を得たものである。このように、一連の比較からBCに関わるすべての測定で整合性が取れていることがわかった。高い信頼性をもつBCの高感度測定と標準化が、観測値報告の際に極めて重要な前提となる。

1) 福江での観測

図(4)-4に、福江でのBC質量濃度の月平均値の推移を示す。8年間の観測結果から、年平均値が $0.36\mu\text{g m}^{-3}$ で、季節変化の特徴として、太平洋からの清浄気塊の流入の影響で、夏季に明瞭な濃度減少がみられることがわかった。秋・冬・春には、大陸（とくに中国中東部）からの影響により濃度が増大し、月平均濃度の年々変動が大きいことがわかった。また、長期的な減少傾向がみられることがわかった。排出量を一定とし、気象場を年々変動させたCMAQモデルシミュレーションとの比較を行ったところ、2011年ごろまでのモデル再現性は非常によいが、その後はモデルが過大傾向となることが示された。このことから、冬～春にかけての重要な発生源である中国での排出量が近年減少した可能性が示唆された。



図(4)-4：福江島におけるBC濃度の月平均値の長期傾向(COSMOSのデータ)。○が観測値、+はWRF/CMAQモデルシミュレーションによる値。



図(4)-5：福江での $\Delta BC / \Delta CO$ 比（右図の赤丸）は積算降水量に対してスムーズに減少し、BCの湿性除去が定量的に表現された。 $\Delta BC / \Delta CO$ 比について、無降水の場合の値（左図の赤四角）で規格化した「輸送効率(TE) = 大気残存率(右図左軸)」や、「大気からの除去率(=1- TE、右図右軸)」は、stretched exponential decay式(図中の式、黒いカーブ線)を用いて、よく近似できることがわかった。

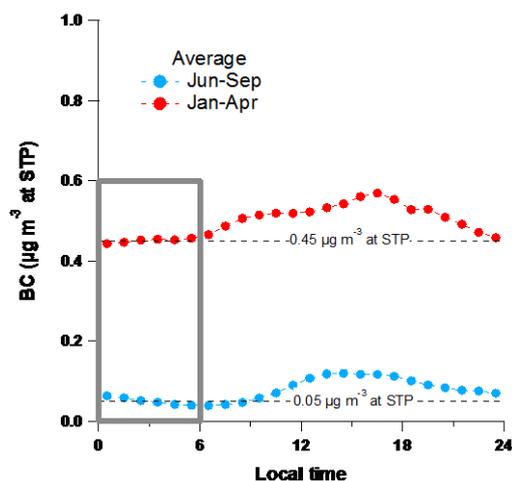
大気中のBCの湿性除去速度を把握するために、Hysplit後方流跡線上での降水量を過去72時間積分した「積算降水量(APT)」を指標とした解析を行った。その際、不完全燃焼によりBCと同時に排出されるが、BCとは異なり湿性除去されない一酸化炭素(CO)をトレーサーとした解析を行った。まず、降水の有ったデータ群での $\Delta BC / \Delta CO$ 比($4.5\text{--}5.6 \text{ ng m}^{-3} \text{ ppb}^{-1}$)は無降水のデータ群での値($5.3\text{--}6.9 \text{ ng m}^{-3} \text{ ppb}^{-1}$)より有意に低く、積算降水量が多いほど比の値が小さくなることを見出した。さらに詳細な解析を行うため、降水量のないデータ群での比の中央値によって、降水の有った場合に計測された $\Delta BC / \Delta CO$ 比を規格化して輸送効率 (TE)を算出し、そのAPTに対する依存性を解析した。その結果(図(4)-5)、TEはAPTに対して単調減少し、Stretched exponential 式($TE = \exp(-A1 \times APT^{A2})$)でよく近似できること($A1=0.109 \pm 0.010$, $A2=0.684 \pm 0.039$)、空気塊の起源地域による違いは小さく、一般性が高いこと、平均的には、 $15.0 \pm 3.2 \text{ mm}$ の降水量によってBC質量濃度が半減することが示された。BCのTEのAPTに対する依存性は、同様に算出した $PM_{2.5}$ のTEに関するAPT依存性とよく一致した挙動を示した。 $PM_{2.5}$ はBCより親水性の高い成分(硫酸アンモニウム等)が主成分であることを考慮すると、福江島へ輸送されるBCはすでに親水性を獲得した状態であることが示唆された。

2016年4月下旬から6月上旬にかけて、NASAと韓国環境研究院NIERによる航空機観測キャンペーンKORUS-AQが主に韓国上空で行われた。福江でのBC、オゾン、一酸化炭素、 $PM_{2.5}$ 等のデータを日々とりまとめ、国際共同研究チームでの利用促進のために、特設ウェブサイト(<http://ebcrpa.jamstec.go.jp/atmoscomp/obsdata/fukue16.html>)から発信した。最後のフライトにおいて、6/10午前10時過ぎに、NASAのDC-8機が福江観測所の上空約320mを飛行した。これは、本プロジェクト等からの強い働きかけによって実現したものである。オゾン、一酸化炭素、BCいずれについても、航空機側での濃度計測値とよい一致を示した。このことから、地上観測を広域分布情報と整合させながら解析可能であることがわかり、国際的な利用のためにデータを発信することが

できた。

2) Lulinでの観測

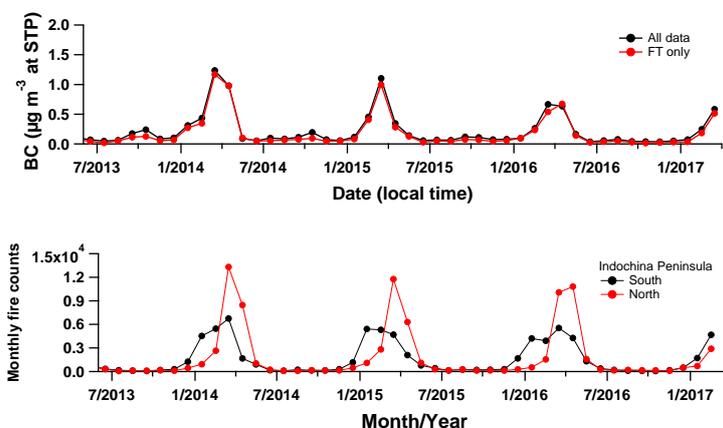
図(4)-6に2013年6月から2017年3月の季節別のBC濃度時系列の日変動の時系列を示した。発生源であるインドシナ半島における雨季(6-9月)、乾季(1-4月)を考慮して、2季節に分離している。前述のとおり、日中において、系統的に濃度上昇が観測されている。(乾季では相対的には小さい。)現



図(4)-6 : Lulinでの季節別BC濃度の平均日変化パターン (赤が1-4月、水色が6-9月)

地時間の0-6時のみを抽出することで、台湾国内のローカルな排出の影響を最小限に抑え、自由対流圏のデータを抽出することができると考えられる。

図(4)-7には月平均値の時系列及び、期間中にインドシナ半島の北部・南部において、Moderate Resolution Imaging Sensor(MODIS)が検出した火災発生地点数を1月ごとに集計した時系列図を示した。(データは<https://feer.gsfc.nasa.gov/data/frp/>よりダウンロードした。Confidence > 30%以上の点のみを集計している。) 北部は9-16° N/97-109° E、南部は16-25° N/90-109° Eで定義した。Lulinと緯度帯の近いインドシナ半島北部の火災数に対応して、BC濃度に変動していることがわかり、発

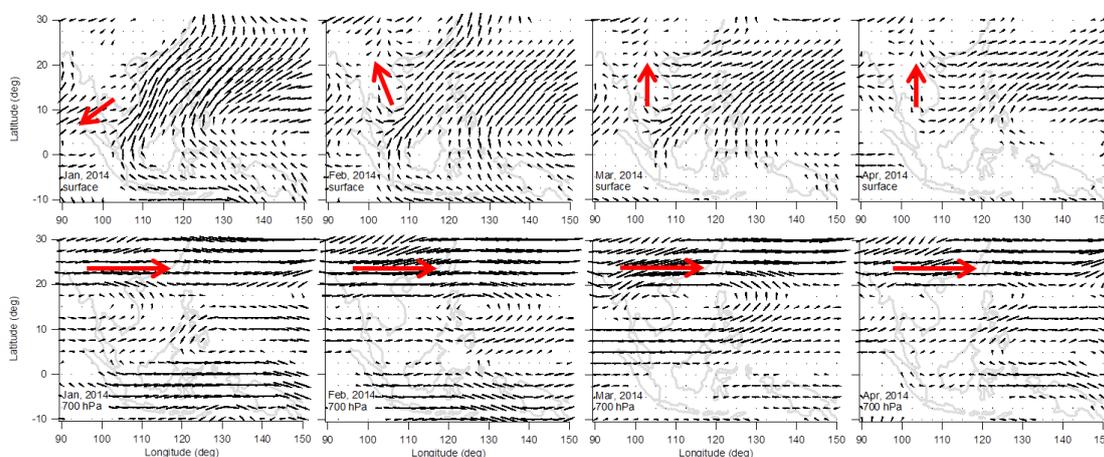


図(4)-7 : (上)Lulinでの BC濃度の推移。(黒は全データの月平均、赤が自由対流圏データの月平均値) (下)インドシナ半島北部(赤)および南部(黒)における一月ごとの火災検出

生源の強度の重要性が明らかである。典型的には3-4月に極大を、6-7月に極小を示している。

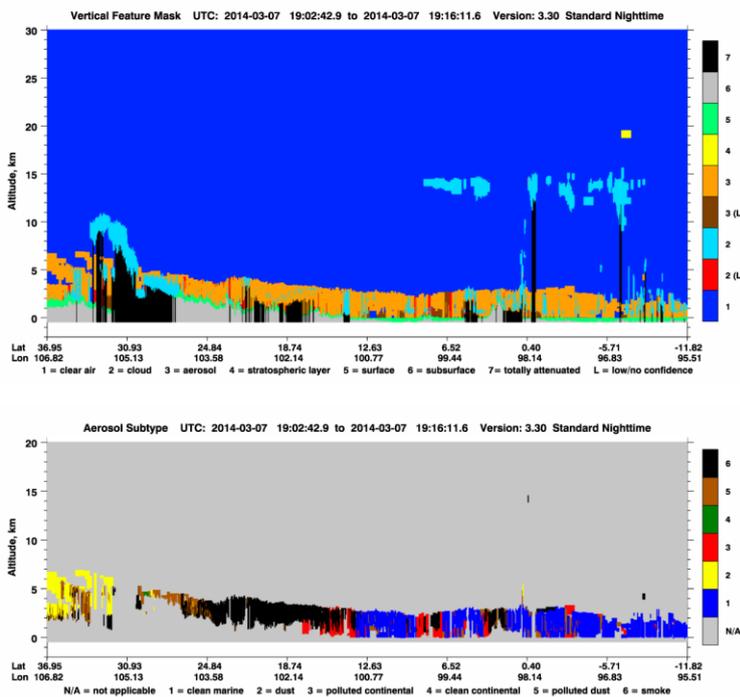
季節変化は、主に、インドシナ半島北部のバイオマス燃焼が、乾季に極大になるとともに、上方輸送されたバイオマス燃焼プレュームが北緯20-30度帯の西風により輸送され、Lulin山において観測されていることに起因する。図(4)-8に例として2014年における1-4月までの下層と高度700hPaにおける水平風を示した。

月平均値でみて、ピーク時に約 $1 \mu\text{g m}^{-3}$ と非常に高濃度であるが、インドシナ半島の北部（ラオスやタイの北部）は山岳地帯であり、南部から北部へ大気の流れによって上方へ輸送され、自由対流圏中の速い西風（乾季は $10\text{-}15 \text{ m s}^{-1}$ ）によって効率的に輸送されていることが示唆される。いくつかの衛星観測からもインドシナ半島のバイオマス燃焼のプレュームが高高度にまで達していることがわかっている。一例として、CALIPSO (Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observations)で得られたインドシナ半島のエアロゾルの鉛直構造を図(4)-9に示す。Smoke aerosolの層が 20° N で地表より2-3 km上空まで達していることがわかる。



図(4)-8：2014年の1-4月（左から右）までの大気下層（上段）と高度700 hPa（下段）における風の流れ。赤い矢印は大きな大気の流れを視覚的に示すガイドである（定量的ではない）。

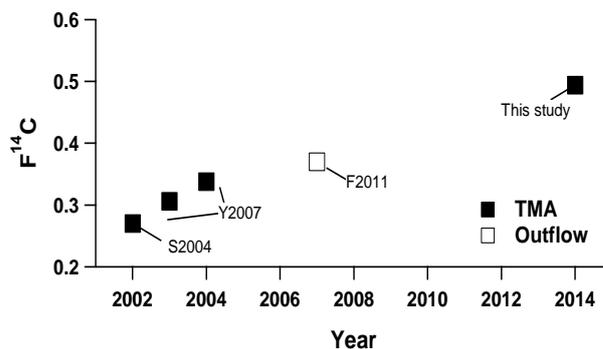
本研究計画期間において、モデル検証に資する高精度な連続観測データが着実に取得され、今後の継続的な観測とモデルとの比較などから、インドシナ半島におけるバイオマス燃焼が南シナ海およびその東側における大気質および放射収支への影響評価が期待される。



図(4)-9 : CALIPSOが観測したインドシナ半島上のエアロゾル層 (2014年3月7日 19:02-19:16utc)。上段の橙色に塗られた領域がエアロゾル層を示し、下段はエアロゾル層のタイプ判定結果で、黒がSmoke aerosolを指している。
 (<https://www-calipso.larc.nasa.gov/>よりダウンロード)

(2) 集中観測

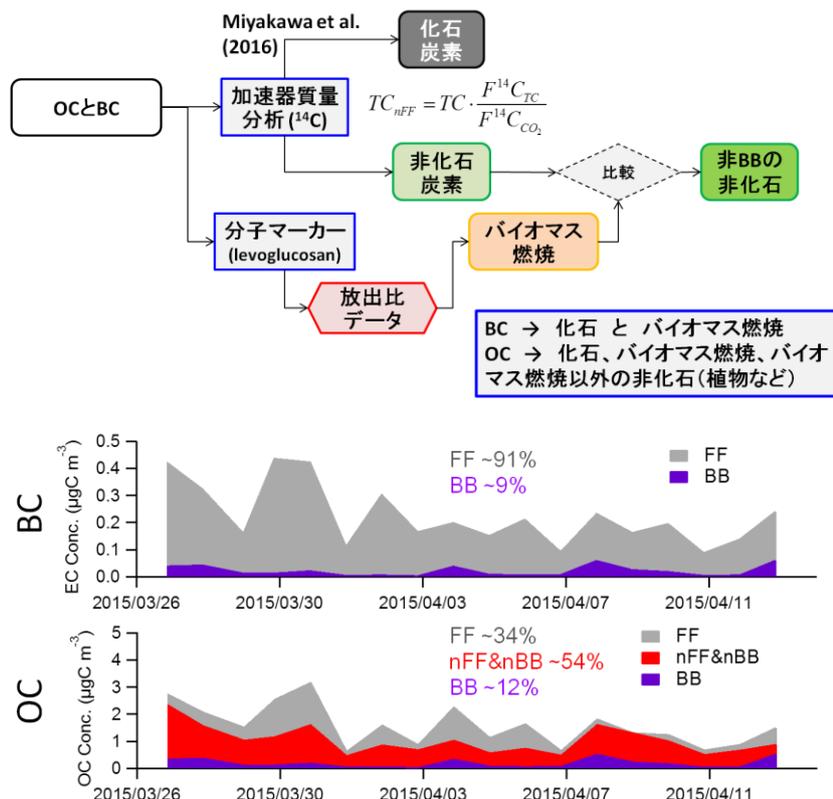
1) 放射性炭素同位体比を用いた起源解析



図(4)-10 : エアロゾル中総炭素に対する放射性炭素同位体比の経年変化。過去の値は先行研究を引用している。(S2004: Shibata et al. 2004, Y2007: Yamamoto et al. 2007, F2011: Fushimi et al. 2011)

東京の過去約10年間の炭素性エアロゾル（総炭素 TC）の起源の変化を解析した結果を示す。本研究で得られた結果（2014年）と、過去の研究（2002-2007年）の分析値（ $F^{14}C$ 表記）を比較した（図(4)-10）。この期間において、 $F^{14}C$ 値は有意な増加傾向を示しており、非化石燃料起源の割合が増加している。TCにおけるBCの割合は小さいため、この変化はほぼOCの起源の変化を見ていることになる。この変化を生む要因として、2003年より開始したディーゼル車の排出規制の他に、自然（植物）起源の揮発性有機化合物（BVOCs）からの二次生成有機エアロゾルの増加が要因として挙げられる。後者の可能性を検討するために、関東平野南部における、衛星（MODIS）で得られた純一次生産（ $NPP = \text{総一次生産} - \text{植物呼吸}$ ）とアメダスの気温・日射量の経年的な変化を調べたが、 $F^{14}C$ の変化に対応する変化は観測されていなかった。従って、この変化は排出規制に起因するものであり、排出規制が経年的な炭素性エアロゾルの起源の変化をもたらしていることがわかった。

BCのみに着目した放射性炭素同位体比の分析を東京・横須賀のデータに対して実施した。東京の観測期間のうち高濃度であった2014年7月28日～8月4日の間で、 $F^{14}C$ は0.22であった。横須賀の観測期間では $F^{14}C$ は0.27であった。大気中 CO_2 の $F^{14}C$ （ ~ 1.08 ）を考慮すれば20-25%が非化石由来であることを意味している。TCにおける非化石由来が $\sim 50\%$ であったのに対して有意に小さいが無視できない割合が含まれていることを示唆している。排出インベントリREAS（バージョン2）で推定されている日本における燃料別排出の統計値はほぼすべて（2008年時点で $\sim 98\%$ ）のBCが化石燃料由来であり、予想外に大きい数値である。このバイアスはBC抽出過程にOCが一部混入した可能性と、インベントリの推定値の誤差の両面の可能性があり、その寄与解明については今後の課題である。

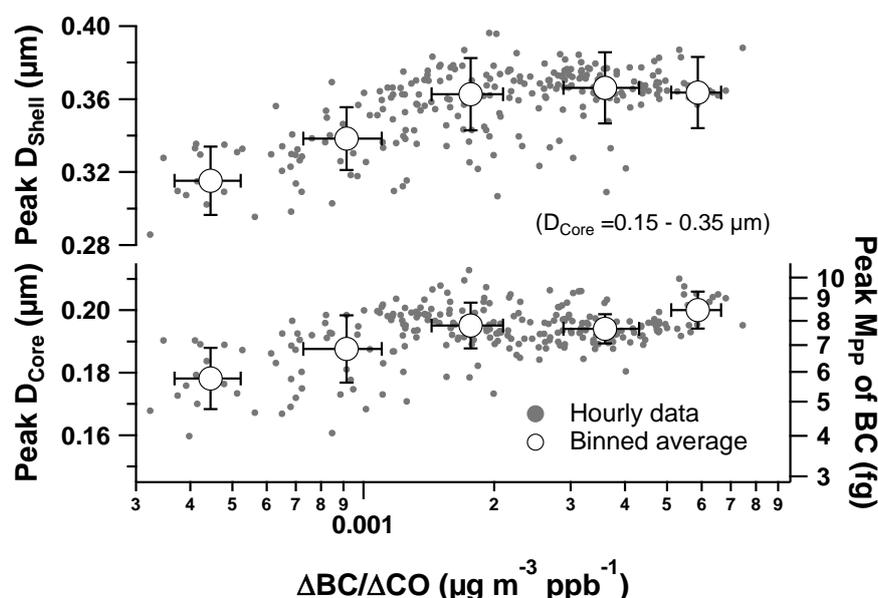


図(4)-11：(上)BC、OCの起源分類のためのフローチャート。(下)福江でのBC、OC観測値に対する、化石燃料(FF)、バイオマス燃焼(BB)、自然起源などその他(nFF&nBB)の寄与推定結果。

福江島における集中観測時は、中国北東部 (35-45°N)から中部 (25-35°N)まで広範な緯度帯から到来した大陸起源気塊が観測された。放射性炭素同位体比に加え、分子マーカーであるレボグルコサンを用いたバイオマス燃焼寄与の推定を組み合わせることで、BCを化石燃料由来とバイオマス燃焼由来に分類し、OCについては、この2種に加えて、自然由来(非化石かつ非バイオマスで、例えば陸上植生VOCsや海上放出に由来する成分)にも分類した(図(4)-11)。バイオマス燃焼のレボグルコサン/ECおよびレボグルコサン/OC比はRudongにおける観測でレボグルコサン濃度が 200 ng/m^3 を超過した際のデータを用いて算出した。この期間は、近隣での火災が目視でも確認されており、データの解釈に大きな問題はない。全炭素に対して、 $F^{14}C$ 値は ~ 0.4 から ~ 1 まで変動し、空気塊の違いにより異なる起源をもつことが推測される。 $F^{14}C$ 値はCO濃度が上昇していた時期に減少する傾向、バックグラウンド濃度に近い期間において増加する傾向にあった。このことは、高濃度汚染気塊では化石燃料の燃焼の影響が相対的に大きいことを示し、一方でバックグラウンド空気では現代炭素の影響が強いことが示している。観測期間中においてはBCの平均的な化石燃料起源の割合は91%程度であり、4回の越境汚染イベント時にその割合は95%程度まで上昇し(図(4)-11)、その他の期間の87%に対して高い値となったが、春季の東アジア域ではBCの大半が化石燃料起源であることが示された。得られた分析結果を後方流跡線解析による空気塊の起源地域推定と組み合わせ、中国中東部の北部側(北京・天津・河北・山東・山西)・南部側(河南・

江蘇・安徽・上海)の発生源比率として整理した。そのうえで、REAS (バージョン2)で推定されている2008年3-4月時点の中国における省別の詳細な燃料別排出統計と比較した。REAS (バージョン2)では、BC排出のうち化石燃料燃焼の割合は、中国中東部の北部側では $78\pm 10\%$ 、南部側では $66\pm 23\%$ であったが、本研究によると北部・南部とも87-98%の範囲であり、南北差はみられないこと、また、化石燃料の寄与が実際には20%程度大きいことが示された。このことは、2008年と2015年との間に起こった燃料種別の経年変化に由来する可能性もあるが、2015年のイベントリの推定誤差を改善するための指標として有用である。一方で、OCは4回の越境汚染イベントの平均で、化石燃料が51%、バイオマス燃焼が6%、自然由来が43%となり、化石燃料の燃焼では約半分程度しか説明できないことが明らかとなった。BCの放射収支を正しく再現するために、非BC主要成分であるOCの領域モデルによる再現性は本質的に重要であり、モデル計算結果を検証するうえで有益な知見が得られた。

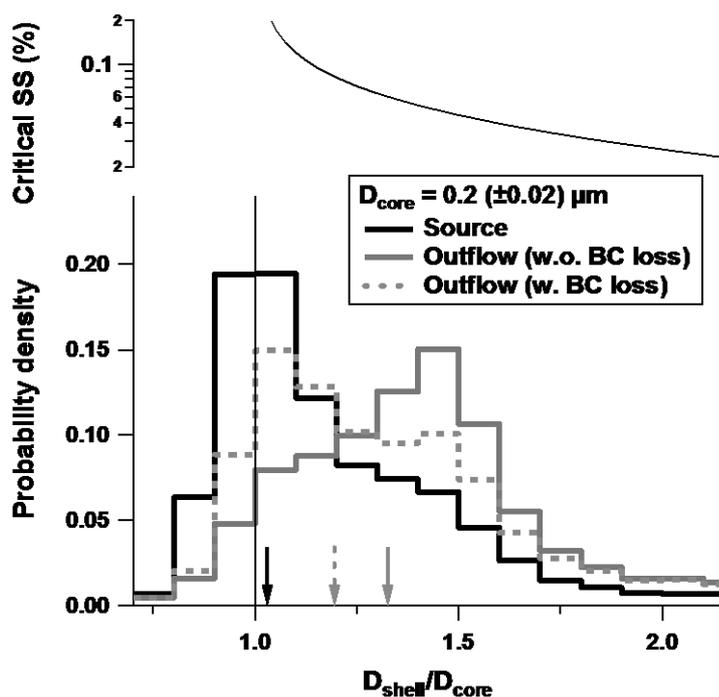
2) BCの微物理量の変化



図(4)-12 : (上)BCを含む粒子の全体の粒子径に対する個数濃度粒径分布のピーク値、(下)BCを含む粒子のBCの粒子径に対する質量濃度粒径分布のピーク値と $\Delta BC/\Delta CO$ の関係性。

同期間の福江島におけるSP2によるBCの微物理量の変化に関して、長期間データの取り扱いと同様に、降水に対して不活性であるCOに対するBCの比率($\Delta BC/\Delta CO$)を用いて、降水影響との関係性を調べた。春季東アジア域での降水強度では、累積モードに存在する粒子の消失にとって、雨粒との衝突過程(ウォッシュアウト)は効果的でなく、雲粒として活性化し、降水に含まれて大気から除去される過程(レインアウト)が支配的である。レインアウトが支配的であれば、雲粒活性(CCN能)が高い粒子径が大きく、水溶性成分の体積比率が大きい粒子が優先的に除去され

ることが予測される。そのような観点でBCを含む粒子に関して、粒径分布の変化と $\Delta BC/\Delta CO$ を関係付ける試みを行った。CCN能を考えるうえでは、粒子全体の粒子径が重要であるため、SP2の出力波形信号を詳細に解析して、BCを含む粒子の全体の粒子径を推定した。図(4)-12に、BCを含む粒子の全体の粒子径 (D_{shell}) の分布と、BCのみの粒子径 (D_{core}) の分布のピーク粒子径と $\Delta BC/\Delta CO$ の関係性を示した。 $\Delta BC/\Delta CO$ が小さいほど、降水による消失を経験していることになるが、 D_{shell} と D_{core} のピーク値は小さくなることがわかった。大きな粒子径の粒子が減少していることを示している。 D_{shell} と D_{core} の比率 (D_{shell}/D_{core}) についても、 D_{core} が $0.2 (\pm 0.02) \mu m$ の粒子について、 $\Delta BC/\Delta CO$ が $3 \text{ ng m}^{-3} \text{ ppb}^{-1}$ より大きいデータ群、 $1 \text{ ng m}^{-3} \text{ ppb}^{-1}$ より小さいデータ群に分類・比較した。図(4)-13に示すように、 D_{shell}/D_{core} の頻度分布は、発生源近傍（横須賀）では、1周辺にデータが集中するが、福江島での $\Delta BC/\Delta CO > 3 \text{ ng m}^{-3} \text{ ppb}^{-1}$ のデータ群では、最頻値が1.4-1.5にシフトする。エアロゾル前駆物質の気相反応とそれに続く凝縮による成長を示唆している。一方で、 $\Delta BC/\Delta CO < 1 \text{ ng m}^{-3} \text{ ppb}^{-1}$ のデータ群では、最頻値は1付近である。 D_{shell}/D_{core} の大きい、つまりBC以外の成分の割合の大きなBCを含む粒子が除去されていることを示唆している。この期間のエアロゾルの化学組成はエアロゾル化学種別分析モニター (ACSM) を用いて同時観測が行われたが、硫酸アンモニウム(45%)と有機エアロゾル(41%)が主成分であった。従って、BCに比べれば十分に水溶性の高い成分の割合が多い粒子ほど除去されやすかったこととなる。



図(4)-13：(上)平均的な化学組成から算出した臨界過飽和度の D_{shell}/D_{core} 依存性 (BCの粒子径は $0.2 \mu m$)。 (下) D_{shell}/D_{core} の頻度分布。黒の実線は横須賀の平均値、灰色線が福江島の結果で、 $\Delta BC/\Delta CO$ で場合分けされている。

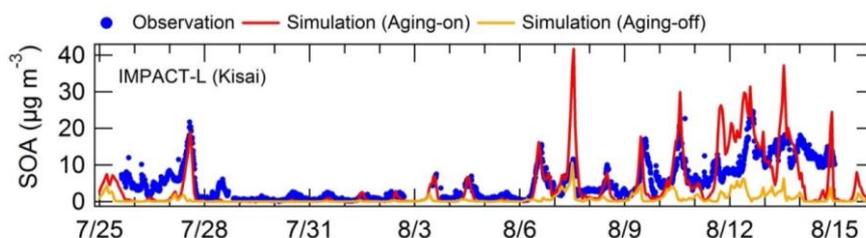
平均的な化学組成から、BCを含む粒子の吸湿性について、非水溶性成分 (BC) を考慮するケラー理論により、 D_{shell}/D_{core} の関数として、雲粒生成の臨界過飽和度を算出した (図(4)-13)。

$D_{\text{shell}}/D_{\text{core}}$ が大きいほど、臨界過飽和度が小さく、容易に雲粒に成長できることが明らかである。大きな粒子径を持ち、かつ水溶性を持つ化学成分をより多く含む含BC粒子が優先的に除去されていることは、レインアウトがBCの消失過程として、支配的であったことと整合している。

観測された変化は決して大きくはない。航空機を利用した境界層から自由対流圏に雲過程を通して輸送された粒子の微物理量の変化の方が大きい。境界層内では、雲低付近でのみ上下混合によって雲過程を経験するため、境界層内の一部のエアロゾル粒子のみに微物理量の変化が生じることに起因している。小さい変化であるが観測的な事実であり、将来的に微物理量を解像可能な最先端なモデルの検証を行う上で有用な知見を提供する結果となった。

(3) 領域スケールの化学輸送モデルによる解析

開発した有機エアロゾルVBSモデルによるシミュレーション結果を、東京周辺域（東京・駒場、埼玉・騎西、2004年7～8月）および東アジア域の下流域（長崎・福江島、沖縄・辺戸岬、2009年3～4月）においてエアロゾル質量分析計を用いて行われた有機エアロゾルの観測結果と比較した。VOCとS/IVOCの酸化過程を考慮したVBSモデルの計算は、観測された有機エアロゾルの質量濃度や時間変動を概ね再現することに成功した（図(4)-14）。一方、S/IVOCおよびそれらの酸化過程を考慮しない計算（従来型の有機エアロゾルモデル）では、観測された有機エアロゾルの質量濃度を80～90%も過小推定する結果が得られた。アジア全域では、酸化過程を考慮することによって有



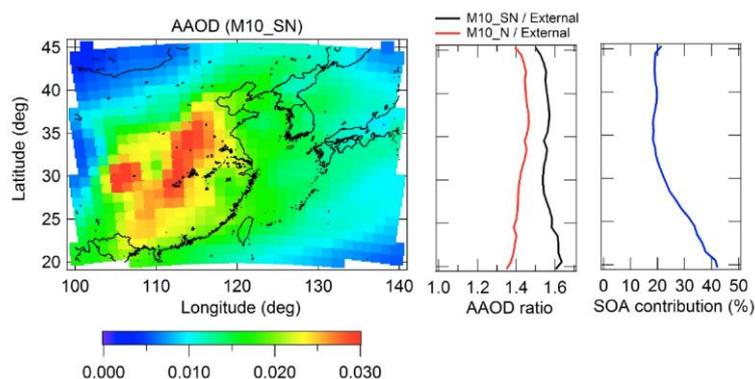
図(4)-14：埼玉・騎西における有機エアロゾルの質量濃度の観測とモデルの比較。青色がエアロゾル質量分析計から得られた観測結果、赤色がVBSモデルの計算結果、橙色がS/IVOCの酸化過程を考慮しない従来型の有機エアロゾルモデルの計算結果を示す。

機エアロゾルの質量濃度が $0.24 \mu\text{g m}^{-3}$ から $1.28 \mu\text{g m}^{-3}$ へと増大した（2009年3～4月平均、高度約1km）。これらの結果は、これまで考慮されてこなかった有機エアロゾルの前駆気体や酸化機構がアジア域の現実的な有機エアロゾルの質量濃度や時間変動を表現する上で重要になることを示している。

このモデルを東アジア域に適用し、BC混合状態を解像することの重要性を調べた。エアロゾル統合モデルATRASによる計算結果を、2009年の3～4月に行われたA-FORCE航空機観測（東京大学）や福江・辺戸での地上観測（国立環境研・東京大学）と比較したところ、エアロゾル統合モデルによってBCの混合状態や有機エアロゾル濃度、数濃度のモデル再現性が大きく改善することがわかった。このモデルを用いることで、各プロセスの重要性や相互作用を明らかにした。たとえば、東アジア域のCCN数に対する有機エアロゾル生成と新粒子生成の重要性を調べたところ、有機エアロゾル生成は特に中国南部において過飽和度の小さなCCN数（粒径の大きなエアロゾル数）の

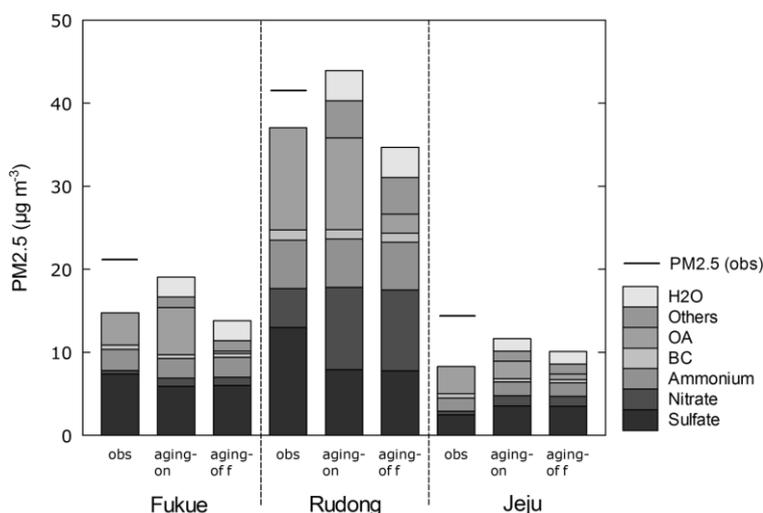
増大に重要な役割を果たす一方、新粒子生成は中国北部において過飽和度の大きなCCN数（粒径の小さなエアロゾル数）の増大に対して大きな寄与を持つことがわかった。また、BCのレンズ効果による光吸収の増大率（東アジア域の平均値）は、有機エアロゾル生成を考慮しないと40%程度である一方、有機エアロゾル生成を考慮すると50~60%となり、BC混合状態と有機エアロゾル生成の相互作用が重要になる可能性を示した（図(4)-15）。このような各素過程の重要性や相互作用は、エアロゾルの微物理・化学過程を詳細に考慮したモデルによって初めて評価が可能となる。

また、WRF-Chem/ATRAS領域モデルを、福江島において2009年5月に得られたBC, PM_{2.5}（総質量濃度、成分ごとの濃度）の観測によって評価した（図(4)-16）。BCについての再現性は高く、(モデルでの濃度)/(観測濃度)の比の中央値は0.79であり、VBSスキームの有無での濃度変化は小さかった。一方、有機成分(OA)については、VBSスキーム導入前の比の中央値0.35は、導入後に1.28に上昇し、一致度が高まった。OAが主成分の一つであるPM_{2.5}全量についても、比の中央値が0.67から0.83まで高まった。福江だけでなく、中国江蘇省・如東(Rudong)、韓国済州島(Jeju)においてもエイジング過程の導入による再現性向上が同様に見られた。BCの濃度への直接影響は小さいが、OAは単一粒子レベルでBCと内部混合（コーティングなど）することによって、BCのレンズ効果などの光吸収効率を変化させ、また、親水性をBCに付与して降水によって除去されやすくするな



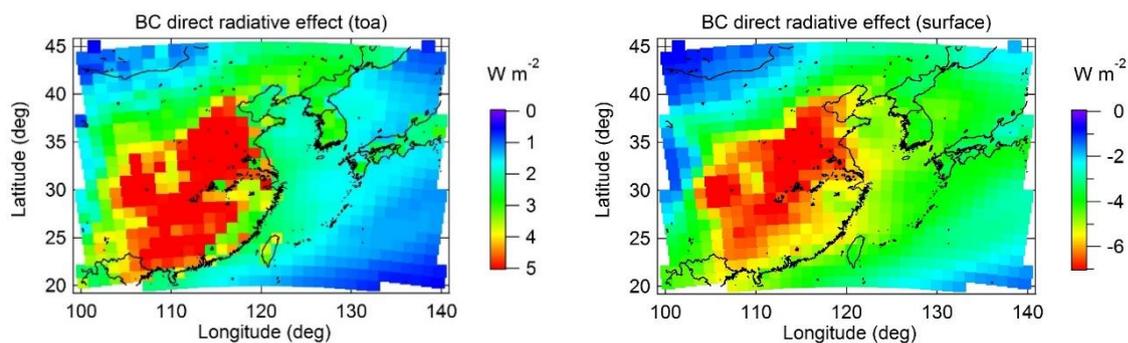
図(4)-15: (a) 2009年3~4月における東アジア域のBC光吸収による光学的深さ(AAOD: absorption aerosol optical depth)。 (b) 無機・有機エアロゾルの被覆に伴うBCのAAODの増大率の緯度分布。黒色と赤色は有機エアロゾルの生成を考慮した計算としなかった計算の結果を示す。 (c) 有機エアロゾルの生成がAAODの増大率に占める割合の緯度分布。

どの効果をもつため、VBSスキームによりOA濃度の再現性を高め、BCの放射影響などを正しく推定することが重要であることが指摘された。また、VBSスキームの導入は、PM_{2.5}濃度レベルのモデル再現性向上に対しても一定の役割を持つことも合わせて示された（図(4)-16）。



図(4)-16：福江（2009年春）、如東Rudong(2010年春)、済州島Jeju(2012年秋)に実施した、PM_{2.5}の主成分個別化学分析結果(obs)と、VBSモデルシミュレーションとの対応関係。モデル内でエイジング過程のon/offを切り替えた2つのランを観測と比較した。

ATRASモデルに与えるVOC、BC、OCの排出インベントリにおいて、起源を化石燃料起源と非化石燃料起源（バイオマス燃焼、バイオ燃料燃焼、植物起源揮発性物質の放出）に大別し、炭素性エアロゾルの起源を推定できるようにした。モデルシミュレーションによる炭素性エアロゾルの起源を推定した結果、2009年の春季の福江島における非化石燃料の炭素性エアロゾルの割合は、30-40%と見積もられた。VOC各成分の排出時の化石燃料・非化石燃料比とその領域分布の不確定性は非常に大きいため、モデルで計算された割合の見積りの不確定性幅も大きい。しかしながら、モデルで計算された非化石燃料の炭素性エアロゾルの割合は、2015年春季の福江島における観測値と概ね整合的な割合となっている（特にエアロゾルが高質量濃度の期間）。



図(4)-17：春季アジア域における大気上端および地表におけるBCの直接放射強制力の空間分布。

グローバルモデルにおける値と比較をするために、BCの放射強制力の空間分布を推定した。図(4)-17にはATRASを導入した領域3次元モデルを用いた2009年春季東アジア域におけるBCの直接放射強制力の空間分布を示す。期間平均値は、大気上端で 2.2 W m^{-2} 、地上で -3.6 W m^{-2} と見積もられた。また、BCの大気中濃度は、エアロゾルの排出時の粒径分布・混合状態の不確定性に対する

感度は小さく、不確実性の幅は20%程度にとどまるのに対し、BCの光学変数(吸収のエアロゾル光学的厚さ、内部混合による吸収の増幅、質量吸収断面積)や放射強制力は、排出時の粒径分布・混合状態に対する感度が大きく、58-99%の範囲の不確実性(大気上端で $1.6\sim 2.8\text{ W m}^{-2}$ 、地上で $-5.2\sim -2.1\text{ W m}^{-2}$)を持ちうることを示された。

アジア域におけるSO₂, BC, OA, NO_x, VOCの排出量の変化に対するエアロゾル濃度および放射強制力の応答を評価した。BCの混合状態と有機エアロゾルの生成過程を詳細に計算できるエアロゾルモデルを用いることによって、エアロゾルの排出量変化に対する応答が50~100%程度増大することを示した。また、1850年から2000年までのNO_xの排出量の変化が、その期間のエアロゾル濃度の増大において極めて重要な役割を占める可能性を示した(質量濃度の70%、放射強制力の40%)。そして、この寄与の推定がモデルにおけるBCの混合状態と有機エアロゾルの生成過程の表現に大きく依存することを示した。これらの結果は、排出量変化に対するエアロゾルの応答を精度良く推定するためには、詳細なエアロゾル過程の表現や気相反応・エアロゾル過程の相互作用の扱いが重要になることを示している。また、数値モデルによって、BCの主要な発生源であるディーゼル排気、バイオ燃料燃焼、バイオマス燃焼などからの発生量を変化させた場合の放射強制力の応答を定量的に評価した。その結果については、サブテーマ横断的に解析されており、課題代表者が含まれるサブテーマ1で記述する。

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

福江・LulinにおけるBC通年観測データは、世界的に見て精度や信頼度が高いものであり、数値モデルを検証し、重要な発生源である中国やインドシナ半島バイオマス燃焼からのBC排出量とその推移を把握するためのベンチマークとなるデータが長期間得られた。とくに、8年間データを蓄積したことにより、福江でのBC濃度の下降トレンドが明らかとなってきた。福江での長期観測データはウェブで公開しており、広く利用可能となっている。

(<https://ebcrpa.jamstec.go.jp/atmoscomp/obsdata/>) KORUS-AQ航空機観測期間には、航空機の広域観測と整合する観測データを福江で集中的に取得し、国際共同研究のためにデータが発信された。また、降水によるBC除去速度を福江での長期観測から定量的に評価し、近似式を提案して、数値モデルでのプロセス表現の検証を可能とした。放射性炭素同位体比の観測と、レボグルコサンをバイオマス燃焼のトレーサーとした解析とを初めて複合させたことによって、BC, OC別で、化石燃料起源・バイオマス燃焼起源・それ以外を分離することが初めて可能となった。このことにより、排出インベントリや、モデルシミュレーション結果におけるBC, OCの起源分類を評価できた。

モデル開発について、これまで用いられてきたパラメタリゼーションなどの簡易的な表現ではなく、BCの大気中での一連のプロセスを素過程に基づいて計算できるATRASモジュールを実装したアジア領域スケールモデルを開発した。BC数濃度や粒径、個々の粒子の化学組成(混合状態)を表現し、BCの光吸収・大気加熱や大気中の寿命など、BCの気候影響評価において極めて重要な過程のモデル表現が大幅に改善された。このモデル結果を用いた解析では、BCの直接放射強制力の推定において、排出源におけるエアロゾルの粒径分布と混合状態のパラメータが重要な役割を果たすこと、また、モデルにおいて変質過程に伴う光吸収量の増大効果を十

分に表現することが重要になること、などが示され、BCの直接放射強制力を再評価した。これまでの多くのエアロゾルモデルでは、BCの混合状態の変化とそれに伴う光吸収量の増大を十分には扱っておらず、本研究の結果はその部分の改善の必要性を示している。アジア域におけるSO₂, BC, OA, NO_x, VOCの排出量の変化に対するエアロゾル濃度および放射強制力の応答の非線形性を初めて明らかにした。とくにNO_xからの影響が強いこと、BCの混合状態と有機エアロゾルの生成過程の表現に強く依存することを示した。

(2) 環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

特に記載すべき事項はない。

<行政が活用することが見込まれる成果>

- ・アジアのBC主要発生源からの排出量の動向を把握する基礎情報として、福江（2009-2017年）・Lulin(2013-2017年)における長期通年BC観測データを取りまとめた。中国上空ではSO₂, NO_xの排出量が減少に転じたことは、衛星観測等から指摘されてきたが、BCの排出減少・越境汚染減少の可能性を初めて福江での観測から示した。降水量や風系の年々変動の影響も大きいため、引き続きBC濃度や関連するPM_{2.5}濃度などの推移を見極めて結論を出してゆく必要があるが、重要なデータである。今後の削減対策の検討に加え、削減効果の把握・検証の意味でも、信頼度の高い機器による長期濃度観測データが政策へもたらす貢献は大きい。
- ・BC, OCごとに、発生源寄与を、化石燃料燃焼とバイオマス燃焼、OCはさらにそれ以外（植生・森林）の寄与に分離可能であることを実証し、福江でのBCは91%化石燃料燃焼起源であることを示した点は、BCやPM_{2.5}の削減対策の精密な議論や、削減効果を詳細に把握し検証していくために有効である。今後、測定が多地点化と、確立した方法論の普及が望まれる。福江で得られた情報はまだ限られているが、エミッションインベントリでの中国でのBC排出について、化石燃料燃焼の寄与割合に上方修正を加える必要性を提唱している。
- ・開発した高度なエアロゾルモデルでは、BCのみならず、これまで課題となってきた有機エアロゾル量やPM_{2.5}のモデル再現についても大幅に改善しており、BCの大気中存在量や起源分類、放射影響の見積の精度向上に加えて、PM_{2.5}の対策の検討に資するものである。
- ・大気BCの分布や放射強制力を見積もった結果はIPCCの報告書などで活用される。
- ・BCはSLCP(Short-lived Climate Pollutants)の代表格であり、BCの発生源寄与に関する情報や高精度観測データは、削減対策を議論するCCACなどの場でも活用される。
- ・PM_{2.5}に関するモデル精度向上については、日中韓3カ国環境大臣会合など、越境大気汚染を議論する国際的な場でも活用される。

6. 国際共同研究等の状況

台湾・Lulin観測所でのブラックカーボン観測は、台湾国立中央大学・Neng-Huei (George) Lin教授、Hao-Ping (Eric) Chia技術員との共同研究で実施された。また、米国NASAと韓国の国立環境研究院(NIER)が中心となり実施したKORUS-AQ航空機観測について、co-PIであるNASA Jim Crawford氏やNCAR Louisa Emmons氏ほかと連携し、福江観測のデータとKORUS-AQチームの観測等のデータを相互融通し、統合的な解析を行った。

7. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<論文 (査読あり) >

- 1) H. MATSUI, M. KOIKE, Y. KONDO, A. TAKAMI, J. D. FAST, Y. KANAYA, and M. TAKIGAWA: *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 9513-9535 (2014a), Volatility basis-set approach simulation of organic aerosol formation in East Asia: implications for anthropogenic-biogenic interaction and controllable amounts”
- 2) H. MATSUI, M. KOIKE, Y. KONDO, J. D. FAST, and M. TAKIGAWA: *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 10315-10331 (2014b), Development of an aerosol microphysical module: Aerosol Two-dimensional bin module for foRmation and Aging Simulation (ATRAS)
- 3) T. MORI, Y. KONDO, S. OHATA, N. MOTTEKI, H. MATSUI, N. OSHIMA, and A. IWASAKI: *J. Geophys. Res. Atmos.*, 119, 10485-10498, doi:10.1002/2014JD022103 (2014), Wet deposition of black carbon at a remote site in the East China Sea
- 4) T. MIYAKAWA, Y. KANAYA, Y. KOMAZAKI, T. MIYOSHI, H. NARA, A. TAKAMI, N. MOTTEKI, M. KOIKE, and Y. KONDO: *Aerosol and Air Quality Research*, 16, 1603-1614, doi: 10.4209/aaqr.2015.11.0624 (2016a), Emission Regulations Altered the Concentrations, Origin, and Formation of Carbonaceous Aerosols in the Tokyo Metropolitan Area
- 5) T. MIYAKAWA, Y. KANAYA, Y. KOMAZAKI, F. TAKETANI, X. PAN, M. IRWIN, and J. SYMONDS: *Atmos. Environ.*, 127, 14-21 (2016b), Intercomparison between a single particle soot photometer and evolved gas analysis in an industrial area in Japan: Implications for the consistency of soot aerosol mass concentration measurements
- 6) H. MATSUI, *J. Geophys. Res. Atmos.*, doi:10.1002/2015JD023998 (2016a), Black carbon simulations using a size- and mixing-state-resolved three-dimensional model: 1. Radiative effects and their uncertainties
- 7) H. MATSUI, *J. Geophys. Res. Atmos.*, doi:10.1002/2015JD023999 (2016b), Black carbon simulations using a size- and mixing-state-resolved three-dimensional model: 2. Aging timescale and its impact over East Asia
- 8) Y. KANAYA, X. PAN, T. MIYAKAWA, Y. KOMAZAKI, F. TAKETANI, I. UNO, and Y. KONDO: *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 10689 - 10705 doi:10.5194/acp-16-10689-2016 (2016), Long-term observations of black carbon mass concentrations at Fukue Island, western Japan, during 2009–2015: constraining wet removal rates and emission strengths from East Asia
- 9) H. MATSUI and M. KOIKE: *J. Geophys. Res. Atmos.*, 121, 7161–7171, doi:10.1002/2015JD024671 (2016c), Enhancement of aerosol responses to changes in emissions over East Asia by gas-oxidant-aerosol coupling and detailed aerosol processes
- 10) T. MIYAKAWA, N. OSHIMA, F. TAKETANI, Y. KOMAZAKI, A. YOSHINO, A. TAKAMI, Y. KONDO, Y. KANAYA: *Atmos. Chem. Phys. Disc.*, doi:10.5194/acp-2016-570 (2016c), Alteration of the microphysical properties of black carbon through transport in the boundary layer in East Asia

<その他誌上発表（査読なし）>

特に記載すべき事項はない。

(2) 口頭発表（学会等）

- 1) 松井仁志、小池真、近藤豊、高見昭憲、金谷有剛、滝川雅之：日本地球惑星科学連合2014年大会（2014）「VBS法を用いた有機エアロゾルモデルの開発と検証：アジア域における人為・自然起源の相互作用」
- 2) 松井仁志、小池真、近藤豊、高見昭憲、金谷有剛、滝川雅之：日本気象学会2014年度春季大会（2014）「アジア域の有機エアロゾル生成の人為・自然起源相互作用：VBSモデルの開発と検証」
- 3) 金谷有剛：大気環境学会関東支部講演会「越境大気汚染とPM_{2.5}の実態」（2014）「観測とモデルからPM_{2.5}の越境汚染に迫る」
- 4) T. MIYAKAWA, Y. KANAYA, F. TAKETANI, M. TABARU, N. SUGIMOTO, Y. OZAWA, and N. TAKEGAWA: 9th International Aerosol Conference, Kanazawa, Japan, 2014 “Fluorescence of aerosols in Tokyo measured using a single-particle fluorescence sensor in the spring of 2013”
- 5) Y. KANAYA, H. MATSUI, F. TAKETANI, X. PAN, Y. KOMAZAKI, K. IKEDA, K. YAMAJI, Z. WANG, L. CHANG, D. KANG, A. TAKAMI, H. TANIMOTO, and Y. KONDO: 13th Quadrennial ICACGP Symposium & 13th IGAC Science Conference on Atmospheric Chemistry, Natal, Brazil, 2014 “Mass concentrations of organic aerosol and PM_{2.5} in East Asia reproduced by using volatility base-set approach in the WRF-Chem model”
- 6) 松井仁志：日本気象学会2014年度秋季大会（2014）「エアロゾルの数・粒径・混合状態を予測する新世代モデルの開発と検証」
- 7) 松井仁志：第20回大気化学討論会（2014）「数値モデル開発に基づくエアロゾルの化学・微物理過程の研究」
- 8) 金谷有剛、松井仁志、竹谷文一、駒崎雄一、Xiaole Pan、山地一代、池田恒平、高見昭憲、谷本浩志、近藤豊、Zifa Wang、Daeil Kang、Limseok Chang：第20回大気化学討論会（2014）「日中韓広域大気汚染集観測における有機エアロゾル・PM_{2.5}濃度のモデル再現性評価：VBSアプローチによる改善」
- 9) 金谷有剛：大気環境学会九州支部第15回研究発表会（2015）「東アジア広域大気汚染の観測とモデリング：実態把握と改善へ向けて」
- 10) 松井仁志：日本気象学会2015年度春季大会（2015）「ブラックカーボンとその放射強制力の不確定性：混合状態解像モデルを用いた感度実験」
- 11) 松井仁志：日本地球惑星科学連合2015年大会（2015）「混合状態解像モデルを用いたブラックカーボンとその放射強制力の不確定性の評価」
- 12) Y. KANAYA, F. TAKETANI, X. PAN, Y. KOMAZAKI, T. MIYAKAWA, H. MATSUI, K. YAMAJI, Z. WANG, L. CHANG, D. KANG, A. TAKAMI, K. IKEDA, H. TANIMOTO, and Y. KONDO: AOGS 2015, Singapore, 2015 “Synthesis of observations of atmospheric black carbon, organics and PM_{2.5} aerosols over Japan, Korea, and China with numerical simulations to better constrain their emission rates and origins”
- 13) T. MIYAKAWA, F. TAKETANI, X. PAN, Y. KOMAZAKI, and Y. KANAYA: European Aerosol

Conference, Milan, Italy, 2015 “Ground and Ship-based measurements of refractory black carbon”

- 14) 金谷有剛、宮川拓真、竹谷文一、駒崎雄一、潘小樂、近藤豊：第56回大気環境学会年会（2015）
「長崎県福江島での長期連続観測からみたBC/CO比：起源地域と降水の影響」
- 15) 宮川拓真、金谷有剛、竹谷文一、駒崎雄一、Pan Xiaole, 近藤豊：第56回大気環境学会年会（2015）
「ブラックカーボンの輸送に対する湿性沈着過程の影響—2015年春季の福江島での大気観測から事例解析—」
- 16) T. MIYAKAWA, F. TAKETANI, N. OSHIMA, Y. KOMAZAKI, X. PAN, A. YOSHINO, A. TAKAMI, Y. KONDO, and Y. KANAYA: AGU fall meeting 2015, San Francisco, USA, 2015 “Aging and removal of Black Carbon Measured Using a Single Particle Soot Photometer in East Asia”
- 17) 松井仁志、大島長：日本地球惑星科学連合2016年大会（2016）「二次元ビン法を用いた全球エアロゾルモデルの開発」
- 18) 金谷有剛、Xiaole Pan, 宮川拓真、駒崎雄一、竹谷文一、鶴野伊津志、近藤豊：日本地球惑星科学連合2016年大会（2016）「福江島における大気中ブラックカーボン質量濃度の長期観測2009-2015：東アジアからの排出量と湿性除去速度の解析」
- 19) 金谷有剛、Xiaole Pan, 宮川拓真、駒崎雄一、竹谷文一、鶴野伊津志、近藤豊：日本気象学会2016年度春季大会（2016）「福江島における大気中ブラックカーボン質量濃度の長期観測2009-2015：湿性除去過程の統計的解析」
- 20) 宮川拓真、金谷有剛、駒崎雄一、三好猛雄、奈良英樹、高見明憲、茂木信宏、小池真、近藤豊：第33回エアロゾル科学・技術研究討論会（2016）「東京における炭素性エアロゾルの濃度、起源、生成過程への排出規制の影響評価」
- 21) T. MIYAKAWA, Y. KOMAZAKI, F. TAKETANI, X. PAN, Z. WANG, Y. KANAYA: European Aerosol Conference, Tours, France, 2016, “Source apportionment of carbonaceous aerosols in East Asia based on radiocarbon and molecular marker analyses”
- 22) Y. KANAYA, F. TAKETANI, X. PAN, T. MIYAKAWA, Y. KOMAZAKI, I. UNO, Y. KONDO: 14th IGAC Science Conference 2016, Breckenridge, Colorado, USA, 2016 “Observations of atmospheric black carbon mass concentrations from East Asia to the open oceans: Constraining emission strengths and wet deposition rates”
- 23) Y. KANAYA, X. PAN, T. MIYAKAWA, Y. KOMAZAKI, F. TAKETANI, I. UNO, Y. KONDO: American Geophysical Union Fall Meeting 2016, San Francisco, USA (2016) “Long-term observations of black carbon mass concentrations at Fukue Island, western Japan, during 2009-2015: Evaluating bottom-up emission inventories for East Asia”
- 24) H. MATSUI: American Geophysical Union Fall Meeting 2016, San Francisco, USA, 2016, “Black carbon simulations using a size- and mixing-state-resolved three-dimensional model: Radiative effects and their uncertainties”
- 25) Y. KANAYA: topical workshop TEAM: Transport and transformation of pollutants from European and Asian Major population centres, Bremen, Germany, 2017 “Ozone and aerosol studies over Japan: Perspectives of continental outflow and megacity pollution”

(3) 知的財産権

特に記載すべき事項はない。

(4) 「国民との科学・技術対話」の実施

- 1) JAMSTEC横須賀本部一般公開にて成果紹介展示「PM_{2.5}を測ってみよう」(2015年5月16日、参加者約150名)
- 2) 福井県衛生環境研究センター研修会(2017)「観測とモデルからPM_{2.5}越境大気汚染の実像に迫る」(福井県衛生環境研究センター、2017年2月27日、参加者約50名)にて講演

(5) マスコミ等への公表・報道等

- 1) 金谷ほか(2016年8月31日、海洋研究開発機構プレスリリース、「PM_{2.5}の頑固な汚れ「ブラックカーボン」も東シナ海では降雨が洗い流す～アジアからの汚染粒子が広がる範囲と温暖化影響を検証するための観測知見～」,
- 2) 日経産業新聞(2016年9月1日、8面、「PM_{2.5}中のすす 降雨量から評価」)

(6) その他

- 1) 松井仁志、「エアロゾルの数・粒径・混合状態を予測する新世代モデルの開発と検証」、日本気象学会2014年度正野賞受賞
- 2) 松井仁志、「数値モデル開発に基づくエアロゾルの化学・微物理過程の研究」、日本大気化学会2014年度奨励賞受賞

8. 引用文献

特に記載すべき事項はない。

Comprehensive Estimates of Black Carbon Radiative Forcing Leading to Global Warming

Principal Investigator: Makoto KOIKE

Institution: The University of Tokyo
7-3-1 Hongo, Bunkyo-ku, Tokyo 113-0033, JAPAN
Tel: +81-3-5841-4595 / Fax: +81-3-5841-8316
E-mail: koike@eps.s.u-tokyo.ac.jp

Cooperated by: National Institute of Polar Research, National Institute for Environmental Studies, Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology, Nagoya University

[Abstract]

Key Words: Aerosol, Black carbon, Global warming, Air pollution

Black carbon (BC), a black carbonaceous aerosol emitted from incomplete combustion of fossil fuels and biomass, absorbs solar radiation in the atmosphere and in the snowpack. BC has the third largest positive radiative forcing after carbon dioxide and methane (IPCC 5th report). Furthermore, it affects the global hydrological cycle by the atmospheric heating and snow-albedo reduction. Therefore, understandings of key mechanisms controlling BC amount in the atmosphere is important in planning of global warming mitigation measures.

Achievements of this study are as follows. Firstly, we found from new observations that the wet removal efficiency of BC in moist convection, which is an atmospheric process controlling the vertical mass flux and the atmospheric lifetime of BC, is determined by cloud condensation nuclei (CCN) property of BC containing particle. We suggest that improvement of the prediction accuracy of the BC mixing state (chemical compositions and amount of coating material of BC) is important especially in the vicinity of the emission sources, in order to improve the model predictability of BC abundance in the atmosphere.

Secondly, in addition to detailed observation by electron microscopy, the mixing state of BC was statistically classified using a new real-time measurement technique and showing that over 90% of BCs internally-mixed with other aerosols were coated-type morphology. In addition, we developed a high-precision, high-speed computation method for the optical properties of complex shaped BC-containing particles.

Thirdly, the observation method using the carbon isotope ratio analysis revealed that the BC source of the East Asian wide area average is 90% of fossil fuel combustion origin and 10% of biomass combustion origin.

Fourthly, we developed an aerosol model ATRAS which can calculate the mixed state of BC and the process of organic aerosol formation in detail. Using this model, we showed that the positive radiative forcing will be reduced if particulate emissions from BC-rich sources were reduced over East Asia.

Fifthly, we introduced a new parameterization we had developed for BC aging process into our global model. As a result, a good agreement was found both over the arctic and tropics where many global models have difficulties. Finally, it was suggested from the long-term observation that BC mass concentration in the East Asia has been decreasing in recent years. By comparing with the numerical model, this concentration decrease was attributed to the decrease in emission flux in China. This is the first observation result demonstrating that the improvements of BC reduction technology and environmental policy in East Asia offset the increasing factors of emission.