

Environment Research and Technology Development Fund

環境研究総合推進費 終了研究成果報告書

地球温暖化に関わる北極ブラックカーボンとダスト粒子の動態と放射効果
(2-1703)

平成29年度～令和元年度

英文課題名

Black Carbon and Dust Particles in the Arctic:
Behavior in Association with Global Radiative Forcing

〈研究代表機関〉

国立大学法人東京大学

〈研究分担機関〉

国立研究開発法人国立環境研究所

国土交通省気象庁気象研究所

国立共同利用機関法人情報・システム研究機構国立極地研究所

国立大学法人名古屋大学

〈研究協力機関〉

国立大学法人名古屋大学宇宙地球環境研究所

令和2年5月

目次

I. 成果の概要	1
1. はじめに（研究背景等）	
2. 研究開発目的	
3. 研究開発の方法	
4. 結果及び考察	
5. 本研究により得られた主な成果	
6. 研究成果の主な発表状況	
7. 研究者略歴	
II. 成果の詳細	23
II-1 BC・ダスト粒子観測と総合評価 （国立大学法人東京大学）	
要旨	
1. はじめに	
2. 研究開発目的	
3. 研究開発方法	
4. 結果及び考察	
5. 本研究により得られた成果	
6. 国際共同研究等の状況	
7. 研究成果の発表状況	
8. 引用文献	
II-2 エアロゾル化学組成と動態評価 （国立研究開発法人国立環境研究所）	46
要旨	
1. はじめに	
2. 研究開発目的	
3. 研究開発方法	
4. 結果及び考察	
5. 本研究により得られた成果	
6. 国際共同研究等の状況	
7. 研究成果の発表状況	
8. 引用文献	
II-3 エアロゾル組成分析と気候モデルによる評価 （国土交通省気象庁気象研究所）	59
要旨	
1. はじめに	
2. 研究開発目的	
3. 研究開発方法	

4. 結果及び考察
5. 本研究により得られた成果
6. 国際共同研究等の状況
7. 研究成果の発表状況
8. 引用文献

II-4 アイスコア・積雪分析と氷晶核特性評価 82

(国立共同利用機関法人情報・システム研究機構国立極地研究所)

要旨

9. はじめに
10. 研究開発目的
11. 研究開発方法
12. 結果及び考察
13. 本研究により得られた成果
14. 国際共同研究等の状況
15. 研究成果の発表状況
16. 引用文献

II-5 数値モデルによる発生源寄与評価 108

(国立大学法人名古屋大学)

要旨

17. はじめに
18. 研究開発目的
19. 研究開発方法
20. 結果及び考察
21. 本研究により得られた成果
22. 国際共同研究等の状況
23. 研究成果の発表状況
24. 引用文献

III. 英文Abstract 125

I. 成果の概要

課題名 2-1703 地球温暖化に関わる北極ブラックカーボンとダスト粒子の動態と放射効果
 課題代表者名 小池 真 (東京大学 准教授)
 研究実施期間 平成29～令和元年度
 研究経費(累計額) 139,869千円
 (平成29年度:46,898千円、平成30年度45,294千円、令和元年度:47,677千円)

本研究のキーワード 地球温暖化、環境変動、環境計測、環境モデル、次世代環境影響評価、環境アセスメント、環境モニタリング、モデルシュミレーション

研究体制

- (1) BC・ダスト粒子観測と総合評価(国立大学法人東京大学)
- (2) エアロゾル化学組成と動態評価(国立研究開発法人国立環境研究所)
- (3) エアロゾル組成分析と気候モデルによる評価(国土交通省気象庁気象研究所)
- (4) アイスコア・積雪分析と氷晶核特性評価(国立共同利用機関法人情報・システム研究機構
国立極地研究所)
- (5) 数値モデルによる発生源寄与評価(国立大学法人名古屋大学)

研究協力機関

国立大学法人名古屋大学宇宙地球環境研究所

1. はじめに(研究背景等)

産業革命から現在までの放射強制因子のうち、化石燃料やバイオマス燃焼に伴い発生す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、二酸化炭素とメタンに次いで全球平均で3番目に大きな正の放射強制力をもつと報告されている(IPCC 2013)。近年において急速に温暖化が進行している北極域においては、BCの雪氷面への沈着によるアルベド(反射率)の低下が、さらに温暖化を増幅させている可能性がある。日本もオブザーバー参加が許可された北極評議会においても、2015年に最初のBC等に関するアセスメント・レポートがまとめられ、現在、第2次報告書がまとめられつつある。これと並行して北極温暖化抑制のためのBC排出量の削減が検討され始めている。

しかしながら、全球モデルによるBCの直接放射強制力の推定値には、数値モデルの表現や仮定に依存した大きな不確実幅がある。特に北極域においては、ほとんどの全球モデルは観測されている冬季から春季にかけてのBC濃度の極大を過小評価しており、北極BC濃度の再現性の向上が全球のBC放射強制力の精度向上の鍵となっている(北極⇒グローバル)。一方において、北極大気中のBCは、アジアをはじめとする中高緯度の人為的発生源からも輸送されてきていると考えられており、北極BC濃度の再現性向上のためには、グローバルなBC輸送過程の表現の精緻化が必要とされている(グローバル⇒北極)。このことは、北極とグローバルなBCの研究を一体化して扱っていくことが必要であることを示している。また、そもそも数値モデル検証に使用されている北極BCの観測値自体に、少なからぬ不確実性があることも指摘されている。

BC以外の光吸収性エアロゾルとしては、黄砂などの鉱物ダスト粒子(酸化鉄)や有機炭素(茶色炭素)が知られている。近年の私たちの研究により、人為起源の黒色の酸化鉄(FeO_x)が対流圏中に高濃度で存在していることが東アジア上空における観測から明らかにされた(Moteki et al. 2017)。人為起源の酸化鉄はこれまで全く見過ごされてきた大気中の正の放射強制力をもつエアロゾルであり、その動態は全く調べられておらず、その全球の放射強制力の推定も皆無である。人為起源の酸化鉄の全球や北極の温暖化への寄与について、観測・数値モデル研究を進めていく必要がある。

一方で、人為的なBC排出量を削減するという環境政策を国際的に進めていく上では、アジア開発途

上国へのアウトリーチが重要である。アジアでのBC排出量が全球的な総排出量に占める割合は大きい。また北極BCの少なからぬ量はアジアから排出され長距離輸送されたものである。このため温暖化対策としてのBCの重要性や、BC削減時の効果を定量化することに寄与する大気中BC濃度測定法などの情報をアジアでの会議で提供し、理解を深めていただく努力が必要である。

2. 研究開発目的

本研究の第一の目的は、先端的な観測と数値モデルにより北極域のBCの動態を明らかにし、世界のBC発生源からの寄与や放射影響を評価することである。既存の北極域のBC観測には大きな不確定性があることが指摘されてきている。そこで本研究では、北極域の代表的な観測点において私たちが開発してきた高精度BC測定器COSMOSを用いて連続観測を実施するとともに、航空機からの高度分布観測を実施し、その濃度や微物理特性の動態を明らかにする。また降雪中や積雪中BCを定量し、北極域の広域での雪氷中BC濃度の空間分布や沈着量を明らかにする。さらに日本で開発されてきた詳細なエアロゾル数値モデルを検証・改良し、北極温暖化に関わるBCの放射効果を定量化する。

第二の目的は、もうひとつの光吸収エアロゾルである酸化鉄粒子（FeOx）の動態と放射効果の評価である。私たちの研究により、アジア大気中の酸化鉄は人為起源のものが支配的であり、これまで「見過ごされてきた地球温暖化物質」である可能性がある。本研究では私たちが開発してきたFeOxの観測手法により、アジアと北極域でのFeOxの観測を実施し、その動態を明らかにする。東京近傍やアジア大陸の人為的排出源の影響を強く受ける下流域での地上観測から、アジアにおける典型的なFeOx濃度や粒径分布などの微物理特性を明らかとし、その発生源についても調べる。これらの知見に基づいて人為的な酸化鉄とその発生量を数値モデルに組み込むことにより、人為起源酸化鉄の動態とその放射効果を定量化する。

第三の目的は、北極アイスコア中のBCや酸化鉄の分析を行い、産業革命以前から現在までのBCなどの動態を明らかにすることである。そして数値モデルとの比較を行うことにより、産業革命以前から現在までのBCの排出源データの妥当性やBCの放射影響を評価する。

第四の目的は、将来的にこのような知見を国際的なBCの排出量推計・規制に結び付けていくために、アジアの開発途上国へのアウトリーチを実施することである。

3. 研究開発の方法

(1) BC・ダスト粒子観測と総合評価

● 北極BCの動態

本研究では私たちが開発してきたBC質量濃度測定器（COSMOS）を使ったBCの高精度の連続観測を、北極域の代表的な観測地点である諾国スバルバル諸島のニーオルスンおよび米国アラスカのバローの2地点で実施した（サブテーマ4（国立極地研究所）との連携）。北極域でのCOSMOS観測の精度を検証するために、別の原理に基づいて高精度でBC観測が可能なSP2法（レーザー誘起白熱法）との比較を実施した。また両観測地点においてそれぞれストックホルム大学および米国海洋大気庁が長年実施しているBC観測との比較を実施した。本研究ではまた地上BC観測に加え、ドイツのAlfred Wegener Institute (AWI)が中心となって2018年3-4月に実施した国際共同による北極域での航空機観測（PAMARCMiP2018）に参加し、BCと酸化鉄観測を実施した。そして森林火災（バイオマス燃焼）の影響などを調べた。また数値モデルによる北極へのBC輸送計算の鍵となる降水による除去過程について、観測にもとづいて最大過飽和度を推定するという新しい手法を開発した。そしてその推定値を用いサブテーマ5（名古屋大学）と連携した数値モデル計算を実施した。

● 人為的酸化鉄（FeOx）粒子

本研究では私たちが開発してきた酸化鉄（FeOx）を測定・解析する技術をさらに改良し、サブテーマ2（国立環境研究所）とサブテーマ3（気象研究所）と連携してアジアと北極での観測を実施するとともに、これまで私たちの研究グループで取得してきた地上および航空機観測データを共通のプロトコルにより再解析した。東京近傍やアジア大陸の人為的排出源の影響を強く受ける下流域での地上観測か

ら、アジアにおける典型的な FeO_x 濃度や、製鉄所や自動車などの発生源について調べた。これらの知見に基づいて人為的な鉄のグローバルな排出量の推計を行った。またアジアと北極での観測に基づき、北半球スケールでの典型的な FeO_x 濃度、粒径分布などの微物理特性、発生源の情報を含むBCやCOとの相関を明らかとした。人為的な FeO_x の放射強制力の推定のために、これらの知見をサブテーマ5（名古屋大学）に提供した。

（2）エアロゾル化学組成と動態評価

● エアロゾル化学組成の動態

アジアにおけるブラックカーボン・エアロゾル（BC）や酸化鉄（ FeO_x ）の動態をエアロゾル全体の動態の中で理解するために、大陸に近い九州北部の福岡県福岡市においてエアロゾル観測を実施し、越境大気汚染の影響などについて解析を行った。エアロゾル質量分析計を用い、エアロゾルの主要な化学成分（硫酸イオン、硝酸イオン、アンモニウムイオン、有機物など）を観測した。同時に走査型易動度粒径分布測定機により、エアロゾルの粒径分布も測定した。また観測された空気の性質を理解するために、オゾンおよび一酸化炭素（CO）観測を行った。

2019年4月にはサブテーマ1（東京大学）およびサブテーマ3（気象研研究所）と連携して、BCや酸化鉄の動態および数値モデル計算の検証のために、長崎県福江島に設置されている国立環境研究所の観測施設においてエアロゾルの化学組成や粒径分布の観測を行った。

● エアロゾルの放射効果

他のサブテーマと共同で実施した2019年4月の福江島での観測では、AERONET放射計（米国NASAが主催する放射計のネットワーク）を設置し、BC及び酸化鉄の観測に同期した放射観測を実施した。福江島観測所の既存のSKYNET放射計観測（千葉大が主催する放射計のネットワーク）との比較を実施した。

（3）エアロゾル組成分析と気候モデルによる評価

● エアロゾルの電子顕微鏡分析

電子顕微鏡分析用の試料採取を、1) 2018年3-4月にグリーンランドで航空機及び地上観測（サブテーマ1（東京大学）との連携）、2) 2018年1-2月に福岡での集中観測（サブテーマ2（国立環境研）との連携）、3) 2019年4月に長崎県福江島での集中観測時（サブテーマ1（東京大学）およびサブテーマ2（国立環境研）との連携）を行い、また過去の観測時に採取した試料も解析に用いた。得られた試料は、透過型電子顕微鏡（JEM-1400, JEOL, Tokyo）で分析し、形態・混合状態・サイズ・エアロゾル種分類などを行った。

● 気候モデルによる評価

従来の気候モデルに数多くの改良を実施することで、第6期結合モデル相互比較計画（CMIP6）に向けた新しい気象研究所地球システムモデル（MRI-ESM2）を開発した。エアロゾルモデルでは、私たちが開発したパラメタリゼーションを導入した。MRI-ESM2を用いて、近年（2008-2015年）を対象とした計算と産業革命前から現在まで（1850-2014年）の歴史実験計算を実施した。また現在、取りまとめが行われつつある北極評議会の関連作業部会報告書のための数値モデル計算を実施し、その結果を提供した。

（4）アイスコア・積雪分析と氷晶核特性評価

● 北極における降雪中BCの観測と積雪中BCの広域分布

世界的にみてもエアロゾル分析のための降雪の採取について確立した方法がなかった。本研究では「吹き流し：Windsock」と「据え置き型の箱：Box」を比較し、Box法がより高精度測定できることを明らかにした。この手法に基づく観測により、降雪によるBCフラックスと積雪中BCとの比較を実施した。BCの定量には、より大きな粒径までのBCを測定できるように改良したSP2測定器（レーザー誘起白熱法）と噴霧による水の粒子化装置を組み合わせたシステムを用いた。

北極の広域（アラスカ、グリーンランド、ニーオルスン、フィンランド、ロシア）で2012年から2016

年の春に採取された積雪試料を分析し、その中に含まれるBC濃度の分布を解析した。分析は、降雪中BC分析と整合的になるように、同じSP2を使った手法を採用した。分析までのコンタミネーションを抑えるために、積雪資料の採取方法や保存方法にも改良を加えた。

- **アイスコア分析によるBCの長期変化**

国立極地研究所が開発したアイスコア連続融解分析装置（CFA）に、東京大学が開発した大きな粒径のBCまで測定可能なSP2測定器を接続して取得したグリーンランド・アイスコアのBCデータから、産業革命以後のBCの濃度と粒径分布の変動を高精度・高時間分解能で復元した。同じ分析システムで取得したデータを用いて、BCだけでなく、酸化鉄の濃度を計算する手法を検討し、初期的なデータを得た。

- **BCおよび酸化鉄粒子の氷晶核特性**

国立極地研究所が開発したオリジナルの実験系を用いて、BC（フラーレン煤）、酸化鉄（マグネタイト、ヘマタイト、ゲーサイト）、2種類のダスト（標準鉱物ダスト、高緯度（北極陸域）起源のダスト）の氷晶核特性の定量的な評価を行った。また、この測定技術を応用することにより、スバル諸島・ニーオルスンで得られたエアロゾル試料を分析し、北極域の下層大気中における氷晶核として働くエアロゾル粒子を算出した。また、同試料中に含まれる個々の微粒子の大きさや化学組成（元素組成）などについても調べた。

- **アジア開発途上国へのアウトリーチ**

アジア開発途上国へのアウトリーチのために、インドのデリーで2018年に開催されたWGIA（アジアにおける温室効果ガスインベントリ整備に関するワークショップ）に出席し、BCの排出量推定の検証に必要なBCの高精度測定的重要性に関する発表を行なった。またインドのエアロゾル測定の基準を作るための研究を行っている機関であるNational Physical Laboratory（NPL）でセミナー講演を行い、具体的な方策を議論した。

（5）数値モデルによる発生源寄与評価

- **全球エアロゾルモデルCAM5-chem/ATRAS2の開発・計算・検証**

これまで開発してきたエアロゾルモデルATRAS（Aerosol Two-dimensional bin module for foRmation and Aging Simulation）を改良し、モデルの精度を維持しつつ10倍以上計算効率化したエアロゾルモデルATRAS2を開発した。このモデルを全球気候モデルCAM5（Community Atmospheric Model version 5）に導入し、エアロゾルの粒径と混合状態の両方を詳細に表現できる2次元ビン法を用いた全球モデル（CAM5-chem/ATRAS2）を世界で初めて開発した。多数の混合状態を表現することの重要性を示すために、BC混合状態を解像したモデル表現と、従来広く用いられている解像しないモデル表現を用いた計算を行い、その優位性を検証した。

- **BCの全球放射強制力**

この全球エアロゾルモデルを用いて、BCの全球および北極域における直接効果を推定した。またBC直接効果の推定に対して、エアロゾルが放出される際の粒径分布（放出粒径）の扱いがどの程度重要になるかを調べた。

- **北極BCの発生源寄与**

北極域におけるBCの発生源寄与を推定するために、様々な発生源から放出されるBCの放出・輸送・変質・除去過程を個別に追跡できるタグモデルを開発し、CAM5-chem/ATRAS2に導入した。このモデルでは、地球全体を12個にわけた各領域から放出される人為起源（化石燃料・バイオ燃料の燃焼起源）とバイオマス燃焼起源のBCについて、大気中での輸送・変質・除去過程を別々の変数を用いて追跡することが可能である。このタグモデルを用い、北極域（70度以北）の地表付近のBC質量濃度、北極大気中積分量、沈着量、直接効果のそれぞれについて発生源寄与を定量化した。

- **人為起源酸化鉄の気候影響評価**

人為的な光吸収性エアロゾル成分の黒色酸化鉄（マグネタイト）を全球エアロゾルモデルCAM5-chem/ATRAS2に導入した。東京大学（サブテーマ①）が開発した測定技術を用いた黒色酸化鉄（マグネタイト）の大気中濃度の多地点観測を用い、黒色酸化鉄および人為起源鉄（黒色酸化鉄は人為起源鉄の

一部)の全球放出量を推定するとともに、その大気中濃度と大気加熱効果を推定した。人為起源の黒色酸化鉄を数値モデルに導入し、その全球分布や気候影響を推定したのは、世界的にも本研究が初めてである。またこの計算結果に基づいて海洋への溶存鉄の沈着量を推定した。

4. 結果及び考察

(1) BC・ダスト粒子観測と総合評価

● 北極BCの動態

COSMOSによるBC質量濃度の連続観測を、北極域のノルウェー領スバル諸島のニーオルスンおよびアラスカのバローにおいて実施した。ニーオルスンにおいては、別の原理に基づいて高精度でBC観測が可能なSP2法(レーザー誘起白熱法)との比較を実施した。北極域ではBC濃度は、アジアと比較して1/10~1/60程度と極めて低濃度であるが、両観測は約10%程度で一致することが確認された(図4.1.1., Ohata et al., 2019)。この結果は、本研究の北極でのCOSMOSによるBC観測の高い精度を改めて保証するものである。

ニーオルスンおよびバローでは、瑞国ストックホルム大学および米国海洋大気庁(NOAA)がPSAPやアセロメータ法により20年以上もBCの観測を実施している。観測年は異なるが先行研究で報告されているBC濃度はCOSMOSの値と比較して、ニーオルスンでは2-3倍程度、バローでは1.3倍程度高い濃度となっていた(Sinha et al., 2017)。PSAPやアセロメータ法は、BC以外のエアロゾル成分の影響を受けている可能性が示された。本研究の結果は、高精度のBC観測の重要性を改めて示すものである。

本研究では、国際共同研究として実施されたPAMARCMiP2018航空機観測において、BCと酸化鉄の観測を実施した。この観測では高度5km付近にBC濃度の増大層が複数回のフライトにおいて見られ、衛星観測データの解析などから東シベリアの森林火災の影響である可能性が示された。これらの濃度増大を除くと平均的なBC濃度はこれまでの航空機観測の値よりも低く、森林火災の年々変動の解析からBC濃度の年々変動は北半球高緯度での森林火災により説明できる可能性が示された。

一方、本研究で新たに開発された手法により観測に基づいた降水雲中の過飽和度の推定を行ったところ、複数の降水イベントの平均値として $0.08 \pm 0.03\%$ という結果が得られた(Moteki et al., 2020)。この推定値を用いサブテーマ5(名古屋大学)の数値モデル計算を実施したところ、冬季のBC濃度が従来の計算法を用いた時よりも10倍程度も増大した。BCなどエアロゾルの全球分布の予測精度の向上において、降水除去過程の表現と推定が重要であることが改めて示された。

● 人為的酸化鉄(FeOx)粒子

人為的酸化鉄の発生源として製鉄所が重要であると従来指摘されている。本研究では私たちが開発してきた測定法に基づき実施した千葉県での製鉄所近くでの観測により、製鉄所からの空気中においてFeOxがきわめて高濃度となることを確認した。しかし観測データから製鉄所からのFeOxの放出量を逆推定したところ、その発生量は必ずしも大きくなく、発生源としては重要ではないことが明らかとなった(Ohata et al., 2018)。一方、FeOx/BC質量濃度比の日変動と交通量の日変動との比較から、FeOxの発生源として自動車が重要である可能性を示した。

本研究では、最大級の人為起源エアロゾルの発生源である中国の汚染空気の影響を受ける沖縄県辺戸岬での観測に基づきFeOxとBCおよびCOの質量濃度の変動比率を調べた。この観測に基づき中国からの人為的なFeOxの排出量を見積もったところ $0.21-0.49 \text{ FeTg/yr}$ という値を得た(Yoshida et al., 2018)。さらに全球的な全鉄の排出量を見積もった結果、 $1.4-3.4 \text{ FeTg/yr}$ という値が得られた。これは個別の排出量の積み上げによるボトムアップ的手法ではなく、大気中の観測を束縛条件としたトップダウン的な手法による初めての見積もりとなる。これらの結果は、人為的酸化鉄のグローバルな放射強制力の推定のために、サブテーマ5(名古屋大学)に提供された。

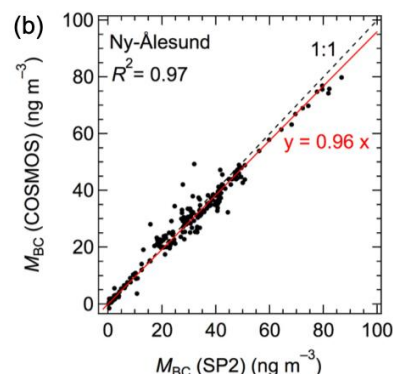


図4.1.1. ニーオルスンで実施されたCOSMOSとSP2のBC質量濃度の同時観測の比較結果。1時間値を示している。(Ohata et al., 2019)

本研究ではさらに、私たちがこれまでにアジアおよび北極域で実施した5つの地上観測および3つの航空機観測で取得したデータを統一したプロトコルに基づいて再解析した。この結果、全検出FeO_x粒子のうち人為起源と推定されるものが8割以上を占めていた。北極域でのFeO_xの平均質量濃度は、東アジア（大陸下流域および都市部）での濃度の1/10～1/60程度であった（図4.1.12., Yoshida et al., submitted）。一方、FeO_x/BCの質量比は0.2～0.6程度であり、人為起源FeO_xが少なからぬ量で対流圏広域に普遍的に存在していることが初めて明らかになった。

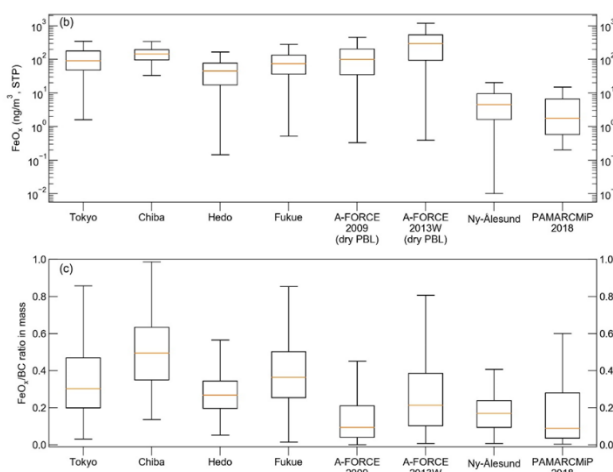


図4.1.12. (上) 大気中の人為起源酸化鉄 (FeO_x) の質量濃度。 (下) 同時観測されたBCとの質量比率。(Yoshida et al., submitted)

(2) エアロゾル化学組成と動態評価

● エアロゾル化学組成の動態

サブテーマ3（気象研）と共同で実施した福岡でのエアロゾルの粒径分布の測定により、直径20～40nmの超微小エアロゾルの個数濃度の増減が観測された。これらの濃度変動は、風向風速やCOおよびオゾンの濃度変動と対応していた。産業総合研究所がアセロメータで測定したBC濃度も超微小エアロゾルやCOと同じような濃度変動をしていた。これらの総合的な解析から、風速が弱い時には大気中BCが蓄積し相対的に高濃度になっていた可能性が示された。さらにHYSPLITモデルによる福岡を起点とした後方流跡線解析から、時期により福岡の都市起源の大気汚染と中国大陸北東部から朝鮮半島を経由して福岡に至る越境大気汚染の両方がBC濃度に影響していることが明らかになった。

サブテーマ1（東大）とサブテーマ3（気象研）と共同で実施した長崎県五島列島福江島における2019年4月の観測キャンペーンにおいて、エアロゾル質量分析計を用いたエアロゾル化学組成観測を行った。後方流跡線の計算結果によると、ローカルな影響が大きい時期と、韓国や中国大陸からの影響を受けていた時期があったことが分かった。特に大陸由来の大気汚染が飛来した時には、硝酸イオンが高濃度となるイベントや硫酸イオンと有機物の両方が高濃度となるイベントがあった。これらの観測結果は他のサブテーマでのBCや酸化鉄観測の結果の解釈や数値モデル計算の検証データとして活用された。

図4.2.8に私たちが7年間にわたりエアロゾル質量分析計を用いて長崎福江島で観測した微小エアロゾルの化学組成割合を示す。この図から2012年から2019年にかけて、硝酸イオン濃度の割合が高くなってきていることがわかる。中国では2017年をめぐり、中国の主要都市のPM2.5を削減する目標をたて実行されてきた。実際に、福江島でのライダー観測でも微小球形粒子は2006年以降減少傾向にあり、日本国内のPM2.5の環境基準達成率も80%を超えた。これらを勘案すると、中国でのPM2.5削減はかなりの程度すすんでおり、その結果従来の石炭燃焼などによる二酸化硫黄の発生が減り（硫酸エアロゾルの減少）、相対的に自動車など石油燃焼起源の窒素酸化物の排出が増えた（硝酸エアロゾルの増加）ものと思われる。これらの知見は、BCや酸化鉄のみならず、人為起源エアロゾルの放射影響を総合的に評価する上での科学的な基盤となる知見である。

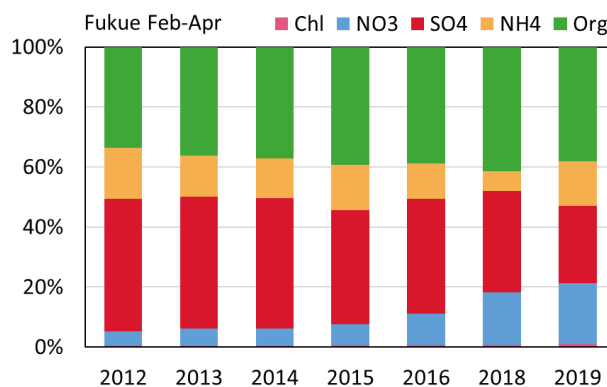


図4.2.8. 福江島でエアロゾル質量分析計により観測された微小エアロゾルの化学組成割合

● エアロゾルの放射効果

サブテーマ1（東大）とサブテーマ3（気象研）と共同で実施した2019年4月の福江島での観測では、AERONET放射計とSKYNET放射計観測を比較した。エアロゾルの光学的厚み（AOD）は、AERONETとSKYNETとは良く一致していた。一方、光吸収エアロゾルの光学的厚み（AAOD）と単一散乱アルベド（SSA）の値はSKYNETでの吸収が大きく見積もられ、2つの観測で相関がほとんど見られなかった。放射観測のAAODやSSAは、地上でのBC質量濃度との対応もあまり見られなかった。このようにBCによる光吸収については、中緯度地域においても不確定性が大きいと見られ、今後不確定性を減らすための、観測精度向上が必要であることが確認された。

（3）エアロゾル組成分析と気候モデルによる評価

● エアロゾルの電子顕微鏡分析

本研究では、北極域および東アジアでのブラックカーボン及びダスト粒子の動態を理解するため、北極（グリーンランドおよびニーオルスン）、福岡、福江島で観測を行い、透過型電子顕微鏡を用いた個別粒子分析を行った。電子顕微鏡を用いた測定では、組成と形態分析から本研究の対象である酸化鉄（FeOx）粒子とブラックカーボン（BC）の分離・特定が可能であり、他のサブテーマと共同しながら粒子の混合状態や存在量の把握を行った。その結果、中国からの越境汚染を含む東アジアのエアロゾル試料では、多くのBCが硫酸塩等と内部混合していることが明らかとなった。また酸化鉄粒子もナノ粒子の凝集体として存在することが分かった。また北極の上空では、人為由来である凝集酸化鉄が個数濃度で最大3%見付き、これらの粒子が極域においても放射などに重要な役割を果たしている可能性を示唆した。これらの当初の計画に沿った成果に加えて、北極の気候にも大いに寄与する森林火災由来の光吸収性粒子の生成メカニズムの解明（Adachi et al., 2019）や、北極での氷河ダスト由来の氷晶核形成メカニズムの解明（Tobo et al., 2019）などの成果もあった。これらの観測成果は、北極での気候変動の理解に貢献する発見であり、今後の気候変動予測をするうえで重要な要素となることが予測される。

● 気候モデルによる評価

近年を対象としたモデル計算結果と観測結果を比較したところ、従来のモデル計算では、北極域で観測された大気中ブラックカーボン濃度を過小評価し季節変化を再現できなかったのに対し、私たちが開発したパラメタリゼーションを取り入れたMRI-ESM2計算では、北極域でのブラックカーボン濃度の季節変化の再現性が大きく向上した。MRI-ESM2による産業革命前から現在までの歴史実験計算結果とグリーンランドにおけるアイスコア観測により得られたブラックカーボン濃度との比較をしたところ、CMIP6排出量を用いた歴史実験計算は20世紀前半の濃度増大を再現できなかったが、その他の期間については再現性を確認することができた。

産業革命前から現在までの北極域におけるブラックカーボンの沈着量と大気上端におけるブラックカーボンの瞬時放射強制力は、1950年頃から増大をはじめ、1980年頃に最大であった。2000年以降においても、北極域でのブラックカーボンの瞬時放射強制力は増加傾向を示しており、2010-2014年平均値で 0.17 W m^{-2} と推定された。またMRI-ESM2では、従来の気候

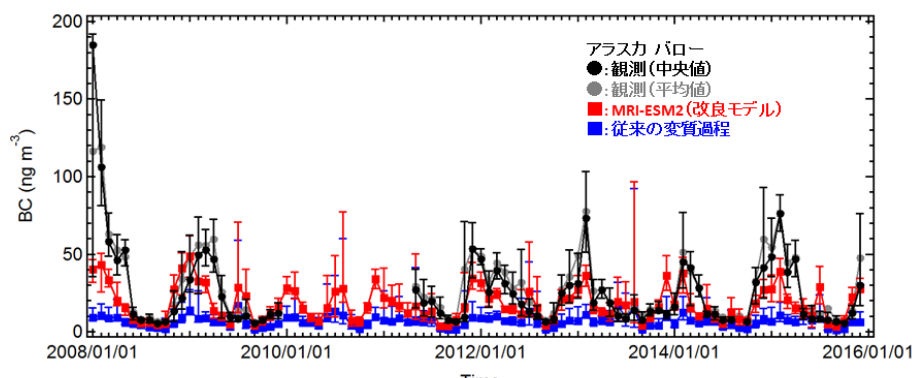


図4.3.7. 米国アラスカ・バローにおけるBC質量濃度の観測とモデル計算結果の比較。観測は各月における中央値と25-75パーセンタイルと平均値を示す。モデル結果は、私たちが開発したパラメタリゼーションの計算結果（赤色）と従来の計算結果（青色）の各月における中央値と25-75パーセンタイルを示す。

モデルと比べて、産業革命前から現在までの全球平均の地上気温変化の再現性が向上した。これらの結果は、気候モデルによる北極域におけるブラックカーボンの気候影響評価を今後も継続して実施する必要性があることを示唆している。

(4) アイスコア・積雪分析と氷晶核特性評価

● 北極における降雪中BCの観測と積雪中BCの広域分布

本研究では北極域ニーオルスンにおいて降雪中のBC量を測定し、周辺の積雪中BC濃度と比較した (Sinha et al., 2018)。水換算された単位体積の降雪中のBCの質量濃度は、降雪中および2か所の積雪中とで10-16%で一致した。このことは、積雪中のBC量は降雪に伴うBCの沈着により説明できることを示唆しており、降水によらない乾性沈着の寄与が小さいことを示している。また積雪中BC量が降雪中BC量により説明できる事実は、雪氷アルベドを低下させる原因となるBCが、どの降雪イベントによりもたらされたのか同定可能であることを示している。本研究は、数値モデルの新たな検証材料を提供するとともに、検証された数値モデルにより雪氷アルベド低下に対する発生源寄与推定への道筋を示すことができた。

2012-2016年の間に北極の広域で採取された積雪中のBC濃度をレーザー誘起白熱法 (SP2) により定量した。その結果、積雪中BC濃度は南シベリアやフィンランドで濃度が高く、グリーンランドやスピッツベルゲン島で低濃度となっていることが明らかとなった (Mori et al., 2020)。これらの濃度分布は、BC発生源からの距離や、大気中での輸送や標高に応じた降水による雪氷面への沈着過程を反映したものと考えられる。また北極評議会の関連作業部会のレポートなどで広く参照されている先行研究の値は、本研究での値に比べ13倍程度高いという結果となった。この先行研究で使用されている手法では、試料中に共存する土壌粒子の影響によりBC濃度を過大評価されている可能性がある。本研究は、本研究で得られた値により数値モデルの検証などをやり直す必要があることを示している。

● アイスコア分析によるBCの長期変化

本研究では、私たちが開発してきたアイスコア連続融解分析装置とSP2測定器を組み合わせた世界初の分析システムにより、従来にない高精度のBCデータを高時間分解能で取得した。さらにBCの粒径分布とその時間変動を世界で初めて明らかにした。BCの質量濃度は19世紀後半から上昇し始め、1920~1930年代に最大となり、その後、減少傾向を示した。濃度増加が始まる以前は夏に濃度のピークがあったが、濃度が高くなる時代にはピークを示す季節が冬~春にシフトしていた。濃度の増加は、人為起源のBCによるものと考えられ、人為起源BCの影響が見られる以前の時代は、BCの起源は森林火災等のバイオマス・バーニングによるものと推定される。またSP2測定器で取得したデータから酸化鉄濃度を抽出する解析手法をサブテーマ1 (東京大学) と連携して開発した。その結果、グリーンランド氷床に堆積した酸化鉄の多くは鉱物ダストであることが示唆された。

● BCおよび酸化鉄粒子の氷晶核特性

国立極地研究所が開発したオリジナルの実験系を用いてBC、酸化鉄、ダストの氷晶核特性を調べたところ、正の放射強制力を有する人為起源のBCや酸化鉄は、約 -20°C 以下にまで気温が下がると氷晶核としてある程度機能するものの、ダストに比べると氷晶核としてはあまり有効ではないことがわかった。その一方で高緯度起源のダストは、低~中緯度から発生するダストと比べて非常に高い氷晶核特性を示

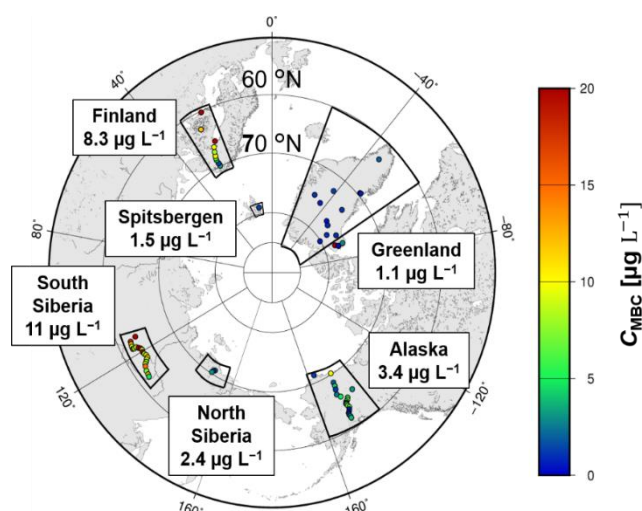


図4.4.4. 積雪中BC濃度測定のために積雪を採取した場所。採取地点を示した丸印の色は、積雪中BC濃度を示す。また各領域での濃度の中央値を示した。(Mori et al., 2020)

すことがわかった。夏と初春にニーオルスンで得られた氷晶核として働くエアロゾル粒子の数濃度を測定したところ、初春の値は北極域の海洋大気内での測定値と同程度であったが、夏の値は約一桁高い値となっていた (Tobo et al., 2019)。エアロゾル試料の電子顕微鏡観察や数値モデルシミュレーションの結果などから、夏季の氷晶核濃度の増加は、北極陸域から発生する氷晶核特性の極めて高いダストの影響によって生じていた可能性が高いことが示唆された。

(5) 数値モデルによる発生源寄与評価

● 全球エアロゾルモデルCAM5-chem/ATRAS2の開発・計算・検証

全球エアロゾルモデルCAM5-chem/ATRAS2の計算結果を様々な地上・航空機・衛星観測と比較し、モデル計算がこれらのエアロゾルの観測結果を良く再現できることを示した (Matsui, 2017; Matsui and Mahowald, 2017)。特にBCや有機エアロゾルの質量濃度、エアロゾル数濃度、光学的厚みについて、従来モデルよりも観測とより良く一致することを示した。またBC混合状態を解像すると、解像しない場合と比べて極域のBC質量濃度が40-200%も増大することを示した。この結果は、BCの混合状態を解像することが、発生源 (主に中緯度域) から極域へのBCの輸送量を決める上で重要な役割を果たしていることを示している。また、極域におけるBCの雪氷面への沈着による雪氷アルベド低下の推定においても、BC混合状態の解像が重要であることを示唆している。

● BCの全球放射強制力

CAM5-chem/ATRAS2モデルを用い、BCの全球での直接効果を 0.24 W m^{-2} と推定した。北極域 (70度以北) での直接効果は 0.11 W m^{-2} と推定した。またエアロゾルが放出される際の粒径分布の不確実性が、BCの直接効果の推定に大きな影響を及ぼすことを明らかにし、そのメカニズムを解明した (Matsui et al., 2018a)。BC直接効果の放出粒径に対する感度は、BC混合状態を解像することによって約7倍も増大し、それによってBC直接効果は2倍以上の不確実幅を持つことがわかった。このメカニズムによるBCの放射強制力の不確実性は、これまで認識されてこなかったものであり、今後は他の気候モデルでも考慮が必要であるとともに、観測によって放出粒径や混合状態の不確実性を減らしていくことが必要である。また将来のBC削減対策や温暖化対策を評価する際にも、このメカニズムの理解が重要であることを示した。

● 北極BCの発生源寄与

開発したタグモデルを用い、北極域 (70度以北) におけるBCの地表質量濃度、大気中量、沈着量、直接効果について、各領域の発生源の寄与を推定した。その結果、地表BC濃度の発生源寄与には明瞭な季節変動がみられ、冬季はロシアやヨーロッパの人為起源の寄与が8-9割程度占めるのに対し、夏季はロシアやアラスカのバイオマス燃焼の寄与が大きいと推定された。大気中量と直接効果の発生源寄与では、地表濃度と比べて遠方 (中緯度) の寄与が大きくなる結果が得られた。アジアからの寄与は、北極域の地表付近のBC濃度に対しては年平均で3%しかないのに対し、大気中量と直接放射強制力はそれぞれ30%、31%と推定され (図4.5.1.)、北極域の大気加熱に大きな寄与を持つ可能性がある。沈着量に対するアジアからの寄与は年平均で10%と推定された。発生源寄与の領域分布をみると、北極域内でも場所によって

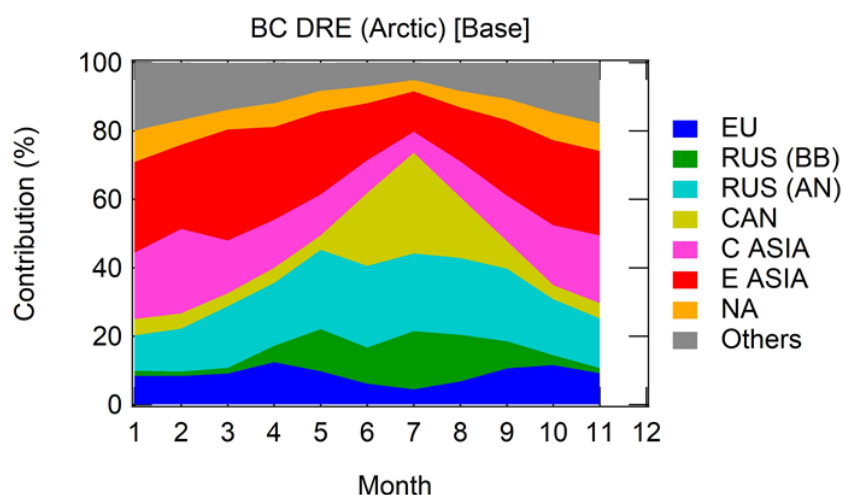


図4.5.6. 北極域 (70度以北) のBCの直接放射強制力に対する発生源寄与。EU (ヨーロッパ)、RUS (ロシア)、CAN (カナダ)、C ASIA (中央アジア)、E ASIA (東アジア)、NA (北アメリカ)、Others (その他) の寄与を示し、ロシアは人為起源 (AN、化石燃料燃焼+バイオ燃料) とバイオマス燃焼 (BB) に分類した。

寄与が大きい起源が異なることもわかった。これらの結果は、北極域におけるBCの気候影響評価においては、地表付近のBC濃度だけでなく、その鉛直構造を精度よく理解するとともに、多点におけるBC観測を継続的に行い、その時空間変動の要因を明らかにしていくことが重要であることを示している。

● 人為起源酸化鉄の気候影響評価

サブテーマ1（東京大学）の黒色酸化鉄の大気中濃度の観測結果をCAM5-chem/ATRAS2に導入し、人為起源鉄の全球排出量と大気中濃度が従来研究の見積りのそれぞれ約5倍、約8倍になることを明らかにした（Matsui et al, 2018b）。また、このモデル計算を用い、海洋の一次生産が鉄律速であると考えられている南大洋域において、1) 溶存鉄の全沈着量（全起源の総量）が、従来の見積りより約50%増大すること、2) 溶存鉄の全沈着量に対する人為起源鉄の寄与が、鉱物性ダストに含まれる鉄や森林火災由来の鉄の寄与よりも大きくなり得ること、3) 産業革命前から現在までの溶存鉄の沈着量の増大に対する人為起源の鉄の寄与が、南大洋の7割を超える海域で鉱物性ダスト起源の鉄の寄与を上回ること、を示した。さらに、黒色酸化鉄の大気および雪氷面における加熱効果の全球評価を世界で初めて行い、他の光吸収性エアロゾル（BC、ブラウンカーボン）に対して、無視できない加熱効果を持つことを明らかにした（全球平均では 0.021 W m^{-2} ）。特にアジア域においては、 0.22 W m^{-2} と推定され、世界的にも注目されているブラウンカーボンと同程度、もしくはそれ以上の大気・雪氷面加熱効果を持つと推定された。

5. 本研究により得られた主な成果

（1）科学的意義

● 北極およびグローバルなBCの動態と放射影響

本研究では北極の代表的な観測点において、日本で開発された高精度BC測定器COSMOSにより大気中のBC濃度を測定し、先行研究の値は過大推定であった可能性を示した。この研究成果は北極のエアロゾル研究コミュニティに対して大きなインパクトを与え、現在、これまでの米国とノルウェーに加え、ロシア、カナダ、フィンランドの研究機関と北極域においてCOSMOSを使ったBC観測の相互比較を開始するに至っている。本研究ではまた北極の広域における積雪中のBC濃度を明らかにした。そして北極評議会の関連作業部会のレポートなどで広く参照されている先行研究の値は、10倍以上も過大評価されている可能性を示した。

本研究ではBCの混合状態を解像する新しいエアロゾルモデルの開発などにより、北極および全球のBC濃度のモデル再現性を向上させた。そして北極BCの直接放射強制力などに対するアジアの人為的発生源などの寄与を評価した。また将来の温暖化対策の評価において、排出時のBC粒径分布が重要であることを指摘した。このように本研究では、数値モデルによるBC濃度の時空間変動の再現性の向上を通じて、北極域や全球でのBCの放射影響を定量的に評価することが可能となった。

● 酸化鉄粒子（FeO_x）の動態と人為起源発生源の評価

本研究では私たちがこれまでにアジアおよび北極域で実施した5つの地上観測および3つの航空機観測に基づき、全検出FeO_x粒子のうち8割以上が人為起源であることを示した。またFeO_xは質量比でBCの2~8割程度であり、人為起源FeO_xが少なからぬ量で対流圏広域に普遍的に存在していることを示した。また人為的なFeO_xの発生源として製鉄所よりも自動車の方が重要であることを示した。さらに中国からの汚染大気観測に基づき、中国および全球での人為的酸化鉄および全鉄の排出量をトップダウン的な手法により推定した。

観測に基づく排出量推計を用い、世界で初めてとなる人為的酸化鉄の全球放射強制力を指定した。アジア域においては、世界的にも注目されているブラウンカーボンと同程度の直接放射強制力をもつ可能性が示された。さらに海洋への二酸化炭素吸収で重要とされる海洋への鉄供給の観点からも人為的酸化鉄が重要な役割を果たしている可能性を示した。すなわち人為的なFeO_xは、放射強制力という短期的気候影響と、海洋への鉄供給という長期的な気候影響の2つの側面があることを明らかにした。

● 過去150年間のBCとFeO_xの影響評価

グリーンランドのアイスコアから、産業革命以後のBCの時間変動を従来よりも高精度・高時間分解

能で復元した。また世界で初めてBCの粒径の長期変動を明らかにした。数値モデル計算とこれらの復元データとの比較から、CMIP5およびCMIP6のエミッション・インベントリーはともに長期的なBC変動を説明できない可能性を示した。

(2) 環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

総合海洋政策本部参与会議意見書では、北極政策プロジェクトチーム (PT) 報告書に基づき、BC測定器COSMOSの標準器化を目指すことが明記されている。すなわち本研究の成果等に基づき、COSMOSの標準器化を政府目標に掲げることとなった。

<行政が活用することが見込まれる成果>

現在、北極評議会 (Arctic Council) におけるAMAP (Arctic Monitoring and Assessment Program) Short-lived Climate Forcers Expert Group (短寿命気候汚染物質の専門家グループ; SLCF EG) により、BCの排出削減による北極温暖化への効果を評価する報告書が準備されつつある。この委員会では、本研究で実施された大気中および積雪中BCの高精度観測や、国際的な観測ネットワークの構築が、高く評価されている。このような評価に基づき、本推進費からは小池、近藤、大島がこの報告書の執筆者として関わっており、すでにドラフトを提出している。この中では本研究で得られた成果も含まれている。また気象研究所地球システムモデルによる計算結果は、この評価報告書で使用されることが確定している。このように本研究で実施したBCの動態把握や気候影響評価は、日本の大きな国際貢献となっている。このAMAPの報告書は、北極評議会におけるExpert Group on Black Carbon and Methane (EGBCM) がBCの排出削減を進める上での科学的な根拠となっており、本研究の成果はBCの排出削減の施策にも貢献する。

IPCC の第6次報告書 (AR6) の短寿命気候汚染物質の気候影響評価においても、本研究の成果が貢献すると見込まれる。第6期結合モデル相互比較計画 (CMIP6) の枠組みで実施された気象研究所地球システムモデルによる計算結果は、IPCC評価報告書に対して直接的に貢献する予定である。また本研究で扱った人為起源の酸化鉄 (FeO_x) はこれまで見過ごされてきた温暖化物質であり、放射強制力因子として FeO_x が追加されることが期待される。本研究の FeO_x の全球放射強制力の推定は世界で初めてのものであり、重要な貢献と言える。

すべてのアセスメントの基本は正確な測定である。本研究で得られた成果は、政府が進めているEvidence-Based Policy Making (EBPM) に資する「科学と政策の連携の実現」へと発展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>

- 1) A. YOSHIDA, N. MOTOKI (責任著者), S. OHATA, T. MORI, M. KOIKE, Y. KONDO, H. MATSUI, N. OSHIMA, A. TAKAMI, K. KITA: Submitted to Journal of Geophysical Research: Atmospheres. (2020), Abundances and microphysical properties of light-absorbing iron oxide and black carbon aerosols over East Asia and the Arctic.
- 2) N. TAKEKAWA, T. SETO, N. MOTOKI, M. KOIKE, N. OSHIMA, K. ADACHI, K. KITA, A. TAKAMI and Y. KONDO: J. Geophys. Res. Atmos., 125, e2019JD031448 (2020), Enhanced New Particle Formation above the Marine 1 Boundary Layer over 2 the Yellow Sea: Potential Impacts on Cloud Condensation Nuclei.
- 3) T. MORI, S. OHATA, Y. MORINO, M. KOIKE, N. MOTOKI and Y. KONDO: Proceedings of the Japan Academy, Series B, Physical and Biological Sciences, 96(3): 122-129 (2020),

Changes in black carbon aerosols in Tokyo in 2003-2017.

- 4) N. MOTEKI: *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 243, 106811 (2020), Capabilities and limitations of the single-particle extinction and scattering method for estimating the complex refractive index and size-distribution of spherical and non-spherical submicron particles.
- 5) T. KINASE, K. ADACHI, N. OSHIMA, K. GOTO-AZUMA, Y. OGAWA-TSUKAGAWA, Y. KONDO, N. MOTEKI, S. OHATA, T. MORI, M. HAYASHI, K. HARA, H. KAWASHIMA and K. KITA: *Journal of Geophysical Research*, (125), e2019JD030737 (2020), Concentrations and size distributions of black carbon in the surface snow of eastern Antarctica in 2011.
- 6) T. S. CARTER, C. L. HEALD, J. L. JIMENEZ, P. CAMPUZANO-JOST, Y. KONDO, N. MOTEKI, ... & J. W. KAISER: *Atmospheric Chemistry & Physics*, 20(4), 2073-2097 (2020), How emissions uncertainty influences the distribution and radiative impacts of smoke from fires in North America.
- 7) N. MOTEKI, T. MORI, H. MATSUI and S. OHATA: *npj Clim. Atmos. Sci*, 2, 6 (2019), Observational constraint of in-cloud supersaturation for simulations of aerosol rainout in atmospheric models.
- 8) T. MORI, K. GOTO-AZUMA, Y. KONDO, Y. OGAWA-TSUKAGAWA, K. MIURA, M. HIRABAYASHI, N. OSHIMA, M. KOIKE, K. KUPIAINEN, N. MOTEKI, S. OHATA, , P. R. SINHA, K. SUGIURA, T. AOKI, M. SCHNEEBELI, K. STEFFEN, A. SATO, A. TSUSHIMA, V. MAKAROV, S. OMIYA, A. SUGIMOTO, S. TAKANO and N. NAGATSUKA: *J. Geophys. Res. Atmos.*, 124, 13,325-13,356 (2019), Black Carbon and Inorganic Aerosols in Arctic Snowpack.
- 9) M. KOIKE, J. UKITA, J. STRÖM, P. TUNVED, M. SHIOBARA, V. VITALE, A. LUPI, V. D. BAUMGARDNER, C. RITTER, O. HERMANSEN, K. YAMADA and C. PEDERSEN: *J. Geophys. Res. Atmos.*, 124, 1798-1822 (2019), Year - round in situ measurements of Arctic low - level clouds: Microphysical properties and their relationships with aerosols.
- 10) Y. TOBO, K. ADACHI, P. J. DEMOTT, T. C. J. HILL, D. S. HAMILTON, N. NAGATSUKA, J. UETAKE, Y. KONDO and M. KOIKE: *Nat. Geosci.*, 12, 253-258 (2019), Glacially sourced dust as a potentially significant source of ice nucleating particles.
- 11) S. OHATA, Y. KONDO, N. MOTEKI, T. MORI, A. YOSHIDA, P. R. SINHA and M. KOIKE: *Aerosol Sci. Technol.*, 53.9. 1079-1091 (2019) , Accuracy of black carbon measurements by a filter-based absorption photometer with a heated inlet.
- 12) N. HIRANUMA, K. ADACHI, D. M. BELL, F. BELOSI, H. BEYDOUN, B. BHADURI, H. BINGEMER, C. BUDKE, H-C. CLEMEN, F. CONEN, K.M. CORY, J. CURTIUS, P. J. DEMOTT, O. EPPERS, S. GRAWE, S. HARTMANN, N. HOFFMANN, K. HÖHLER, E. JANTSCH, A. KISELEV, T. KOOP, G. KULKARNI, A. MAYER, M. MURAKAMI, B. J. MURRAY, A. NICOSIA, M. D. PETERS, M. PIAZZA, M. POLEN, N. REICHER, Y. RUDICH, A. SAITO, G. SANTACHIARA, T. SCHIEBEL, G. P. SCHILL, J. SCHNEIDER, L. SEGEV, E. STOPELLI, R. C. SULLIVAN, K. SUSKI, M. SZAKÁLL, T. TAJIRI, H. TAYLOR, Y. TOBO, R. ULLRICH, D. WEBER, H. WEX, T. F. WHALE, C. L. WHITESIDE, K. YAMASHITA, A. ZELENYUK and O. MÖHLER: *Atmospheric Chemistry and Physics*, (19), 4823-4849 (2019), A comprehensive characterization of ice nucleation by three different types of cellulose particles immersed in water: lessons learned and future research directions.
- 13) M. KAJINO, M. DEUSHI, T. T. SEKIYAMA, N. OSHIMA, K. YUMIMOTO, T. Y. TANAKA, J. CHING, A. HASHIMOTO, T. YAMAMOTO, M. IKEGAMI, A. KAMADA, M. MIYASHITA, Y. INOMATA, S. SHIMA, K. ADACHI, Y. ZAIZEN, Y. IGARASHI, H. UEDA, T. MAKI and M. MIKAMI: *J. Meteor. Soc. Japan*, (97, 2), 337-374, doi:10.2151/jmsj.2019-020 (2019), NHM-Chem, the Japan Meteorological Agency' s Regional Meteorology - Chemistry Model: Model Evaluations

toward the Consistent Predictions of the Chemical, Physical, and Optical Properties of Aerosols.

- 14) J. CHING, K. ADACHI, Y. ZAIZEN, Y. IGARASHI and M. KAJINO: *npj Climate and Atmospheric Science*, (2), 22 (2019), Aerosol mixing state revealed by transmission electron microscopy pertaining to cloud formation and human airway deposition.
- 15) K. ADACHI, A. J. SEDLACEK, L. KLEINMAN, S. R. SPRINGSTON, J. WANG, D. CHAND, J. M. HUBBE, J. E. SHILLING, T. B. ONASCH, T. KINASE, K. SAKATA, Y. TAKAHASHI and R. R. BUSECK: *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 201900129 (2019), Spherical tarball particles form through rapid chemical and physical changes of organic matter in biomass-burning smoke.
- 16) S. YUKIMOTO, H. KAWAI, T. KOSHIRO, N. OSHIMA, K. YOSHIDA, S. URAKAWA, H. TSUJINO, M. DEUSHI, T. TANAKA, M. HOSAKA, S. YABU, H. YOSHIMURA, E. SHINDO, R. MIZUTA, A. OBATA, Y. ADACHI and M. ISHII: *J. Meteor. Soc. Japan*, (97, 5), 931-965 (2019), The Meteorological Research Institute Earth System Model Version 2.0, MRI-ESM2.0: Description and Basic Evaluation of the Physical Component.
- 17) H. KAWAI, S. YUKIMOTO, T. KOSHIRO, N. OSHIMA, T. TANAKA, H. YOSHIMURA and R. NAGASAWA: *Geosci. Model Dev.*, (12), 2875-2897 (2019), Significant improvement of cloud representation in the global climate model MRI-ESM2.
- 18) G. S. FANOUREGAKIS, M. KANAKIDOU, A. NENES, S. E. BAUER, T. BERGMAN, K. S. CARSLAW, A. GRINI, D. S. HAMILTON, J. S. JOHNSON, V. A. KARYDIS, A. KIRKEVÅG, J. K. KODROS, U. LOHMANN, G. LUO, R. MAKKONEN, H. MATSUI, D. NEUBAUER, J. R. PIERCE, J. SCHMALE, P. STIER, K. TSIGARIDIS, T. VAN NOIJE, H. WANG, D. WATSON-PARRIS, D. M. WESTERVELT, Y. YANG, M. YOSHIOKA, N. DASKALAKIS, S. DECESARI, M. GYSEL BEER, N. KALIVITIS, X. LIU, N. M. MAHOWALD, S. MYRIOKEFALITAKIS, R. SCHRÖDNER, M. SFAKIANAKI, A. P. TSIMPIDI, M. WU, and F. YU: *Atmos. Chem. Phys.*, 19, 8591-8617 (2019), Evaluation of global simulations of aerosol particle number and cloud condensation nuclei, and implications for cloud droplet formation.
- 19) C. DONG, H. MATSUI, S. SPAK, A. Kalafut-Pettibone, C. Stanier: *Aerosol Air Qual. Res.*, 19, 204-220 (2019), Impacts of new particle formation on short-term meteorology and air quality as determined by the NPF-explicit WRF-chem in the Midwestern United States.
- 20) A. YOSHIDA, S. OHATA, N. MOTEKI, K. ADACHI, T. MORI, M. KOIKE and A. TAKAMI: *J. Geophys. Res. Atmos.*, 123, 11194-11209. <https://doi.org/10.1029/2018JD028665> (2018), Abundance and emission flux of the anthropogenic iron oxide aerosols from the East Asian continental outflow.
- 21) K. LAMB, A. PERRING, B. SAMSET, D. PETERSON, S. DAVIS, B. ANDERSON, A. BEYERSDORF, D. BLAKE, P. CAMPUZANO-JOST, C. CORR, G. DISKIN, Y. KONDO, N. MOTEKI, B. NAULT, J. OH, M. PARK, S. PUSEDE, I. SIMPSON, K. THORNHILL, A. WISTHALER, J. SCHWARZ: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 123, 23, 13,527-13,548 (2018), Estimating Source Region Influences on Black Carbon Abundance, Microphysics, and Radiative Effect Observed over South Korea.
- 22) S. OHATA, A. YOSHIDA, N. MOTEKI, K. ADACHI, Y. TAKAHASHI, M. KURISU and M. KOIKE: *J. Geophys. Res. Atmos.*, 123, 8115-8134. <https://doi.org/10.1029/2018JD028363> (2018), Abundance of light-absorbing anthropogenic iron oxide aerosols in the urban atmosphere and their emission sources.
- 23) H. MATSUI, N. M. MAHOWALD, N. MOTEKI, D. S. HAMILTON, S. OHATA, A. YOSHIDA, M. KOIKE, R. A. SCANZA, M. G. FLANNER: *Nature Communications*, 9. DOI: 10.1038/s41467-018-03997-0 (2018), Anthropogenic combustion iron as a complex climate forcer.

- 24) P. R. SINHA, Y. KONDO, K. GOTO-AZUMA, Y. TSUKAGAWA, K. FUKUDA, M. KOIKE, S. OHATA, N. MOTEKI, T. MORI, N. OSHIMA, E. J. FØRLAND, M. IRWIN, J.-C. GALLET, and C. A. PEDERSEN: *J. Geophys. Res.*, doi: 10.1002/2017JD028027 (2018), Seasonal progression of the deposition of black carbon by snowfall at Ny-Ålesund, Spitsbergen.
- 25) K. ADACHI, A. J. SEDLACEK, L. KLEINMAN, D. CHAND, J. M. HUBBE and P. R. BUSECK: *Aerosol Science and Technology*, (52:1), 46-56, DOI: 10.1080/02786826.2017.1373181 (2018), Volume changes upon heating of aerosol particles from biomass burning using transmission electron microscopy.
- 26) A. J. SEDLACEK III, P. R. BUSECK, K. ADACHI, T. B. ONASCH, S. R. SPRINGSTON and L. KLEINMAN: *Atmospheric Chemistry and Physics*, (18), 11289-11301 (2018), Formation and evolution of Tar Balls from Northwestern US wildfires.
- 27) H. MATSUI, D. S. HAMILTON, and N. M. MAHOWALD: *Nat. Commun.* 9, 3446 (2018), Black carbon radiative effects highly sensitive to emitted particle size when resolving mixing-state diversity.
- 28) R. C. SULLIVAN, P. CRIPPA, H. MATSUI, L. R. LEUNG, C. ZHAO, A. THOTA, and S. C. PRYOR: *npj Clim. Atmos. Sci.*, 1, 9 (2018), New particle formation leads to cloud dimming.
- 29) M. WU, X. LIO, L. ZHANG, C. WU, Z. Lu, P.-L. MA, H. WANG, S. TILMES, N. MAHOWALD, H. MATSUI, and R. C. EASTER: *J. Adv. Model. Earth Syst.*, 10, 1150-1171 (2018), Impacts of aerosol dry deposition on black carbon spatial distributions and radiative effects in the Community Atmosphere Model CAM5.
- 30) P. R. SINHA, Y. KONDO, M. KOIKE, J. OGREN, A. JEFFERSON, T. BARRETT, R. SHEESLEY, S. OHATA, N. MOTEKI, H. COE, D. LIU, M. IRWIN, P. TUNVED, P. K. QUINN, and Y. ZHAO: *J. Geophys. Res.*, 122, doi:10.1002/2016JJD025843 (2017), Evaluation of ground-based black carbon measurements by filter-based photometers at two Arctic sites.
- 31) N. MOTEKI, K. ADACHI, S. OHATA, A. YOSHIDA, T. HARIGAYA, M. KOIKE, and Y. KONDO: *Nature Comm.*, 8, 15329 (2017), Anthropogenic iron oxide aerosols enhance atmospheric heating.
- 32) A. YOSHINO, A. TAKAMI, K. MISAWA, M. HAYASHI, K. HARA, C. NISHITA, N. KANEYASU, T. SETO, S. HATAKEYAMA: *Proceedings of the 20th International Conference on Nucleation and Atmospheric Aerosols*, PS1-36 (2017), Analysis of aerosol chemical composition measured at urban and rural sites in Japan.
- 33) K. YUMIMOTO, T. Y. TANAKA, N. OSHIMA and T. MAKI: *Geosci. Model Dev.*, (10), 3225-3253, <https://doi.org/10.5194/gmd-10-3225-2017> (2017), JRAero: the Japanese Reanalysis for Aerosol v1.0.
- 34) K. KAIHO and N. OSHIMA: *Scientific Reports*, (7), 14855, doi:10.1038/s41598-017-14199-x (2017), Site of asteroid impact changed the history of life on Earth: the low probability of mass extinction.
- 35) Y. KANAYA, H. MATSUI, F. TAKETANI, X. PAN, Y. KOMAZAKI, Z. WANG, L. CHANG, D. KANG, M. CHOI, S.-Y. KIM, C.-H. KANG, A. TAKAMI, H. TANIMOTO, K. IKEDA, and K. YAMAJI: *Aerosol Air Qual. Res.*, 17, 3091-3105 (2017), Observed and modeled mass concentrations of organic aerosols and PM_{2.5} at three remote sites around the East China Sea: Roles of chemical aging.
- 36) H. MATSUI, and N. MAHOWALD: *J. Adv. Model. Earth Syst.*, 9, 1887-1920 (2017), Development of a global aerosol model using a two-dimensional sectional method: 2. Evaluation and sensitivity simulations.
- 37) H. MATSUI: *J. Adv. Model. Earth Syst.*, 9, 1921-1947 (2017), Development of a global aerosol model using a two-dimensional sectional method: 1. Model design.

<査読付論文に準ずる成果発表>

- 1) 茂木信宏、森樹大、松井仁志、大畑祥、大気化学研究、日本大気化学会発行、第41号（2019）
「降水雲の過飽和度を観測から制約する：エアロゾル空間分布の予測のために」
- 2) 茂木信宏、Academist Journal、<https://academist-cf.com/journal/?p=10308>、アカデミスト株式会社発行（2019）
「“黒色炭素粒子”から「雨雲の過飽和度」を推定する！ - 気候変化の要因となるエアロゾル濃度の予測に向けた挑戦」

(2) 主な口頭発表（学会等）

- 1) N. MOTEKI: NOAA CSD Seminar, Boulder, CO, USA, 2020
“Material identification of small particles by forward-scattered wave sensing”
- 2) 森樹大、大畑祥、大島長、松井仁志、茂木信宏、近藤豊、小池真：エアロゾル・雲・降水の相互作用に関する研究集会（2020）
「BarrowにおけるBCの湿性沈着に関する研究」
- 3) 當房豊：2019年度エアロゾル・雲・降水の相互作用に関する研究集会（2020）
「【総説】北極域での雲凝結核・氷晶核の研究」
- 4) M. KOIKE, S. OHATA, A. YOSHIDA, N. MOTEKI and PAMARCMiP TEAM: Second data workshop for PAMARCMiP2018, AWI, Potsdam, Germany, 2019
“Cloud microphysical properties observed near the sea ice edge during the PAMARCMiP 2018 experiment”
- 5) S. OHATA, A. YOSHIDA, N. MOTEKI, K. ADACHI and M. KOIKE: Second data workshop for PAMARCMiP2018, AWI, Potsdam, Germany, 2019
“Vertical profile of BC microphysical properties observed during the PAMARCMiP 2018 experiment”
- 6) N. TAKEGAWA, T. SETO, N. MOTEKI, M. KOIKE, N. OSHIMA, K. ADACHI, K. KITA, A. TAKAMI and Y. KONDO: the 18th Asian Chemistry Congress, The Taipei International Convention Center, Taiwan, 2019
“Enhanced New Particle Formation above the Marine 1 Boundary Layer over the Yellow Sea: Potential Impacts on Cloud Condensation Nuclei”
- 7) K. GOTO-AZUMA, Y. OGAWA-TSUKAGAWA, Y. KONDO, R. DALLMAYER, M. HIRABAYASHI, J. OGATA, K. KITAMURA, K. KAWAMURA, H. MOTOYAMA, S. MATOBA, M. KADOTA, T. AOKI, N. MOTEKI, S. OHATA, T. MORI, M. KOIKE, Y. KOMURO, A. TSUSHIMA, N. NAGATSUKA, W. SHIGEYAMA, and K. FUJITA: AGU fall meeting, San Francisco, USA, 2019
“Variations of concentrations and sizes of black carbon particles in Northwest Greenland over the past 350 years.”
- 8) L. KARLAAON, R. KREJCI, M. KOIKE, K. EBELL, and P. ZIEGER: AGU fall meeting, San Francisco, USA, 2019
“Zeppelin Observatory on Svalbard”
- 9) K. ADACHI and T. KINASE: American Geophysical Union 2019 Fall Meeting, San Francisco, USA, 2019
“Single-particle analyses of aerosol particles using transmission electron microscopy and cold stages with an optical and scanning electron microscopes”
- 10) N. OSHIMA: AMAP short-lived climate forcers (SLCF) expert group meeting, Ann Arbor, USA, 2019
“Evaluation of Radiative Forcing using MRI Earth System Model”
- 11) 森樹大、近藤豊、P. R. SINHA、Y. ZHAO、小池真、B. ANDREWS、松井仁志、茂木信宏、大畑祥：

大気化学討論会 (2019)

「BarrowにおけるBC粒子の湿性沈着フラックスの季節変動」

- 12) 小池真、高橋暢宏、岩崎俊樹、伊藤健：大気化学討論会 (2019)
「航空機観測による気候・地球システム科学研究の推進：大型研究マスタープラン2020への提案」
- 13) 小池真、高橋暢宏、岩崎俊樹、伊藤健：日本雪氷学会・日本雪工学会共済 2019年雪氷研究大会 (2019)
「航空機観測による気候・地球システム科学研究の推進：大型研究マスタープラン2020への提案」
- 14) 東久美子、塚川佳美、近藤豊、ダルマイヤー・レミ、平林幹啓、尾形純、北村亨太郎、川村賢二、本山秀明、的場澄人、門田萌、青木輝夫、茂木信宏、大畑祥、森樹大、小池真、小室悠、對馬あかね、永塚尚子、繁山航、藤田耕史：雪氷研究大会 (2019)
「グリーンランド北西部における過去350年間のブラックカーボン及びダストの季節変化及び経年変化」
- 15) K. D. LAMB, H. MATSUI, D. FAHEY, J. KATICH, A. PERRING, R. SPACKMAN, M. THATCHER, B. WEINZIERL, and J. P. SCHWARZ: ATOM Science Team Meeting, 2019
“Global-scale constraints on light-absorbing anthropogenic combustion iron oxide aerosols.”
- 16) 松井仁志：グリーンランド南東ドーム (SE-Dome) アイスコアに関する研究集会 (2019)
「ブラックカーボンの発生源寄与とエアロゾルの間接効果」
- 17) 當房豊、植竹淳、松井仁志、宇治靖、岩本洋子、森樹大、三浦和彦、三隅良平：日本気象学会2019年度秋季大会 (2019)
「黄砂飛来時における東京スカイツリーでの氷晶核の観測：2017年5月の事例」
- 18) M. BURGOS, G. TITOS, E. ANDREWS, H. BIAN, V. BUCHARD, G. CURCI, A. KIRKEVÅG, H. MATSUI, C. RANGLES, K. ZHANG, G. MYHRE, T. VAN NOIJE, A. BENEDETTI, and P. ZIEGER: Aerocom meeting 2019, 2019
“Effect of water uptake on aerosol light scattering: comparison of a new in-situ benchmark dataset to nine global climate models.”
- 19) M. BURGOS, G. TITOS, E. ANDREWS, H. BIAN, V. BUCHARD, G. CURCI, A. KIRKEVÅG, H. MATSUI, C. RANGLES, K. ZHANG, and P. ZIEGER: European Meteorological Society Annual Meeting 2019, 2019
“Assessment on the differences between climate models and in-situ measurements of aerosol optical hygroscopic growth.”
- 20) M. BURGOS, G. TITOS, E. ANDREWS, H. BIAN, V. BUCHARD, G. CURCI, A. KIRKEVÅG, H. MATSUI, C. RANGLES, K. ZHANG, and P. ZIEGER: 2019 ARM/ASR PI meeting, 2019
“Evaluation and improvement of the parameterization of aerosol hygroscopicity in global climate models using in-situ surface measurements.”
- 21) Y. TOBO: 3rd PACES Open Science Meeting, Oslo, Norway, 2019
“High-latitude dust and its potential impact on atmospheric ice nucleation”
- 22) 當房豊：ニーオルスン新基地を利用した研究の新展開に関する研究集会 (2019)
「大気中のダスト・微生物とその雲微物理への影響」
- 23) 當房豊：2018年度エアロゾル・雲・降水の相互作用に関する研究集会 (2019)
「夏季のスヴァールバル諸島での氷晶核に関する調査研究」
- 24) 當房豊：ミニ研究集会「大気-海洋境界層における大気物質の役割」 (2019)
「北極圏の海洋および陸域の上空での氷晶核の調査研究」
- 25) 茂木信宏、小池真、大畑祥、近藤豊、竹川暢之、足立光司、大島長、松井仁志、北和之、森樹大、吉田淳：日本地球惑星科学連合2019年大会 (2019)
「航空機観測から解明された対流圏中の黒色炭素および酸化鉄エアロゾルの基本的動態」
- 26) T. MORI, K. GOTO-AZUMA, Y. KONDO, Y. OGAWA-TSUKAGAWA, K. MIURA, M.

- HIRABAYASHI, N. OSHIMA, M. KOIKE, K. KUPIAINEN, N. MOTTEKI, S. OHATA, S. PUNARAM, K. SUGIURA, T. AOKI, M. SCHNEEBELI, K. STEFFEN, A. SATO, A. TSUSHIMA, V. MAKAROV, S. OMIYA, A. SUGIMOTO, and S. TAKANO: 日本地球惑星科学連合大会2019年大会 (2019)
 “Black carbon and inorganic aerosols in snowpack over the Arctic.”
- 27) 小池真: 日本地球惑星科学連合大会2019年大会 (2019)
 「航空機観測による気候・地球システム科学研究の推進」
- 28) N. MOTTEKI: 日本地球惑星科学連合大会2019年大会 (2019)
 “The single-particle extinction and scattering method for online characterization of submicron particles: Principles and applications to aerosol research”
- 29) 大島長、田中泰宙、神代剛、出牛真、相澤拓郎、保坂征宏、川合秀明、行本誠史、飯塚芳徳、東久美子、青木輝夫: 日本地球惑星科学連合2019年大会 (2019)
 「気象研究所地球システムモデルによる過去再現実験での北極域のエアロゾルと気候変動」(招待講演)
- 30) 東久美子、塚川佳美、近藤豊、ダルマイヤー・レミ、平林幹啓、尾形純、北村亨太郎、川村賢二、本山秀明、的場澄人、門田萌、青木輝夫、茂木信宏、大畑祥、森樹大、小池真、小室悠、對馬あかね、永塚尚子、繁山航、藤田耕史: 日本地球惑星科学連合2019年大会 (2019)
 「グリーンランドにおける人為起源及び自然起源のブラックカーボンの濃度、粒径分布、季節変動の経年変化」
- 31) 小池真: エアロゾル・雲・降水の相互作用に関する研究集会、極地研 (2019)
 「直接観測による北極下層雲の微物理特性とエアロゾル影響評価」
- 32) 大畑祥、吉田淳、茂木信宏、足立光司、小池真: 「航空機観測による気候・地球システム科学研究の推進」研究集会、東京大学 (2018)
 「北極におけるエアロゾル・雲の航空機観測」
- 33) Y. KONDO, P. R. SINHA, K. GOTO-AZUMA, Y. OGAWA-TSUKAGAWA, M. KOIKE, S. OHATA, N. MOTTEKI, T. MORI, N. OSHIMA, E. J. FØRLAND, M. IRWIN, and C. PEDERSEN: ISAR 5, Tokyo, 2018
 “Seasonal progression of the deposition of black carbon by snowfall at Ny-Ålesund, Spitsbergen.”
- 34) K. GOTO-AZUMA, Y. OGAWA-TSUKAGAWA, Y. KONDO, R. DALLMAYR, M. HIRABAYASHI, J. OGATA, K. KITAMURA, K. KAWAMURA, H. MOTOYAMA, S. MATOBA, T. AOKI, N. MOTTEKI, S. OHATA, T. MORI, M. KOIKE, Y. KOMURO, A. TSUSHIMA, N. NAGATSUKA, W. SHIGEYAMA and K. FUJITA: The Ninth Symposium on Polar Science, National Institute of Polar Research, Tokyo, 2018
 “Concentrations and size distribution of black carbon in Northwest Greenland during the past 350 years reconstructed from an ice core.”
- 35) K. GOTO-AZUMA, Y. OGAWA-TSUKAGAWA, Y. KONDO, R. DALLMAYER, M. HIRABAYASHI, J. OGATA, K. KITAMURA, K. KAWAMURA, H. MOTOYAMA, S. MATOBA, M. KADOTA, T. AOKI, N. MOTTEKI, S. OHATA, T. MORI, M. KOIKE, Y. KOMURO, A. TSUSHIMA, and N. NAGATSUKA: ISAR 5, Tokyo, 2018
 “Variations of black carbon and dust in Northwest Greenland reconstructed by Continuous Flow Analysis of an ice core.”
- 36) Y. TOBO, K. ADACHI, N. NAGATSUKA, P. J. DEMOTT, T. C. J. HILL, S. OHATA, Y. KONDO, M. KOIKE: ISAR 5, Tokyo, 2018
 “Seasonal differences in the concentrations of ice nucleating particles on Mt. Zeppelin in Ny-Alesund, Svalbard: A case study in 2016/2017.”
- 37) T. MORI, K. GOTO-AZUMA, Y. KONDO, Y. OGAWA-TSUKAGAWA, K. MIURA, M. HIRABAYASHI, M. KOIKE, N. MOTTEKI, S. OHATA, N. OSHIMA, PUNARAM, K. SUGIURA, T. AOKI, M. SCHNEEBELI, K. STEFFEN, A. SATO, A. TSUSHIMA, V. MAKAROV, S. OMIYA, A. SUGIMOTO and S. TAKANO: The Ninth Symposium on Polar Science, National Institute of Polar Research, Tokyo, 2018

- “Black Carbon in Snowpack over the Different Regions in the Arctic”
- 38) M. KOIKE, S. OHATA, A. YOSHIDA, N. MOTTEKI and PAMARCMiP TEAM: Data meeting for PAMARCMiP2018, Universität Leipzig, Germany, 2018
 “in situ measurements of low-level Arctic clouds, Microphysical properties and vertical structures”
- 39) S. OHATA, A. YOSHIDA, N. MOTTEKI, K. ADACHI and M. KOIKE: Data meeting for PAMARCMiP2018, Universität Leipzig, Germany, 2018
 “Vertical profiles and surface concentrations of light-absorbing aerosols measured by SP2 and COSMOS”
- 40) N. OSHIMA and M. KOIKE: AMAP short-lived climate forcers (SLCF) expert group meeting, Helsinki, Finland, 2018
 “Modeling studies of black carbon using a MRI Earth System Model”
- 41) N. OSHIMA and M. KOIKE: AMAP short-lived climate forcers (SLCF) expert group meeting, Bologna, Italy, 2018
 “Evaluation of black carbon in the Arctic using a MRI Earth System Model”
- 42) K. ADACHI, T. KINASE, A. J. SEDLACEK III, L. KLEINMAN, S. R. SPRINGSTON, T. B. ONASCH and P. R. BUSECK: AGU Fall Meeting, Washington DC, USA, 2018
 “Formation and chemical properties of tar balls from biomass burning”
- 43) 大島長、田中泰宙、神代剛、保坂征宏、吉村裕正、出牛真、川合秀明、行本誠史、青木輝夫、飯塚芳徳、東久美子、近藤豊、小池真：日本気象学会2018年度秋季大会（2018）
 「気象研究所地球システムモデルによる北極域におけるブラックカーボンの評価」
- 44) 當房豊、茂木信宏、足立光司、大畑祥、吉田淳、近藤豊、小池真：日本気象学会2018年度秋季大会（2018）
 「黒い微粒子の氷核活性の評価」
- 45) T. MORI, K. GOTO-AZUMA, Y. KONDO, Y. OGAWA-TSUKAGAWA, K. MIURA, M. HIRABAYASHI, M. KOIKE, N. MOTTEKI, S. OHATA, N. OSHIMA, PUNA RAM, N. OSHIMA, K. SUGIURA, T. AOKI, M. SCHNEEBELI, K. STEFFEN, A. SATO, A. TSUSHIMA, V. MAKAROV, S. OMIYA, A. SUGIMOTO and S. TAKANO: 第15回IGAC/第14回iCACGP国際会議（2018）
 “Black Carbon in Snowpack over the Different Regions in the Arctic”
- 46) M. KOIKE, J. UKITA, J. STRÖM, P. TUNVED, M. SHIOBARA, V. VITALE, A. LUPI, V. D. BAUMGARDNER, C. RITTER, O. HERMANSEN, K. YAMADA and C. PEDERSEN: 第15回IGAC/第14回iCACGP国際会議（2018）
 “Year-round in situ measurements of Arctic low-level clouds: Microphysical properties and relationship with aerosols”
- 47) K. ADACHI, A. SEDLACEK, L. KLEINMAN, T. ONASCH, S. SPRINGSTON and P. BUSECK: joint 14th iCACGP Quadrennial Symposium and 15th IGAC Science Conference, Takamatsu, 2018
 “Formation and chemical processing of spherical organic aerosol particles, or “tar balls,” from biomass burning in the northwestern US”
- 48) N. OSHIMA, T. Y. TANAKA, T. KOSHIRO, H. YOSHIMURA, H. KAWAI, R. KUDO, M. DEUSHI, S. YUKIMOTO and M. KOIKE: joint 14th iCACGP Quadrennial Symposium and 15th IGAC Science Conference, Takamatsu, Japan, 2018
 “Development of the MRI-ESM2 and evaluations of spatial distributions and radiative effects of black carbon”
- 49) H. MATSUI, D. HAMILTON, N. MAHOWALD: joint 14th iCACGP Quadrennial Symposium and 15th IGAC Science Conference, Takamatsu, Japan, 2018
 “Impact of particle size and mixing state diversity on estimates of black carbon mitigation.”

- 50) 東久美子、塚川佳美、近藤豊、ダルマイヤー・レミ、平林幹啓、尾形純、北村亨太郎、川村賢二、本山秀明、的場澄人、門田萌、青木輝夫、茂木信宏、大畑祥、森樹大、小池真、小室悠紀、對馬あかね、永塚尚子、藤田耕史：雪氷学会（2018）
「グリーンランド北西部のアイスコアを用いたブラックカーボンの高時間分解能解析」
- 51) 森樹大、東久美子、近藤豊、塚川佳美、三浦和彦、平林幹啓、小池真、茂木信宏、大畑祥、P. R. Sinha、大島長、杉浦幸之助、青木輝夫、Martin Schneebeli、佐藤篤司、對馬あかね、V. MAKAROV、大宮哲、杉本敦子、鷹野真也：エアロゾル学会（2018）
「北極域における積雪中BCの粒径分布とBC堆積量の測定」
- 52) K. GOTO-AZUMA, Y. OGAWA-TSUKAGAWA, Y. KONDO, R. DALLMAY, M. HIRABAYASHI, J. OGATA, K. KITAMURA, H. MOTOYAMA, S. MATOBA, M. KADOTA, T. AOKI, N. MOTTEKI, S. OHATA, T. MORI, M. KOIKE, Y. KOMURO, A. TSUSHIMA, N. NAGATSUKA and K. FUJITA: Polar 2018, Davos, Switzerland, 2018
“High-resolution analyses of black carbon and dust in a Greenland ice core.”
- 53) 足立光司、木名瀬健、財前祐二、梶野瑞王、高見昭憲、吉野彩子：第35回エアロゾル科学・技術研究討論会（2018）
「金属粒子の形態と連続大気濃度分析 電子顕微鏡とICP-MS分析を用いた福岡での集中観測」
- 54) Y. TOBO, K. ADACHI, P. J. DEMOTT, T. C. J. HILL, D. S. HAMILTON, N. M. MAHOWALD, N. NAGATSUKA, S. OHATA, J. UETAKE, Y. KONDO, M. KOIKE, M. MAZZOLA and D. CAPPELLETTI: Ny-Ålesund Atmosphere Flagship open workshop, Potsdam, Germany, 2018
“Recent progress and perspectives in ice nucleation studies at Ny-Ålesund, Svalbard”
- 55) Y. TOBO, N. MOTTEKI, K. ADACHI, S. OHATA, A. YOSHIDA, M. KOIKE and Y. KONDO: 10th International Aerosol Conference, Saint Louis, MO, USA, 2018
“Evaluation of immersion freezing properties of dark-colored particles under mixed-phase cloud conditions”
- 56) 大島長、庭野匡思、青木輝夫、保坂征宏、田中泰宙、神代剛、吉村裕正、行本誠史、東久美子、近藤豊、小池真：日本気象学会2018年度春季大会（2018）
「気象研究所地球システムモデルによる北極域におけるブラックカーボンの放射影響評価」
- 57) N. OSHIMA and K. KAIHO: Asia Oceania Geosciences Society 15th Annual Meeting (AOGS2018), Honolulu, USA, 2018
“Global climate change driven by soot ejection following the asteroid impact as the cause of the extinction of the dinosaurs”（招待講演）
- 58) 大畑祥、吉田淳、茂木信宏、足立光司、小池真：日本地球惑星連合2018年大会（2018）
「北極におけるエアロゾル・雲の航空機観測」
- 59) 森樹大、三浦和彦、大畑祥、茂木信宏、小池真、近藤豊、中込和徳、吉川昌範、岩崎綾：日本地球惑星連合2018年大会（2018）
「東アジア下流域におけるブラックカーボン粒子の湿性沈着フラックスの季節変化」
- 60) Y. TOBO: JpGU Meeting 2018, Chiba, Japan, 2018
“Potential influence of aerosols on ice nucleation in mixed-phase clouds”
- 61) 松井仁志, D. S. Hamilton, N. Mahowald: 日本地球惑星科学連合2018年大会（2018）
「混合状態の多様性によるブラックカーボンの放射効果の不確定性」
- 62) 當房豊：2017年度 エアロゾル・雲・降水の相互作用に関する研究集会（2018）
「2017年度 エアロゾル・雲・降水の相互作用に関する研究集会」
- 63) 松井仁志：2018 年北大低温科学研究所 共同研究集会「現在気候下におけるグリーンランド氷床質量変動メカニズム解明」（2018）
「北極域のブラックカーボンの数値シミュレーション」
- 64) K. D. LAMB, J. KATICH, H. MATSUI, A. PERRING, R. SPACKMAN, M. THATCHER, B. WEINZIERL, and J. P. SCHWARZ: 2018 ATom Science Team Meeting, 2018

- “Expanding the role of the SP2: in situ measurements of atmospheric iron oxide concentrations.”
- 65) 松井仁志：大気雪氷物質交換研究会（2018）
「北極域のブラックカーボンの数値シミュレーション」
- 66) L. LEE, D. WATSON-PARRIS, J. MUELMENATAEDT, A. GETTELMAN, P. STIER, K. CARSLAW, D. OLIVIE, S. BAUER, K. TSIGARIDIS, M. SCHULZ, H. MATSUI, T. TAKEMURA, J. QUASS, Y. LEE: AeroCom/AeroSat 2018, 2018
“The AeroCom multi-model perturbed physics ensemble (MMPPE).”
- 67) H. MATSUI, D. HAMILTON, N. MAHHOWALD: AeroCom/AeroSat 2018, 2018
“Black carbon radiative effects highly sensitive to emitted particle size when resolving mixing-state diversity.”
- 68) C. DONG, R. BULLARD, A. SINGH, S. SPARK, H. MATSUI, C. STANIER: 10th International Aerosol Conference, 2018
“Physical and Model-Based Characterization of NPF Events and Sensitivity of CN and CCN to Changes in Anthropogenic Emissions in the Midwestern United States.”
- 69) H. MATSUI: Frontiers of Atmospheric Aerosol studies: Toward the Understanding of the Health and Climatic Effects, Nagoya, Japan, 2018
“Development of a global aerosol model using a two-dimensional sectional method.”
- 70) R. C. SULLIVAN, P. CRIPPA, H. MATSUI, R. LEUNG, C. ZHAO, A. THOTA, and S. C. PRYOR: American Meteorological Society 98th Annual Meeting, 2018
“Modeling the impact of new particle formation on regional cloud radiative forcing.”
- 71) Y. TOBO, K. ADACHI, N. NAGATSUKA, P. J. DEMOTT, T. C. J. HILL, S. OHATA, Y. KONDO and M. KOIKE: AGU fall meeting, New Orleans, USA, 2017
“Enhanced concentrations of ice nucleating particles in Svalbard during summer: Possible linkage with local dust emissions.”
- 72) S. OHATA, M. KOIKE, P. R. SINHA, N. MOTEKI, K. GOTO-AZUMA, Y. TSUKAGAWA, T. MORI, A. YOSHIDA, Y. TOBO, and Y. KONDO: The 8th symposium on polar science, National Institute of Polar Research, Tokyo, 2017
“Long term and intensive measurements of black carbon aerosols in the Arctic.”
- 73) Y. TOBO and K. MURATA: 8th Symposium on Polar Science, Tachikawa, Tokyo, Japan, 2017
“A novel and simple approach for measuring ice nucleating particles in the atmosphere”
- 74) T. MORI, N. MOTEKI, S. OHATA, M. KOIKE and Y. KONDO: 2017 Symposium on Atmospheric Chemistry & Physics at Mountain Sites (ACPM 2017), Gotemba, Japan, 2017
“Observational study on wet removal process of black carbon particles in Tokyo and Okinawa”
- 75) M. KOIKE, Y. KONDO, K. GOTO-AZUMA, Y. OGAWA-TSUKAGAWA, P. R. SINHA, S. OHATA, N. MOTEKI, N. OSHIMA and H. MATSUI: AC3 workshop; Arctic snow and sea ice properties and interactions with the atmosphere, Bremerhaven, Germany, 2017
“Black carbon in the Arctic: Observation and numerical model calculation.”
- 76) 吉田淳、大畑祥、茂木信宏、足立光司、森樹大、小池真、高見昭憲：大気化学討論会（2017）
「東アジア域における燃焼性酸化鉄エアロゾルの動態」
- 77) 當房豊、足立光司、P. J. DEMOTT, C. THOMAS, J. HILL、大畑祥、植竹淳、近藤豊、小池真：日本気象学会2017年度秋季大会（2017）
「スバル諸島・ニューオルスンでの氷晶核の計測：2016年7月の事例」
- 78) 大畑祥、茂木信宏、吉田淳、小池真、近藤豊：日本気象学会2017年度秋季大会（2017）
「東京都市大気における黒色酸化鉄の動態と発生源」

- 79) 當房豊、足立光司、植竹淳、T. C. J. HILL、 P. J. DEMOTT、小池真：第34回エアロゾル科学・技術研究討論会（2017）
「夏季のスバルバル諸島・ニーオルスンにおける氷晶核の計測」
- 80) 足立光司：第34回エアロゾル科学・技術研究討論会、東京（芝浦工業大学）（2017）
「大気中の酸化鉄凝集粒子」
- 81) Y. TOBO and M. KOIKE: JSPS Japan-Norway Symposium 'Past, Present, and Future of the Arctic and Antarctic', Bergen, Norway, 2017
“Challenges in understanding aerosol-cloud interactions in Svalbard”
- 82) A. YOSHIDA, N. MOTOKI, S. OHATA, K. ADACHI, T. MORI, M. KOIKE and A. TAKAMI: 日本地球惑星科学連合2017年大会（2017）
“Single-particle measurements of light-absorbing iron oxide aerosols and their radiative effects”
- 83) T. MORI, N. MOTOKI, S. OHATA, M. KOIKE and Y. KONDO: 日本地球惑星科学連合2017年大会, 2017
“Wet removal mechanisms of black carbon observed in Tokyo and Okinawa”
- 84) 大島長、田中泰宙、神代剛、吉村裕正、川合秀明、工藤玲、行本誠史、出牛真、小池真：日本地球惑星科学連合2017年大会（2017）
「気象研究所地球システムモデルによるブラックカーボンの空間分布と放射効果」
- 85) 足立光司、茂木 信宏、吉田 淳、大畑 祥：日本地球惑星科学連合2017年大会（2017）
「主要な金属大気エアロゾルとしてのナノ凝集体酸化鉄粒子」
- 86) 足立光司：日本地球惑星科学連合2017年大会（2017）
「バイオマス燃焼から生じたエアロゾル粒子の航空機観測」
- 87) 大島長、田中泰宙、神代剛、吉村裕正、川合秀明、工藤玲、行本誠史、出牛真、小池真：日本気象学会2017年度春季大会（2017）
「気象研究所地球システムモデルの開発とブラックカーボンの空間分布と放射効果の評価」
- 88) 松井仁志：日本気象学会2017年度春季大会（2017）
粒径分布と混合状態を解像した二次元ビン法を用いた全球エアロゾルモデルの開発
- 89) T. YAMANOUCI, T. TAKANO, M. SHIOBARA, H. OKAMOTO, M. KOIKE, J. UKITA: ASSW (Arctic Science Summit Week), Praha, Czech Republic, 2017
“Arctic Cloud Study at Ny-Ålesund, Svalbard in GRENE Arctic Climate Change Research Project”
- 90) 吉野彩子、高見昭憲、三澤健太郎、小島知子、原圭一郎、西田千春、林政彦、兼保直樹、畠山史郎、山本重一、鶴野伊津志：第58回大気環境学会年会（2017）
一般演題「福岡および熊本における大気中微小粒子状物質の化学成分の観測」
- 91) A. TAKAMI, A. YOSHINO: International Symposium on continuously improvement of air quality: science, technology and policy, 2017 annual meeting of Association of Atmospheric Environment, Chinese Society for Environmental Sciences, 2017
招待講演「Simultaneous measurements of aerosol chemical composition at three sites in Japan」
- 92) K. GOTO-AZUMA, Y. OGAWA-TSUKAGAWA, Y. KONDO, R. DALLMAYER, M. HIRABAYASHI, J. Ogata, K. Kitamura, K. Kawamura, H. MOTOYAMA, S. MATOBA, M. KADOTA, T. Aoki, N. MOTOKI, S. OHATA, T. MORI, M. KOIKE, Y. KOMURO, A. TSUSHIMA, and N. NAGATSUKA: EGU meeting, Vienna, Austria, 2017
“Variability of black carbon in Northwest Greenland during the past 350 years.”
- 93) Y. KONDO, P. R. SINHA, K. GOTO-AZUMA, Y. OGAWA-TSUKAGAWA M. KOIKE, S. OHATA, N. MOTOKI, T. MORI, N. OSHIMA, E. J. FØRLAND, M. IRWIN, and C. PEDERSEN: Open Science Workshop on

PACES, Victoria, Canada, 2017

“Seasonal progression of the deposition of black carbon by snowfall at Ny-Ålesund, Spitsbergen.”

- 94) Y. KANAYA, X. PAN, T. MIYAKAWA, Y. KOMAZAKI, F. TAKETANI, I. UNO, Y. KONDO, H. MATSUI, K. YAMAJI, C. ZHU, P. MORDOVSKOI, and M. TAKIGAWA: Open Science Workshop on PACES, Victoria, Canada, 2017

“Long-term observations of black carbon at Fukue Island, western Japan, since 2009: constraining emission strengths from East Asia and wet removal rates relevant to long-range transport.”

- 95) 平林幹啓、東久美子、REMI DALLMAYR、尾形純、塚川佳美、北村享太郎、川村賢二：日本分析化学会66年会、東京（2017）

「連続融解・分析装置による雪氷コアの分析」

- 96) C. DONG, H. MATSUI, S. N. SPAK, and C. STANIER: 36th AAAR annual conference (2017)
Impacts of new particle formation on short-term Midwestern meteorology and air quality as determined by the NPF-explicit WRF-chem.

7. 研究者略歴

研究代表者

小池 真

早稲田大学理工学部卒業、博士（理学）、現在、東京大学大学院理学系研究科准教授

研究分担者

1)-1 茂木 信宏

東京工業大学理学部卒業、博士（理学）、東京大学先端科学技術研究センター助教、現在東京大学大学院理学系研究科助教

1)-2 大畑 祥

東京大学理学部卒業、博士（理学）、現在、名古屋大学宇宙地球環境研究所助教

2) 高見 昭憲

京都大学工学部卒業、英国オックスフォード大学博士課程修了、博士（D.Phil）、現在国立環境研究所地域環境研究センター・センター長

3)-1 大島 長

東京大学理学部卒業、博士（理学）、現在、気象庁気象研究所全球大気海洋研究部第三研究室主任研究官

3)-2 足立 光司

神戸大学発達科学部卒業、博士（理学）、現在、気象庁気象研究所全球大気海洋研究部第三研究室主任研究官

4)-1 東 久美子

北海道大学工学部卒業、博士（工学）、北海道大学工学研究科応用物理学専攻博士課程修了、ニューヨーク州立大学バッファロー校地質学科研究員、防災科学技術研究所長岡雪氷防災研究所雪氷変動観測研究室長、現在、国立極地研究所教授

4)-2 當房 豊

福岡大学理学部卒業、博士（理学）、名古屋大学大学院環境学研究科博士前期課程修了、金沢大学大学院自然科学研究科博士後期課程修了、金沢大学フロンティアサイエンス機構博士研究員、コロラド州立大学リサーチサイエンティスト、現在、国立極地研究所助教

4)-3 近藤 豊

東京大学理学部卒業、東京大学大学院理学系研究科地球物理学専攻博士、名古屋大学教授、東京大学教授、現在、国立極地研究所特任教授及び東京大学名誉教授

5) 松井 仁志

東京大学理学部卒業、博士（理学）、現在、名古屋大学大学院環境学研究科准教授

II. 成果の詳細

II-1 BC・ダスト粒子観測と総合評価

国立大学法人東京大学

大学院理学系研究科

大学院理学系研究科

大学院理学系研究科

小池 真

茂木 信宏

大畑 祥 (平成29年4月～平成30年7月)

平成29年～令和元年度研究経費（累計額）：77,171千円（研究経費は間接経費を含む）

（平成29年度：28,308千円、平成30年度：23,805千円、令和元年度：25,058千円）

【要旨】

北極大気中および積雪中に存在するブラックカーボン・エアロゾル（BC）は、太陽放射の強い吸収により、北極温暖化に寄与している可能性がある。しかしながら、従来の北極域におけるBC観測には大きな不確実性があり、また数値モデル計算も北極で観測されるBCの季節変化の特徴を再現できないなどの問題があった。さらに近年、私たちの研究により大気中に少なからぬ量の人為的な酸化鉄が存在する可能性が指摘された。本研究では、高精度のBC観測によるBC動態把握、数値モデル計算の最大不確定要因である降水によるBC除去過程の定量化、そして人為的な酸化鉄の北半球全体の動態と発生源の理解を目指し、研究を進めた。

第一に高精度のBC観測によるBC動態把握では、私たちが開発してきたBC質量濃度測定器（COSMOS）を使ったBCの高精度の連続観測を、北極域の代表的な観測地点である諸国スピッツベルゲン諸島のニーオルスンおよび米国アラスカのバローの2地点で実施した。ニーオルスンにおいてCOSMOSと、独立な原理に基づく高精度のレーザー誘起白熱法（SP2）で測定されたBC質量濃度を比較したところ、両者は約10%で一致することが確認された。この結果は、本研究の北極でのCOSMOSによるBC観測の高い精度を改めて保証するものである。また先行研究では2-3倍程度も高い値も報告されており、今後は北極BCの動態理解のために、信頼性の検証されたCOSMOSの観測値が使用されることが期待される。本研究ではまた、2018年に実施された航空機観測によりBC濃度の立体的な構造も明らかにした。高い高度（5 km）では森林火災の影響が見られた一方、平均的には先行研究の値よりも低く、森林火災の年々変動が重要であることが示唆された。

第二に、BCのモデル計算の最大不確定要因とされる降水による除去過程の定量化においては、降水前の大気中BCの粒径分布と、降水中のBCの粒径分布との比較により、BC除去率を決める雲内での実効的な過飽和度を推定する手法を開発した。この手法をBCの発生源であるアジアにおいて適用し、実効的な過飽和度の観測平均値を得た。この数値を使い全球エアロゾルモデルで感度実験を実施したところ、従来のパラメタリゼーションと比較して北極域での冬季のBC濃度が10倍程度増大するなど、大きな感度があることが明らかになった。この結果は、北極、そして全球的なBC分布を推定する上で、降水による除去過程の重要性を改めて示すとともに、従来のパラメタリゼーションはエアロゾルの降水除去量を過大評価する可能性があることを示すものである。

第三に、人為的な酸化鉄の北半球全体の動態と発生源の理解では、私たちが開発してきたオンラインでの人為的な酸化鉄（FeO_x）の測定技術を用い、都市域（東京）から北極まで広域での観測を実施した。東京近傍での地上観測からは、大都市からの人為起源FeO_xの放出源として製鉄所はあまり重要ではなく、自動車などが重要である可能性を示した。またアジア大陸の人為的な排出源の影響を強く受ける沖

縄県辺戸岬での地上観測から、全球での人為的な鉄の排出量のトップダウン的な推計を初めて行った。本研究ではさらに、私たちがこれまでアジアや北極で行ってきた5回の地上観測と3回の航空機観測データの再解析により、その濃度、粒径分布、混合状態についての描像を示した。そして北極圏においても、人為的な FeO_x が少なからぬ量で存在していることを初めて明らかにしたこれらの観測結果に基づいてサブテーマ5では、全球的な酸化鉄の放射強制力の推定を行った。

[キーワード]

ブラックカーボン、酸化鉄、北極、グローバル、放射強制力

1. はじめに

産業革命から現在までの放射強制因子のうち、化石燃料やバイオマス燃焼に伴い発生する黒色の炭素性エアロゾルであるBCは、二酸化炭素とメタンに次いで全球平均で3番目に大きな正の放射強制力をもつと報告されている（IPCC 2013）。近年において急速に温暖化が進行している北極域においては、BCの雪氷面への沈着によるアルベド（反射率）の低下が、さらに温暖化を増幅させている可能性がある。日本もオブザーバー参加が許可された北極評議会においても、2015年に最初のBC等に関するアセスメント・レポートがまとめられ、北極温暖化抑制のためのBC排出量の削減が検討され始めている。

しかしながら、全球モデルによるBCの直接放射強制力の推定値には、数値モデルの表現や仮定に依存した大きな不確かさがある。特に北極域においては、ほとんどの全球モデルは観測されている冬季から春季にかけてのBC濃度の極大を過小評価しており、北極BC濃度の再現性の向上が全球のBC放射強制力の精度向上の鍵となっている（北極⇒グローバル）。一方において、北極大気中のBCは、アジアをはじめとする中高緯度の人為的発生源からも輸送されてきていると考えられており、北極BC濃度の再現性向上のためには、グローバルなBC輸送過程の表現の精緻化が必要とされている（グローバル⇒北極）。また、そもそも数値モデル検証に使用されている北極BCの観測値自体に、少なからぬ不確かさがあることも指摘されている。

BC以外の光吸収性エアロゾルとしては、黄砂などの鉱物ダスト粒子（酸化鉄）や有機炭素（茶色炭素）が知られている。近年の私たちの研究により、人為起源の黒色の酸化鉄（ FeO_x ）が対流圏中に高濃度で存在していることが東アジア上空における観測から明らかにされた（Moteki et al. 2017）¹⁾。人為起源の酸化鉄はこれまで全く見過ごされてきた大気中の正の放射強制力をもつエアロゾルであり、その動態は全く調べられておらず、その全球の放射強制力の推定も皆無である。人為起源の酸化鉄の全球や北極の温暖化への寄与について、観測・数値モデル研究を進めていく必要がある。

2. 研究開発目的

本研究の第一の目的は、先端的な観測や数値モデルにより北極圏のBCの動態を明らかにすることである。既存の北極圏のBC観測には大きな不確かさがあることが指摘されてきている。そこで本研究では、北極域の代表的な観測点において私たちが開発してきた高精度BC測定器COSMOSを用いて連続観測を実施するとともに、航空機からの高度分布観測を実施し、その濃度や微物理特性の動態を明らかにする。またその測定精度を、独立した測定技術に基づく他の観測との比較により評価する。さらに日本で開発されてきた詳細なエアロゾル数値モデルを検証・改良し、北極温暖化に関わるBCの放射効果を定量化する。

第二の目的は、もうひとつの光吸収エアロゾルである酸化鉄粒子（ FeO_x ）の動態と放射効果の評価である。私たちの研究により、アジアの大気中の酸化鉄は人為起源のものが支配的であり、これまで「見過ごされてきた地球温暖化物質」である可能性がある。本研究では私たちが開発してきた FeO_x の観測手法により、アジアと北極域での FeO_x の観測を実施し、その動態を明らかにする。東京近傍やアジア大陸の人為的排出源の影響を強く受ける下流域での地上観測から、アジアにおける典型的な FeO_x 濃度や粒径分布などの微物理特性を明らかとし、その発生源についても調べる。これらの知見に基づいて人為的な酸化鉄とその発生量を数値モデルに組み込むことにより、人為起源酸化鉄の動態とその放射効果を定量化する。

3. 研究開発方法

(1) 北極大気中のBCの動態評価

北極における大気中BC質量濃度の連続観測のほとんどは、フィルター捕集と光学測定を組み合わせた方法を用いている。私たちが開発してきたCOSMOSもこの測定原理に基づいている。しかしCOSMOSは従来のPSAP (particle soot absorption photometer; Radiance Research, Seattle, WA) やアセロメータ (Aethalometer; Magee Scientific, Berkeley, CA, USA) といった測定器と異なり、エアロゾルをフィルター上に捕集する前段で300°Cに加熱したステンレス管を通過させることにより、揮発性エアロゾル成分 (BCの被覆として、あるいはBCとは分離して存在する) の大部分を揮発させ除去している。PSAPやアセロメータは、これらの揮発性エアロゾル成分をBCと共に捕集してしまうため、それらのエアロゾルの光散乱の寄与を、別のエアロゾル測定データにより補正することが必要である。この方法では、BCによる光吸収量を (BC以外のエアロゾル成分の影響を受けずに) 精度良く測定できないことが問題である。さらに測定された光吸収量から、BCの質量濃度を得るために必要となるBCの質量吸収係数 (mass absorption cross section, MAC) も、レンズ効果などによりBCを被覆する成分などの影響を受ける。この結果、これまで $10-29 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$ とバラバラな値が用いられてきているが、この効果により生じるMACの変動の大きさの評価は原理的に困難である。COSMOSではこれらの他成分の影響をほとんど受けないため、アジアの都市域、アジア大陸の下流域、北極のどの場所でも一定のMACの値を使用することができる。またCOSMOS観測では、直径1ミクロン以上のエアロゾルを除去するPM1サイクロンも取り付けられているため、測定光源からの光を減衰させる不揮発性の土壌粒子・海塩粒子などの粗大粒子の影響も小さい。

本研究では、COSMOSによるBC質量濃度観測と、別の原理に基づいて高精度でBC観測が可能なSP2観測との比較を北極域のノルウェー領、スバルバル諸島のニーオルスンにおいて実施し、COSMOS観測の精度の検証を実施した (図3.1.1)。SP2は手間がかかり連続観測は困難であるため、集中観測を実施して比較を実施した。またCOSMOS観測を実施しているニーオルスンとアラスカのバローでは、これまで他の研究機関により長期的なBC観測が実施されてきているため、それらの観測結果との比較も実施した。これらはともに、体系的な北極域の観測拠点である。なお、これらの研究はサブテーマ4 (国立極地研究所) と連携して実施された。(降雪サンプルの分析については、サブテーマ4において積雪分析とともに記述)。



図3.1.1 私たちが開発してきたCOSMOSによる大気中BC質量濃度の連続観測を実施している観測拠点を示す地図

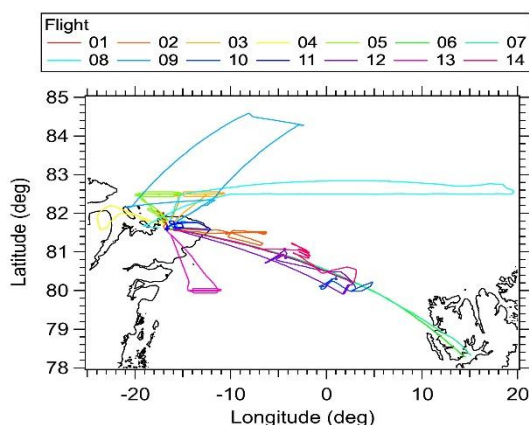


図3.1.2 PAMARCMiP2018航空機観測における観測飛行のフライトトラック

(2) 北極域航空機観測

本研究ではドイツのAlfred Wegener Institute (AWI)が中心となって2018年3-4月に実施した国際共

同による北極域での航空機観測（PAMARCMiP2018）に参加し、私たちはBCと酸化鉄の観測を担当した。航空機観測はグリーンランド北端のStation Nordを基地として実施され、また並行して地上観測も実施された（図3.1.2）。この観測キャンペーンでは北極大気中のBCの動態やその雪氷反射率（アルベド）影響の理解を研究目的のひとつとしているが、私たちは観測用航空機上でのBC観測を任された。そして結果的にすべてのフライトにおいて、単一粒子レーザー白熱法（SP2）によるBCと酸化鉄（FeOx）の高精度のデータの取得に成功した。本観測キャンペーンでは、サブテーマ3（気象研究所）の電子顕微鏡観察用エアロゾルサンプラーも搭載しており、サブテーマ1（東京大学）のオペレーションにより、すべてのフライトにおいてサンプルを取得した。

（3）観測に基づくエアロゾルモデルの改良とBC濃度変動

北極へ輸送されるBCを精度よく推定するためには、降水過程によるBCの除去（湿性沈着）の理解が重要な鍵となる。BCを含む直径 $0.1 \sim 2 \mu\text{m}$ のエアロゾルは、主に、湿潤対流において雲粒化を介し降水に取り込まれることで大気から除去されている。そのため、BCの空間分布と放射強制力を大気モデルで正しく算出するためには、大気からの除去率を大局的に決めている「エアロゾル粒子の臨界過飽和度」と「降水雲の過飽和度」という2つの物理量を、大気モデルの中で正しく算出または仮定できるようにすることが必要である。本研究では、先行研究がほとんどない降水雲の過飽和度を、観測から直接推定する手法（粒子トレーサー法）を初めて開発し、その手法を東アジア域の降水雲に適用した（図3.1.3）。観測された降水雲中の過飽和度の値を、サブテーマ5で開発された全球エアロゾル・モデル（ATRAS）のエアロゾル湿性除去過程パラメタゼーションに取り入れた感度実験により、BCなどのエアロゾルの全球分布予測性能の向上に貢献する可能性を調べた（Moteki et al. 2019）²⁾。

この研究の鍵となる過飽和度の推定法を図3.1.3.に示す。降水開始前に地上付近の大気に存在するBC（初期トレーサー）と、降水に含まれて雨雲から除去されたBC（除去トレーサー）の粒径分布を比較することで、トレーサー粒径ごとの相対除去効率を求める。同時に、降水開始直前の大気に存在したトレーサー含有粒子の臨界過飽和度分布を微物理・化学的なパラメータの観測から推算する。そしてトレーサー粒径ごとに、相対除去効率と臨界過飽和度分布を比較することで、各トレーサー粒径をもつエアロゾル粒子が雲粒化したときの過飽和度 SS_{1sd} を推定することができる。実際、本研究で観測した多くの降水イベントでのトレーサー除去効率の粒径依存性は、地上空気中のトレーサー含有粒子がある特定の SS_{1sd} 値を経験した場合の雲粒化割合の粒径依存性とよく一致していた（Moteki et al. 2019）²⁾。

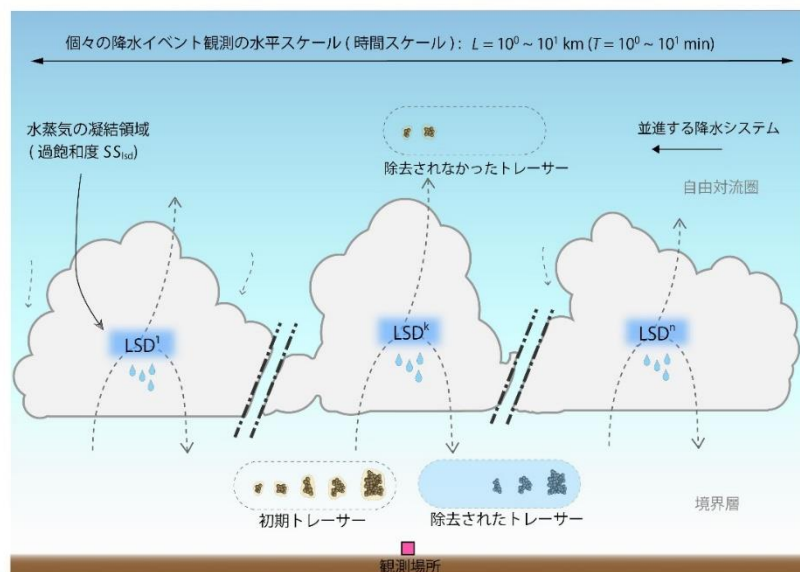


図3.1.3 黒色炭素粒子をトレーサーとした雨雲の過飽和度の推定法の模式図。地上で観測される空気中

と降水中のトレーサー粒子の詳細な対比により、除去されたトレーサー粒子が水蒸気の凝縮領域 (Localized Supersaturated Domain: LSD) で雲粒化したときの過飽和度 SS_{1sd} を推定することができる。本研究の観測手法では、降水システムにおいて降水中のトレーサー測定を実施することで、除去されたトレーサー粒子の濃度で重み付けされた過飽和度 SS_{1sd} の平均値を推定できる。

(4) 大気中の酸化鉄粒子の動態と発生源推定

本研究では私たちが前の環境研究総合推進費 (2-1403) から継続して開発してきた単一粒子レーザー白熱法の測定技術において、BCと酸化鉄を分離して定量化する測定・解析手法の改良を行った (図 3.1.4) (Yoshida et al., 2018)³⁾。この手法では、粒子から放出される白熱光の2つの検出波長帯の強度比 (color ratio) と白熱光強度信号を使って、BCとFeOxを精度よく判別できるようにした (図 3.1.5(左))。また一般に黄砂などの鉱物粒子 (自然起源粒子) では酸化鉄が他の非揮発性の成分と内部混合しているのに対し、人為起源酸化鉄は他の非揮発性成分とは内部混合していないことを利用して、自然起源と人為起源の酸化鉄粒子を分離する手法を開発した (図3.1.5(右))。

この新しく開発された測定手法・データ解析法を用いて、本研究では人為的な酸化鉄の放出量が大きいと期待される東京と千葉において観測を実施あるいは過去に取られたデータの再解析を実施した。東京の観測は自動車等が主なエアロゾル放出源と考えられる都市大気を観測するのに適した都心部 (東京大学本郷キャンパス: Tokyo) で実施し、また千葉の観測は南風時に製鉄所起源のエアロゾルを近距離で観測できる千葉市中央区 (千葉市役所: Chiba) で実施した。またより広域的なスケールにおけるアジアの人為的酸化鉄の動態を調べるために、沖縄県の辺戸岬で得られたデータの解析を実施した。この観測・解析に基づき、全球的な酸化鉄の排出量の推計も行った。

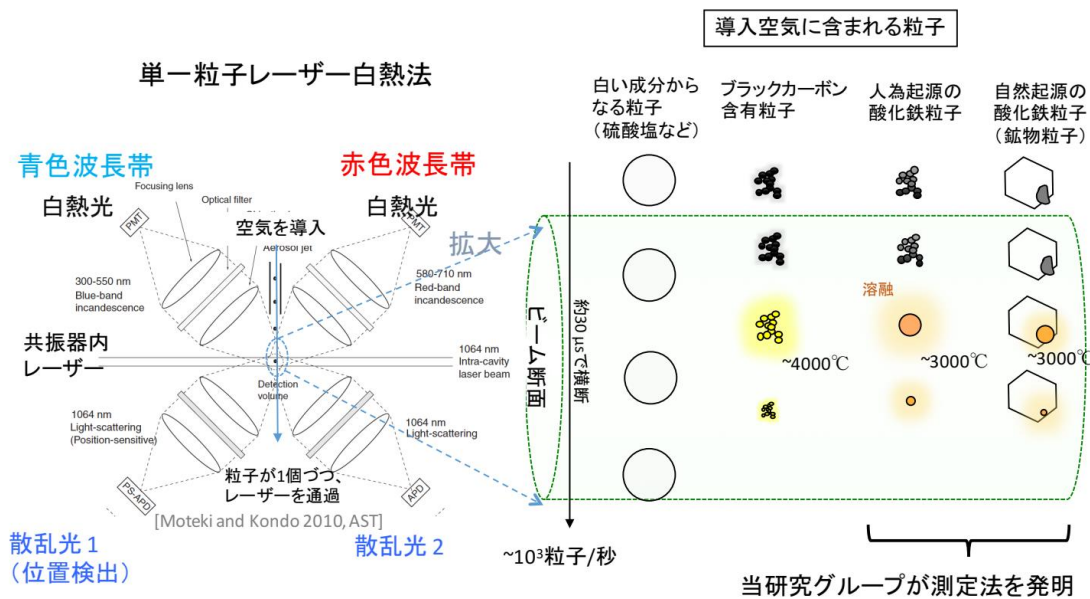


図3.1.4 単一粒子レーザー白熱法によるブラックカーボン粒子と酸化鉄粒子の測定法の模式図

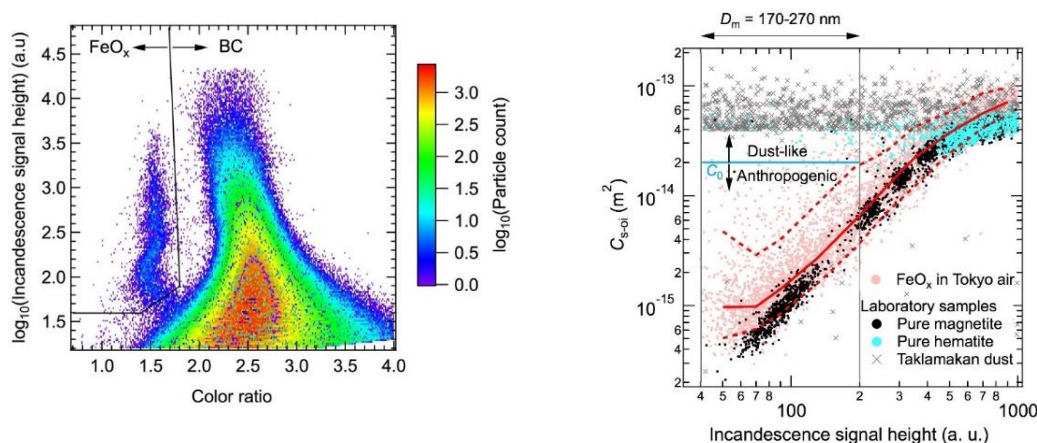


図3.1.5 改良後の単一粒子レーザー白熱法の検出信号にもとづくBC、FeOxの分類法
 (左) FeOxとBCの測定信号と分類境界、(右) 人為起源FeOxと鉱物性ダストFeOxの測定信号と分類境界
(5) 北半球全域での酸化鉄粒子の動態

本研究では、全球数値モデルの検証材料として広域にわたる実大気観測データを整備することを目的として、過去10年間（2009～2018年）に東アジアおよび北極地域で行われた5つの地上観測キャンペーンおよび3つの航空機観測キャンペーン（表3.1.1）で取得した単一粒子の白熱検出信号の生データを統一したデータ解析プロトコルに基づいて再解析して比較した。

表3.1.1 本研究で用いた8つの観測データセット。これらの観測のうち、FukueとPAMARCMiP 2018は本推進費2-1703の実施期間内に行った。AFORCE航空機観測のデータでは、高度2km以下でかつ湿性除去を経していない汚染空気塊のデータのみ用いた

Campaign	Location	Latitude	Longitude	Altitude (m)	Term	Reference
Tokyo ^a	Hongo, Tokyo	35.7° N	139.7° E	20	August - September 2014	Ohata et al. (2018) ⁵⁾
Chiba ^{a*}	Chiba	35.6° N	140.1° E	30	September 2016	Ohata et al. (2018) ⁵⁾
Hedo ^{a*}	Okinawa Island	26.9° N	128.3° E	60	March 2016	Yoshida et al. (2018) ³⁾
Fukue ^{a*}	Fukue Island	32.8° N	128.7° E		April 2019	Yoshida et al., submitted ⁶⁾
A-FORCE 2009 ^{b*}	Yellow Sea and East	27.9-36.6° N	124.4-137.4° E	360-1930	March - April 2009	Oshima et al. (2012) ⁷⁾
A-FORCE 2013 ^{Wb*}	China Sea	28.0-36.4° N	124.4-130.3° E	220-1980	February - March 2013	Kondo et al. (2016) ⁸⁾
Ny-Ålesund ^a	Mt. Zeppelin, Svalbard	78.9° N	11.9° E	474	March 2017	Ohata et al. (2019) ⁴⁾
PAMARCMiP 2018 ^b	Greenland and Arctic ocean	78.25-84.59° N	23.95-19.57° E	190-5190	March - April 2018	Yoshida et al., submitted ⁶⁾

4. 結果及び考察

(1) 北極大気中のBCの動態評価

図4.1.1.には、北極域のニーオルスンにおいてCOSMOSとレーザー誘起白熱法(SP2)とで測定されたBC質量

濃度の比較結果を示した(Ohata et al., 2019)⁴⁾。レーザー誘起白熱法は、測定の手間がかかるために長期観測には不向きであるが、BCの質量濃度測定の信頼性は高い。この図で示されているように、北極圏で得られたCOSMOSのBC測定値はレーザー誘起白熱法と約10%で一致することが確認された。この結果は、本研究の北極でのCOSMOSによるBC観測の高い精度を改めて保証するものである。

ニーオルスンおよびバローでは、瑞国ストックホルム大学および米国海洋大気庁（NOAA）がそれぞれ光吸収法にもとづくBC観測を20年間以上の観測を実施している。これらのCOSMOSと同時観測された結果を比較したところ、従来の観測データ（光吸収量）はそれぞれ43%および22%過大評価されていたことが明らかとなった。図4.1.2.にはBC質量濃度に換算した上での、ニーオルスンにおける観測結果の比較結果を示した（Sinha et al., 2017）⁹⁾。観測年は異なるが先行研究で示された値も比較のために示した。これらの先行研究のPSAPやアセロメータのBC濃度はCOSMOSの値と比較して2-3倍程度も高い。バローにおいても、1.3倍程度高い濃度となっていた。PSAPやアセロメータ観測は、上記のとおり、BC以外のエアロゾル成分の影響を受けやすく、その影響の大きさは大気条件にも依存する。従って、これらの観測誤差を生じる要因の大きさを定量的に推定することは困難である。これらの結果は、高精度のBC観測の重要性を改めて示すとともに、今後は北極BCの動態理解のために、信頼性の検証されたCOSMOSの観測値が使用されることが期待される。

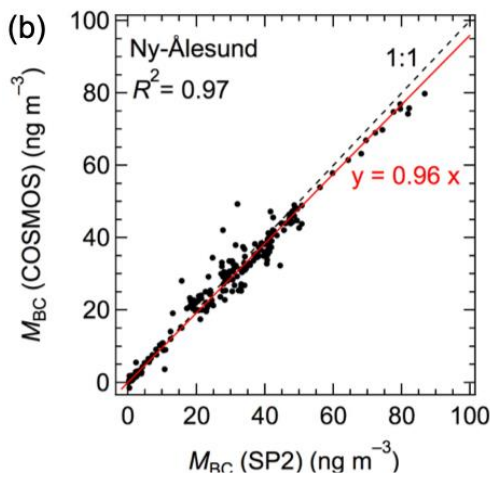


図4.1.1 ニーオルスンで実施されたCOSMOSとレーザー誘起白熱法（SP2）のBC質量濃度の同時観測の比較結果。1時間値を示している。（Ohata et al., 2019）⁴⁾

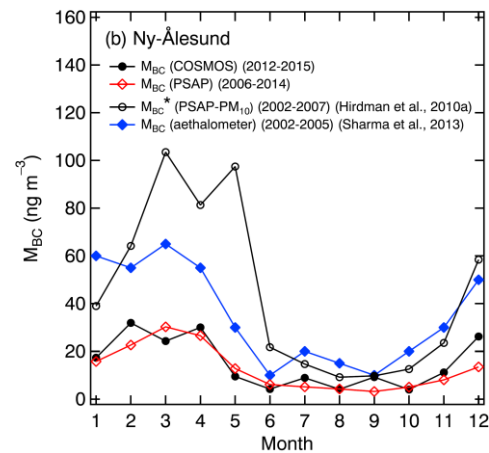


図4.1.2 北極圏のニーオルスンで得られた大気中BC質量濃度観測値（月平均値）の比較。黒丸はCOSMOSの値、赤四角は同時観測されたCOSMOSの値に一致するように決められた係数によりスケールされた過去のPSAPの値、白抜き黒丸および青四角はPSAPやアセロメータ観測に基づき先行研究で示された値。（Sinha et al., 2017）⁹⁾

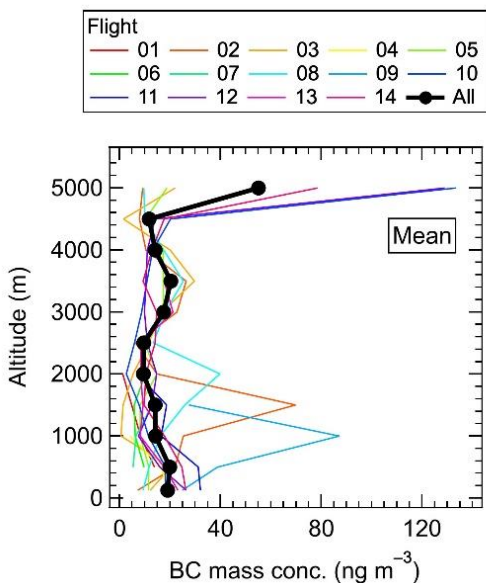


図4.1.3 PAMARCMIP 2018航空機観測で得られたBC質量濃度の高度分布。色つきの線は、個々のフライトで得られた値を示す。

(2) 北極域航空機観測

図4.1.3.には、PAMARCMiP2018航空機観測で得られたBCの質量濃度の高度分布の平均値を示す。観測期間中において、高度3-5kmにBC濃度が増大する汚染大気層が複数回のフライトにおいて見られた。これらの高濃度BCを含む空気の流跡線解析や衛星観測にもとづく森林火災の時空間分布の解析を実施したところ、5日程度前に東シベリアにおいて森林火災の影響を受けた空気が輸送されていた可能性があることが明らかとなった。この森林火災の領域を寒冷前線が通過した際に、高濃度BCを含む汚染大気が上空に運ばれ、観測地点まで運ばれたものとみられる。一方において、これらの濃度増大を除くと平均的なBC濃度はこれまでの航空機観測の値よりも低く、これらの年々変動は北半球高緯度での森林火災の年々変動により説明できる可能性があることが明らかとなった。

(3) 観測に基づくエアロゾルモデルの改良とBC濃度変動

図4.1.4. (a)および(b)には、東京および沖縄で得られた降水前の大気中BCの粒径分布、降水に含まれていたBCの粒径分布、およびその比率を示す。この図から明らかのように、より粒径の大きなBCほど湿性除去を受けていたことが分かる。この観測データに基づいて過飽和度の推定を実施したところ、図4.1.5.と表4.1.1.に示す結果となった。対流性の降水イベントのほうがトレーサー粒子の粒径に依存した差が少なく、より正確に推定できていると推察される。

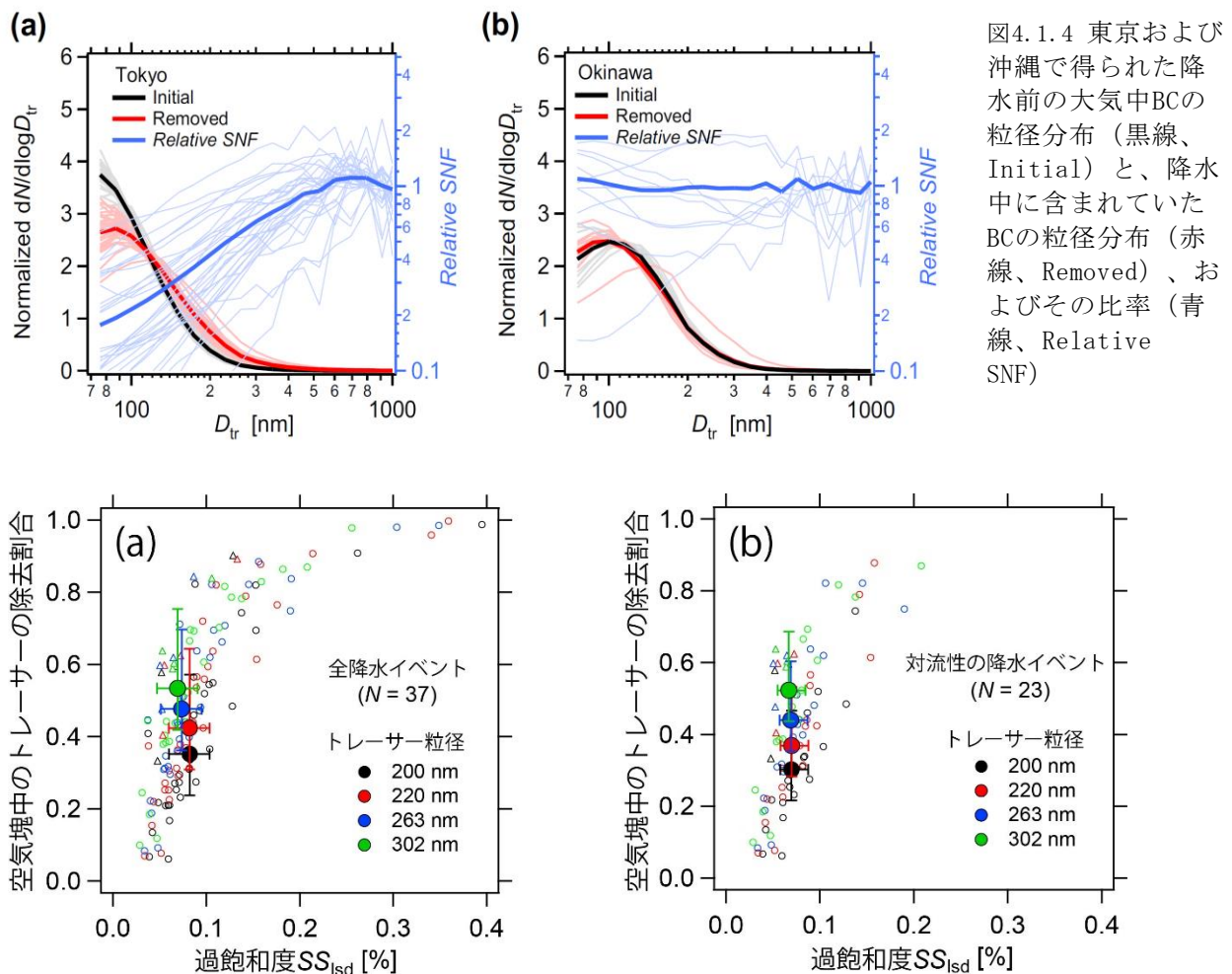


図4.1.5 観測から推定された降水に含まれるトレーサー粒子が経験した過飽和度（横軸）（○：東京、△：沖縄）。4つの異なるトレーサー粒径 ($D_{tr} = 200\text{nm}, 220\text{nm}, 263\text{nm}, 302\text{nm}$) で推定を実施した。縦軸値 (Absolute scavenged number fraction) は、臨界過飽和度分布と SS_{lsd} 値から算出されたトレーサー粒子の除去割合の推定値。(a), (b) はそれぞれ全降水イベント (37回)、対流性の降水イベント (23回) の結果。中塗り丸印とエラーバーは中央値と ± 25 パーセントイル範囲。

表4.1.1 観測した降水イベント（表3.1.1）における過飽和度の推定結果の統計値。

D_{tr}	All events (N=37)	$CPI > 0.5$ events (N=23)
200 nm	0.082 (0.060, 0.10) % 0.098 ± 0.069 %	0.070 (0.058, 0.087) % 0.078 ± 0.026 %
220 nm	0.082 (0.058, 0.11) % 0.10 ± 0.075 %	0.070 (0.055, 0.089) % 0.081 ± 0.035 %
263 nm	0.074 (0.056, 0.11) % 0.10 ± 0.072 %	0.069 (0.052, 0.090) % 0.079 ± 0.037 %
302 nm	0.069 (0.056, 0.11) % 0.90 ± 0.053 %	0.067 (0.054, 0.082) % 0.078 ± 0.041 %

上段は中央値と（25th, 75th）パーセンタイル値、下段は平均±標準偏差。

表4.1.1.の結果から、本研究で観測した降水雲中の過飽和度の変動範囲はおおむね0.08±0.03%であった。従来仮定されてきた0~1%という不確実幅にくらべてこの変動幅はずっと小さい。各々の降水イベント中に採取された降水試料は多数の上昇流セルで生成された凝結水による寄与の重ね合わせであり、降水イベント内で平均すると、時空間平均値としてこのくらいの狭い範囲に収まる可能性を示唆するものである。

降水雲中でエアロゾルが経験する最大過飽和度が0.08±0.03%の範囲で変動した場合、北極域のBC濃度がどう変化するかをサブテーマ5（名古屋大学）の全球エアロゾルモデルCAM5-chem / ATRAS2をもちいて感度実験を行った結果を図4.1.6.に示す。この図から、観測から得られた最大過飽和度を仮定すると、冬季のBC濃度が従来のパラメタリゼーションを用いた時よりも10倍程度も濃度が増大することが示された。このことは、従来のパラメタリゼーションがBCを多く除去しすぎている可能性を示唆するものである。また0.08±0.03%の範囲の小さな過飽和度の変化でも、BC濃度が2~3倍も変わりうる事がわかる。これは、中緯度の大規模発生源から長距離輸送されるとき湿潤対流における除去効率が、雲内過飽和度に非常に強く依存するためである。特に0.08±0.03%の範囲の過飽和度変化に対する除去率変化の感度は、発生源近傍におけるエイジングが進んでいない（被覆が薄い）比較的疎水性のBC含有粒子で大きいことも明らかになった。今後、主要な発生源近傍領域において降水雲中の過飽和度の観測データを充実させ、モデルにおける湿性除去計算のスキームに反映させることが、エアロゾルの全球分布予測性能向上に重要であることが示唆された。本研究の結果は、特にエアロゾルの発生源領域の近くで、降水雲過飽和度の観測的制約が、発生直後は疎水性であるBCや一次有機物などのエアロゾルの長距離輸送・空間分布のモデル予測性能を改善するために重要であることを示唆している。

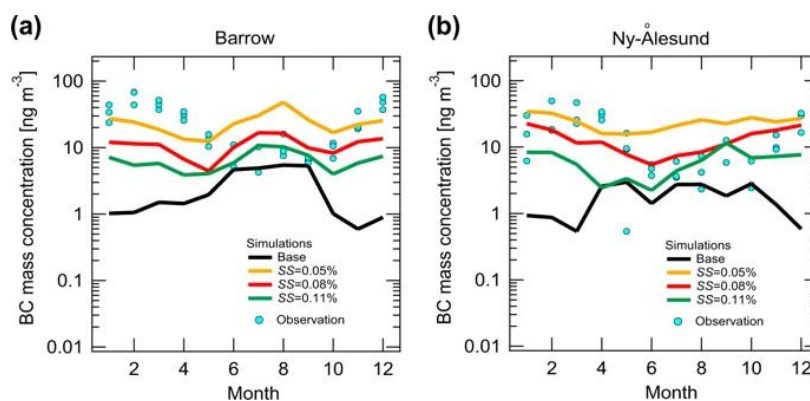


図4.1.6 北極圏のバロー（アラスカ州）とニーオレスン（スバルバル諸島）の地上大気における、観

測値とCAM5-chem / ATRAS2モデル予測値のBC質量濃度の季節変化。感度実験では、降水雲中の過飽和度の制約を0.05%, 0.08%, 0.11%の3通りに変えたシミュレーションを実施した。黒い曲線は、過飽和度制約なしのベースシミュレーションの結果を示し、水色の点は観測結果を示す。観測データの期間は、バローでは2012年8月～2015年5月、ニーオーレスンでは2012年3月～2015年5月。

(4) 大気中の酸化鉄粒子の動態と発生源推定

本研究では、BCと異なりこれまでに先行研究例がほとんどない人為起源酸化鉄 (FeO_x) の動態や発生源の理解のために、観測とデータ解析を実施した。千葉の観測では、製鉄所が南側に位置していたため、北風時の観測データは東京都の都市大気を代表するものと考えられる。千葉（北風時）における FeO_x の濃度は、BC、COそれぞれの濃度と互いに強く相関しており、都市域における発生源の空間分布が互いによく似ていることが示唆された（図4.1.7）。また図には示していないが、東京（本郷キャンパス）における観測時にも FeO_x の濃度は、BC、COそれぞれの濃度と強く相関していた。都市域における FeO_x の主要な発生源の可能性を観測データから推察するため、 FeO_x/BC 質量濃度比の日変動を、交通量の日変動と比較した。その結果、 FeO_x/BC 質量濃度比は、全交通量/ディーゼル車交通量とよく似ていることを見出した（図4.1.8）。BC発生量は全車種のうち特にディーゼル車に多いことが知られているため、本観測結果は、 FeO_x は全車種から共通に発生している可能性を示唆している。また、東京都心部（本郷キャンパス）における観測データでは、 FeO_x 濃度と FeO_x/BC 濃度比はほとんど風向に依存しなかった。そのため、都心部に対して南側にしかない製鉄所は、都心部の大気中における FeO_x の主要な発生源ではないといえる。

一方、製鉄所（JFEスチール東日本）が観測所の数km南側に位置する千葉の観測では、南風の条件下で、製鉄所からの汚染空気の観測所への到達にともない FeO_x がきわめて高濃度となる時間帯がいくつか見られた。このような製鉄所起源の空気の観測データを抽出し、製鉄所からの距離および拡散に関連する気象条件を考慮し、観測データから製鉄所からの FeO_x の放出量を逆推定する解析を行った。その結果、JFEスチール東日本製鉄所からの FeO_x 放出量は 0.49 Ggy^{-1} であり、粗鋼生産量との比で 0.012% の質量の FeO_x がエアロゾルとして大気に放出されていることが分かった。本研究で初めて得た単位粗鋼生産量当たりの FeO_x 放出量の概算値を中国の製鉄所についても当てはめ、また過去の観測によってある程度精度よく推定されている中国のBC放出量と合わせて考慮すると、製鉄所起源の FeO_x のみしか考慮しない場合では、中国起源の汚染空気中の FeO_x/BC 質量濃度比は0.05程度にしか及ばず、過去の航空機観測（Moteki et al. 2017）¹⁰⁾ や沖縄県辺戸岬で実際観測された FeO_x/BC 質量濃度比（おおよそ0.3-0.4）よりもずっと小さい。すなわち、東京近傍だけでなく、北半球中緯度の最大の人為起源エアロゾルの発生源である中国においても、人為起源 FeO_x の発生源として製鉄所は主要ではなく、それ以外（自動車等）の寄与のほうがずっと大きい（6～8倍）ことを示唆している。

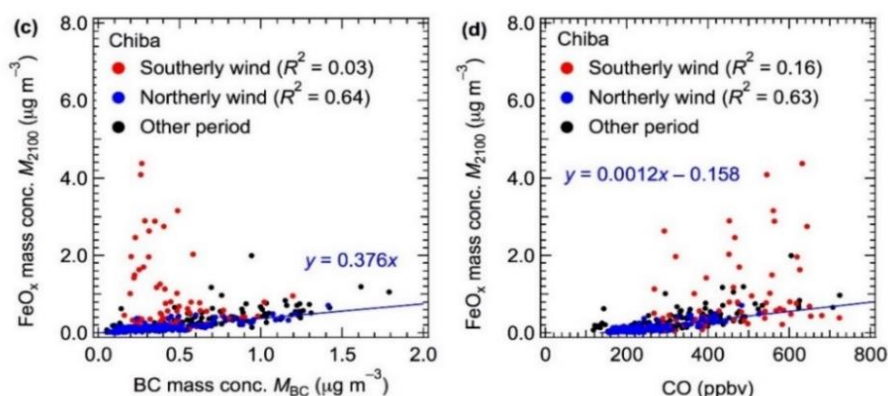


図4.1.7 千葉観測における北風時（都市大気）、南風時（製鉄所）での FeO_x と BC、CO の相関図

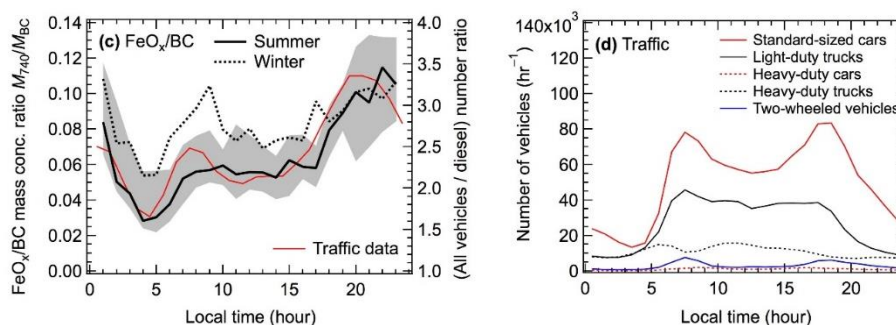


図4.1.8 東京観測における、 FeO_x/BC 濃度比と総自動車交通量/ディーゼル車交通量の日変動（左）と、都心境界における車種別の交通量の日変動

次に東アジアおよび北半球中緯度の最大の人為起源エアロゾルの発生源である中国の汚染空気について、沖縄県辺戸岬で2016年3月に観測された FeO_x とBC、COの質量濃度との相関関係を図4.1.9.に示す。このデータは輸送中に湿性除去を経っていないと思われる観測空気塊を、北中国起源、南中国起源、それ以外（海洋起源後）として分類し、後方流跡線解析から抽出したものである。この図からわかるように、北中国起源の空気塊でも東京近傍の都市大気と同様、 FeO_x はBC、COと強く相関しており、 FeO_x/BC 質量比と FeO_x/CO 質量比はそれぞれ、0.32、0.0013 となり、ともに先述の東京の都市大気と同程度の値となった。このことから、人為起源 FeO_x の発生源は、中国と東京でよく似ており、BCやCOと発生源が類似していることを示唆している。

中国におけるBCとCOの排出量と、本研究で得られた FeO_x とBCおよびCOの質量比率から中国からの人為的な FeO_x の排出量を見積もったところ、0.21-0.49 FeTg/yr という値を得た。さらに先行研究で報告されている人為的な酸化鉄と全鉄の発生活比率や全球的なBCおよびCOの排出量データから、全球的な全鉄の排出量を見積もったところ1.4-3.4 FeTg/yr という値が得られた。本研究により初めて、個別の排出量の積み上げによるボトムアップ的手法ではなく、大気中の観測を束縛条件としたトップダウン的手法により全球的な人為的な鉄の排出量の見積もりが得られた。

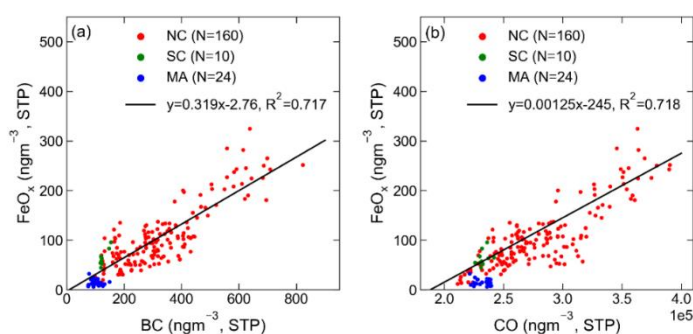


図4.1.9 沖縄県辺戸岬の観測における、北中国起源 (NC)、南中国起源 (SC)、海洋起源 (MA) それぞれの空気塊についての、 FeO_x 、BC、COの一時間平均値の相関図

(5) 北半球全域での酸化鉄粒子の動態

「3. 研究開発方法」で述べた通り、本研究では、過去10年間（2009～2018年）に東アジアおよび北極地域で行われた5つの地上観測キャンペーンおよび3つの航空機観測キャンペーンで取得した単一粒子の白熱検出信号の生データを統一したデータ解析プロトコルに基づいて再解析して比較した。 FeO_x とBCの判別のためには、測定された白熱強度 (Si) と2波長帯の白熱強度比 (color ratio) の特徴を利用した。図4.1.10. は各キャンペーンで取得した単一粒子データについて、これら2つのパラメータの2次元頻度分布図である。8つのデータセットすべてにおいて、白熱光が検出される光吸収性粒子の中で、 FeO_x 含有粒子とBC含有粒子は、各データセットについて経験的にもとめた境界線（緑色）を用いて明瞭

に判別することができた (図4.1.10. a-h)。観測されたFeO_xとBCのSi-color ratioの2次元頻度分布の形状は、室内実験によるマグネタイト試料とフラーレン煤試料の測定結果 (図4.1.10(i)) とおおむね一致した。

鉱物ダスト由来のFeO_x粒子は非揮発性の透明な鉱物 (シリカ等) 粒子に付着しており、白熱検出時に大きな散乱断面積を示すことが室内実験で分かっている。一方、8つのキャンペーンで観測されたFeO_x含有粒子は、鉱物ダスト試料のFeO_x含有粒子に比べてずっと小さな散乱断面積を示し、その値はFeO_xコアの大きさとほぼ比例関係にあることが分かった。このことから、下部対流圏 (地上観測・航空機観測の下層フライト) で観測されたFeO_x含有粒子の大多数は、鉱物粒子とは異なり、他の透明な鉱物粒子に付着していない純粋なFeO_x粒子であるといえる。室内実験結果を踏まえ、散乱断面積の閾値を設け「鉱物粒子的性質を持つ粒子 (Dust-like FeO_x) 」とそうでないFeO_xに分けてその割合を導出した

(図4.1.11.)。各々のデータセットにおいて全検出FeO_x粒子のうち鉱物粒子的性質を持つ粒子の検出割合は多くても2割程度であった。

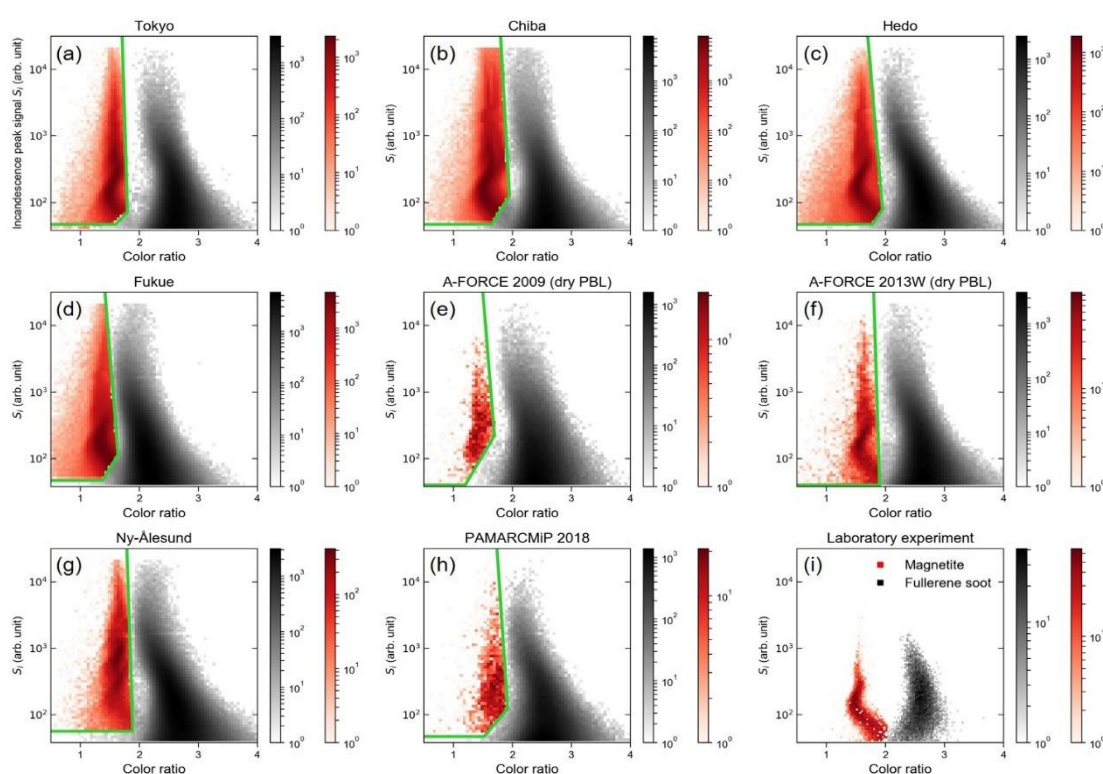


図4.1.10 8つの観測キャンペーン (a-h) の大気中の白熱性粒子 (FeO_xとBC)、および標準試料のマグネタイトとフラーレン煤粒子 (i) の、白熱光強度 (Si) と2波長帯における白熱強度比 (color ratio) の2Dヒストグラム。赤と黒の陰影は、それぞれFeO_xとBCの単一粒子データポイントの数密度を表す。各パネルで、FeO_x粒子のデータ群は、2次元密度分布形状の目視で決定した緑の境界線によってBCデータ群と区別した。2Dヒストグラムの計算時間を短縮するために、観測されたBCデータについては観測された粒子のうち約1/10のみを使用した。

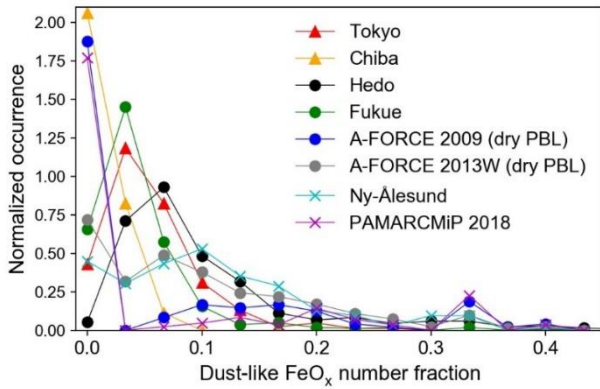


図4.1.11 8つの観測データセット (a-h) の大気中のFeO_x含有粒子の dust-like FeO_xの数割合の頻度分布。ただし判別対象のFeO_x粒径範囲は、散乱断面積の定量測定が可能な170-270nm。

これらの8つのデータセットのうち3つのデータセットにおいては、同時に採取されたフィルター試料の電子顕微鏡観察による粒子の形態分析を行っており、FeO_x粒子の中で鉱物ダストに付随するものの割合は少なく人為起源のFeO_x粒子(マグネタイト凝集体)とフライアッシュ粒子が大多数であることが分かっている (Moteki et al. 2017¹⁰), Ohata et al. 2018⁵), Yoshida et al, 2018³)。これらの観測的証拠から、本研究で用いた表1のデータセットのFeO_xは主に人為起源であるといえる。

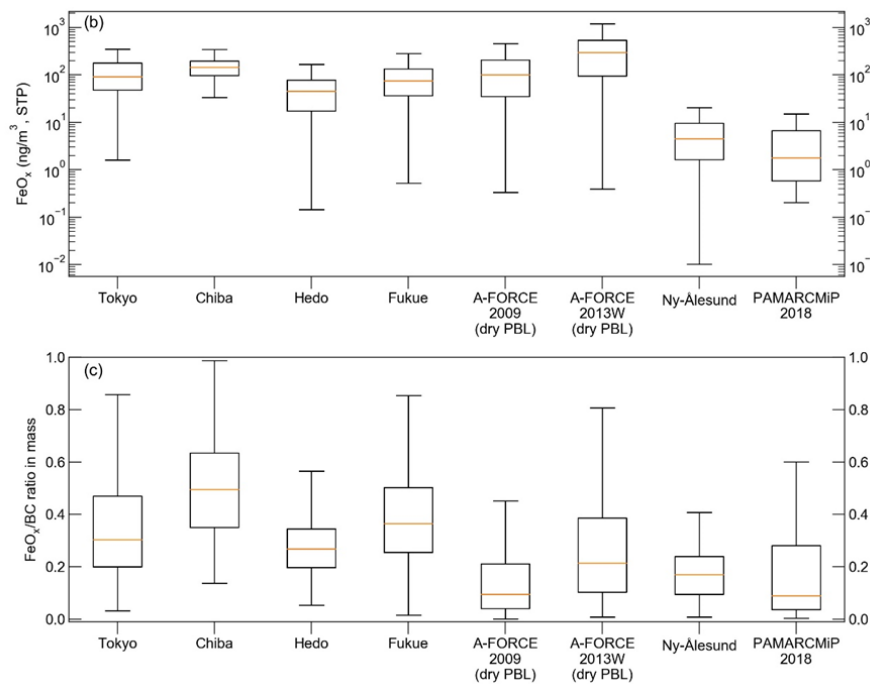


図4.1.12 大気中の人為起源酸化鉄 (FeO_x) の質量濃度の観測値のBox-Whiskerプロット。質量濃度 (上) と、同時観測されたブラックカーボン (BC) の質量比 (下)。

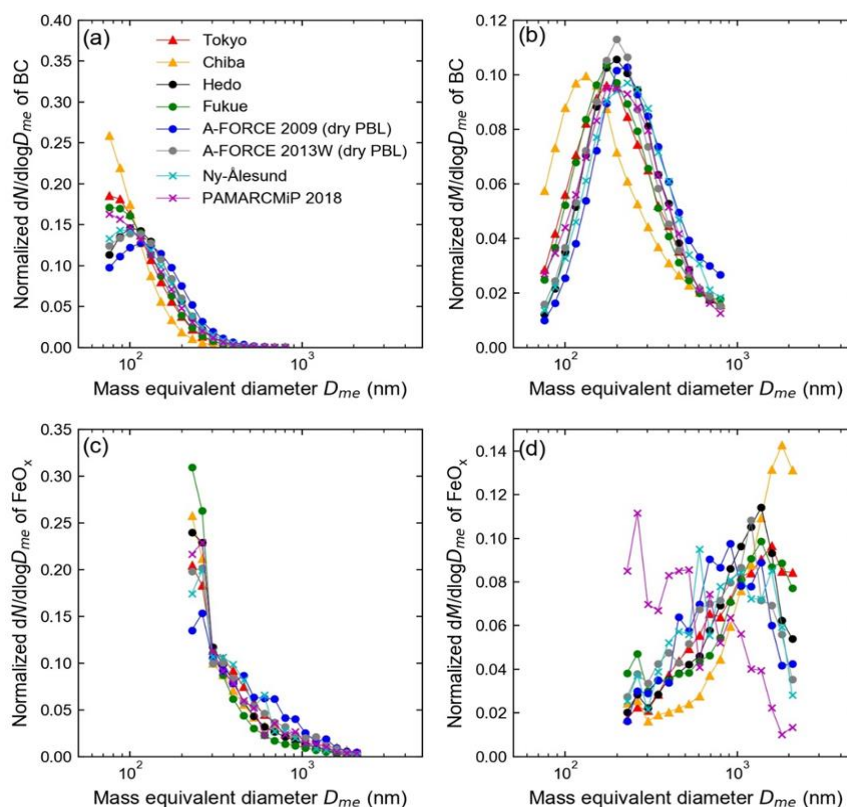


図4.1.13 8つの観測データセットの各々における、BC (a, b) とFeOx (c, d) の平均粒径分布。(a, c)は数濃度、(b, d)は質量濃度の粒径分布。

表4.1.2 8つの観測データセットにおけるCO, BC, FeOxの濃度およびFeOx/BC質量濃度比の平均値

	Time resolutio n	CO (ppbv)	BC		FeO _x		LSPs		FeO _x (ng/m ³)/B C (ng/m ³)
			(ng/m ³)	(#/cm ³)	(ng/m ³)	(#/cm ³)	(μm ³ /cm ³)	(#/cm ³)	
Tokyo	1 hour	-	562	189	188	0.43	4.42	329	0.36
Chiba	1 hour	246	292	147	177	0.41	1.93	170	0.64
Hedo	1 hour	217	304	75.4	57.6	0.27	5.04	445	0.28
Fukue	1 hour	180	243	78.5	93.9	0.39	5.12	384	0.40
A-FORCE 2009	1 min	273	1060	124	150	0.41	9.91	617	0.17
A-FORCE 2013W	1 min	336	1310	261	361	1.1	13.0	979	0.36
Ny- Ålesund	3 hour	-	28	7.1	6.4	0.015	0.46	50	0.18
PAMARCMi P	10 min	-	21	7.0	5.7	0.010	0.36	31	0.28

FeOxの平均質量濃度は、東アジア（大陸下流域および都市部）で約60～360 ngm⁻³だったのに対し、北極圏では約6 ngm⁻³だった（図4.1.12）。BCの平均質量濃度は、東アジアでは240～1300 ngm⁻³、北極圏では20～30 ngm⁻³だった。平均質量濃度が観測領域に依存して1～2桁の大きな変動幅をもつにもかかわらず、FeOx/BCの質量比の平均値の変動は、0.2～0.6の範囲に収まっていた（表4.1.2）。人為起源FeOx

が少なからぬ量で対流圏広域に普遍的に存在していることが初めて明らかになった。FeO_x粒子のサイズ分布、特に数濃度のサイズ分布（図4.1.13）は、すべてのデータセットで似た形状をしており、観測されたFeO_x粒子が同種の生成メカニズム（例えば、自動車エンジン）で発生したことを示唆している。

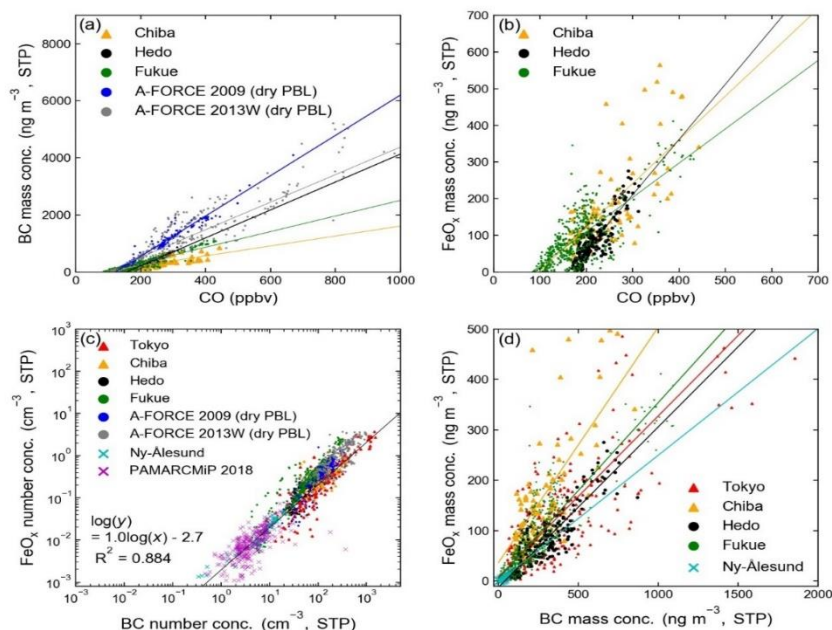


図4.1.14 8つの観測データセットにおけるCO, BC, FeO_xの濃度の散布図と回帰直線

8つすべての観測データセットにおいて、FeO_x、BC、およびCOの濃度は互いに強く相関していた（図4.1.14、表4.1.3）。都市大気、東アジアの大陸起源汚染空気、および北極の清浄空気に共通してみられるそれらの相互相関は、人為的FeO_x排出の時空間変動が、北半球上の多くの地域における人為的BCおよびCO排出の時空間変動とほぼ一致している。

表4.1.3 8つの観測データセットにおけるCO, BC, FeO_xの濃度の相関スロープと相関係数

Campaign	BC (ng/m ³) / CO (ppbv)		FeO _x (ng/m ³) / BC (ng/m ³)		FeO _x (ng/m ³) / CO (ppbv)	
	Slope	R ²	Slope	R ²	Slope	R ²
Tokyo	—	—	0.32	0.76	—	—
Chiba	1.74	0.59	0.47	0.47	1.19	0.53
Hedo	4.89	0.88	0.32	0.85	1.5	0.73
Fukue	2.74	0.91	0.34	0.86	0.93	0.74
A-FORCE 2009 (dry PBL)	7.06	0.97	—	—	—	—
A-FORCE 2013W (dry PBL)	4.83	0.98	—	—	—	—
Ny-Ålesund	—	—	0.25	0.74	—	—

BCの大気加熱率や輸送効率の影響因子である混合状態についての定量的な知見を得るため、8つすべての観測データセットにおいて、球形粒子の形状を想定する従来のMie法と、フラクタル凝集粒子の形状を想定するより詳細なDDA法を使用して、BC含有粒子の体積相当シェルコア比を推定した。粒子形状の仮定が異なる2つのアプローチ間の結果の違いは、BCコアのサイズが小さいほど小さく、BCコア粒径186 nmでは無視できるほど小さいことが分かった。したがってエアロゾルモデルの検証のために比較する観測データとしては、BCコア粒径186 nm（表4.1.4）のものを利用することが推奨される。

表4.1.4 8つの観測データセットにおけるBC含有粒子のShell-to-core ratioの中央値

BCコア粒径(nm)	Mie			DDA		
	186	236	291	186	236	291
Tokyo	1.34	1.34	1.35	1.33	1.39	1.32
Chiba	1.15	1.13	1.12	1.17	1.13	1.10
Hedo	1.37	1.29	1.31	1.37	1.28	1.26
Fukue	1.46	1.39	1.41	1.45	1.37	1.34
A-FORCE 2009 (dry PBL)	1.71	1.63	1.65	1.70	1.57	1.52
A-FORCE 2013W (dry PBL)	1.60	1.52	1.54	1.59	1.48	1.43
Ny-Ålesund	1.34	1.24	1.24	1.34	1.24	1.20
PAMARCMiP	1.44	1.35	1.31	1.43	1.34	1.26

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

北極およびグローバルなBCの動態と放射影響

本研究では北極の代表的な観測点において、日本で開発・改良された高精度BC測定器COSMOSにより、大気中のBC濃度を測定した。そして独立した測定原理による高精度BC測定との比較により、北極でのCOSMOSによるBC観測の精度が高いことを実証した。さらにCOSMOSの観測結果と先行研究の結果との比較から、既存の研究の大気中BC濃度は過大推定であった可能性が示された。この研究成果は北極のエアロゾル研究コミュニティに対して大きなインパクトを与え、現在、これまでの米国とノルウェーに加え、ロシア、カナダ、フィンランドの研究機関と北極域においてCOSMOSを使ったBC観測の相互比較を開始するに至っている。さらにこの動きは後述するように、北極評議会（Arctic Council）におけるAMAP（Arctic Monitoring and Assessment Program）Short-lived Climate Forcers Expert Group（短寿命気候汚染物質の専門家グループ；SLCF EG）の科学者からも高い評価を受けている。

数値モデル研究では、冬春期の北極大気中のBC濃度を過小評価することが、世界のグローバルモデルの共通した問題となっている。その鍵となるのが中緯度から北極圏への輸送過程におけるBCの降水による除去効率である。本研究では除去効率の重要な支配要因である降水雲中の過飽和度を観測から推定することにより、数値モデル計算が改善されることを示した。

酸化鉄粒子（FeO_x）の動態と人為起源発生源の評価

地球温暖化物質として的人為的酸化鉄（FeO_x）粒子は、我々が世界に先駆けて発見したものであり、これまで見過ごされてきた地球温暖化物質である。その影響評価は本研究をはじめとする、この推進費の研究グループが世界をリードしている。本研究では私たちが開発してきたその測定技術やデータ解析技術により、アジアや北極での人為的酸化鉄の動態と発生源を明らかにしてきた。そして人為的なFeO_xの発生源として、製鉄所よりも自動車などの方が重要であることを示した。中国からの汚染大気観測から全球での人為的な鉄の排出量の推計を行った。この研究は世界で初めてとなるトップダウン的な人為的な鉄の排出量推定である。

また本研究では、私たちがこれまでアジアや北極で行ってきた5回の地上観測と3回の航空機観測データの再解析により、その濃度、粒径分布、混合状態についての描像を示した。そして人為的なFeO_xが、北極圏を含め対流圏広域に普遍的に存在していることを初めて明らかにした。本研究の結果は、サブテーマ5において全球の人為的FeO_xの放射強制力推定の束縛条件として使われた。

(2) 環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

総合海洋政策本部参与会議意見書では、北極政策プロジェクトチーム（PT）報告書に基づき、BC測定器COSMOSの標準器化を目指すことが明記されている。すなわち本研究の成果等に基づき、COSMOSの標

準器化を政府目標に掲げることとなった。

<行政が活用することが見込まれる成果>

現在、北極評議会（Arctic Council）におけるAMAP（Arctic Monitoring and Assessment Program）Short-lived Climate Forcers Expert Group（短寿命気候汚染物質の専門家グループ；SLCF EG）により、BCの排出削減による北極温暖化への効果を評価する報告書が準備されつつある。本推進費からは小池、近藤、大島がこの報告書の執筆者として関わっており、すでにドラフトを提出している。この中では本研究で得られた成果も含まれている。このAMAPの報告書は北極評議会におけるExpert Group on Black Carbon and Methane（EGBCM）はBCの排出削減を進める上での科学的な根拠となっており、本研究の成果はBCの排出削減の施策にも貢献する。

人為起源の酸化鉄（FeO_x）はこれまで見過ごされてきた温暖化物質である。次期のIPCCレポートでは、放射強制力の要因としてFeO_xが追加されることが期待される。現時点では、FeO_xの放射強制力を推定しているのは世界でも私達のみであり、重要な貢献と言える。

本研究で得られている北極域における大気中のBCやFeO_x濃度は、これらの物質の北極のみならずグローバルな影響評価（アセスメント）の基礎となるものである。すべてのアセスメントの基本は正確な測定である。本研究で得られた成果は、政府が進めている Evidence-Based Policy Making（EBPM）に資する「科学と政策の連携の実現」へと発展することが期待される。

6. 国際共同研究等の状況

- 北極BC観測プロジェクト、ニーオルスンやバローにおけるBC観測、J. A. Ogren・NOAA/ESRL・米国、P. Tunved・Stockholm University・スウェーデン、C. A. Pedersen・Norwegian Polar Institute・ノルウェー、各観測所においてCOSMOS観測を行い、それぞれの研究機関が実施しているBC観測との比較を実施。
- PAMARCMiP2018航空機観測、Polar 5 観測機上でのBCおよびFeO_x観測、Andreas Herber・Alfred Wegener Institute（AWI）・ドイツ、全観測期間に参加し国際共同研究により北極域の大気観測を実施。データ解析も実施中。ヨーロッパの北極航空機観測として重要な位置づけとなる観測キャンペーンに参加し、貴重なデータを取得。

7. 研究成果の発表状況

（1）誌上発表

<論文（査読あり）>

- 1) A. YOSHIDA, N. MOTOKI（責任著者）, S. OHATA, T. MORI, M. KOIKE, Y. KONDO, H. MATSUI, N. OSHIMA, A. TAKAMI, K. KITA: Submitted to Journal of Geophysical Research: Atmospheres. (2020), Abundances and microphysical properties of light-absorbing iron oxide and black carbon aerosols over East Asia and the Arctic.
- 2) N. TAKEKAWA, T. SETO, N. MOTOKI, M. KOIKE, N. OSHIMA, K. ADACHI, K. KITA, A. TAKAMI and Y. KONDO: J. Geophys. Res. Atmos., 125, e2019JD031448 (2020), Enhanced New Particle Formation above the Marine 1 Boundary Layer over 2 the Yellow Sea: Potential Impacts on Cloud Condensation Nuclei.
- 3) T. MORI, S. OHATA, Y. MORINO, M. KOIKE, N. MOTOKI and Y. KONDO: Proceedings of the Japan Academy, Series B, Physical and Biological Sciences, 96(3): 122-129 (2020), Changes in black carbon aerosols in Tokyo in 2003-2017.
- 4) N. MOTOKI: Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 243, 106811 (2020), Capabilities and limitations of the single-particle extinction and scattering method for estimating the complex refractive index and size-distribution of spherical and non-spherical submicron particles.

- 5) T. KINASE, K. ADACHI, N. OSHIMA, K. GOTO-AZUMA, Y. OGAWA-TSUKAGAWA, Y. KONDO, N. MOTEKI, S. OHATA, T. MORI, M. HAYASHI, K. HARA, H. KAWASHIMA and K. KITA: *Journal of Geophysical Research*, (125), e2019JD030737 (2020), Concentrations and size distributions of black carbon in the surface snow of eastern Antarctica in 2011.
- 6) T. S. CARTER, C. L. HEALD, J. L. JIMENEZ, P. CAMPUZANO-JOST, Y. KONDO, N. MOTEKI, ... & J. W. KAISER: *Atmospheric Chemistry & Physics*, 20(4), 2073-2097 (2020), How emissions uncertainty influences the distribution and radiative impacts of smoke from fires in North America.
- 7) T. MORI, K. GOTO-AZUMA, Y. KONDO, Y. OGAWA-TSUKAGAWA, K. MIURA, M. HIRABAYASHI, N. OSHIMA, M. KOIKE, K. KUPIAINEN, N. MOTEKI, S. OHATA, , P. R. SINHA, K. SUGIURA, T. AOKI, M. SCHNEEBELI, K. STEFFEN, A. SATO, A. TSUSHIMA, V. MAKAROV, S. OMIYA, A. SUGIMOTO, S. TAKANO and N. NAGATSUKA: *J. Geophys. Res. Atmos.*, 124, 13,325-13,356 (2019), Black Carbon and Inorganic Aerosols in Arctic Snowpack.
- 8) M. KOIKE, J. UKITA, J. STRÖM, P. TUNVED, M. SHIOBARA, V. VITALE, A. LUPI, V. D. BAUMGARDNER, C. RITTER, O. HERMANSEN, K. YAMADA and C. PEDERSEN: *J. Geophys. Res. Atmos.*, 124, 1798-1822 (2019), Year - round in situ measurements of Arctic low - level clouds: Microphysical properties and their relationships with aerosols.
- 9) Y. TOBO, K. ADACHI, P. J. DEMOTT, T. C. J. HILL, D. S. HAMILTON, N. NAGATSUKA, J. UETAKE, Y. KONDO and M. KOIKE: *Nat. Geosci.*, 12, 253-258 (2019), Glacially sourced dust as a potentially significant source of ice nucleating particles.
- 10) N. MOTEKI, T. MORI, H. MATSUI and S. OHATA: *npj Clim. Atmos. Sci*, 2, 6 (2019), Observational constraint of in-cloud supersaturation for simulations of aerosol rainout in atmospheric models.
- 11) S. OHATA, Y. KONDO, N. MOTEKI, T. MORI, A. YOSHIDA, P. R. SINHA and M. KOIKE: *Aerosol Sci. Technol.*, 53.9. 1079-1091 (2019), Accuracy of black carbon measurements by a filter-based absorption photometer with a heated inlet.
- 12) A. YOSHIDA, S. OHATA, N. MOTEKI (責任著者), K. ADACHI, T. MORI, M. KOIKE and A. TAKAMI: *J. Geophys. Res. Atmos.*, 123, 11194-11209. <https://doi.org/10.1029/2018JD028665> (2018), Abundance and emission flux of the anthropogenic iron oxide aerosols from the East Asian continental outflow.
- 13) K. LAMB, A. PERRING, B. SAMSET, D. PETERSON, S. DAVIS, B. ANDERSON, A. BEYERSDORF, D. BLAKE, P. CAMPUZANO-JOST, C. CORR, G. DISKIN, Y. KONDO, N. MOTEKI, B. NAULT, J. OH, M. PARK, S. PUSEDE, I. SIMPSON, K. THORNHILL, A. WISTHALER, J. SCHWARZ: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 123, 23, 13,527-13,548 (2018), Estimating Source Region Influences on Black Carbon Abundance, Microphysics, and Radiative Effect Observed over South Korea.
- 14) S. OHATA, A. YOSHIDA, N. MOTEKI, K. ADACHI, Y. TAKAHASHI, M. KURISU and M. KOIKE: *J. Geophys. Res. Atmos.*, 123, 8115-8134. <https://doi.org/10.1029/2018JD028363> (2018), Abundance of light-absorbing anthropogenic iron oxide aerosols in the urban atmosphere and their emission sources.
- 15) H. MATSUI, N. M. MAHOWALD, N. MOTEKI, D. S. HAMILTON, S. OHATA, A. YOSHIDA, M. KOIKE, R. A. SCANZA, M. G. FLANNER: *Nature Communications*, 9. DOI: 10.1038/s41467-018-03997-0 (2018), Anthropogenic combustion iron as a complex climate forcer.
- 16) P. R. SINHA, Y. KONDO, K. GOTO-AZUMA, Y. TSUKAGAWA, K. FUKUDA, M. KOIKE, S. OHATA, N. MOTEKI, T. MORI, N. OSHIMA, E. J. FØRLAND, M. IRWIN, J.-C. GALLET and C. A. PEDERSEN: *J. Geophys. Res.*, doi: 10.1002/2017JD028027 (2018), Seasonal progression of the

deposition of black carbon by snowfall at Ny-Ålesund, Spitsbergen.

- 17) P. R. SINHA, Y. KONDO, M. KOIKE, J. OGREN, A. JEFFERSON, T. BARRETT, R. SHEESLEY, S. OHATA, N. MOTTEKI, H. COE, D. LIU, M. IRWIN, P. TUNVED, P. K. QUINN, and Y. ZHAO: J. Geophys. Res., 122, doi:10.1002/2016JJD025843 (2017), Evaluation of ground-based black carbon measurements by filter-based photometers at two Arctic sites.
- 18) N. MOTTEKI, K. ADACHI, S. OHATA, A. YOSHIDA, T. HARIGAYA, M. KOIKE and Y. KONDO: Nature Comm., 8, 15329 (2017), Anthropogenic iron oxide aerosols enhance atmospheric heating.

<その他誌上発表（査読なし）>

- 1) 茂木信宏、森樹大、松井仁志、大畑祥、大気化学研究、日本大気化学会発行、第41号（2019）
「降水雲の過飽和度を観測から制約する：エアロゾル空間分布の予測のために」
- 2) 茂木信宏、Academist Journal、<https://academist-cf.com/journal/?p=10308>, アカデミスト株式会社発行（2019）
「“黒色炭素粒子”から「雨雲の過飽和度」を推定する！ - 気候変化の要因となるエアロゾル濃度の予測に向けた挑戦」

(2) 口頭発表（学会等）

- 1) N. MOTTEKI: NOAA CSD Seminar, Boulder, CO, USA, 2020
“Material identification of small particles by forward-scattered wave sensing”
- 2) 森樹大、大畑祥、大島長、松井仁志、茂木信宏、近藤豊、小池真：エアロゾル・雲・降水の相互作用に関する研究集会（2020）
「BarrowにおけるBCの湿性沈着に関する研究」
- 3) M. KOIKE, S. OHATA, A. YOSHIDA, N. MOTTEKI and PAMARCMiP TEAM: Second data workshop for PAMARCMiP2018, AWI, Potsdam, Germany, 2019
“Cloud microphysical properties observed near the sea ice edge during the PAMARCMiP 2018 experiment”
- 4) S. OHATA, A. YOSHIDA, N. MOTTEKI, K. ADACHI and M. KOIKE: Second data workshop for PAMARCMiP2018, AWI, Potsdam, Germany, 2019
“Vertical profile of BC microphysical properties observed during the PAMARCMiP 2018 experiment”
- 5) N. TAKEGAWA, T. SETO, N. MOTTEKI, M. KOIKE, N. OSHIMA, K. ADACHI, K. KITA, A. TAKAMI and Y. KONDO: the 18th Asian Chemistry Congress, The Taipei International Convention Center, Taiwan, 2019
“Enhanced New Particle Formation above the Marine 1 Boundary Layer over the Yellow Sea: Potential Impacts on Cloud Condensation Nuclei”
- 6) K. GOTO-AZUMA, Y. OGAWA-TSUKAGAWA, Y. KONDO, R. DALLMAYER, M. HIRABAYASHI, J. OGATA, K. KITAMURA, K. KAWAMURA, H. MOTOYAMA, S. MATOBA, M. KADOTA, T. AOKI, N. MOTTEKI, S. OHATA, T. MORI, M. KOIKE, Y. KOMURO, A. TSUSHIMA, N. NAGATSUKA, W. SHIGEYAMA, and K. FUJITA: AGU fall meeting, San Francisco, USA, 2019
“Variations of concentrations and sizes of black carbon particles in Northwest Greenland over the past 350 years.”
- 7) L. KARLAAON, R. KREJCI, M. KOIKE, K. EBELL, and P. ZIEGER: AGU fall meeting, San Francisco, USA, 2019
“Zeppelin Observatory on Svalbard”
- 8) 森樹大、近藤豊、P. R. SINHA、Y. ZHAO、小池真、B. ANDREWS、松井仁志、茂木信宏、大畑祥：

大気化学討論会、蒲郡市（2019）

「BarrowにおけるBC粒子の湿性沈着フラックスの季節変動」

- 9) 小池真、高橋暢宏、岩崎俊樹、伊藤健：大気化学討論会、蒲郡市（2019）
「航空機観測による気候・地球システム科学研究の推進：大型研究マスタープラン2020への提案」
- 10) 小池真、高橋暢宏、岩崎俊樹、伊藤健：日本雪氷学会・日本雪工学会共済 2019年雪氷研究大会、山形（2019）
「航空機観測による気候・地球システム科学研究の推進：大型研究マスタープラン2020への提案」
- 11) T. MORI, K. GOTO-AZUMA, Y. KONDO, Y. OGAWA-TSUKAGAWA, K. MIURA, M. HIRABAYASHI, N. OSHIMA, M. KOIKE, K. KUPIAINEN, N. MOTTEKI, S. OHATA, P. R. SHINHA, K. SUGIURA, T. AOKI, M. SCHNEEBELI, K. STEFFEN, A. SATO, A. TSUSHIMA, V. MAKAROV, S. OMIYA, A. SUGIMOTO and S. TAKANO: 日本地球惑星科学連合大会2019年大会、幕張メッセ（2019）
“Black carbon and inorganic aerosols in snowpack over the Arctic.”
- 12) 小池真：日本地球惑星科学連合大会2019年大会、幕張メッセ（2019）
「航空機観測による気候・地球システム科学研究の推進」
- 13) N. MOTTEKI: 日本地球惑星科学連合大会2019年大会、幕張メッセ（2019）
“The single-particle extinction and scattering method for online characterization of submicron particles: Principles and applications to aerosol research”
- 14) 小池真：エアロゾル・雲・降水の相互作用に関する研究集会、極地研（2019）
「直接観測による北極下層雲の微物理特性とエアロゾル影響評価」
- 15) 大畑祥、吉田淳、茂木信宏、足立光司、小池真：「航空機観測による気候・地球システム科学研究の推進」研究集会、東京大学（2018）
「北極におけるエアロゾル・雲の航空機観測」
- 16) K. GOTO-AZUMA, Y. OGAWA-TSUKAGAWA, Y. KONDO, R. DALLMAYR, M. HIRABAYASHI, J. OGATA, K. KITAMURA, K. KAWAMURA, H. MOTOYAMA, S. MATOBA, T. AOKI, N. MOTTEKI, S. OHATA, T. MORI, M. KOIKE, Y. KOMURO, A. TSUSHIMA, N. NAGATSUKA, W. SHIGEYAMA and K. FUJITA: The Ninth Symposium on Polar Science, National Institute of Polar Research, Tokyo, 2018
“Concentrations and size distribution of black carbon in Northwest Greenland during the past 350 years reconstructed from an ice core.”
- 17) T. MORI, K. GOTO-AZUMA, Y. KONDO, Y. OGAWA-TSUKAGAWA, K. MIURA, M. HIRABAYASHI, M. KOIKE, N. MOTTEKI, S. OHATA, N. OSHIMA, PUNA RAM, K. SUGIURA, T. AOKI, M. SCHNEEBELI, K. STEFFEN, A. SATO, A. TSUSHIMA, V. MAKAROV, S. OMIYA, A. SUGIMOTO and S. TAKANO: The Ninth Symposium on Polar Science, National Institute of Polar Research, Tokyo, 2018
“Black Carbon in Snowpack over the Different Regions in the Arctic”
- 18) M. KOIKE, S. OHATA, A. YOSHIDA, N. MOTTEKI and PAMARCMiP TEAM: Data meeting for PAMARCMiP2018, Universität Leipzig, Germany, 2018
“in situ measurements of low-level Arctic clouds, Microphysical properties and vertical structures”
- 19) S. OHATA, A. YOSHIDA, N. MOTTEKI, K. ADACHI and M. KOIKE: Data meeting for PAMARCMiP2018 Universität Leipzig, Germany, 2018
“Vertical profiles and surface concentrations of light-absorbing aerosols measured by SP2 and COSMOS”
- 20) Y. TOBO, N. MOTTEKI, K. ADACHI, S. OHATA, A. YOSHIDA, M. KOIKE and Y. KONDO: 10th International Aerosol Conference, Saint Louis, MO, USA, 2018
“Evaluation of immersion freezing properties of dark-colored particles under mixed-phase cloud conditions”
- 21) 當房豊、茂木信宏、足立光司、大畑祥、吉田淳、近藤豊、小池真：日本気象学会2018年度秋季大会（2018）
「黒い微粒子の氷核活性の評価」

- 22) T. MORI, K. GOTO-AZUMA, Y. KONDO, Y. OGAWA-TSUKAGAWA, K. MIURA, M. HIRABAYASHI, M. KOIKE, N. MOTEKI, S. OHATA, N. OSHIMA, PUNA RAM, N. OSHIMA, K. SUGIURA, T. AOKI, M. SCHNEEBELI, K. STEFFEN, A. SATO, A. TSUSHIMA, V. MAKAROV, S. OMIYA, A. SUGIMOTO and S. TAKANO: 第15回IGAC/第14回iCACGP国際会議 (2018)
“Black Carbon in Snowpack over the Different Regions in the Arctic”
- 23) M. KOIKE, J. UKITA, J. STRÖM, P. TUNVED, M. SHIOBARA, V. VITALE, A. LUPI, V. D. BAUMGARDNER, C. RITTER, O. HERMANSEN, K. YAMADA and C. PEDERSEN: 第15回IGAC/第14回iCACGP国際会議 (2018)
“Year-round in situ measurements of Arctic low-level clouds: Microphysical properties and relationship with aerosols”
- 24) 東久美子、塚川佳美、近藤豊、ダルマイヤー・レミ、平林幹啓、尾形純、北村亨太郎、川村賢二、本山秀明、的場澄人、門田萌、青木輝夫、茂木信宏、大畑祥、森樹大、小池真、小室悠紀、對馬あかね、永塚尚子、藤田耕史：雪氷学会 (2018)
「グリーンランド北西部のアイスコアを用いたブラックカーボンの高時間分解能解析」
- 25) 森樹大、東久美子、近藤豊、塚川佳美、三浦和彦、平林幹啓、小池真、茂木信宏、大畑祥、P. R. Sinha、大島長、杉浦幸之助、青木輝夫、Martin Schneebeli、佐藤篤司、對馬あかね、V. MAKAROV、大宮哲、杉本敦子、鷹野真也：エアロゾル学会 (2018)
「北極域における積雪中BCの粒径分布とBC堆積量の測定」
- 26) 大畑祥、吉田淳、茂木信宏、足立光司、小池真：日本地球惑星連合2018年大会 (2018)
「北極におけるエアロゾル・雲の航空機観測」
- 27) 森樹大、三浦和彦、大畑祥、茂木信宏、小池真、近藤豊、中込和徳、吉川昌範、岩崎綾：日本地球惑星連合2018年大会 (2018)
「東アジア下流域におけるブラックカーボン粒子の湿性沈着フラックスの季節変化」
- 28) N. OSHIMA and M. KOIKE: AMAP short-lived climate forcers (SLCF) expert group meeting, Helsinki, Finland, 2018
“Modeling studies of black carbon using a MRI Earth System Model”
- 29) Y. KONDO, P. R. SINHA, K. GOTO-AZUMA, Y. OGAWA-TSUKAGAWA, M. KOIKE, S. OHATA, N. MOTEKI, T. MORI, N. OSHIMA, E. J. FØRLAND, M. IRWIN, and C. PEDERSEN: ISAR 5, Tokyo, 2018
“Seasonal progression of the deposition of black carbon by snowfall at Ny-Ålesund, Spitsbergen.”
- 30) K. GOTO-AZUMA, Y. OGAWA-TSUKAGAWA, Y. KONDO, R. DALLMAYER, M. HIRABAYASHI, J. OGATA, K. KITAMURA, K. KAWAMURA, H. MOTOYAMA, S. MATOBA, M. KADOTA, T. AOKI, N. MOTEKI, S. OHATA, T. MORI, M. KOIKE, Y. KOMURO, A. TSUSHIMA, and N. NAGATSUKA: ISAR 5, Tokyo, 2018
“Variations of black carbon and dust in Northwest Greenland reconstructed by Continuous Flow Analysis of an ice core.”
- 31) Y. TOBO, K. ADACHI, N. NAGATSUKA, P. J. DEMOTT, T. C. J. HILL, S. OHATA, Y. KONDO, M. KOIKE: ISAR 5, Tokyo, 2018
“Seasonal differences in the concentrations of ice nucleating particles on Mt. Zeppelin in Ny-Alesund, Svalbard: A case study in 2016/2017.”
- 32) Y. TOBO, K. ADACHI, N. NAGATSUKA, P. J. DEMOTT, T. C. J. HILL, S. OHATA, Y. KONDO and M. KOIKE: AGU fall meeting, New Orleans, USA, 2017
“Enhanced concentrations of ice nucleating particles in Svalbard during summer: Possible linkage with local dust emissions.”
- 33) T. MORI, N. MOTEKI, S. OHATA, M. KOIKE and Y. KONDO: 2017 Symposium on Atmospheric Chemistry & Physics at Mountain Sites (ACPM 2017), Gotemba, Japan, 2017
“Observational study on wet removal process of black carbon particles in Tokyo and Okinawa”
- 34) M. KOIKE, Y. KONDO, K. GOTO-AZUMA, Y. OGAWA-TSUKAGAWA, P. R. SINHA, S. OHATA, N. MOTEKI, N. OSHIMA and H. MATSUI: AC3 workshop; Arctic snow and sea ice properties and interactions with the atmosphere, Bremerhaven, Germany, 2017

- “Black carbon in the Arctic: Observation and numerical model calculation.”
- 35) 吉田淳、大畑祥、茂木信宏、足立光司、森樹大、小池真、高見昭憲：大気化学討論会（2017）
「東アジア域における燃焼性酸化鉄エアロゾルの動態」
- 36) 當房豊、足立光司、P. J. DEMOTT, C. THOMAS、J. HILL、大畑祥、植竹淳、近藤豊、小池真：日本気象学会2017年度秋季大会（2017）
「スバル諸島・ニーオルスンでの氷晶核の計測：2016年7月の事例」
- 37) 大畑祥、茂木信宏、吉田淳、小池真、近藤豊：日本気象学会2017年度秋季大会（2017）
「東京都市大気における黒色酸化鉄の動態と発生源」
- 38) 當房豊、足立光司、植竹淳、T. C. J. HILL、P. J. DEMOTT、小池真：第34回エアロゾル科学・技術研究討論会、東京（2017）
「夏季のスバル諸島・ニーオルスンにおける氷晶核の計測」
- 39) Y. KONDO, P. R. SINHA, K. GOTO-AZUMA, Y. OGAWA-TSUKAGAWA, M. KOIKE, S. OHATA, N. MOTEKI, T. MORI, N. OSHIMA, E. J. FØRLAND, M. IRWIN and C. PEDERSEN: Open Science Workshop on PACES, Victoria, Canada, 2017
“Seasonal progression of the deposition of black carbon by snowfall at Ny-Ålesund, Spitsbergen”
- 40) Y. TOBO and M. KOIKE: JSPS Japan-Norway Symposium 'Past, Present, and Future of the Arctic and Antarctic', Bergen, Norway, 2017
“Challenges in understanding aerosol-cloud interactions in Svalbard”
- 41) A. YOSHIDA, N. MOTEKI, S. OHATA, K. ADACHI, T. MORI, M. KOIKE and A. TAKAMI: 日本地球惑星科学連合2017年大会, 2017
“Single-particle measurements of light-absorbing iron oxide aerosols and their radiative effects”
- 42) T. MORI, N. MOTEKI, S. OHATA, M. KOIKE and Y. KONDO: 日本地球惑星科学連合2017年大会, 2017
“Wet removal mechanisms of black carbon observed in Tokyo and Okinawa”
- 43) 大島長、田中泰宙、神代剛、吉村裕正、川合秀明、工藤玲、行本誠史、出牛真、小池真：日本地球惑星科学連合2017年大会（2017）
「気象研究所地球システムモデルによるブラックカーボンの空間分布と放射効果」
- 44) 大島長、田中泰宙、神代剛、吉村裕正、川合秀明、工藤玲、行本誠史、出牛真、小池真：日本気象学会2017年度春季大会（2017）
「気象研究所地球システムモデルの開発とブラックカーボンの空間分布と放射効果の評価」
- 45) K. GOTO-AZUMA, Y. OGAWA-TSUKAGAWA, Y. KONDO, R. DALLMAYER, M. HIRABAYASHI, J. OGATA, K. KITAMURA, K. KAWAMURA, H. MOTOYAMA, S. MATOBA, M. KADOTA, T. AOKI, N. MOTEKI, S. OHATA, T. MORI, M. KOIKE, Y. KOMURO, A. TSUSHIMA, N. NAGATSUKA, W. SHIGEYAMA and K. FUJITA: EGU meeting, Vienna, Austria, 2017
“Variations of concentrations and sizes of black carbon particles in Northwest Greenland over the past 350 years.”
- 46) S. OHATA, M. KOIKE, P. R. SINHA, N. MOTEKI, K. GOTO-AZUMA, Y. TSUKAGAWA, T. MORI, A. YOSHIDA, Y. TOBO and Y. KONDO: The 8th symposium on polar science, National Institute of Polar Research, Tokyo, 2017
“Long term and intensive measurements of black carbon aerosols in the Arctic.”
- 47) T. YAMANOUCI, T. TAKANO, M. SHIOBARA, H. OKAMOTO, M. KOIKE, J. UKITA: ASSW (Arctic Science Summit Week), Praha, Czech Republic, 2017
“Arctic Cloud Study at Ny-Ålesund, Svalbard in GRENE Arctic Climate Change Research Project”

(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

- 1) 日経新聞（2020年 1月6日、全国版「流体中のナノ・マイクロ粒子の物性・粒径分布の自動測定法を考案・実証」）
- 2) 日刊工業新聞（2020年 1月10日、全国版「微粒子の構成・濃度測定装置 安価で高い汎用性」
- 3) プレスリリース（2020年1月6日、「流体中のナノ・マイクロ粒子の物性・粒径分布の自動測定法」）
- 4) プレスリリース（2019年3月26日、「全球エアロゾル濃度を制御する「雨雲の過飽和度」の観測に成功」）
- 5) プレスリリース（2019年2月8日、「北極陸域から発生するダストが雲での氷晶形成を誘発する」）
- 6) プレスリリース（2018年4月23日「人間活動によって放出される鉄エアロゾルが多面的に気候へ影響を及ぼすことを発見」）（http://www.nagoya-u.ac.jp/about-nu/public-relations/researchinfo/upload_images/20180423_env_1.pdf）
- 7) プレスリリース（2018年8月30日「大気中のすす粒子による地球温暖化効果：個々の粒子の大きさや被覆量の違いを考慮する重要性を解明」）（http://www.nagoya-u.ac.jp/about-nu/public-relations/researchinfo/upload_images/20180831_env.pdf）
- 8) 日本経済新聞（2018年10月26日、全国版、29頁、「微粒子と温暖化の謎をとく」）
- 9) 成果の記者発表（2017年5月16日、於東京大学、「（人為起源の黒色酸化鉄粒子による大気加熱効果を発見）」）
- 10) 朝日新聞デジタル（電子版）（2017年5月17日「温暖化物質に新たな難敵 車から排出の酸化鉄が影響」）
- 11) 朝日新聞（2017年5月17日朝刊、7面「PM2.5の酸化鉄、新たな温暖化物質」）
- 12) 財経新聞（電子版）（2017年5月18日「大気中のマグネタイトが温暖化の一因？ 東大の研究」）
- 13) サイエンスポータル（電子版）（2017年5月18日「浮遊する黒色酸化鉄粒子が大気を加熱」）
- 14) 朝日小学生新聞（2017年5月23日朝刊、3面「微粒子に地球温暖化効果、東京大など発表」）
- 15) 毎日新聞（東京朝刊）（2017年5月24日朝刊、「空をただよう黒いつぶつぶ、新たな温暖化原因物質か？」）
- 16) 科学新聞（2017年5月26日、6面「人為起源の黒色酸化鉄、大気加熱する効果あり」）

(6) その他

特に記載すべき事項はない。

8. 引用文献

- 1) N. MOTEKI, K. ADACHI, S. OHATA, A. YOSHIDA, T. HARIGAYA, M. KOIKE, and Y. KONDO: Nature Comm., 8, 15329 (2017), Anthropogenic iron oxide aerosols enhance atmospheric heating.
- 2) N. MOTEKI, T. MORI, H. MATSUI and S. OHATA: npj Clim. Atmos. Sci, 2, 6 (2019), Observational constraint of in-cloud supersaturation for simulations of aerosol rainout in atmospheric models.

- 3) A. YOSHIDA, S. OHATA, N. MOTEKI, K. ADACHI, T. MORI, M. KOIKE and A. TAKAMI: J. Geophys. Res. Atmos., 123, 11194-11209. <https://doi.org/10.1029/2018JD028665> (2018), Abundance and emission flux of the anthropogenic iron oxide aerosols from the East Asian continental outflow.
- 4) S. OHATA, Y. KONDO, N. MOTEKI, T. MORI, A. YOSHIDA, P. R. SINHA and M. KOIKE: Aerosol Sci. Technol., 53.9. 1079-1091 (2019), Accuracy of black carbon measurements by a filter-based absorption photometer with a heated inlet.
- 5) S. OHATA, A. YOSHIDA, N. MOTEKI, K. ADACHI, Y. TAKAHASHI, M. KURISU and M. KOIKE: J. Geophys. Res. Atmos., 123, 8115-8134. <https://doi.org/10.1029/2018JD028363> (2018), Abundance of light-absorbing anthropogenic iron oxide aerosols in the urban atmosphere and their emission sources.
- 6) A. YOSHIDA, N. MOTEKI, S. OHATA, T. MORI, M. KOIKE, Y. KONDO, H. MATSUI, N. OSHIMA, A. TAKAMI, K. KITA: Submitted to Journal of Geophysical Research: Atmospheres. (2020), Abundances and microphysical properties of light-absorbing iron oxide and black carbon aerosols over East Asia and the Arctic.
- 7) N. OSHIMA, 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. doi:10.1029/2011JD016552 (2012), Wet removal of black carbon in Asian outflow: Aerosol Radiative Forcing in East Asia (A-FORCE) aircraft campaign.
- 8) Y. KONDO, N. MOTEKI, N. OSHIMA, S. OHATA, M. KIUKE, Y. SHIBANO, N. TAKEGAWA and K. KITA: J. Geophys. Res. Atmos., 121, 4691-4712, doi:10.1002/2015JD024479 (2016), Effects of Wet deposition on the abundance and size distribution of black carbon in East Asia.
- 9) P. R. SINHA, Y. KONDO, M. KOIKE, J. OGREN, A. JEFFERSON, T. BARRETT, R. SHEESLEY, S. OHATA, N. MOTEKI, H. COE, D. LIU, M. IRWIN, P. TUNVED, P. K. QUINN, and Y. ZHAO: J. Geophys. Res., 122, doi:10.1002/2016JJD025843 (2017), Evaluation of ground-based black carbon measurements by filter-based photometers at two Arctic sites.
- 10) N. MOTEKI, K. ADACHI, S. OHATA, A. YOSHIDA, T. HARIGAYA, M. KOIKE, and Y. KONDO: Nature Comm., 8, 15329 (2017), Anthropogenic iron oxide aerosols enhance atmospheric heating.

Ⅱ－２ エアロゾル化学組成と動態評価に関する研究

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

平成29年～令和元年度研究経費（累計額）：14,190千円（研究経費は間接経費を含む）
 （平成29年度：4,810千円、平成30年度：4,570千円、令和元年度：4,810千円）

[要旨]

アジアにおけるブラックカーボン・エアロゾル (BC) や酸化鉄 (FeO_x) の動態をエアロゾル全体の動態の中で理解するために、福岡県福岡市及び長崎県福江島においてエアロゾル質量分析計、走査型易動度粒径分布測定機などを用いて、大気中のエアロゾルの個数濃度及び化学組成を観測した。その結果福岡市における観測では直径100nm以下の超微小粒子の領域において、ローカルな排出の寄与が相対的に大きくなり、気象条件によっては粒子個数濃度が非常に高くなることを明らかにした。この原因として、中国での排出対策により越境大気汚染の日本国内への影響が相対的に小さくなってきたことが考えられる。黒色炭素の寄与はローカルな排出の影響のほうが福岡では大きいという結果が得られた。

長崎県福江島の観測では越境大気汚染に含まれる微小粒子状物質の主要な成分として硝酸イオンが観測された。硝酸イオンの硫酸イオンに対する割合の増加は、硫酸イオンが減少したため、大気中の余剰アンモニアがガス状硝酸と結合し硝酸アンモニウムを含む粒子が増加したことが要因として考えられる。

中国大陸における大気汚染物質の排出量は以前と比べ量（質量濃度）も質（化学組成）も変化しているため、排出量を準リアルタイムでモニターしておかなければ、アジア域の排出が北極域など遠方に及ぼす影響を推計する際に大きな誤差要因になる可能性がある。

AERONET放射計とSKYNET放射計観測を比較した結果、エアロゾルの光学的厚み（AOD）は、AERONETとSKYNETとは良く一致していた。一方、光吸収エアロゾルの光学的厚み（AAOD）と単一散乱アルベド（SSA）の値はSKYNETでの吸収が大きく見積もられ、2つの観測で相関がほとんど見られなかった。放射観測のAAODやSSAは、地上でのBC質量濃度との対応もあまり見られなかった。このようにBCによる光吸収については、中緯度地域においても不確定性が大きいため、今後不確定性を減らすための、観測精度向上が必要であることが確認された。

【キーワード】

福岡、福江、エアロゾル質量分析計、個数濃度、化学組成変化

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。本研究課題全体の大きな目的は観測と数値モデル計算により、北極とそれを含むグローバルなBCとダスト（酸化鉄）粒子の動態とその放射効果を定量化することである。その枠組みの中で、本サブテーマでは、BCなど大気汚染物質の一大排出源となっているアジア地区においてその動態を調べ、観測されたデータをモデルの検証等に提供することによりその影響を評価する。

我々は2010年代の初めから長崎県福江島及び福岡県福岡市において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。近年中国は大気汚染物質の排出抑制に成功しており、二酸化硫黄、窒素酸化物などの排出量が削減されている。大陸に近い九州北部地区において大気汚染物質の観測を行い、越境大気汚染とローカルな発生源による国内大気質への影響について解析を行う必要があるとともに、中国での排出量変化に対する越境大気汚染の変化もモニターする必要がある。

2. 研究開発目的

長崎県福江島及び福岡県福岡市においてエアロゾルの観測を実施し、アジア地区における粒子状物質やガス状物質などの化学組成を明らかにする。また、近年のアジアにおける大気汚染物質の動態を解析する。

3. 研究開発方法

（1）福岡での観測

大陸に近い九州北部の福岡県福岡市において大気汚染物質の観測を行い、福岡市のローカルな大気質に与える越境大気汚染の影響について解析を行う。

福岡県福岡市の福岡大学理学部18号館4階において、エアロゾル質量分析計（Quadrupole type Aerosol mass spectrometer：Q-AMS）を設置し、600℃で蒸発する硫酸アンモニウム、硝酸アンモニウム、有機物などを測定した¹⁾。同時に走査型易動度粒径分布測定機（Scanning Mobility Particle Sizer：SMPS）によって、大気中を浮遊する微小粒子の粒径分布を測定した。測定期間は平成30年1月20日から2月10日であった。

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℃に加熱した蒸発器に衝突し、600℃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。

粒子の個数計測には静電分級機と凝縮型粒子個数計測器から構成されるSMPSを用いた。Q-AMSと同じ配管から1/4インチ銅管でSMPSのインパクターに接続し、粗大粒子を除いて粒径分布を測定した。測定範囲は10nmから500nmであり、約3分間隔で測定を行った。

ガス成分については市販のオゾン計、一酸化炭素(CO)計(Thermo)、窒素酸化物(NOx)計(堀場)の計測器を用いて観測を行った。BCについては産業総合技術研究所のエアサロメータのデータを利用した。

(2) 長崎福江島における観測

長崎県福江島において、アジア大陸からの越境大気汚染が卓越する春季(平成31年度4月)に観測を行い、越境輸送される粒子の化学組成について解析を行った。観測場所は長崎県福江島にある国立環境研究所の観測施設において行った。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²⁾。ACSMによるエアロゾル計測では、PM2.5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。

粒子の個数計測には静電分級機と凝縮型粒子個数計測器から構成されるSMPSを用いた。独自の配管から1/4インチ銅管でSMPSのインパクターに接続し、粗大粒子を除いて粒径分布を測定した。測定範囲は10nmから600nmであり、約10分間隔で測定を行った。福岡での観測同様ガス成分の観測も行った。PM2.5質量濃度については、五島市の常時監視局の公開データを用いた。福江観測所では同じ敷地内で千葉大学などによる放射計測も行われており、そのデータも一部利用した。

4. 結果及び考察

(1) 福岡での観測

図4.2.1にQ-AMSの測定結果を、図4.2.2にSMPSの測定結果を示す。Q-AMSの観測では、1月23日午前3時20分に $89 \mu\text{g m}^{-3}$ という高濃度が観測されたが、それは1時間程度継続しただけなので、ローカルな発生源からの排出をとらえたものと思われる。観測期間中、粒子濃度の増減が繰り返し起きていた。特徴としては、硫酸イオンと同時に硝酸イオンも濃度が高くなっており、一部都市大気の特徴が示されていると考えられる。

SMPSの測定結果では、直径20–40nmの粒子個数濃度(以下PN20_40)の増減が観測された。この期間中では1月20日から22日、1月27日前後、1月31日から2月3日、2月7日から2月10日までの期間でPN20_40、すなわち超微小粒子が増加していた。一方でそれ以外の期間、例えば、1月23日から26日までの期間では、PN20_40の個数濃度は相対的に低かった。図4.2.3に風向風速とCO、オゾンの濃度変動を示す。特徴的な例として、PN20_40の個数濃度が相対的に高かった1月20日から22日は、東寄りの風が卓越しているが日中は変動が大きく風向は定まっていなかった。その期間の風速はほぼ 1ms^{-1} と相対的に弱かった。そして、日中オゾン濃度(混合比)は上昇し夜間は減少するという日変化を示した。さらにCOは朝のラッシュアワーで濃度が上昇し、日中は低下するという変動を示した。一方で、PN20_40の個数濃度が相対的に低かった1月23日から26日は、北西風が卓越しており、風向は相対的に一定である傾向を示した。その期間の風速は 5ms^{-1} と超える期間もあり相対的に風速が大きかった。日中オゾン濃度(混合比)は40ppbv程度を維持している期間が続き、1月20日から22日のような典型的な日変化は示さなかつ

た。COも同様に1月23日の午後あたりからは0.2ppmv程度の値を維持しあまり大きな変動は示さなかった。このような傾向は、この観測期間で交互にあらわれ、PN20_40の個数濃度の増減と、上で述べたような風向風速及びオゾンやCOの濃度変動が一致していた。福岡大学において産業総合技術研究所がエアロメータで測定しているBCのデータによると、PN20_40やCOと同じような濃度変動をしており、すなわち、風速の弱い、午前中（6-12時ごろ）にしばしば相対的に高い濃度が観測されており、1月20日から22日のBCの平均値は 435ngm^{-3} であった。一方風速の弱い1月23日から26日までのBC濃度は 221ngm^{-3} であった。BCについては時折 $1\mu\text{gm}^{-3}$ をこえる濃度を記録することもあり、風速が弱い時にはBC濃度が蓄積し相対的に高濃度になると考えられる。

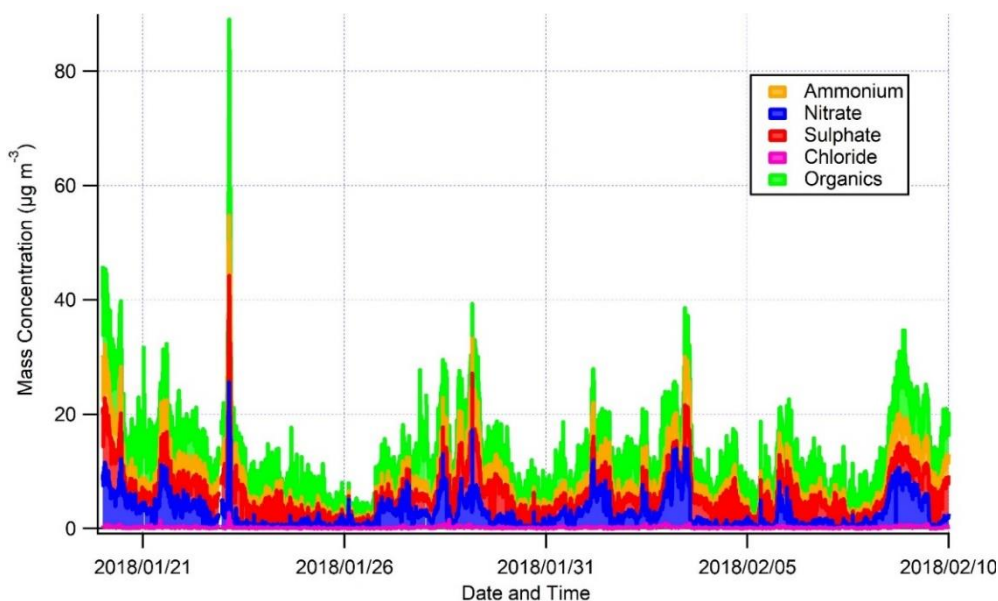


図4.2.1 福岡におけるAMSで測定した化学成分濃度：

青：硝酸イオン、赤：硫酸イオン、緑：有機物、黄土色：アンモニウムイオン

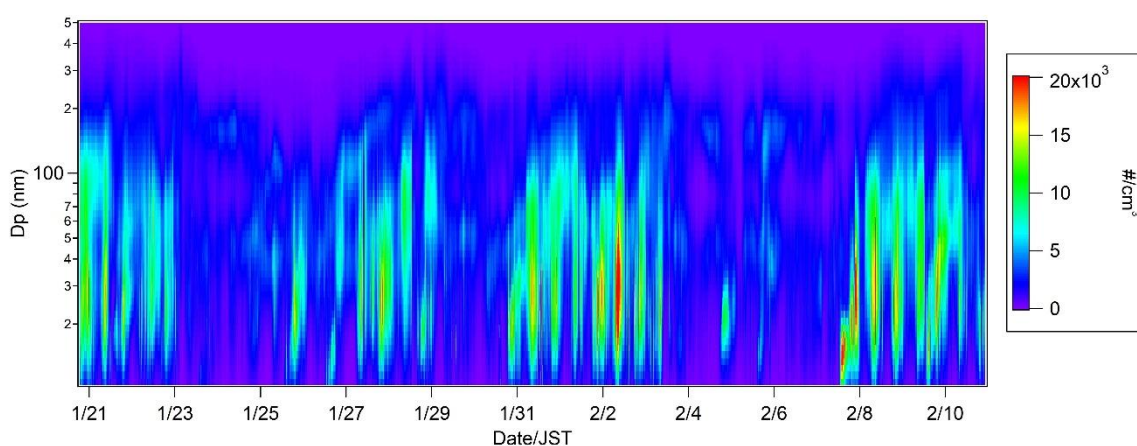


図4.2.2 SMPSで測定した微小粒子の粒径分布：縦軸は粒子直径、横軸は日時、色は個数濃度

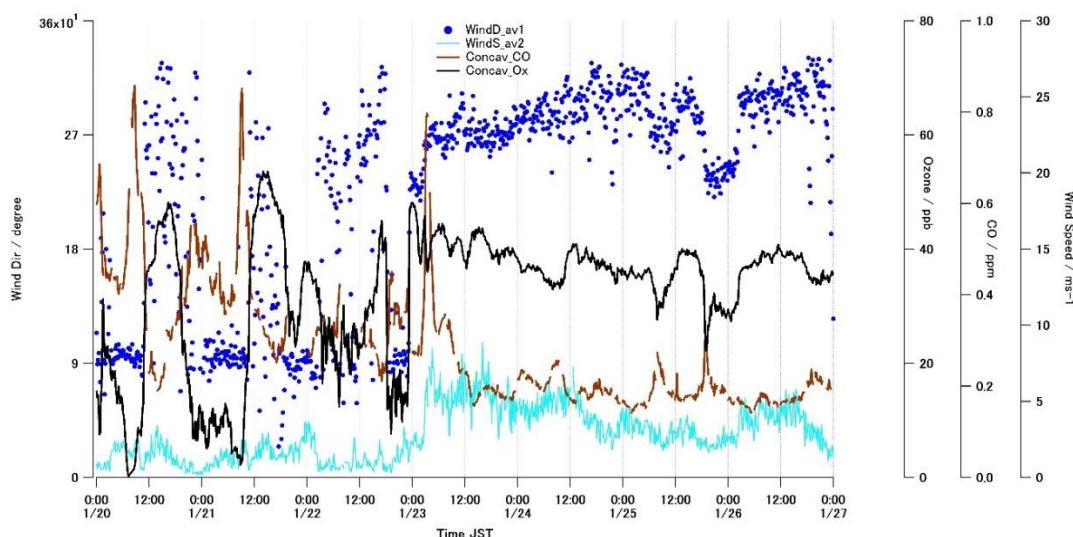


図4.2.3 CO（茶色線）、オゾン（黒線）の変動と、風向（青丸）風速（水色線）の変動

Q-AMSで観測される、硫酸イオン、硝酸イオン、有機物の濃度増減も、CO、BCと類似しており、傾向としては、風速の弱い場合に濃度が高くなる傾向がある。しかし、COなどガス状物質のような明らかな相関関係は観測されなかった。今回はPN20_40の増減が明瞭に観測されたが、この領域の粒子の質量濃度は、例えば直径20nmと200nmの粒子の質量を比べると両者は $10^3=1000$ 倍の違いがあるように、あまり質量濃度には寄与しない。Q-AMSではPN20-40の粒子の質量濃度は粒子透過率の問題もあり測定が難しい。したがって、COなどガス状物質程明らかな相関は見られていないと考えられる。このことから、都市大気では粒子状物質の粒子個数濃度の測定は重要と考えられる。

当然ではあるが、風速が小さいと空気塊の滞留が滞留し、都市大気の影響を大きく受ける。一方で風速が大きいと空気塊の入れ替わりが激しく、あまり都市大気の影響を受けない。NO_x濃度や日射量データを環境省や気象庁が公開しているデータから入手し、上記傾向と整合的かを見てみると、整合的であった。風速の弱い気象条件の場合に、都市大気の排出が相対的に大きく寄与しており、PN20_40の増加が起きると考えられる。

気象庁の日々の天気を参考にすると、1月22日には高気圧が中国大陸の上であり、前線を伴う低気圧が九州の南岸を東に移動していた。そして1月23日には低気圧が日本の東海上まで進み、高気圧が東シナ海上に進んできた。これは典型的な大陸からの季節風が吹くパターンであり、大陸の影響を受けていると考えられる。図4.2.4にHYSPLITモデルによる福岡を起点とした後方流跡線解析を計算すると、空気塊は1月22日までは九州付近を滞留していたが、1月23日以降は中国大陸北東部から朝鮮半島を經由して福岡に到達していたことがわかった。このことから1月20日から22日の期間は福岡の都市ローカル起源の大気汚染が主に大気質に影響を及ぼし、1月23日から26日の期間は越境大気汚染の影響が大きかったと考えられる。繰り返しになるが、BCに関しては1月20日から22日の平均値は 435ngm^{-3} であり、1月23日から26日までのBC濃度は 221ngm^{-3} であったので、福岡の大気質に与える影響としてはBCに関してはローカルな排出の寄与が相対的に大きいと考えられる。

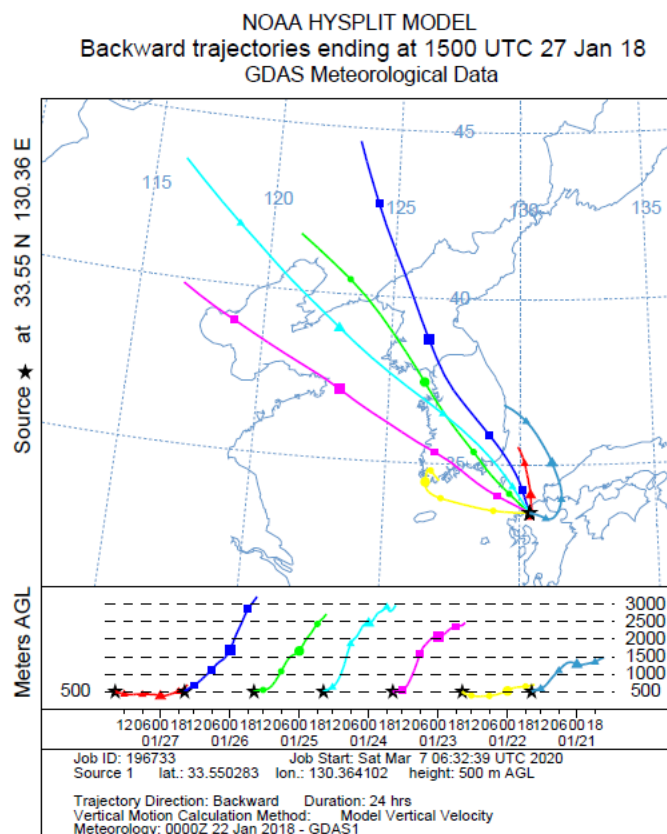


図4.2.4 HYSPLITモデルによる福岡を起点とした後方流跡線解析の計算

(2) 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2019年4月にACSMを用いた観測を行った。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4.2.5)。ACSMの測定では、過去の測定同様、主要成分は有機物、硝酸イオン、硫酸イオンであった。4月14日には非常に高濃度であるが短時間(30分程度)の有機物のピークを観測しているがこれは局所的な排出を観測したものと思われる。同時に4月13日から15日には有機物が相対的に高濃度になっていた。4月2日、7日、8日には硝酸イオンの小さなピークを観測し、4月5日から7日にかけて非常に高濃度の硝酸イオンを観測した。また、4月17日以降は硫酸イオンと有機物が相対的に高濃度を維持していた。

図4.2.6にはSMPSで測定した粒子の個数濃度の時間変化を示す。4月2日、4日、13日、15日に新粒子生成のような、いわゆるバナナカーブが観測された。ただSMPSの測定限界が約直径(D_p) 15nmであるため、福江島の観測所付近で新粒子生成が起きているのか、少し離れた場所で新粒子生成が起きているかは不明である。過去の類似の観測では、直径数nmの粒子も観測されているが直径10nm程度の粒子が突然観測されバナナカーブを示す場合もあるため、両方の可能性がある。

4月2日、4日では硝酸イオンが主成分であり、4月13日は有機物、4月15日は硫酸イオンがそれぞれ主成分であった。ACSMは直径70nmより大きい粒子に感度があるため、この数十nm程度の粒子の主成分は不明である。一方で同時期には直径70nmから200nm程度の粒子の個数濃度も高いため、ACSMでの観測はこれらの粒子の化学組成を反映していると思われる。

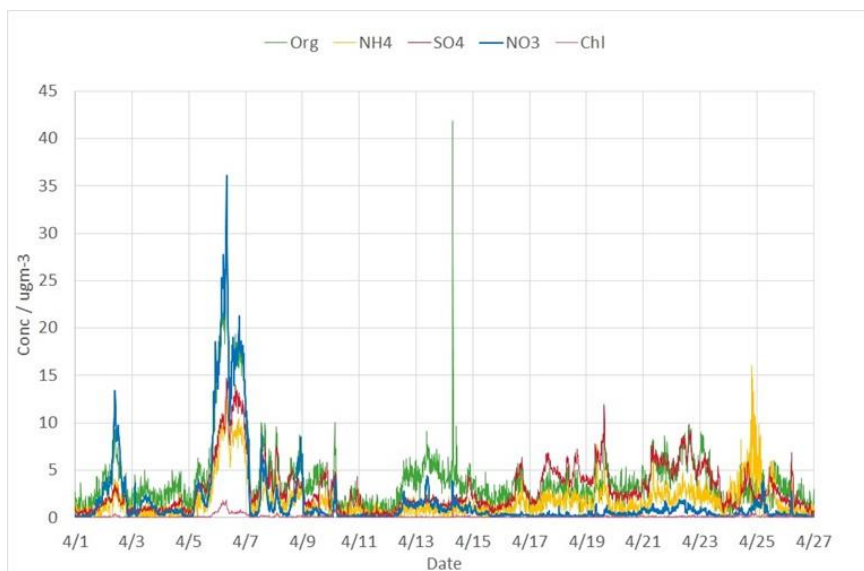


図4.2.5 大気エアロゾルの化学組成濃度の時間変化

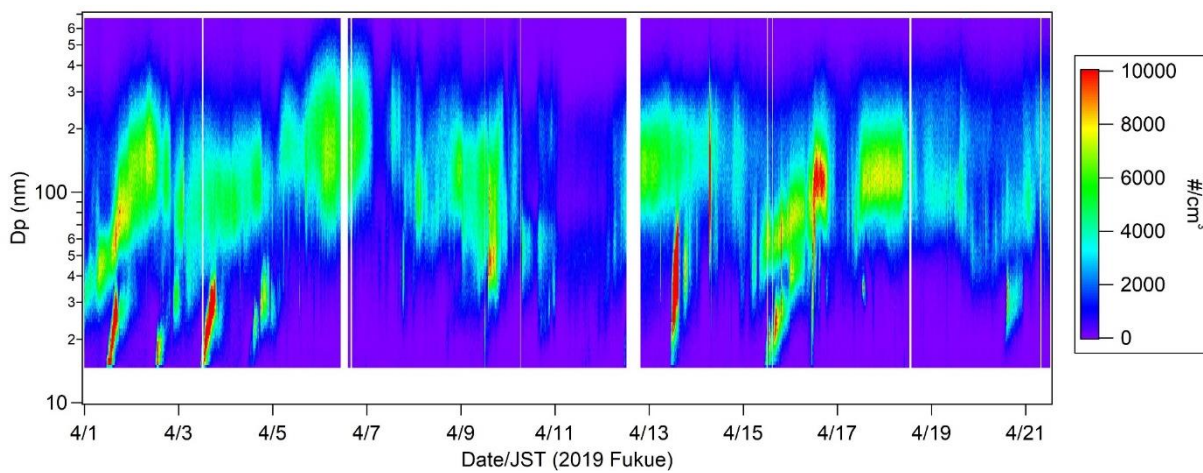


図4.2.6 大気エアロゾルの個数濃度の時間変化

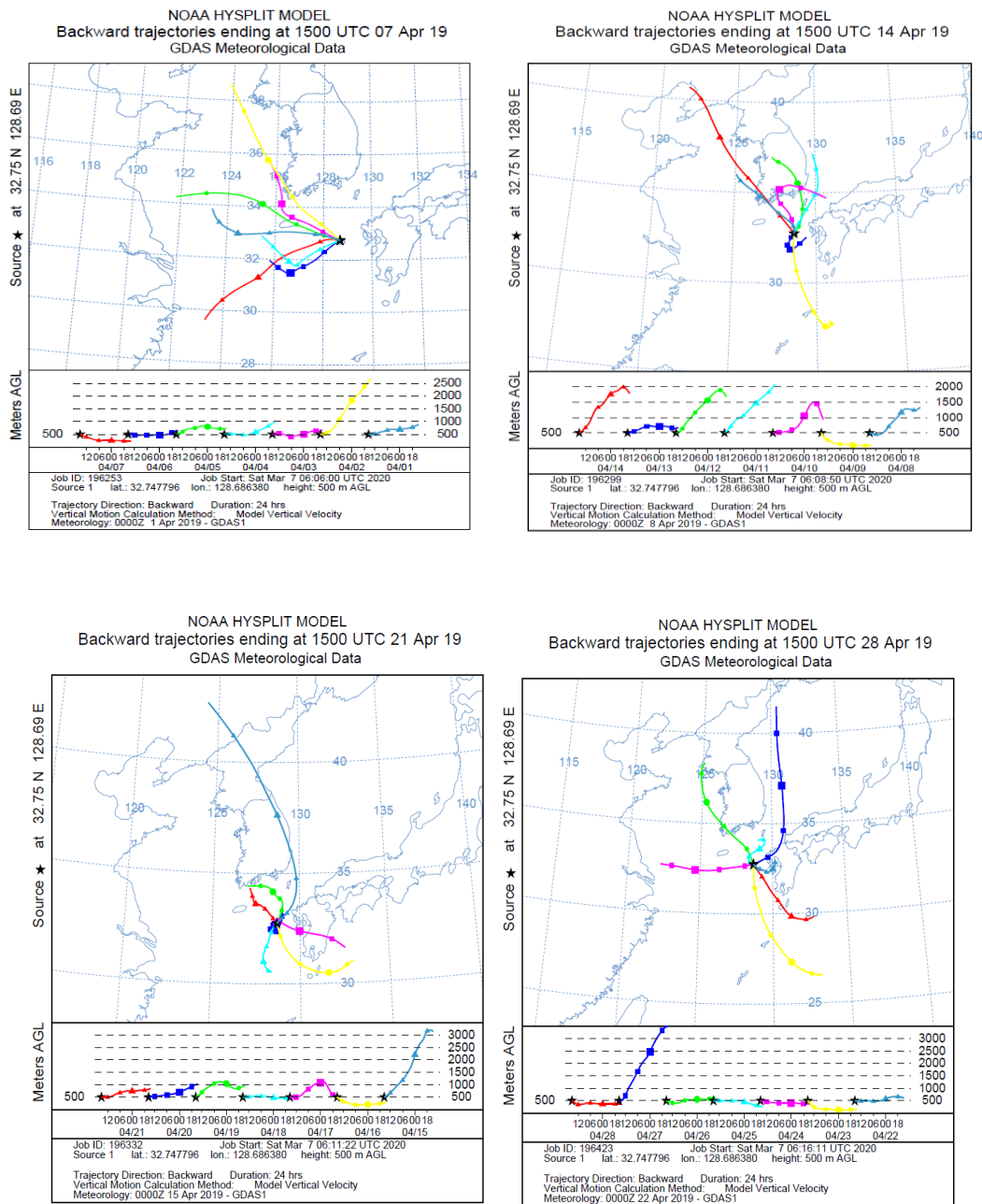


図4.2.7 2019年4月の週ごとの後方流跡線解析の計算結果

左上：第1週、右上：第2週
 左下：第3週、右下：第4週

図4.2.7に後方流跡線の計算結果を示す。4月第1週目では4月2日のみ高高度から空気塊が降下しており、中国大陸から飛来したと考えられる。4月第2週目では4月13日は福江島近辺で空気塊が滞留しており、ローカルな影響が大きいとされる。一方で4月15日になると韓国や中国大陸から高高度で空気塊が飛来してきており、この時は大陸由来の大気汚染が飛来したと考えられる。

これまでの我々の長崎福江での観測では、越境大気汚染の影響があるとき、すなわち中国大陸から冬場に空気塊が飛来する場合は、硫酸イオンが主な成分であった。しかし、今回の福江島の観測では、

中国大陸から空気塊が来ているとき、例えば4月2日では硝酸イオンが相対的に硫酸イオンより濃度が高くなっている。4月6日なども硝酸イオン濃度が高いが、中国大陸の東シナ海沿岸部付近から飛来してきている。また、4月15日から23日までは硝酸イオン濃度が低く、硫酸イオン濃度が相対的に高い状況が続いているが、後方流跡線解析では4月15日以外は中国大陸から空気塊が来ているとはいえない状況であった。長崎福江島は人口およそ3万人程度であり、ローカルな発生源は自動車、野焼きなどであり、大規模な石炭燃焼などはなく二酸化硫黄の大規模発生源はない。これまでの、硫酸イオン濃度が高いときは中国大陸由来で、硝酸イオン濃度が高いときはローカルな発生という発生源の類型は適用できず。中国から飛来してきている場合でも、国内発生源とあまり変わらない硝酸イオン濃度が主成分の場合がしばしばみられる。さらに、日本国内から飛来してきている場合でも、火山噴火の影響がしばしばみられ、一時的に硫酸イオン濃度が高くなることもある。

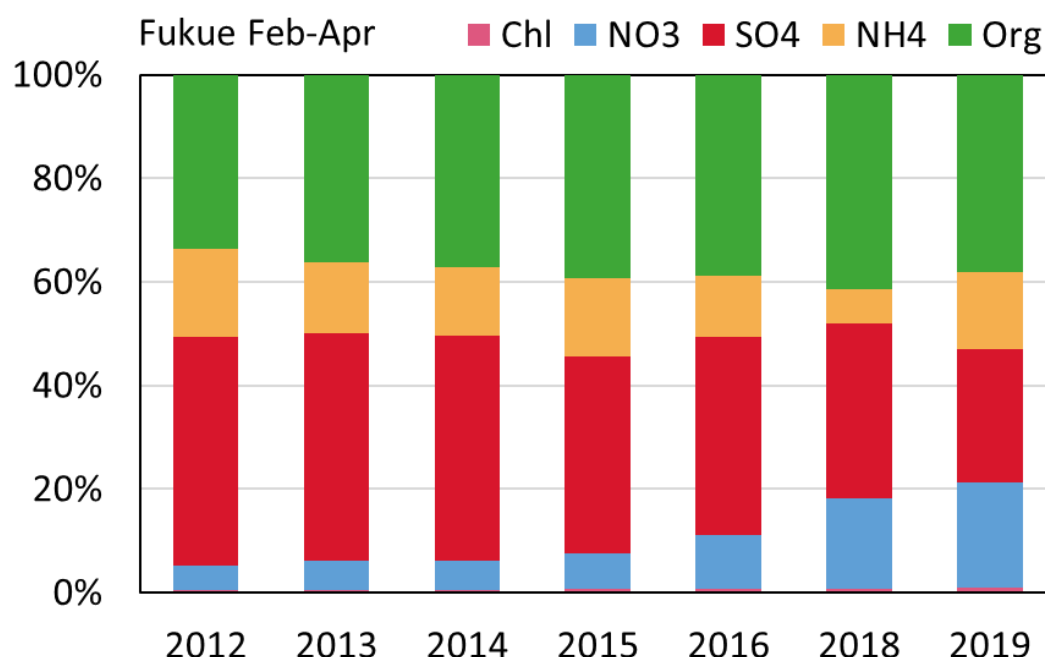


図4.2.8 福江島でのACSMによる微小粒子状物質の化学組成の割合の変化

図4.2.8に我々がこの5年程度ACSMを用いて長崎福江島で微小粒子を観測した結果を示す。結果は割合のみ示している。これを見ると相対的に硝酸イオン濃度の割合が高くなってきていることがわかる。中国では2017年をめぐりに、中国の主要都市のPM2.5を削減する目標をたて実行されてきた。日本国内でもPM2.5の環境基準達成率は80%を超え、中国の削減努力の影響が一因という考え方も出てきている。ここには示さないが、長崎福江島でのライダー観測でも、微小球形粒子は2006年以降減少傾向にある。これらを勘案すると、中国でのPM2.5削減はかなりの程度すすんでおり、その結果従来型の石炭燃焼などによる二酸化硫黄の発生が減り、相対的に自動車など石油燃焼起源の窒素酸化物の排出が増えたものと思われる。近年窒素酸化物も減少傾向にあるという報告もあるが、施肥等のためのアンモニアが増加しているという報告もあるため、硫酸イオンが減りアンモニアが過剰になったため、大気中で余剰アンモニアとガス状硝酸が反応し、硝酸イオンを含む粒子が相対的に増えたということが考えられる。ただ現状排出インベントリなどがあまり整備されておらず、今後のデータ整備により、より詳細な検討が可能になると思われる。

このように、中国大陸における大気汚染物質の排出量は以前と比べ量（質量濃度）も質（化学組成）も変化しているため、GOSAT-2などのような衛星を用いて、中国でのBCを含む大気汚染物質の排

出量を準リアルタイムでモニターしておく必要がある。特に、北極域など遠方におけるアジア域での排出の影響を推計する場合には、アジア域での排出量推計の変動は、影響評価にとって大きな誤差要因になる可能性がある。このような意味でも、例えばCOSMOSのようなBCの標準的な機器による観測と、データ収集は重要である。

(3) 放射観測の結果（千葉大などの結果を引用）

サブテーマ1と共同で、2019年の4月に福江島観測所にAERONET放射計（米国NASAが主催する放射計のネットワーク）を設置し、BC及び酸化鉄の観測に同期して、放射観測を実施した。福江島観測所の既存のSKYNET放射計観測（千葉大が主催する放射計のネットワーク）との比較を実施した。その結果、

- ✓ エアロゾルの光学的厚み（AOD）は、AERONETとSKYNETとは良く一致していた。（図4.2.9）
- ✓ 一方、光吸収エアロゾルの光学的厚み（AAOD）と単一散乱アルベド（SSA）の値は、SKYNETでの吸収が大きく見積もられ、また2つの観測で相関がほとんど見られなかった。（図4.2.10）
- ✓ 放射観測のAAODやSSAは、地上でのBC質量濃度との対応もあまり見られなかった。（図4.2.11）

（図4.2.9、4.2.10には例としてAAODの結果のみを示した）

このようにBCによる光吸収については、中緯度地域においても不確実性が大きいため、今後不確実性を減らすための、観測精度向上が必要である。

なお、AERONET放射計データは近畿大学佐野准教授に、SKYNET放射計データは千葉大・入江准教授に提供いただいた。

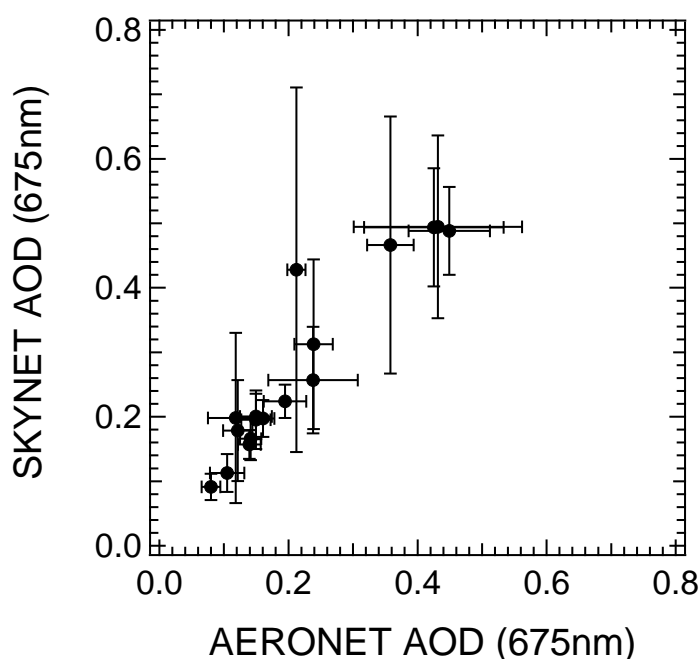


図4.2.9 エアロゾルの光学的厚み（AOD : Aerosol Optical Depth）

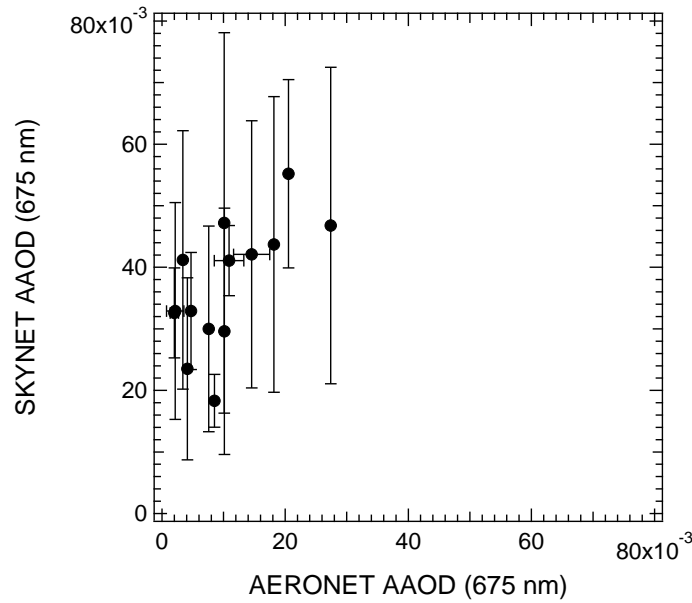


図4.2.10 光吸収エアロゾルの光学的厚み
(AAOD : Absorption Aerosol Optical Depth)

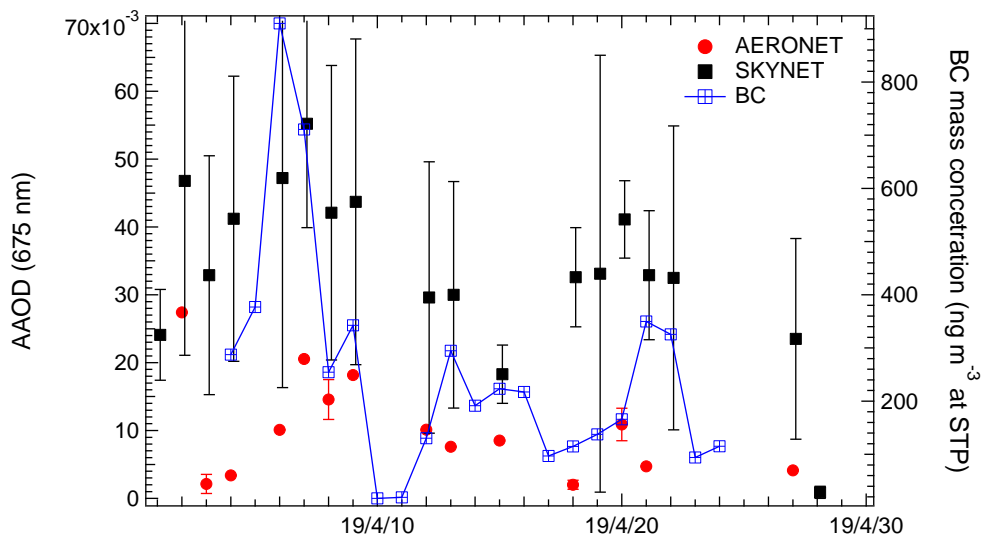


図4.2.11 光吸収エアロゾルの光学的厚み
(AAOD : Absorption Aerosol Optical Depth)
(BC質量濃度との比較)

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

これまで粒子状物質、特にPM2.5の環境基準は質量濃度で決められてきたが、今回粒子個数濃度を測定することにより、質量濃度測定ではあまり感度がない領域（100nm以下の微小粒子の領域）において、ローカルな排出の寄与が相対的に大きくなり、気象条件によっては粒子個数濃度が非常に高くなることを明らかにした。

この原因として、中国での排出対策により二酸化硫黄など大気汚染物質の排出が抑制され、越境

大気汚染の日本国内への影響が相対的に小さくなってきたことが考えられる。今回の観測でも、BCの寄与はローカルな排出の影響のほうが福岡では大きいという結果が得られた。

さらに越境大気汚染に含まれる微小粒子状物質（PM_{2.5}など）の主要成分が硫酸イオンから硝酸イオンに変化している。これは、窒素酸化物の排出が以前（15年程度前）に比べ増加していることが一因としてある。その一方でここ数年では中国における窒素酸化物の排出は減少傾向にあるとされているため、硝酸イオンの硫酸イオンに対する割合の増加は、硫酸イオンが減少したため施肥などによるアンモニアの排出が増え過剰になったので、大気中の余剰アンモニアがガス状硝酸と結合し硝酸アンモニウムを含む粒子が増加したことが要因として考えられる。

このように、中国大陸における大気汚染物質の排出量は以前と比べ量（質量濃度）も質（化学組成）も変化しているため、GOSAT-2などのような衛星を用いて、中国でのBCを含む大気汚染物質の排出量を準リアルタイムでモニターしておかなければ、北極域など遠方におけるアジア域での排出の影響推計にとって大きな誤差要因になる可能性がある。

（2）環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

平成29年、令和31年度（令和元年度）に韓国環境省主催の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、中国韓国の研究者とともに議論した。

<行政が活用することが見込まれる成果>

「特に記載すべき事項はない。」

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) A. YOSHINO, A. TAKAMI, K. MISAWA, M. HAYASHI, K. HARA, C. NISHITA, N. KANEYASU, T. SETO, S. HATAKEYAMA: Proceedings of the 20th International Conference on Nucleation and Atmospheric Aerosols, PS1-36 (2017), Analysis of aerosol chemical composition measured at urban and rural sites in Japan.
- 2) A. YOSHIDA, S. OHATA, N. MOTOKI, K. ADACHI, T. MORI, M. KOIKE and A. TAKAMI, J. Geophys. Res.: Atmosphere, 10.1029/2018JD28665 (2018), Abundance and Emission Flux of the Anthropogenic Iron Oxide Aerosols From the Eastren Asian Continental Outflow.
- 3) I. CHANDRA, T. SETO, Y. OTANI, Y. INOMATA, N. HAMA, A. YOSHINO, A. TAKAMI and N. TAKEGAWA, Tellus B: Chemical and Physical Meteorology, DOI: 10.1080/16000889.2018.1498688 (2018), Current situation of atmospheric nanoparticles in Fukue Island, Japan.

<その他誌上発表（査読なし）>

- 1) 高見昭憲、吉野綾子、現代化学 2019年4月号, 52-55 (2019)
「PM_{2.5}と大気汚染」

(2) 口頭発表 (学会等)

- 1) A. TAKAMI, A. YOSHINO, M. HAYASHI, K. HARA, C. NISHITA, N. KANEYASU, S. HATAKEYAMA:
Asian aerosol conference 2017 (2017)
一般演題「Analysis of aerosol chemical composition measured at urban and rural sites in Japan」
- 2) 吉野彩子、高見昭憲、三澤健太郎、小島知子、原圭一郎、西田千春、林政彦、兼保直樹、畠山史郎、山本重一、鶴野伊津志：第58回大気環境学会年会 (2017)
一般演題「福岡および熊本における大気中微小粒子状物質の化学成分の観測」
- 3) A. TAKAMI, A. YOSHINO: International Symposium on continuously improvement of air quality: science, technology and policy, 2017 annual meeting of Association of Atmospheric Environment, Chinese Society for Environmental Sciences (2017)
“Simultaneous measurements of aerosol chemical composition at three sites in Japan”
(招待講演)
- 4) 高見昭憲、吉野彩子、林政彦、西田千春、原圭一郎、兼保直樹：第35回エアロゾル科学技術討論会 (名古屋大学) (2018)
「冬季国内都市部における粒子個数濃度の変動に関する研究」
- 5) A. YOSHINO, A. TAKAMI, M. HAYASHI, C. NISHITA, K. HARA, N. KANEYASU, IGAC2018, Takamatsu, Japan, 2018
“Variation of particle numbers in the urban area for winter period”

(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) 国立研究開発法人国立環境研究所 夏の一般公開 (主催：国立研究開発法人国立環境研究所、平成29年4月22日、研究所内、来場した約100人)にて研究紹介
- 2) 国立研究開発法人国立環境研究所 夏の一般公開にて研究紹介 (主催：国立研究開発法人国立環境研究所、平成30年7月21日、研究所内、来場した約100人)
- 3) 高見昭憲、市民公開講座・大気エアロゾルの環境管理・改善に関する研究最前線 (名古屋大学) (2018) PM_{2.5}や黄砂が及ぼす心臓などへの健康影響について
- 4) 小倉高校での研究紹介。2019年1月12日。生徒約30名に対し、PM_{2.5}及び越境大気汚染の影響について解説した
- 5) 伊那北高校での研究紹介。2020年2月26日。生徒13名先生2名に対し、PM_{2.5}及び越境大気汚染の影響について解説した。

(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) 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.
- 2) Ng, N.L. et al.: Aerosol Science and Technology, 45, 770-784 (2011), An Aerosol

Chemical Speciation Monitor (ACSM) for Routine Monitoring of the Composition and Mass Concentrations of Ambient Aerosol.

Ⅱ－３ エアロゾル組成分析と気候モデルによる評価

国土交通省気象庁気象研究所

全球大気海洋研究部第三研究室

大島 長

全球大気海洋研究部第三研究室

足立 光司

平成29年～令和元年度研究経費（累計額）：22,230千円（研究経費は間接経費を含む）

（平成29年度：7,020千円、平成30年度：7,410千円、令和元年度：7,800千円）

〔要旨〕

（１）エアロゾルの電子顕微鏡分析

本サブテーマ課題では、北極、福岡、福江島で観測を行い、電子顕微鏡を用いた個別粒子分析を行った。特に、電子顕微鏡を用いた測定では、組成と形態分析から本研究の対象である酸化鉄ダストとブラックカーボンの分析が可能であり、本研究でもそれらの混合状態や存在量の把握を行った。その結果、中国からの越境汚染を含むエアロゾル試料では、多くのブラックカーボンが硫酸塩等と内部混合していることが明らかとなった。また、酸化鉄もナノ粒子の凝集体として存在することが分かった。また、北極の上空でも、人為由来である凝集酸化鉄が個数濃度で0-3パーセント見つかかり、これらの粒子が極域においても放射などに重要な役割を果たしている可能性を示唆した。これらの当初の計画に沿った成果に加えて、北極の気候にも大いに寄与する森林火災由来の光吸収性粒子の生成メカニズムの解明や、北極での氷河ダスト由来の氷晶核形成メカニズムの解明などの成果もあった。これらの観測成果は、北極での気候変動の理解に貢献する発見であり、今後の気候変動予測をするうえで重要な要素となることが予測される。

（２）気候モデルによる評価

従来の気候モデルに数多くの改良を実施することで、第6期結合モデル相互比較計画（CMIP6）に向けた新しい気象研究所地球システムモデル（MRI-ESM2）を開発した。現在気候におけるMRI-ESM2の再現性を検証するために、近年（2008-2015年）を対象としたモデル計算結果と観測結果を比較したところ、従来のモデル計算では、北極域で観測された大気中ブラックカーボン濃度を過小評価し季節変化を再現できなかったのに対し、MRI-ESM2計算では、北極域でのブラックカーボン濃度の季節変化の再現性が大きく向上した。この結果は、北極域でのブラックカーボン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。MRI-ESM2による産業革命前から現在まで（1850-2014年）の歴史実験計算の再現性を検証するために、グリーンランドにおけるアイスコア観測により得られたブラックカーボン濃度との比較をしたところ、CMIP6排出量を用いた歴史実験計算は20世紀前半の濃度増大を再現できなかったが、その他の期間については再現性を確認することができた。産業革命前から現在までの北極域におけるブラックカーボンの沈着量と大気上端におけるブラックカーボンの瞬時放射強制力は、1950年頃から増大をはじめ、1980年頃に最大であった。2000年以降においても、北極域でのブラックカーボンの瞬時放射強制力は増加傾向を示しており、2010-2014年平均値で 0.17 W m^{-2} と推定された。またMRI-ESM2では、従来の気候モデルと比べて、産業革命前から現在までの全球平均の地上気温変化の再現性が向上した。これらの結果は、気候モデルによる北極域におけるブラックカーボンの気候影響評価を今後も継続して実施する必要があることを示唆している。

〔キーワード〕

ブラックカーボン、放射強制力、気候モデル、電子顕微鏡、凝集酸化鉄

1. はじめに

気候強制力因子のうち、ブラックカーボンは、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（産業革命前に対する現在の全球平均推定値）を持つ可能性が指摘されている¹⁾。また近年急速に温暖化が進行している北極域においては、ブラックカーボンによる放射効果が北極域の温暖化を促進させている可能性が指摘されている²⁾。このため、IPCCや北極評議会において気候強制力因子に関する評価報告書がまとめてられており、現在も国際的な研究活動が広く展開されている^{1) 3)}。しかしながら、これらの気候影響評価に使用されている多くの気候モデルは、北極域で観測されている冬季から春季にかけてのブラックカーボン濃度の増大を過小評価しており、北極域におけるブラックカーボン濃度の再現性が不十分となっている⁴⁾。このため、これまでの気候モデルによるブラックカーボンの放射強制力の推定には、大きな不確定性が含まれていた。

ブラックカーボンは、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⁵⁾。ブラックカーボンは、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、親水性粒子へと変換される（ブラックカーボンの変質過程）⁶⁾。ブラックカーボンは、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）⁷⁾。一方、ブラックカーボンが水溶性無機・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り、大気中の寿命が短くなる（除去過程）⁸⁾。このため、気候モデルでブラックカーボンの放射効果の推定精度を向上させるためには、これらの諸過程を観測によって明らかにしたうえで、モデルでの表現を向上させる必要がある。

ブラックカーボンに加え、光吸収性エアロゾルの一種である酸化鉄粒子（酸化鉄ダスト）は従来、自然から発生する鉱物粒子に主に由来すると考えられていた。しかし、我々の研究⁹⁾によって、人為起源から発生する酸化鉄（磁鉄鉱）粒子が製鉄所などの固定発生源に加え、交通やその他の人為発生源から放出され、広く大気中に存在することが明らかになってきた。しかしながら、北極域における人為起源の酸化鉄の動態は不明である。人為起源に由来する酸化鉄粒子は、光吸収性の光学特性に加えその組成や高温で生成したことを示唆するナノ粒子が凝集した形を大きな特徴としている。そのため、酸化鉄の動態を明らかにするためには、これらの組成と形態の特徴が同時に分析可能な電子顕微鏡による直接分析が有効な手段となっている¹⁰⁾。また、酸化鉄と同様に、ブラックカーボンや他エアロゾル成分の詳細な解析にも組成や形態分析が必要とされており、電子顕微鏡を用いた解析が有効である。

そこで本サブテーマ課題では、電子顕微鏡などによる観測および分析を実施し、ブラックカーボンや酸化鉄などの光吸収性エアロゾル粒子の個別粒子分析を通じた動態の解明を目指す。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、北極域におけるブラックカーボンの動態と放射効果を定量的に評価する。

2. 研究開発目的

本研究は、北極及び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ブラックカーボンや酸化鉄ダスト、また北極域の気候に影響を及ぼすエアロゾルの混合状態や物理化学特性を明らかにすることを目的とする。また気象研究所地球システムモデルの開発・改良を行い、近年実施された大気・積雪観測やアイスコア観測との比較により、産業革命前から現在までのモデル計算の検証を行う。検証したモデルにより、北極域におけるブラックカーボンの動態と放射効果を定量的に評価する。

3. 研究開発方法

（1）エアロゾルの電子顕微鏡分析

電子顕微鏡用試料採取：本分担研究課題では、1) 2018年3-4月にグリーンランドで航空機及び地上観測（サブテーマ1（東京大学）と連携）（写真3.3.1）、2) 2018年1-2月に福岡での集中観測（サブテーマ2（国立環境研究所）と連携）（写真3.3.2）、3) 2019年4月に長崎県福江島での集中観測（サブテーマ1（東京大学）及び2（国立環境研究所）と連携）を行った。観測では、エアロゾルインパクターサンプラー（AS-24W, Arios, Tokyo）を用いて、それぞれ数週間の集中観測中には、およそ2時間

ごとの試料採取を行った。得られた試料は、透過型電子顕微鏡（JEM-1400, JEOL, Tokyo）で分析した。また、これまでに黄海上空、沖縄県辺戸岬、東京、千葉、森林火災等で採取した試料（サブテーマ1・2と連携）も併せて電子顕微鏡分析を行った。



写真3.3.1 グリーンランド上空で行った電子顕微鏡用サンプラー（AS-24W；赤矢印）を使用して行った航空機観測 “Polar Airborne Measurements and Arctic Regional Climate Model Simulation Project”（PAMARCMiP2018）。



写真3.3.2 福岡で2018年1-2月に行った、電子顕微鏡用サンプラー（AS-24W）3台を使用して行った集中観測。

（2）気候モデルによる評価

気象研究所地球システムモデルの開発

気象研究所では、従来の気候モデル（MRI-CGCM3）¹¹⁾に数多くの改良を実施することで、第6期結合モデル相互比較計画（CMIP6）¹²⁾に向けた新しい気象研究所地球システムモデル（MRI-ESM2）を開発した¹³⁾。MRI-ESM2は、大気大循環モデルMRI-AGCM3.5、海洋大循環モデルMRI.COM4、エアロゾルモデルMASINGAR mk-2r4、大気化学気候モデルMRI-CCM2.1から構成され、各モデルコンポーネントはカップラーScup（Simple Coupler）¹⁴⁾で結合される（図3.3.1）。このモデル開発において、従来の気候モデルが含む問題点を克服するために、ブラックカーボンに関しては大きく分類して以下の3つの改良、1）ブラックカーボンが疎水性から親水性へと変換される速度を物理化学法則に基づき表現できるパラメタリゼーションの導入（変質過程の改良、従来は一定値の時定数（1.2日）で表現）¹⁵⁾、2）エアロゾルの鉛直輸送と除去過程を同時に統合的に扱う積雲対流パラメタリゼーションの導入（除去過程の改良、従来は同時に扱わない不整合な表現）、3）ブラックカーボンが他エアロゾル成分と内部混合することで、ブラックカーボンの光吸収量が増大する効果を表現できるコア・シェル型のミー散乱理論の導入（レンズ効果の導入、従来はレンズ効果なし）¹⁶⁾を行った。

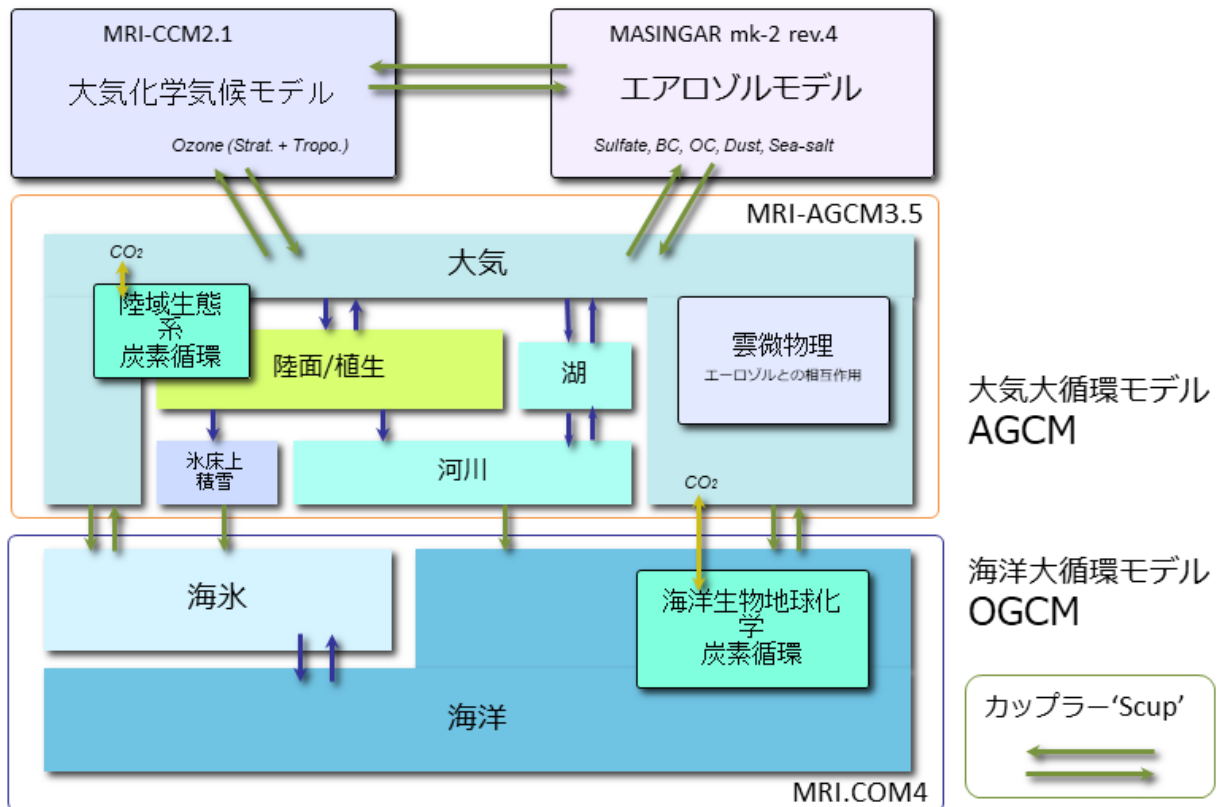


図3.3.1 気象研究所地球システムモデル(MRI-ESM2)の構成模式図。

気象研究所地球システムモデルによる近年計算と歴史実験計算

改良したMRI-ESM2を用いて、近年（2008-2015年）を対象とした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年間はスピンアップ期間とした。この近年計算では、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。全ての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量データは、人為起源物質はMACCity（月平均）¹⁷⁾、森林火災起源物質はGFAS（日平均）¹⁸⁾のデータを用いた。また、改良したモデルによる計算に加えて、ブラックカーボンの変質過程の改良の効果を評価するために、従来の方に戻したモデル計算を感度実験として実施した。

MRI-ESM2を用いて、産業革命前から現在まで（1850-2014年）を対象とした歴史実験計算を実施した。この計算では、海洋モデルを含む全モデルを結合させて実施した。モデルの水平解像度は、大気モデルが約110 km（TL159）、エアロゾルモデルが約180 km（TL95）、大気化学モデルが約280 km（T42）とし、全モデルの鉛直解像度は80層（上端0.01 hPa）に統一した。モデル計算の初期値には、産業革命前（1850年）の気候値（1850年条件で500年間の積分をした計算結果）を与えた。モデル計算で使用する排出量データは、CMIP6で提供された排出量データや境界条件を使用した¹⁹⁾。また、排出量データによる違いを評価するために、CMIP5（第5期結合モデル相互比較計画）で提供された排出量データを用いたMRI-ESM2による計算を実施した。さらに、CMIP5で実施した従来の気候モデル（MRI-CGCM3）による計算結果（CMIP5で提供された排出量データを使用）も用いた¹¹⁾。

4. 結果及び考察

(1) エアロゾルの電子顕微鏡分析

大気エアロゾル粒子観測

北極域や発生源付近の東アジアでの人為酸化鉄エアロゾルの環境動態を理解するため、西日本（福岡及び福江島）での観測を、またそれらの北極での動態を理解するために、2018年3-4月にグリーンランドで行われた航空機観測・地上観測を行った。また、これまでに黄海上空、沖縄県辺戸岬、東京、千葉で採取した試料（サブテーマ1・2と連携）を電子顕微鏡で分析した。

これまでに上記試料中の約1,000試料から20,000枚以上の電子顕微鏡写真を撮影し、それらの画像解析を行った。加えて、各試料中から特徴的なブルームをとらえた中に含まれる代表試料（各観測地点から3-4試料）を用いて個別粒子の詳細な形態、組成、混合状態を分析し、現在10,000粒子を超える電子顕微鏡を用いた組成形態分析を行った。その結果、組成が鉄と酸素を主体として数十nmの微小粒子が数個から数百個集まった凝集酸化鉄粒子が発見された（図4.3.1および図4.3.2）^{20) 21)}。その凝集体の形態やサイズはブラックカーボンの特徴と似ているが、高い結晶状態を持つ特徴や鉄を主体とする化学成分はブラックカーボン粒子と大きく異なる。その形態的特徴から、高熱で熔融した酸化鉄粒子を発生させる人為発生源が主な起源であると考えられる。その個数濃度は北極や東アジアを含めた全分析粒子（18試料、11574粒子）中の約4%であった。北極においても、0-3%の個数濃度で凝集酸化鉄粒子が見つかった（図4.3.3）。これらの粒子は、ブラックカーボンや硫酸塩などと共存する傾向にあり、人為汚染の影響で発生したと考えられる汚染空気中で多く見つかっている。黄海上空や東京で採取した凝集酸化鉄のEELS分析の結果、それらの粒子が光吸収性の高い磁鉄鉱（マグネタイト）の一種であることが明らかとなっている⁹⁾。マグネタイト粒子は黒く、光を吸収する特性があるため、大気中の放射影響及び地上での雪氷融解に寄与することが考えられる。福岡での試料分析の結果は、酸化鉄粒子が他の金属粒子（亜鉛や鉛など）と共存していることも明らかとなり、強い人為発生源寄与が示唆された。これらの成果は、Journal of Geophysical Researchに出版された^{20) 21)}。

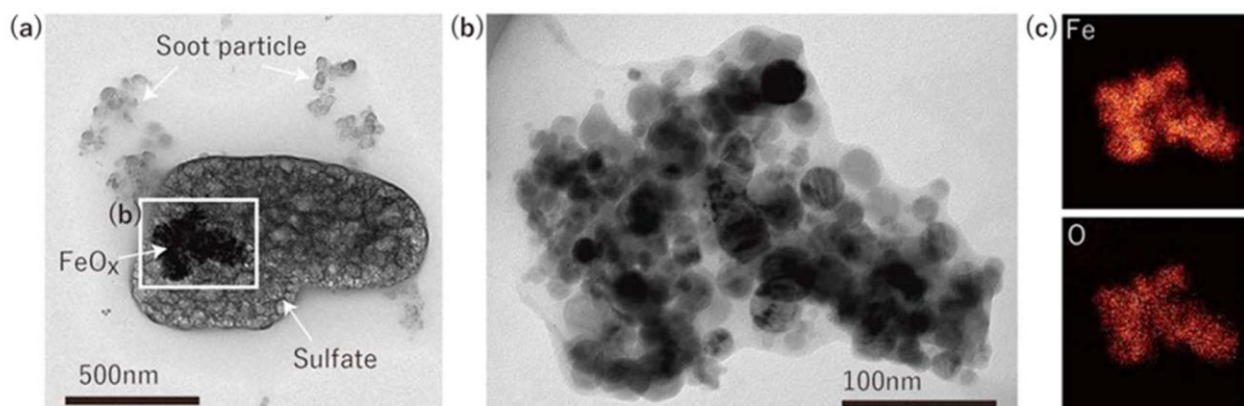


図4.3.1 東アジアで採取されたエアロゾル中の酸化鉄粒子の電子顕微鏡画像。a) 酸化鉄粒子が硫酸塩と内部混合し、その表面にブラックカーボン粒子が付着している。b) 電子顕微鏡画像(a)で見られた酸化鉄の拡大像及び鉄と酸素の分布 (c)。Yoshida et al. (2018)²¹⁾中の図5を引用した。

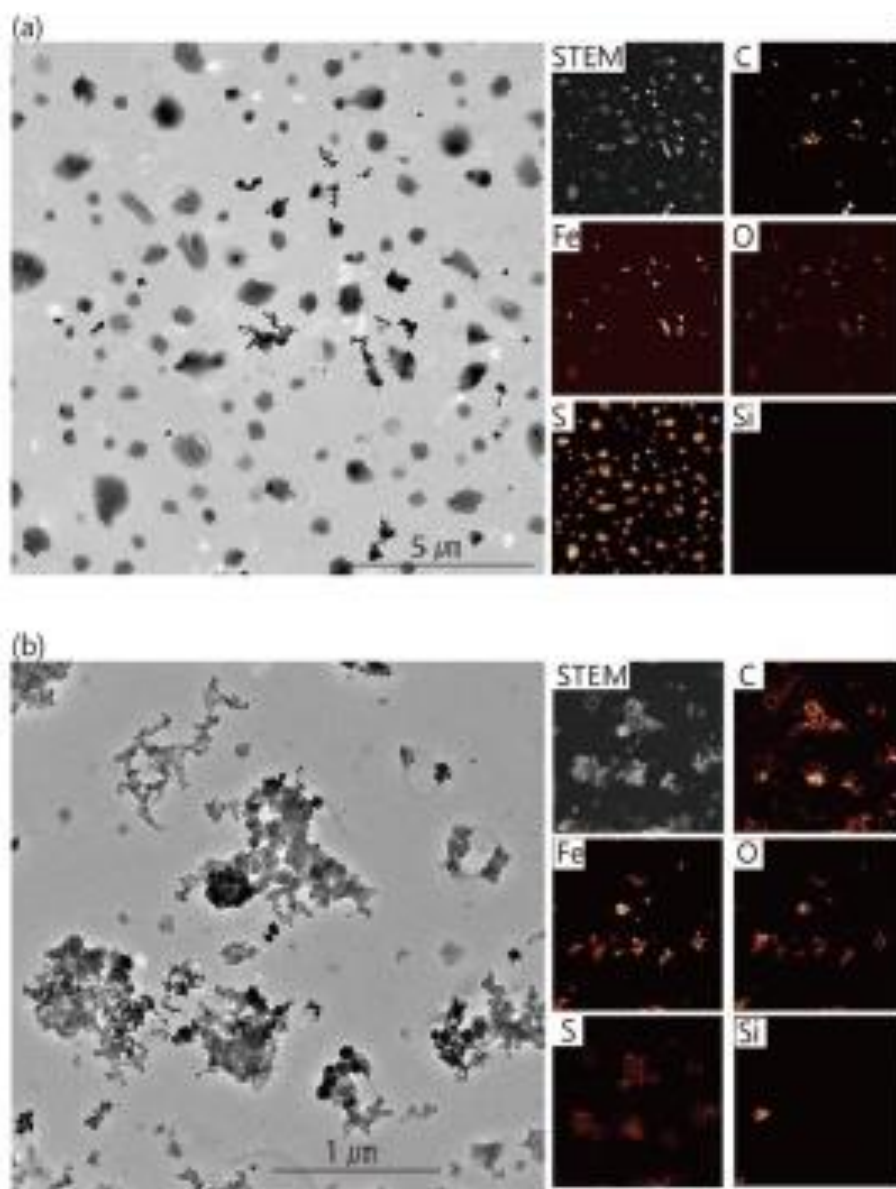


図4.3.2 エアロゾル粒子中の酸化鉄凝集粒子の電子顕微鏡画像。a) 東京で採取されたエアロゾル粒子中の酸化鉄凝集粒子のTEM画像（左図）と元素分布（右図）。b) 千葉で採取されたエアロゾル粒子中の酸化鉄凝集粒子のTEM画像（左図）と元素分布（右図）。鉄の分布が、凝集酸化鉄粒子を示す。Ohata et al. (2018)²⁰⁾中の図6を引用した。

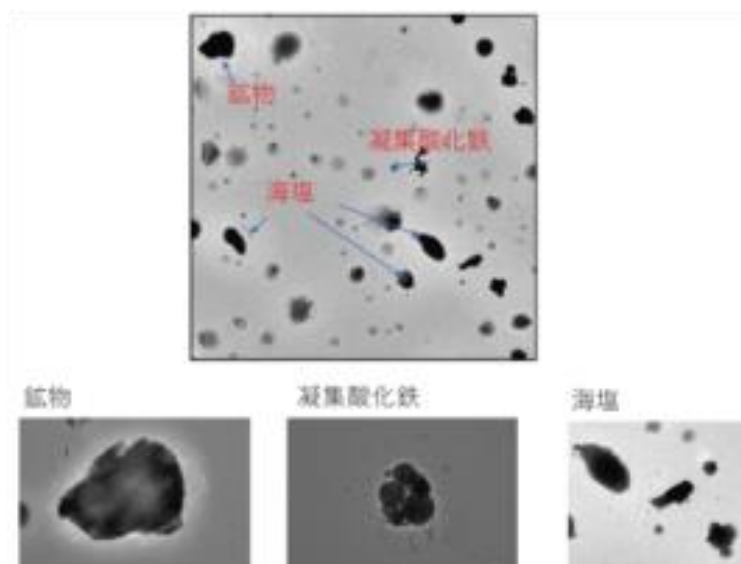


図4.3.3 北極での飛行機観測で得られた試料中のダスト（鉱物および酸化鉄）粒子の画像。海塩粒子も多く（個数割合で20-30%）存在した。

ブラックカーボン粒子も硫酸塩と内部混合した状態で、グリーンランド上空の試料から多く発見された（図4.3.4）。特に、高度5000メートル付近で汚染空気塊の存在が観測され、その中で多くの内部混合をしたブラックカーボン粒子が見つまっている。それらの粒子はカリウムを含む硫酸塩と内部混合していたことなどから、森林火災由来の汚染であることが示唆された。また、西日本（福岡及び福江島）での観測でも、特に汚染空気塊中でブラックカーボンの内部混合が観測され、高濃度の汚染空気塊中で様々な物質が個別粒子単位で混合を進めていることが明らかとなった²²⁾。

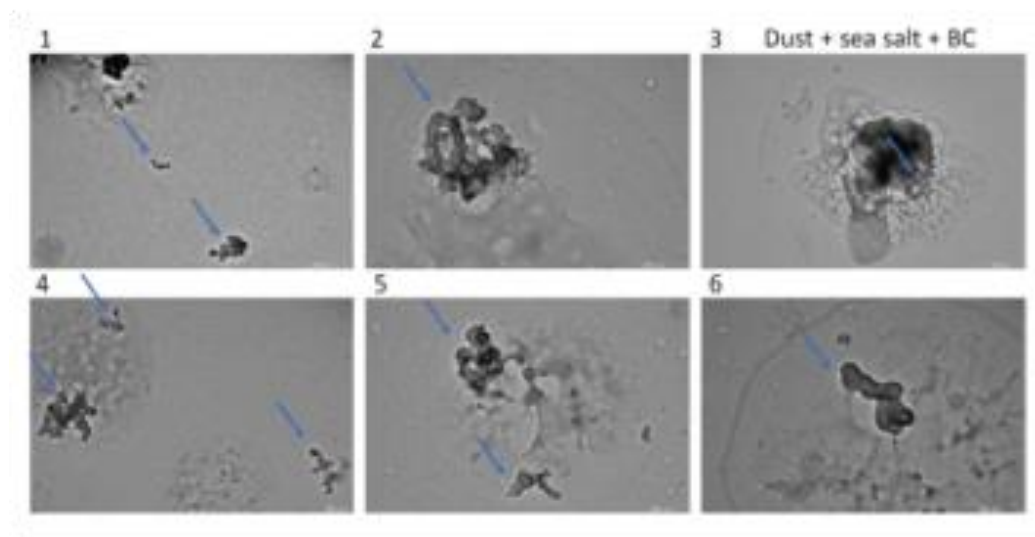


図4.3.4 北極での飛行機観測で得られた試料中のブラックカーボン粒子の画像。青色矢印でブラックカーボン粒子を示す。多くは硫酸塩と内部混合していた。

エアロゾル粒子の氷晶核能

北極、ニーオルスンで採取したエアロゾル試料中で粗大粒子（粒径 $1\mu\text{m}$ 以上）に関して、サブテーマ4（国立極地研究所）と連携して氷晶核能と粗大粒子の成分に関する解析を行った。ここでは、氷晶核能分析用のフィルター試料や、その試料と同時に採取したTEM粗大粒子試料（合計6試料）を用いて、走

査型電子顕微鏡（SEM）やTEMを用いた分析を行った。その結果、氷晶核として働くと考えられる鉱物粒子やバイオエアロゾルなどの粒子は全粒子の数%程度存在し、残りの粗大粒子の多くは海塩粒子であった。この結果は、比較的近傍からの粗大粒子の供給が氷晶核形成に影響を与える可能性を示唆するものである。この結果は、Tobo, Adachi et al. (2019)²³⁾としてNature Geoscience誌に掲載された。

グリーンランドの航空機で採取した試料の電子顕微鏡解析と、そのフライトにおける氷晶核能の関係について解析を行った。その結果、比較的低い標高での試料採取をした試料中で、電子顕微鏡による海塩の寄与の増加（図4.3.5）と、高い氷晶核能の相関がみられた。この結果は、北極域において海からのエアロゾル粒子が氷晶核能に寄与していることを示唆するものである。この成果は現在論文投稿中である（Hartmann, Adachi et al., 投稿中）。

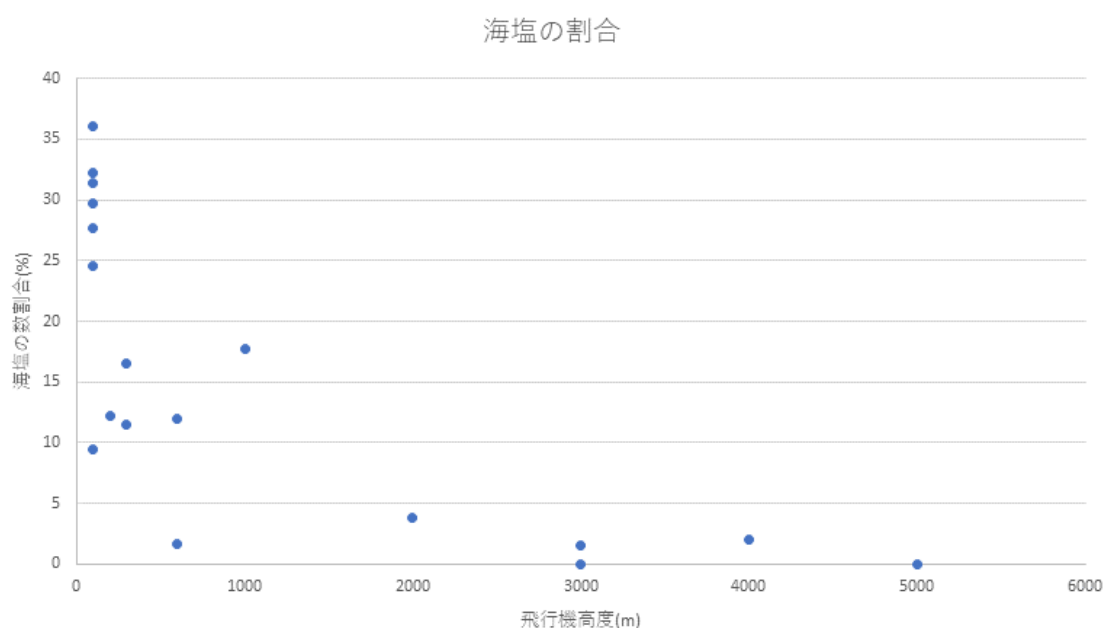


図4.3.5 グリーンランド上空で行った航空機観測で、試料採取高度と電子顕微鏡分析で得た海塩粒子の割合を示す。高度が低くなるにつれ、海塩粒子の割合が増えた。この増加は氷晶核粒子の増加と一致するため、海からのエアロゾル粒子が氷晶核形成に寄与したと推測される。

森林火災から発生する光吸収性粒子の生成メカニズム

森林火災は北極域における重要なエアロゾル供給源である。特に、放射にも影響を与える光吸収性の有機エアロゾルの発生に関する情報は、極域およびグローバルな気候に大きな影響を与えるため、その理解は重要である。森林火災から多く放出される光吸収性エアロゾルの一種に、球状の形態を特徴とした「ターボール」粒子の存在が知られている（図4.3.6）。現在、このターボール粒子は顕微鏡での分析が唯一の解析手法である。そこで、森林火災の発生域（北米）において航空機観測を行い、発生源におけるターボールの生成メカニズムについての解析を行った。その結果、ターボールの生成には、発生直後の低粘性有機エアロゾルに窒素や酸素が付加して、酸化及び有機体窒素の生成が進むことで、粘性が高くなり、また光吸収性が高まる可能性が示唆された。この成果は、Sedlacek et al. (2018)²⁴⁾及びAdachi et al. (2019)²⁵⁾において報告された。

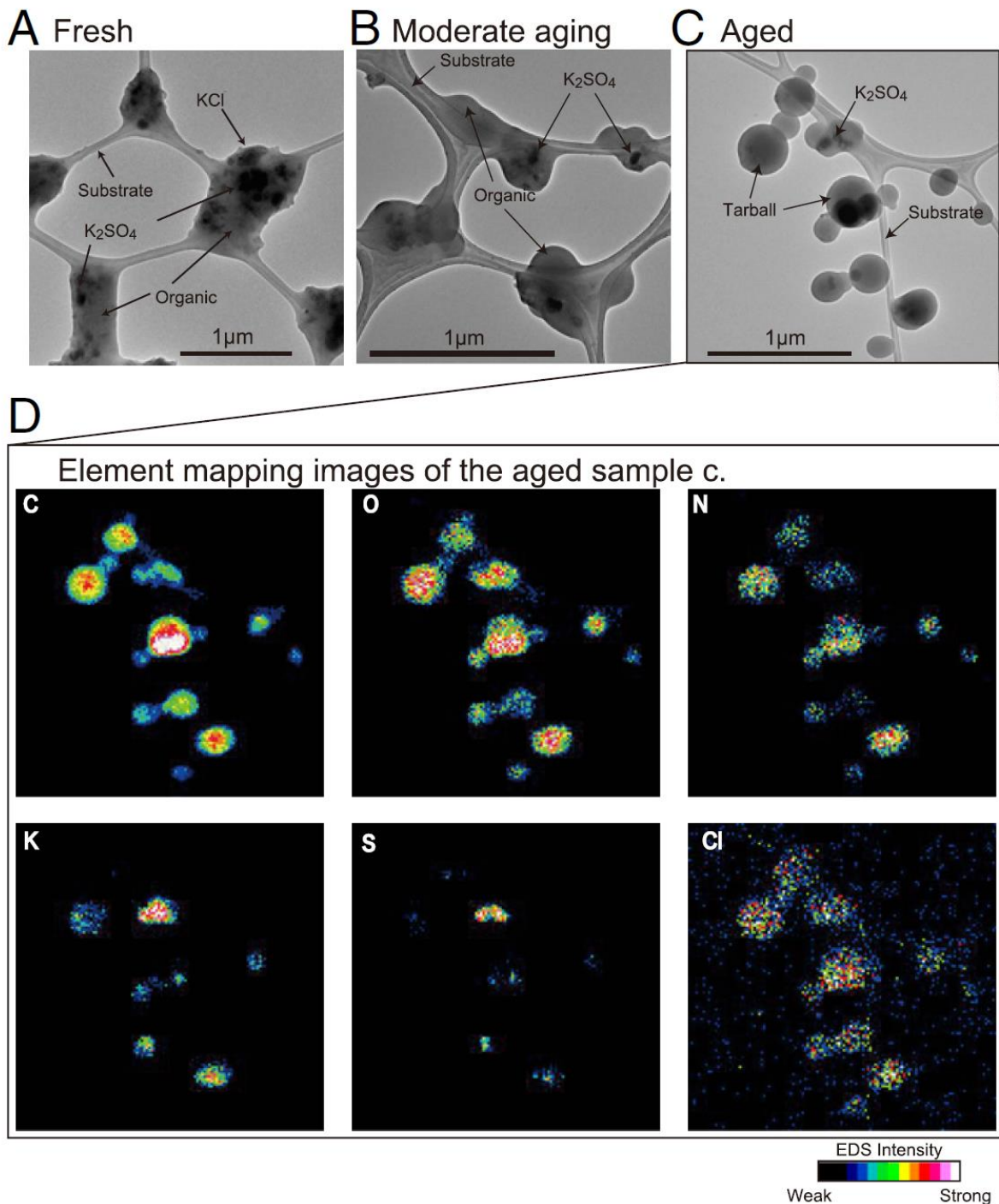


図4.3.6 2013年のBBOPキャンペーンで採取されたターボール粒子の電子顕微鏡画像。A 発生直後の煙中のエアロゾル粒子、B 発生から1時間程度たったエアロゾル粒子、C 発生から2-3時間たったエアロゾル粒子、D 電子顕微鏡画像Cの元素分布図。AからCにかけ、粘性が高くなり球状の粒子（ターボール）の割合が増加する。ターボールは、炭素と酸素を含む有機エアロゾル粒子であるが、その中に窒素やカリウムなども含む特徴を持つ。Adachi et al. (2019)²⁵⁾ 中の図3より引用。

(2) 気候モデルによる評価

近年を対象とするモデル計算と観測データによるモデル計算の検証

現在気候における気候モデル（MRI-ESM2）の再現性を検証するために、近年（2008-2015年）を対象としたモデル計算結果と地上・航空機・衛星・積雪観測との比較を行った。これら観測データとの比較は、サブテーマ間の連携により行われた。北極域の地上では、従来のモデル計算では、観測された大気

中ブラックカーボン濃度を過小評価し季節変化を再現できなかったのに対し、MRI-ESM2計算では、ブラックカーボン濃度の季節変化の再現性が大きく向上した（図4.3.7）。この結果は、北極域でのブラックカーボンの季節変化を決める上では、変質過程が重要な役割を果たすことを示唆している。またMRI-ESM2では、東アジア域・北極域・太平洋上等の上部・中部対流圏中で観測されたブラックカーボン濃度の鉛直分布、北極圏における積雪中ブラックカーボン濃度の空間分布、グリーンランドでの積雪粒径の空間分布等の再現性についても従来よりも大きく向上した。このようにMRI-ESM2では、とくに北極域においてブラックカーボン濃度の再現性が従来よりも大きく向上したため、従来よりも信頼性の高いブラックカーボンの放射効果を推定することが可能となった。

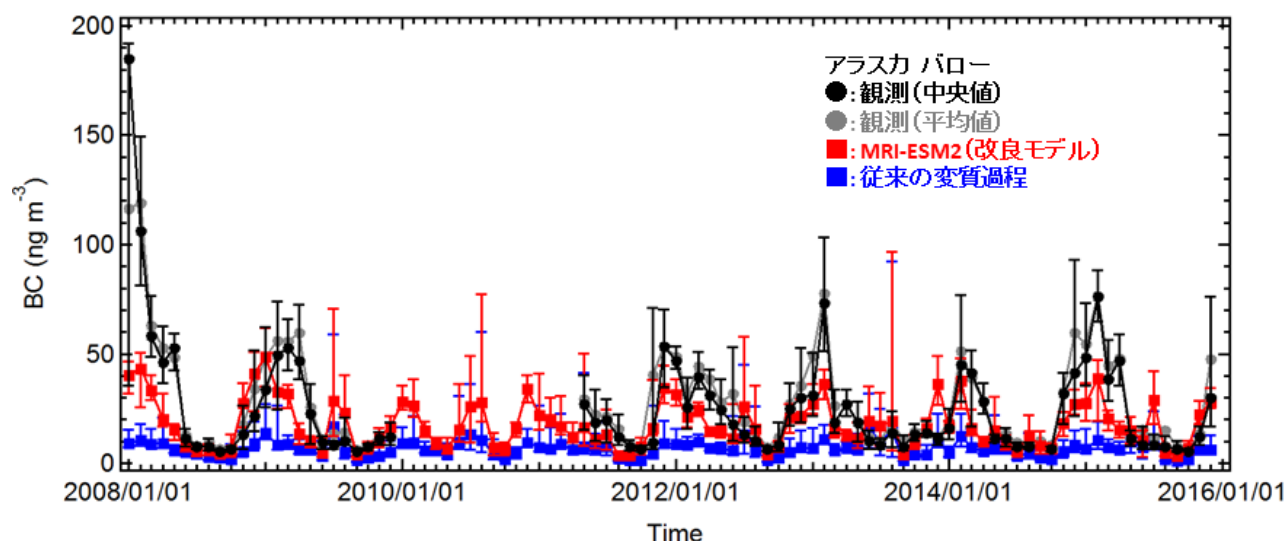


図4.3.7 米国アラスカ・バロー（71.3N, 156.6W）におけるブラックカーボン質量濃度（ ng m^{-3} ）の時間変動の地上観測（丸印）とモデル計算結果（四角印）の比較。観測は、各月における中央値と25, 75パーセンタイル（黒色）と平均値（灰色）を示す。モデル結果は、MRI-ESM2の計算結果（赤色）と従来の変質過程スキームを用いた計算結果（青色）の各月における中央値と25, 75パーセンタイルを示す。

産業革命前から現在までの歴史実験計算とアイスコア観測との比較

MRI-ESM2による産業革命前から現在まで（1850-2014年）を対象とした歴史実験計算の再現性を検証するために、グリーンランドにおけるアイスコア観測²⁶⁾と気候モデル計算との比較を実施した。この比較では、最新のCMIP6排出量データと従来CMIP5排出量データのそれぞれを用いたMRI-ESM2モデル計算、CMIP5排出量データを用いた従来モデル計算（MRI-CGCM3）の計3種類を用いた。グリーンランドのD4サイト（71.4N, 44.0W）でのアイスコア中のブラックカーボンと比較したところ、CMIP6排出量を用いたMRI-ESM2計算は20世紀前半の濃度増大を再現できなかったが、その他の期間の再現性は確認できた（図4.3.8）。一方、CMIP5排出量を用いたMRI-ESM2計算は、期間全体では過大評価するものの、20世紀前半の濃度増大を再現した（図4.3.8）。これは、CMIP6で提供されたブラックカーボンの排出量が、CMIP5で提供された排出量に比べ、19世紀後半から20世紀前半にかけて北米域とヨーロッパ域で大きく減少していたことが原因と考えられる。これらの結果は、ブラックカーボンの排出量データには未だ大きな不確実性が含まれていることを示唆しているとともに、高精度・高時間分解能のアイスコア観測・分析の必要性を示している。

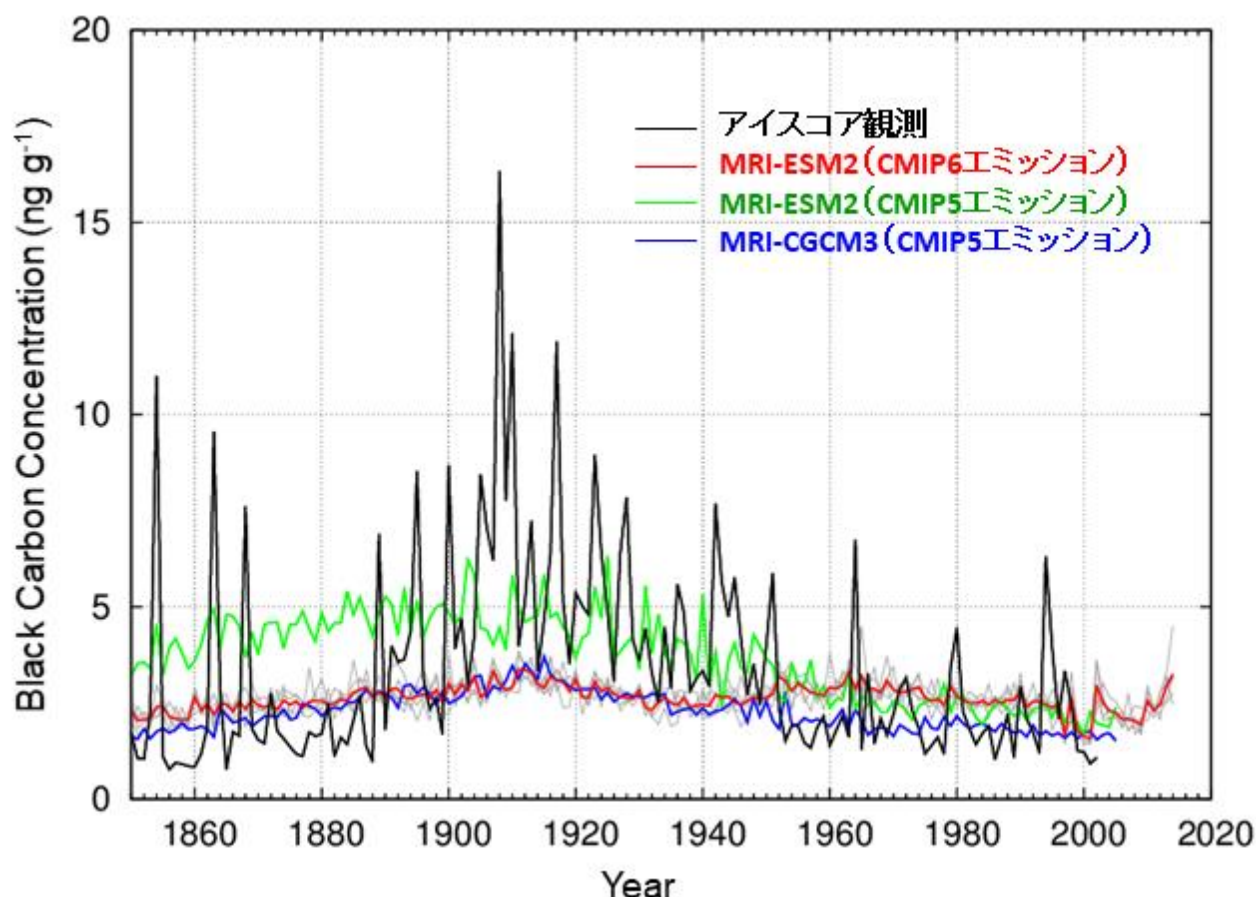


図4.3.8 グリーンランドのD4サイト（71.4N, 44.0W）でのアイスコア中のブラックカーボン濃度（ ng g^{-1} ）。観測と気候モデルによる歴史実験計算結果（3種類のモデル計算）の年平均値の比較を示す。CMIP6エミッションを用いたMRI-ESM2計算（赤色）とCMIP5エミッションを用いたMRI-CGCM3計算（青色）については、初期値が異なる5種類の歴史実験計算結果のアンサンブル平均を示す。

北極域におけるブラックカーボンの動態や放射効果

産業革命前から現在までの北極域（北緯60度以北）におけるブラックカーボンの地表への沈着量を推定した（図4.3.9）。北極域でのブラックカーボンの沈着量は、1950年頃から増大をはじめ、1980年頃に最大であった。この増大時期では、主にヨーロッパ域の下部対流圏で、中緯度から北極域へのブラックカーボンの北向き輸送が支配的であったことが示唆された。産業革命前から現在までの北極域（北緯60度以北）での大気上端におけるブラックカーボンの瞬時放射強制力を推定した（図4.3.9）。ブラックカーボンの瞬時放射強制力は、ブラックカーボンの沈着量がピークを示す1980年頃において、約 0.20 W m^{-2} と推定された。また2000年以降は、北極域でのブラックカーボンの沈着量とその瞬時放射強制力は増加傾向を示している（図4.3.9）。2010-2014年平均値のブラックカーボンの瞬時放射強制力は、 0.17 W m^{-2} と推定された。これらの結果は、今後温暖化が加速すると推定される北極域において、ブラックカーボンの影響評価を継続して実施する必要があることを示唆している。

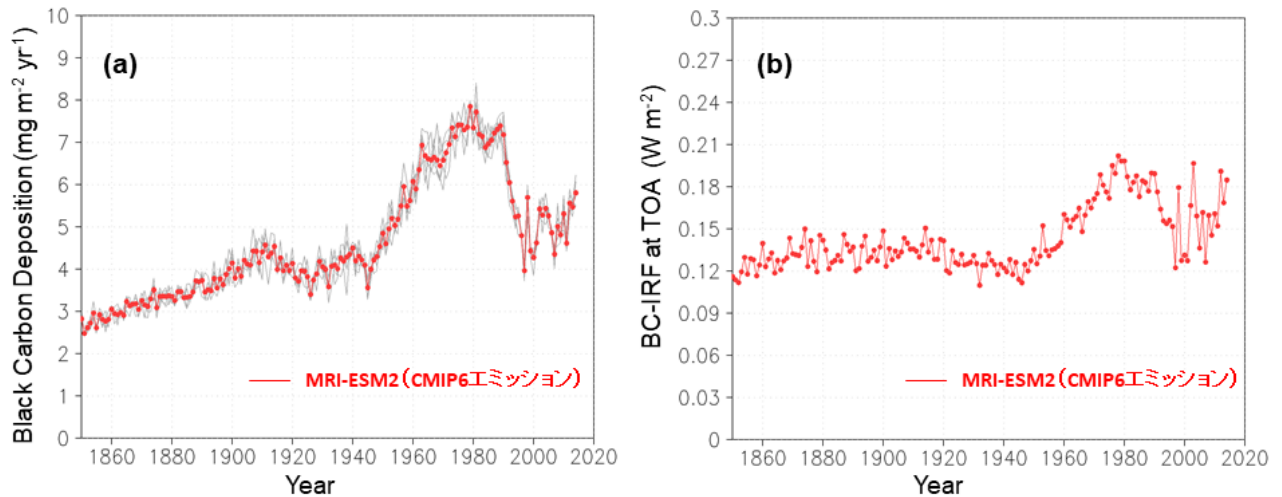


図4.3.9 (a) 北極域でのブラックカーボンの沈着量の年変化 ($\text{mg m}^{-2} \text{ yr}^{-1}$)。 (b) 北極域での大気上端におけるブラックカーボンの瞬時放射強制力の年変化 (W m^{-2})。CMIP6エミッションを用いたMRI-ESM2による歴史実験計算結果の北極域（北緯60度以北）における年平均値を示す。(a)は初期値が異なる5種類の歴史実験計算結果のアンサンブル平均を示す。

全球規模における放射効果の再現性

MRI-ESM2による産業革命前から現在まで（1850-2014年）を対象とした歴史実験計算の解析を実施した。その結果、大気上端における短波、長波および正味の放射の誤差が顕著に減少し、従来の気候モデルと比べて、産業革命前から現在までの全球平均の地上気温変化の再現性が向上した（図4.3.10）¹³⁾。MRI-ESM2は従来の気候モデル（MRI-CGCM3）よりも気温の再現性が向上しており、これは気候感度が大きくなったことに加え、エアロゾルの放射強制力の推定精度が向上したことが原因と考えられる。またMRI-ESM2では、とくにエアロゾルや放射・雲過程等の改良を行うことで、雲表現が顕著に改善し、大気上端の放射収支の再現性は世界のCMIP5のモデルと比較してトップとなった²⁷⁾。これらの結果、MRI-ESM2ではエアロゾルが放射・雲に及ぼす影響を従来よりも高精度に推定することが可能となった。これらのMRI-ESM2により実施された歴史実験計算結果等は、CMIP6モデル結果が集積されるデータノードに提出済みであり、IPCC AR6への貢献が期待できる。

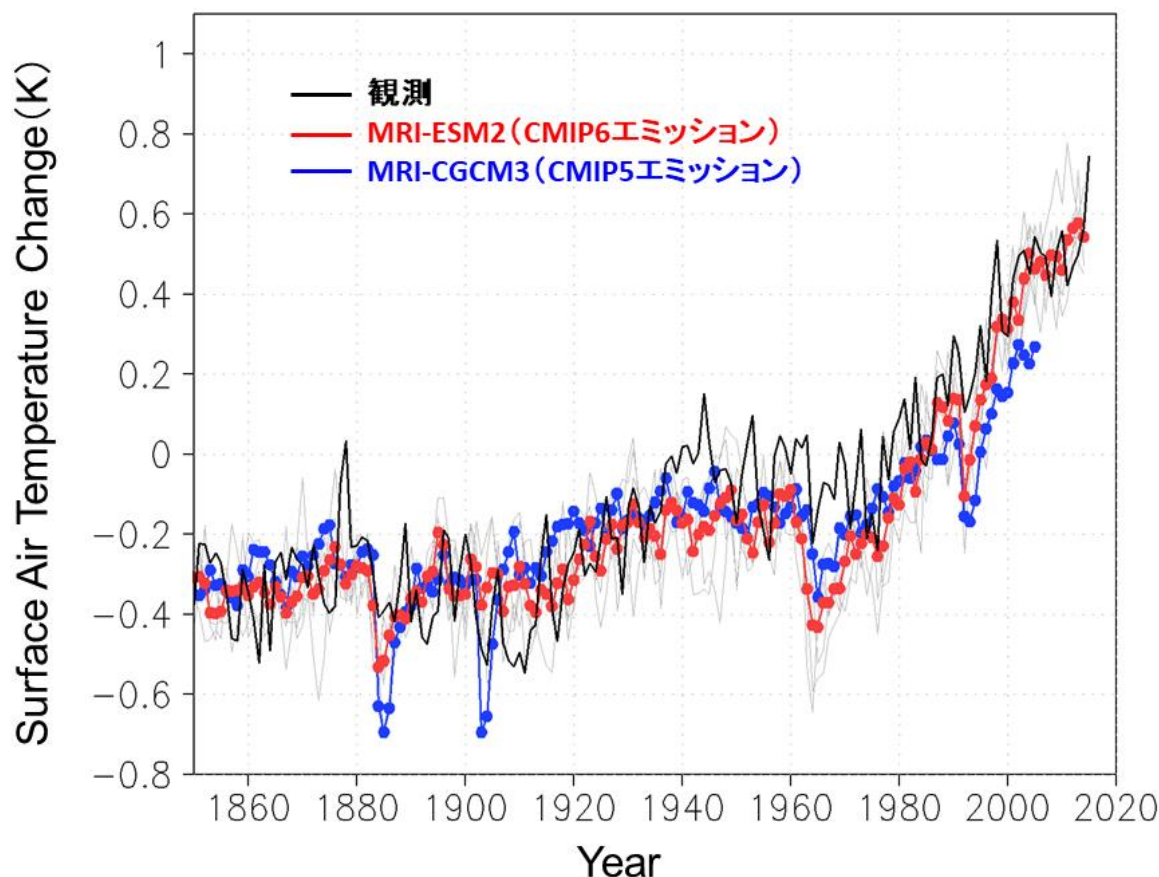


図4.3.10 全球平均の地上気温変化 (K)。観測と気候モデルによる歴史実験計算結果の年平均値の比較を示す。CMIP6エミッションを用いたMRI-ESM2計算 (赤色) とCMIP5エミッションを用いたMRI-CGCM3計算 (青色) については、初期値が異なる5種類の歴史実験計算結果のアンサンブル平均を示す。

気候変動におけるブラックカーボンの重要性

気象研究所の気候モデルを用いて、大気中に放出されるブラックカーボンの量に応じて、全球規模での地上気温が大きく変化することを示した²⁸⁾。この論文成果は、小惑星衝突の場所により放出されるブラックカーボン量が大きく変化するため、衝突地点が白亜紀末の恐竜等の絶滅の可否に重要な役割を果たしていたことを示している。この結果は、現在だけでなく白亜紀末の気候変動においても、ブラックカーボンが重要な役割を果たしていた可能性を示唆している。

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

ブラックカーボンや酸化鉄粒子 (ダスト) の混合状態や物理化学特性が明らかとなり、特に北極域でも人為由来である酸化鉄粒子が普遍的に存在することを明らかにした意義は大きい。この成果は、凝集酸化鉄粒子が新たなエアロゾル種として解析される必要性を示唆する。また、氷河由来のダストが高い氷晶核能を持つことや、森林火災由来のターボール粒子生成のメカニズム解明など、今後の北極気候の解明に資する成果は科学的に重要であり、高い注目度 (インパクトファクター) を持つ国際科学雑誌 (Nature GeoscienceやPNAS誌) に掲載された^{23) 25)}。

本研究で検証・改良を行った気象研究所地球システムモデルでは、従来再現が困難であった北極域でのブラックカーボン濃度の時空間変動の再現性が大きく向上したため、北極域でのブラックカーボン

の放射効果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北極域におけ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。また、気候変動におけるブラックカーボンの重要性に関する論文成果²⁸⁾は、Nature 関連誌注目のハイライトに選出されるとともに、2017年雑誌内被検索数において地球科学分野の約1500論文中1位、全分野全体の約24000論文中9位となり、世界的な注目を集めた。

(2) 環境政策への貢献

2018-2019年に3回開催された北極評議会/北極圏監視評価プログラム作業部会 (AMAP) /短寿命気候強制力因子専門家グループ会合に、東京大学・小池真准教授、国立極地研究所・近藤豊特任教授と気象庁気象研究所・大島長主任研究官が出席し、本課題で実施した北極域での観測研究と気候モデル研究を報告した。今後、北極評議会ではブラックカーボン等の短寿命気候強制力因子の削減に関する勧告を含む内容の評価報告書を取りまとめる予定であり、執筆者として貢献する予定である。本課題により検証された気象研究所地球システムモデルによる計算結果は、AMAPの評価報告書で使用されることが確定している。このように本研究で実施したブラックカーボンの動態把握や気候影響評価は、日本の大きな国際貢献となることが期待される。また、本課題により検証された気象研究所地球システムモデルによる計算結果は、第6期結合モデル相互比較計画 (CMIP6) に提出したため、IPCC評価報告書に対して直接的に貢献できることが期待される。

<行政が既に活用した成果>

国土交通省・気象庁で実施されている気象庁全球モデルの現業運用において、本研究成果である気象研究所地球システムモデルのエアロゾル・放射過程が導入されており、社会的な貢献をした。

<行政が活用することが見込まれる成果>

第6期結合モデル相互比較計画 (CMIP6) の枠組みで実施された気象研究所地球システムモデルによる計算結果は、IPCC評価報告書に対して直接的に貢献できることが期待される。また、北極評議会/北極圏監視評価プログラム作業部会 (AMAP) の枠組みで実施された気象研究所地球システムモデルによる計算結果は、AMAPの評価報告書に対して直接的に貢献できることが期待される。

6. 国際共同研究等の状況

“Polar Airborne Measurements and Arctic Regional Climate Model Simulation Project” (PAMARCMiP2018), Dr. Andreas Herber/Alfred Wegener Institute, ドイツ, サブ1グループとともに共同観測参加, グリーンランドを拠点とした北極圏の国際観測プロジェクトで、電子顕微鏡試料を採取。

第6期結合モデル相互比較計画 (CMIP6) に参加している。世界各国のモデル代表機関が参加する国際的な研究計画である。

北極評議会/北極圏監視評価プログラム作業部会 (AMAP) での短寿命気候強制力因子の影響評価を実施している。北極圏国 (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、米国) とオブザーバー国 (英国、スイス、日本等) が参加する国際的な研究計画である。

7. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<論文 (査読あり) >

- 1) K. YUMIMOTO, T. Y. TANAKA, N. OSHIMA and T. MAKI: Geosci. Model Dev., (10), 3225-3253,

- <https://doi.org/10.5194/gmd-10-3225-2017> (2017)
JRAero: the Japanese Reanalysis for Aerosol v1.0
- 2) K. KAIHO and N. OSHIMA: Scientific Reports, (7), 14855, doi:10.1038/s41598-017-14199-x (2017)
Site of asteroid impact changed the history of life on Earth: the low probability of mass extinction
 - 3) K. ADACHI, A. J. SEDLACEK, L. KLEINMAN, D. CHAND, J. M. HUBBE and P. R. BUSECK: Aerosol Science and Technology, (52:1), 46-56, DOI: 10.1080/02786826.2017.1373181 (2018)
Volume changes upon heating of aerosol particles from biomass burning using transmission electron microscopy
 - 4) P. R. SINHA, Y. KONDO, K. GOTO-AZUMA, Y. TSUKAGAWA, K. FUKUDA, M. KOIKE, S. OHATA, N. MOTOKI, T. MORI, N. OSHIMA, E. J. FØRLAND, M. IRWIN, J.-C. GALLET and C. A. PEDERSEN: J. Geophys. Res. Atmos., (123), <https://doi.org/10.1002/2017JD028027> (2018)
Seasonal progression of the deposition of black carbon by snowfall at Ny-Ålesund, Spitsbergen
 - 5) S. OHATA, A. YOSHIDA, N. MOTOKI, K. ADACHI, K. TAKAHASHI, M. KURISU and M. KOIKE: Journal of Geophysical Research: Atmospheres, (123), 8115-8134 (2018)
Abundance of light-absorbing anthropogenic iron oxide aerosols in the urban atmosphere and their emission sources
 - 6) A. YOSHIDA, S. OHATA, N. MOTOKI, K. ADACHI, T. MORI, M. KOIKE and A. TAKAMI: Journal of Geophysical Research: Atmospheres, (123), 11194-11209 (2018)
Abundance and emission flux of the anthropogenic iron oxide aerosols from the east asian continental outflow
 - 7) A. J. SEDLACEK III, P. R. BUSECK, K. ADACHI, T. B. ONASCH, S. R. SPRINGSTON and L. KLEINMAN: Atmospheric Chemistry and Physics, (18), 11289-11301 (2018)
Formation and evolution of Tar Balls from Northwestern US wildfires
 - 8) Y. TOBO, K. ADACHI, P. J. DEMOTTO, T. C. HILL, D. S. HAMILTON, N. M. MAHOWALD, N. NAGATSUKA, S. OHATA, J. UETAKE, Y. KONDO and M. KOIKE: Nature Geoscience, (12), 253-258 (2019)
Glacially sourced dust as a potentially significant source of ice nucleating particles
 - 9) N. HIRANUMA, K. ADACHI, D. M. BELL, F. BELOSI, H. BEYDOUN, B. BHADURI, H. BINGEMER, C. BUDKE, H-C. CLEMEN, F. CONEN, K.M. CORY, J. CURTIUS, P. J. DEMOTT, O. EPPERS, S. GRAWE, S. HARTMANN, N. HOFFMANN, K. HÖHLER, E. JANTSCH, A. KISELEV, T. KOOP, G. KULKARNI, A. MAYER, M. MURAKAMI, B. J. MURRAY, A. NICOSIA, M. D. PETERS, M. PIAZZA, M. POLEN, N. REICHER, Y. RUDICH, A. SAITO, G. SANTACHIARA, T. SCHIEBEL, G. P. SCHILL, J. SCHNEIDER, L. SEGEV, E. STOPELLI, R. C. SULLIVAN, K. SUSKI, M. SZAKÁLL, T. TAJIRI, H. TAYLOR, Y. TOBO, R. ULLRICH, D. WEBER, H. WEX, T. F. WHALE, C. L. WHITESIDE, K. YAMASHITA, A. ZELENYUK and O. MÖHLER: Atmospheric Chemistry and Physics, (19), 4823-4849 (2019)
A comprehensive characterization of ice nucleation by three different types of cellulose particles immersed in water: lessons learned and future research directions
 - 10) M. KAJINO, M. DEUSHI, T. T. SEKIYAMA, N. OSHIMA, K. YUMIMOTO, T. Y. TANAKA, J. CHING, A. HASHIMOTO, T. YAMAMOTO, M. IKEGAMI, A. KAMADA, M. MIYASHITA, Y. INOMATA, S. SHIMA, K. ADACHI, Y. ZAIZEN, Y. IGARASHI, H. UEDA, T. MAKI and M. MIKAMI: J. Meteor. Soc. Japan, (97, 2), 337-374, doi:10.2151/jmsj.2019-020 (2019)
NHM-Chem, the Japan Meteorological Agency's Regional Meteorology - Chemistry Model: Model Evaluations toward the Consistent Predictions of the Chemical, Physical, and

Optical Properties of Aerosols

- 11) J. CHING, K. ADACHI, Y. ZAIZEN, Y. IGARASHI and M. KAJINO: npj Climate and Atmospheric Science, (2), 22, (2019)
Aerosol mixing state revealed by transmission electron microscopy pertaining to cloud formation and human airway deposition
- 12) K. ADACHI, A. J. SEDLACEK, L. KLEINMAN, S. R. SPRINGSTON, J. WANG, D. CHAND, J. M. HUBBE, J. E. SHILLING, T. B. ONASCH, T. KINASE, K. SAKATA, Y. TAKAHASHI and R. R. BUSECK: Proceedings of the National Academy of Sciences, 201900129 (2019)
Spherical tarball particles form through rapid chemical and physical changes of organic matter in biomass-burning smoke
- 13) S. YUKIMOTO, H. KAWAI, T. KOSHIRO, N. OSHIMA, K. YOSHIDA, S. URAKAWA, H. TSUJINO, M. DEUSHI, T. TANAKA, M. HOSAKA, S. YABU, H. YOSHIMURA, E. SHINDO, R. MIZUTA, A. OBATA, Y. ADACHI and M. ISHII: J. Meteor. Soc. Japan, (97, 5), 931-965, (2019)
The Meteorological Research Institute Earth System Model Version 2.0, MRI-ESM2.0: Description and Basic Evaluation of the Physical Component
- 14) H. KAWAI, S. YUKIMOTO, T. KOSHIRO, N. OSHIMA, T. TANAKA, H. YOSHIMURA and R. NAGASAWA: Geosci. Model Dev., (12), 2875-2897, (2019)
Significant improvement of cloud representation in the global climate model MRI-ESM2
- 15) T. MORI, K. GOTO - AZUMA, Y. KONDO, Y. OGAWA - TSUKAGAWA, K. MIURA, M. HIRABAYASHI, N. OSHIMA, M. KOIKE, K. KUPIAINEN, N. MOTTEKI, S. OHATA, P. R. SINHA, K. SUGIURA, T. AOKI, M. SCHNEEBELI, K. STEFFEN, A. SATO, A. TSUSHIMA, V. MAKAROV, S. OMIYA, A. SUGIMOTO, S. TAKANO and N. NAGATSUKA: Journal of Geophysical Research: Atmospheres, (124), 13, 325-13, 356, (2019)
Black carbon and inorganic aerosols in Arctic snowpack
- 16) T. KINASE, K. ADACHI, N. OSHIMA, K. GOTO-AZUMA, Y. OGAWA-TSUKAGAWA, Y. KONDO, N. MOTTEKI, S. OHATA, T. MORI, M. HAYASHI, K. HARA, H. KAWASHIMA and K. KITA: Journal of Geophysical Research, (125), e2019JD030737 (2020)
Concentrations and size distributions of black carbon in the surface snow of eastern Antarctica in 2011

<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。

<その他誌上发表(査読なし)>

- 1) H. KAWAI, S. YUKIMOTO, T. KOSHIRO, N. OSHIMA, T. TANAKA and H. YOSHIMURA: CAS/JSC WGNE Research Activities in Atmospheric and Oceanic Modelling/WMO, 47, 7.07-7.08 (2017)
Improved Representation of Clouds in Climate Model MRI-ESM2

(2) 口頭発表(学会等)

- 1) 大島長、田中泰宙、神代剛、吉村裕正、川合秀明、工藤玲、行本誠史、出牛真、小池真 : 日本地球惑星科学連合2017年大会、千葉 (2017)
「気象研究所地球システムモデルによるブラックカーボンの空間分布と放射効果」
- 2) 足立光司、茂木 信宏、吉田 淳、大畑 祥 : 日本地球惑星科学連合2017年大会、千葉 (2017)
「主要な金属大気エアロゾルとしてのナノ凝集体酸化鉄粒子」
- 3) 足立光司 : 日本地球惑星科学連合2017年大会、千葉 (2017)

- 「バイオマス燃焼から生じたエアロゾル粒子の航空機観測」
- 4) 大島長、田中泰宙、神代剛、吉村裕正、川合秀明、工藤玲、行本誠史、出牛真、小池真：日本気象学会2017年度春季大会、東京（2017）
「気象研究所地球システムモデルの開発とブラックカーボンの空間分布と放射効果の評価」
 - 5) 足立光司：第34回エアロゾル科学・技術研究討論会、東京（芝浦工業大学）（2017）
「大気中の酸化鉄凝集粒子」
 - 6) 足立光司、根本 善弘：平成29年度 ナノテクノロジープラットフォーム利用成果発表会、科学技術振興機構 サイエンスプラザ（2017）
「大気エアロゾルの物理化学特性分析」
 - 7) 大島長：グリーンランド南東ドームアイスコアに関する研究集会、札幌（2017）
「気象研究所地球システムモデルによる北極ブラックカーボンのモデル研究」
 - 8) K. ADACHI, H. ISHIMOTO, A. J. SEDLACEK III, L. KLEINMAN, D. CHAND, J. M. HUBBE and P. R. BUSECK: American Geophysical Union 2017 Fall Meeting, New Orleans, USA, (2017)
“Thermal behavior of aerosol particles from biomass burning during the BBOP campaign using transmission electron microscopy”
 - 9) N. OSHIMA and M. KOIKE: AMAP short-lived climate forcers (SLCF) expert group meeting, Helsinki, Finland, (2018)
“Modeling studies of black carbon using a MRI Earth System Model”
 - 10) 足立光司：東京理科大学 研究推進機構 総合研究院 大気科学研究部門 大気科学研究部門 第2回 成果報告会（2018）
「北極ニーオルスンで採取したエアロゾル粒子の電子顕微鏡分析」
 - 11) 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、つくば、日本気象学会2018年度春季大会（2018）
「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-」
 - 12) 大島長、庭野匡思、青木輝夫、保坂征宏、田中泰宙、神代剛、吉村裕正、行本誠史、東久美子、近藤豊、小池真、つくば、日本気象学会2018年度春季大会（2018）
「気象研究所地球システムモデルによる北極域におけるブラックカーボンの放射影響評価」
 - 13) 足立光司、千葉、日本地球惑星科学連合2018年大会（2018）
“Individual particle analyses of biomass burning aerosol particles from wild fires.”
 - 14) N. OSHIMA and K. KAIHO, Honolulu, USA, Asia Oceania Geosciences Society 15th Annual Meeting (AOGS2018) (2018)
“Global climate change driven by soot ejection following the asteroid impact as the cause of the extinction of the dinosaurs”（招待講演）
 - 15) 足立光司、木名瀬健、財前祐二、梶野瑞王、高見昭憲、吉野彩子、名古屋、第35回エアロゾル科学・技術研究討論会（2018）
「金属粒子の形態と連続大気濃度分析 電子顕微鏡と ICP-MS 分析を用いた福岡での集中観測」
 - 16) K. ADACHI, A. SEDLACEK, L. KLEINMAN, T. ONASCH, S. SPRINGSTON and P. BUSECK: joint 14th iCACGP Quadrennial Symposium and 15th IGAC Science Conference, (2018)
“Formation and chemical processing of spherical organic aerosol particles, or “tar balls,” from biomass burning in the northwestern US”
 - 17) N. OSHIMA, T. Y. TANAKA, T. KOSHIRO, H. YOSHIMURA, H. KAWAI, R. KUDO, M. DEUSHI, S. YUKIMOTO and M. KOIKE, Takamatsu, Japan, iCACGP-IGAC 2018, (2018)
“Development of the MRI-ESM2 and evaluations of spatial distributions and radiative effects of black carbon”
 - 18) 大島長、田中泰宙、神代剛、保坂征宏、吉村裕正、出牛真、川合秀明、行本誠史、青木輝夫、飯塚芳徳、東久美子、近藤豊、小池真、仙台、日本気象学会2018年度秋季大会（2018）

- 「気象研究所地球システムモデルによる北極域におけるブラックカーボンの評価」
- 19) N. OSHIMA and M. KOIKE, Bologna, Italy, AMAP short-lived climate forcers (SLCF) expert group meeting, (2018)
 “Evaluation of black carbon in the Arctic using a MRI Earth System Model”
- 20) 大島長、札幌、グリーンランド南東ドームアイスコアに関する研究集会 (2018)
 「気候モデル研究でのアイスコアデータの必要性 (MRI-ESM2 を用いた研究)」
- 21) N. OSHIMA, K. KAIHO, K. ADACHI, Y. ADACHI, T. MIZUKAMI, M. FUJIBAYASHI and R. SAITO, Washington, DC, USA, 2018 AGU fall meeting, (2018)
 “Global climate change driven by soot ejection following the asteroid impact as the cause of the extinction of the dinosaurs”
- 22) K. ADACHI, T. KINASE, A. J. SEDLACEK III, L. KLEINMAN, S. R. SPRINGSTON, T. B. ONASCH and P. R. BUSECK, Washington DC, USA, AGU Fall Meeting, (2018)
 “Formation and chemical properties of tar balls from biomass burning”
- 23) 大島長、田中泰宙、神代剛、出牛真、相澤拓郎、保坂征宏、川合秀明、行本誠史、飯塚芳徳、東久美子、青木輝夫、千葉、日本地球惑星科学連合 2019 年大会、(2019)
 「気象研究所地球システムモデルによる過去再現実験での北極域のエアロゾルと気候変動」 (招待講演)
- 24) N. OSHIMA, K. KAIHO, K. ADACHI, Y. ADACHI, T. MIZUKAMI, M. FUJIBAYASHI and R. SAITO, Montreal, Canada, 27th IUGG General Assembly, (2019)
 “Global climate change driven by soot ejection following the asteroid impact as the cause of the extinction of the dinosaurs”
- 25) N. OSHIMA, The Workshop on Air Quality and Climate Research Across Scales, Tokyo, Japan, (2019)
 “Development of the MRI Earth System Model (MRI-ESM2) and Evaluations of Radiative Effects of Black Carbon” (招待講演)
- 26) N. OSHIMA, Summer Session 2019 Tsukuba on Air Quality Modeling in Asia, Tsukuba, Japan, (2019)
 “Development of the MRI-ESM2 and evaluation of black carbon in the Arctic”
- 27) N. OSHIMA: AMAP short-lived climate forcers (SLCF) expert group meeting, Ann Arbor, USA, (2019)
 “Evaluation of Radiative Forcing using MRI Earth System Model”
- 28) 大島長、グリーンランド南東ドームアイスコアに関する研究集会、札幌、(2019)
 「SE-Dome コアによるエアロゾルデータベースのモデル研究への適用・応用と MRI-ESM2 による放射強制力の推定」
- 29) K. ADACHI and T. KINASE: American Geophysical Union 2019 Fall Meeting, San Francisco, USA, (2019)
 “Single-particle analyses of aerosol particles using transmission electron microscopy and cold stages with an optical and scanning electron microscopes”

(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) 気象研究所一般公開 (2017 年 4 月 19 日、参加 196 名) にて、電子顕微鏡を用いた分析のデモンス

トレーション及び成果紹介

- 2) 気象研究所一般公開（2018年4月18日、参加155名）にて、電子顕微鏡を用いた分析のデモンストレーション及び成果紹介
- 3) 市民公開講座：大気エアロゾルの環境管理・改善に関する研究最前線（2018）「空に浮かぶ小さな金属粒子」（2018年8月2日）
- 4) iCACGP-IGAC2018 国際会議・サイエンスカフェ（2018）「明日授業で使いたくなる大気化学の話」（2018年9月28日、サンポートホール高松、高校教諭約30名）
- 5) 気象研究所一般公開（2019年4月17日、参加137名）にて、電子顕微鏡を用いた分析のデモンストレーション及び成果紹介

（5）マスコミ等への公表・報道等

- 1) 成果の記者発表（2017年5月16日、於東京大学、「人為起源の黒色酸化鉄粒子による大気加熱効果を発見」）
- 2) 産経サッと見ニュース（2017年5月16日、デジタル版、「製鉄所の酸化鉄で温暖化 中国からの大気を分析」）
- 3) 朝日新聞デジタル（2017年5月17日、デジタル版、「温暖化防止に新たな難敵 車から排出の酸化鉄が影響」）
- 4) 科学新聞（2017年5月26日、全国版、6頁、「人為起源の黒色酸化鉄大気加熱する効果あり」）
- 5) 成果の記者発表（2017年11月9日、於東北大学東京分室、「小惑星衝突の「場所」が恐竜などの大量絶滅を招く 一衝突場所により、すすが引き起こす気候変動の規模に変化」）
- 6) The New York Times（2017年11月9日、「Dinosaurs Might Not Be Extinct Had the Asteroid Struck Elsewhere」）
- 7) The Washington Post（2017年11月9日、「Dinosaurs would have survived if asteroid hit Earth elsewhere, scientists claim」）
- 8) The Guardian（2017年11月9日、「'Unlucky' dinosaurs: no extinction if asteroid had hit almost any other part of Earth」）
- 9) The Atlantic（2017年11月9日、「Bad Luck (and Fossil Fuels) May Have Doomed the Dinosaurs」）
- 10) National Geographic（2017年11月9日、「Dino-Killing Asteroid Hit Just the Right Spot to Trigger Extinction」）
- 11) Nature Asia（2017年11月10日、「【古生物学】恐竜の絶滅には小惑星の衝突場所が寄与した」）
- 12) 毎日新聞（2017年11月10日、全国版、朝刊1面、26面、「恐竜今も君臨!? 隕石落下数百キロずれていたら…」）
- 13) 日刊工業新聞（2017年11月10日、全国版、朝刊23面、「大量絶滅する確率10% 動物への影響解明」）
- 14) 読売新聞（2017年11月10日、全国版、夕刊10面、「隕石ずれていれば恐竜今も? 「環境で絶滅」ない可能性」）
- 15) 朝日新聞（2017年11月20日、全国版、夕刊1面、「恐竜今もいた? 小惑星衝突数百キロずれていれば…」）
- 16) NHK BSプレミアム「コズミックフロント ☆NEXT 5min.」（2018年8月13日、取材・インタビュー撮影、本論文紹介のための番組企画）
- 17) 成果の記者発表（2019年3月26日、プレスリリース、「北極陸域から発生するダストが雲での氷晶形成を誘発する」）

(6) その他

(公社) 日本気象学会、2019年気象集誌論文賞、S. YUKIMOTO, H. KAWAI, T. KOSHIRO, N. OSHIMA, K. YOSHIDA, S. URAKAWA, H. TSUJINO, M. DEUSHI, T. TANAKA, M. HOSAKA, S. YABU, H. YOSHIMURA, E. SHINDO, R. MIZUTA, A. OBATA, Y. ADACHI, and M. ISHII: J. Meteor. Soc. Japan, 97(5), 931-965, (2019)

The Meteorological Research Institute Earth System Model Version 2.0, MRI-ESM2.0: Description and Basic Evaluation of the Physical Component. 2019年12月21日

8. 引用文献

- 1) 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”
- 2) M. G. FLANNER, C. S. ZENDER, J. T. RANDERSON and P. J. RASCH: J. Geophys. Res., 112, D11202, doi:10.1029/2006JD008003 (2007)
 “Present-day climate forcing and response from blackcarbon in snow”
- 3) AMAP Assessment 2015: Oslo, Norway. vii + 116 pp (2015)
 “Black carbon and ozone as Arctic climate forcers. Arctic Monitoring and Assessment Programme (AMAP)”
- 4) D. T. SHINDELL, M. CHIN, F. DENTENER, R. M. DOHERTY, G. FALUVEGI, A. M. FIORE, P. HESS, D. M. KOCH, I. A. MACKENZIE, M. G. SANDERSON, M. G. SCHULTZ, M. SCHULZ, D. S. STEVENSON, H. TEICH, C. TEXTOR, O. WILD, D. J. BERGMANN, I. BEY, H. BIAN, C. CUVELIER, B. N. DUNCAN, G. FOLBERTH, L. W. HOROWITZ, J. JONSON, J. W. KAMINSKI, E. MARMER, R. PARK, K. J. PRINGLE, S. SCHROEDER, S. SZOPA, T. TAKEMURA, G. ZENG, T. J. KEATING and A. ZUBER: Atmos. Chem. Phys., 8, 5353-5372, doi:10.5194/acp-8-5353-2008 (2008)
 “A multi-model assessment of pollution transport to the Arctic”
- 5) T. C. BOND, S. J. DOHERTY, D. W. FAHEY, P. M. FORSTER, T. BERNTSEN, B. J. DEANGELO, M. G. FLANNER, S. GHAN, B. KARCHER, D. KOCH, S. KINNE, Y. KONDO, P. K. QUINN, M. C. SAROFIM, M. G. SCHULTZ, M. SCHULZ, C. VENKATARAMAN, H. ZHANG, S. ZHANG, N. BELLOUIN, S. K. GUTTIKUNDA, P. K. HOPKE, M. Z. JACOBSON, J. W. KAISER, Z. KLIMONT, U. LOHMANN, J. P. SCHWARZ, D. SHINDELL, T. STORELMO, S. G. WARREN and C. S. ZENDER: J. Geophys. Res., doi:10.1002/jgrd.50171, (2013)
 “Bounding the role of black carbon in the climate system: A scientific assessment”
- 6) N. OSHIMA, M. KOIKE, Y. ZHANG, Y. KONDO, N. MOTOKI, N. TAKEGAWA and Y. MIYAZAKI: J. Geophys. Res., 114(D6), doi:10.1029/2008JD010680, (2009)
 “Aging of black carbon in outflow from anthropogenic sources using a mixing state resolved model: Model development and evaluation”
- 7) M. Z. JACOBSON: 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”
- 8) P. STIER, 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”

- 9) N. MOTEKI, K. ADACHI, S. OHATA, A. YOSHIDA, T. HARIGAYA, M. KOIKE and Y. KONDO: *Nature Communications*, 8, Article number: 15329 (2017)
 “Anthropogenic iron oxide aerosols enhance atmospheric heating”
- 10) K. ADACHI, N. MOTEKI, Y. KONDO and 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”
- 11) S. YUKIMOTO, 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 —”
- 12) V. Eyring, S. Bony, G. A. Meehl, C. A. Senior, B. Stevens, R. J. Stouffer and K. E. TAYLOR: *Geosci. Model Dev.*, 9, 1937–1958, <https://doi.org/10.5194/gmd-9-1937-2016>, (2016)
 “Overview of the Coupled Model Intercomparison Project Phase 6 (CMIP6) experimental design and organization”
- 13) S. YUKIMOTO, H. KAWAI, T. KOSHIRO, N. OSHIMA, K. YOSHIDA, S. URAKAWA, H. TSUJINO, M. DEUSHI, T. TANAKA, M. HOSAKA, S. YABU, H. YOSHIMURA, E. SHINDO, R. MIZUTA, A. OBATA, Y. ADACHI and M. ISHII: *J. Meteor. Soc. Japan*, (97, 5), 931–965, (2019)
 “The Meteorological Research Institute Earth System Model Version 2.0, MRI-ESM2.0: Description and Basic Evaluation of the Physical Component”
- 14) H. YOSHIMURA and S. YUKIMOTO: *Pap. Met. Geophys.*, 59, 19–29, (2008)
 “Development of a Simple Coupler (Scup) for Earth System Modeling”
- 15) N. OSHIMA and M. KOIKE: *Geosci. Model Dev.*, 6, 263–282, [doi:10.5194/gmd-6-263-2013](https://doi.org/10.5194/gmd-6-263-2013) (2013)
 “Development of a parameterization of black carbon aging for use in general circulation models”
- 16) N. OSHIMA, M. KOIKE, Y. ZHANG and Y. KONDO: *J. Geophys. Res.*, 114(D18), [doi:10.1029/2008JD011681](https://doi.org/10.1029/2008JD011681), (2009)
 “Aging of black carbon in outflow from anthropogenic sources using a mixing state resolved model: 2. Aerosol optical properties and cloud condensation nuclei activities.”
- 17) J.-F. LAMARQUE, T. C. BOND, V. EYRING, C. GRANIER, A. HEIL, Z. KLIMONT, D. LEE, C. LIOUSSE, A. MIEVILLE, B. OWEN, M. G. SCHULTZ, D. SHINDELL, S. J. SMITH, E. STEHFEST, J. VAN AARDENNE, O. R. COOPER, M. KAINUMA, N. MAHOWALD, J. R. MCCONNELL, V. NAIK, K. RIAHI and D. P. VAN VUUREN: *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 7017–7039, [doi:10.5194/acp-10-7017-2010](https://doi.org/10.5194/acp-10-7017-2010), (2010)
 “Historical (1850–2000) gridded anthropogenic and biomass burning emissions of reactive gases and aerosols: methodology and application”
- 18) J. W. KAISER, A. HEIL, M. O. ANDREAE, A. BENEDETTI, N. CHUBAROVA, L. JONES, J.-J. MORCRETTE, M. RAZINGER, M. G. SCHULTZ, M. SUTTIE and G. R. VAN DER WERF: *Biogeosciences*, 9, 527–554, [doi:10.5194/bg-9-527-2012](https://doi.org/10.5194/bg-9-527-2012), (2012)
 “Biomass burning emissions estimated with a global fire assimilation system based on observed fire radiative power”
- 19) R. M. HOESLY, S. J. SMITH, L. FENG, Z. KLIMONT, G. JANSSENS-MAENHOUT, T. PITKANEN, J. J. SEIBERT, L. VU, R. J. ANDRES, R. M. BOLT, T. C. BOND, L. DAWIDOWSKI, N. KHOLOD, J.-I. KUROKAWA, M. LI, L. LIU, Z. LU, M. C. P. MOURA, P. R. O’ROURKE and Q. ZHANG: *Geosci. Model Dev.*, 11, 369–408, <https://doi.org/10.5194/gmd-11-369-2018>, (2018)
 “Historical (1750–2014) anthropogenic emissions of reactive gases and aerosols from the

Community Emissions Data System (CEDs)”

- 20) S. OHATA, A. YOSHIDA, N. MOTEKI, K. ADACHI, Y. TAKAHASHI, M. KURISU and M. KOIKE: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 123, 8115- 8134 (2018)
 “Abundance of Light-Absorbing Anthropogenic Iron Oxide Aerosols in the Urban Atmosphere and Their Emission Sources”
- 21) A. YOSHIDA, S. OHATA, N. MOTEKI, K. ADACHI, T. MORI, M. KOIKE and A. TAKAMI: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 123(19), 11,194-111,209 (2018)
 “Abundance and Emission Flux of the Anthropogenic Iron Oxide Aerosols From the East Asian Continental Outflow”
- 22) J. CHING, K. ADACHI, Y. ZAIZEN, Y. IGARASHI and M. KAJINO: *npj Climate and Atmospheric Science*, (2), 22 (2019)
 “Aerosol Mixing State Revealed by Transmission Electron Microscopy Pertaining to Cloud Formation and Human Airway Deposition”
- 23) Y. TOBO, K. ADACHI, P. J. DEMOTT, T. C. J. HILL, D. S. HAMILTON, N. M. MAHOWALD, N. NAGATSUKA, S. OHATA, J. UETAKE, Y. KONDO and M. KOIKE: *Nature Geoscience*, 12(4), 253-258 (2019)
 “Glacially sourced dust as a potentially significant source of ice nucleating particles”
- 24) A. J. SEDLACEK II, P. R. BUSECK, K. ADACHI, T. B. ONASCH, S. R. SPRINGSTON and L. KLEINMAN: *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18(15), 11289-11301 (2018)
 “Formation and evolution of tar balls from northwestern US wildfires”
- 25) K. ADACHI, A. J. SEDLACEK, L. KLEINMAN, S. R. SPRINGSTON, J. WANG, D. CHAND, J. M. HUBBE, J. E. SHILLING, T. B. ONASCH, T. KINASE, K. SAKATA, Y. TAKAHASHI and P. R. BUSECK: *Proceedings of the National Academy of Sciences* 116 (39), 19336-19341 (2019)
 “Spherical tarball particles form through rapid chemical and physical changes of organic matter in biomass-burning smoke”
- 26) J. R. MCCONNELL, R. EDWARDS, G. L. KOK, M. G. FLANNER, C. S. ZENDER, E. S. SALTZMAN, J. R. BANTA, D. R. PASTERIS, M. M. CARTER and J. D. W. KAHL: *Science*, 317, 1381-1384, doi:10.1126/science.1144856, (2007)
 “20th-century industrial black carbon emissions altered arctic climate forcing”
- 27) H. KAWAI, S. YUKIMOTO, T. KOSHIRO, N. OSHIMA, T. TANAKA, H. YOSHIMURA and R. NAGASAWA: *Geosci. Model Dev.*, (12), 2875-2897, (2019)
 “Significant improvement of cloud representation in the global climate model MRI-ESM2”
- 28) K. KAIHO and N. OSHIMA: *Scientific Reports* (7), 14855, doi:10.1038/s41598-017-14199-x (2017)
 “Site of asteroid impact changed the history of life on Earth: the low probability of mass extinction”

II-4 アイスコア・積雪分析と氷晶核特性評価

大学共同利用機関法人 情報・システム研究機構 国立極地研究所

研究教育系 気水圏研究グループ

東 久美子・當房 豊

国際北極環境研究センター

近藤 豊

平成29～令和元年度研究経費（累計額）：18,024千円（研究経費は間接経費を含む）

（平成29年度：6,110千円、平成30年度：5,804千円、令和元年度：6,110千円）

【要旨】

北極域でのブラックカーボン（BC）の沈着は大気中BCの主要な除去過程である。また降雪に伴い雪氷面に降下したBCは太陽光を吸収し、雪解けを加速し、地表面アルベドを低下させ北極の温暖化に寄与する。このような効果を推定するために最も重要な物理量は、積雪・降水中のBC濃度である。さらに、BCの粒径分布も重要な物理量である。しかし、これまで北極の広域における積雪・降水中のBCの濃度・粒径分布の高精度測定は、行われてこなかった。

このために、まず積雪・降雪中のBCの粒径分布・濃度を高精度で測定する方法を確立した。次に、北極での観測から、積雪として堆積したBCは降雪中に含まれたBCの沈着（湿性沈着）で説明できることを示した。また降雪を伴わずにBCが直接雪氷面に沈着する（乾性沈着）は湿性沈着に比べ、小さいことも示した。これは気候モデルによるBCの放射加熱効果を推定する上で基本となる知見である。

先行研究¹⁾で示された積雪中のBCの値はこれまでの論文などで広く引用されてきたが、本研究での値に比べ13倍程度高いという結果となった。この先行研究に用いられた簡易光吸収法は試料中に共存する土壌粒子の影響によりBC濃度を過大評価する傾向があることが他の先行研究²⁾で示されている。本研究は、従来の北極積雪中のBC濃度は過大評価されていたこと、そして今後は、本研究で得られた値により数値モデルの検証などをやり直す必要があることを示している。また今後の積雪の研究においては、本研究で確立された測定手法を使用することが推奨される。

北極域でのBCの輸送・沈着過程を正確に把握し、BCが放射強制力に及ぼす直接効果・間接効果やBCによる地表面アルベド低下によってBCが温暖化に及ぼす影響を高精度で推定するには、エアロゾル・モデルを高精度化する必要がある。そのためには現代の大気・降水・積雪だけでなく、長期間にわたるBCの濃度・粒径のデータが必要であるとともに、正確なエミッション・インベントリーが重要である。しかし、北極域においては長期間の観測データが殆どない。本研究では、エアロゾル・モデルとエミッション・インベントリーの検証データを得るため、アイスコアを用いて産業革命以後のBCの濃度・粒径分布を高精度・高時間分解能で復元した。また、BCに加えて、放射強制力や地表面のアルベドに影響を及ぼすと考えられている酸化鉄の濃度をアイスコアから復元する方法を検討し、世界で初めてその復元を試みた。

BCの濃度は19世紀後半から上昇し始め、1920～1930年代に最大となり、その後、減少傾向を示した。BC粒子の平均質量も濃度と同様の傾向を示した。濃度増加が始まる以前は夏に濃度のピークがあったが、濃度が高い時代になるとピークを示す季節が冬～春にシフトしていた。濃度の増加は、人為起源のBCによるものと考えられ、人為起源BCの影響が見られる以前のBCは森林火災等のバイオマス・バーニング起源であると推定される。BC濃度には時折、夏期に高濃度のピークが短期間だけ出現したが、気温が融点付近にある際にこのような現象が生じると、雪のアルベドに影響を及ぼす可能性がある。一方、酸化鉄濃度の長期トレンドはBCとは異なっており、グリーンランド氷床に堆積した酸化鉄の多くは鉱物ダストが起源であることが示唆された。

さらに本研究では、BC、酸化鉄、ダストなどの微粒子と北極域下層雲との間での相互作用を理解するために、それらの氷晶核特性について定量的に調べた。その結果、人為起源のBCや黒色酸化鉄は、ダストに比べると、氷晶核としてはあまり有効ではないものの、約 -20°C 以下にまで気温が下がると氷晶核として機能し始めることがわかった。よって、BCや黒色酸化鉄自体が氷晶核として働くことによって雪

面へ沈着する過程を評価する際に、本研究によって測定された氷晶核特性のパラメーターが有効に活用されることが強く期待される。また、北極陸域から発生するダストは、低～中緯度起源のダストよりもはるかに高い氷晶核特性を示すことも本研究で初めて明らかになった。スバル諸島で実施した集中観測の結果からは、北極陸域から発生する氷晶核特性の極めて高いダストの影響によって、大気中の氷晶核の数濃度が大幅に増加していたことも示唆された。温暖化の進行によって積雪の融解や氷河の後退が進むと、北極陸域から発生するダスト量の変動すると予測されているが、本研究で得られた成果は、北極陸域でのダストの発生が北極域下層雲内での氷晶形成を大きく左右し、その放射特性や寿命などに多大な影響を及ぼす可能性があることを提唱している。

[キーワード]

北極域、ブラックカーボン、酸化鉄、ダスト、降積雪、アイスコア、氷晶核

1. はじめに

北極域でのブラックカーボン（BC）の沈着は大気中BCの時間変化、特に季節変化を駆動する重要な過程である。またBCの雪氷面への沈着はBCによる北極の加熱を支配する過程でもある。このことは、数多くの研究や北極評議会（Arctic Council）のもとに行われてきたSLCF（Short-lived Climate Forcers; 短寿命気候汚染物質）の専門家グループと連携したAMAP（Arctic Monitoring and Assessment Program）報告書でも指摘されてきた。しかし、この過程の理解の本質的な進展には、新たな手法と観測に基づく研究が必要である。我々は、BC沈着過程の解明のため、これまで継続的に開発してきた観測的手法を、本研究を通してさらに大きく発展させた。

BCの輸送・沈着過程を正確に把握し、BCが放射強制力に及ぼす直接効果・間接効果やBCによる地表面アルベド低下によってBCが温暖化に及ぼす影響を高精度で推定するには、エアロゾル・モデルを高精度化する必要がある。そのためには広域にわたるBCの観測データや、長期間にわたるBCのデータが必要であるとともに、正確なエミッション・インベントリーが重要である。しかし、北極域においては広域の観測データや長期間の観測データが殆どない。本研究では、エアロゾル・モデルとエミッション・インベントリーの検証データを得るため、ノルウェーのニーオルスンで降水中BCの定点観測を実施した。北極域広域のBCの空間分布を研究するため、北米のアラスカ、フィンランド、ロシアのシベリア、ニーオルスン、デンマークのグリーンランドで採取した積雪のBC分析を実施した。さらに、長期間のデータを得るため、グリーンランドで掘削したアイスコアを用いて産業革命以後のBCの濃度・粒径分布を高精度・高時間分解能で復元した。このアイスコアからは、BCに加えて、放射強制力や地表面のアルベドに影響を及ぼすと考えられている酸化鉄の濃度変動を復元する方法を検討し、その復元を試みた。

北極域でのBCのかなりの部分はアジアから排出され長距離輸送されたものである。本研究によって得られる知見を国際的なBCの排出量推計・規制に結び付けていくためには、世界的に見ても排出量が多いアジアの開発途上国へのアウトリーチが不可欠である。このためアジア諸国に温暖化対策としてのBCの重要性や、BC削減時の効果を定量化することに寄与する大気中BC濃度測定法などの情報を提供した。

BCや酸化鉄、ダストなどのエアロゾル粒子の雪面への沈着過程を考える上では、それらが北極域で頻繁に発生する下層雲との間でどのような相互作用を引き起こすのかを理解することも重要である。北極域下層雲は、エアロゾル粒子が雲凝結核もしくは氷晶核として働くことで形成されるが、その微物理過程については、あまりわかっていない。特に、北極域下層雲内でみられる氷晶は、液体の雲粒（過冷却水滴）よりもはるかに大きな雲粒へと急速に成長することから、エアロゾル粒子の氷晶核特性に関する情報は、雲の光学特性や寿命に及ぼす影響を評価する上で重要なだけでなく、それらの粒子の大気中での輸送・沈着過程を理解する上でも非常に重要な科学的知見となりうる。

一般的に、氷晶核として働くエアロゾル粒子は、大気中に浮遊する固形のエアロゾル粒子の中の一部に限られ、ごく微量でしか存在していないと考えられている。特に、北極域の大気中において、どのような種類のエアロゾル粒子が氷晶核として働いているのか、またそれらの氷晶核特性はどの程度なのかは、殆どわかっていない。低～中緯度の乾燥地帯から発生する鉱物ダストについては、比較的研究が進

んでおり、その氷晶核特性も徐々にわかってきつつある。一方、BCの氷晶核特性については、鉱物ダスト並に氷晶核特性が高いという報告もあれば、既存の測定法では評価ができないほど氷晶核特性が極めて低いという報告もあるという状況であり、当該分野の専門家の中でも非常に見解が分かれている。また、最近の研究では、人為起源の黒色酸化鉄は、BCに匹敵するレベルでの吸熱効果を持っていることが示唆されているが、その氷晶核特性はわかっていない。ダストに関しても、低～中緯度の乾燥地帯以外だけでなく、高緯度の陸域からも雪氷が融解し地表が露出するとダストが発生することが知られるようになってきているが、高緯度起源のダストの氷晶核特性について調べられた事例は殆どない。以上のような背景から、それらの微粒子の氷晶核特性を調べるための測定手法を確立し、定量的な評価が行われることが強く望まれている。

2. 研究開発目的

降雪・積雪中のBCの観測

BCの沈着は北極の大気中に存在するBCの主要な除去過程である。また降雪に伴い雪氷面に降下したBCは太陽光を吸収し、雪解けを加速し、地表面アルベドを低下させ北極の温暖化に寄与する。このような効果を推定するために最も重要な物理量は、積雪・降水中のBC濃度である。しかし、これまで北極の広域における積雪中のBCの粒径分布・濃度の高精度測定は、行われてこなかった。また、降水中のBC濃度の一日の時間分解能の測定は、降水によるBC除去過程を理解する上で重要である。積雪中のBC濃度は降水除去により決まるはずであるが、積雪中のBC濃度と降水によるBC沈着量との関係についての知見は乏しい。このような観測的な研究が行われてこなかった大きな理由は、積雪・降水試料の取得が困難であることと、液体中のBC濃度の高精度の測定が困難であったことにある。本研究では、まずこれらの技術的困難さを解決し、測定の信頼性を確立する必ことをめざした。次に、この測定法を用いて北極での観測を実施し、BCの沈着に関する新たな知見を得ることが重要な目的であった。この高精度データにより気候モデルのBCの沈着過程の計算を実証することが初めて可能になった。

グリーンランド・アイスコアの解析

BCの排出源から北極への輸送、北極での沈着過程、放射強制力へ及ぼす直接効果及び間接効果、雪氷面アルベドへの影響等を正確に把握するためには、産業革命前からの長期に及ぶBC観測データが必要である。また、本研究課題のグループの最近の研究から、BCだけでなく酸化鉄も放射強制力や雪氷面アルベドに影響を及ぼす可能性が指摘されており、北極域における酸化鉄の長期観測データも重要になってきた。しかし、現実的にはBCや酸化鉄の長期観測データは存在しないため、長期間の積雪を保存しているアイスコアの解析が、過去のBCや酸化鉄の動態を研究する上で重要な研究手段となる。アイスコア解析は、BCのエミッション・インベントリを検証する唯一の手段でもある。

アイスコアはサンプル量が限定されるため、BC濃度の低い北極のアイスコアのBC分析を実施するには、少量のBC粒子の分析が可能なSP2測定器（レーザー誘起白熱法）を用いる必要がある。アメリカのMcConnellら³⁾はSP2に超音波ネブライザーを接続することで、初めてグリーンランドのアイスコアのBC分析を行った。しかし、超音波ネブライザーの粒子化効率がBCの粒径に大きく依存するにも関わらず、粒径依存性がないと仮定したため、測定精度には大きな誤差と不確定性があった。その後、スイスとフランスを中心とするグループがアイスコア等の雪氷サンプルを、より高精度で分析する方法を検討し^{4),5)}、この方法により、スイスを中心とするグループが北極域スバルバルのアイスコアの分析を行ったが、これまで、グリーンランドのアイスコアについては信頼できるBC分析データがなかった。また、アイスコアからBCの粒径分布や酸化鉄濃度を復元した例はなかった。本研究では、東京大学と国立極地研究所が開発した分析システムを用いて、グリーンランド北西部で掘削されたアイスコアから、産業革命以後のBCの濃度と粒径分布を高精度・長時間分解能で復元した。また、北極のアイスコアに微量しか含まれていない酸化鉄の濃度の復元方法を検討し、その復元を試みた。

BC、酸化鉄、ダストおよび北極域の大気エアロゾルの氷晶核特性の評価

先行研究の中では、BC、酸化鉄、ダスト等の微粒子の氷晶核特性について、十分な評価が行われてきていない。また、北極域のように比較的きれいな（つまり、エアロゾル粒子濃度が比較的低い）大気中において、どのような種類の固形のエアロゾル粒子が存在しているのか、またそれらの氷晶核特性はどの程度なのかも殆どわかっていないというのが現状である。それらの大きな理由としては、氷晶核特性を定量化するための手法が確立されていないことが挙げられる。

北極域下層雲の中での氷晶の形成は、温度が約 -36°C ～ 0°C 、液体の水に対する相対湿度が100%以上の条件下で起きると考えている。そこで、微粒子の氷晶核特性の評価手法の1つとして、任意の温度・湿度条件に設定可能な雲生成チャンバーが用いられてきている。ただし、雲生成チャンバーを用いた手法だと、高価な設備が必要だけでなく、氷晶核特性がある程度高い微粒子にしか適用できないという欠点があった。それ以外の測定手法としては、水滴凍結法（微粒子を含む水滴を低温ステージ上で冷却することで、それらの微粒子の氷晶核特性を計測する手法）がある。低温ステージ上の微粒子は、既に過冷却水滴で覆われた状態になっているため、水滴凍結法を用いる場合には、低温ステージの温度のみをコントロールすればよい。よって、雲生成チャンバーに比べると安価で操作も単純であり、さらに氷晶核特性が低い微粒子に対しても適用することができるという利点がある。しかし、従来の水滴凍結法では、微粒子を含んでいないはずの水滴も約 -25°C よりも高い温度でほとんど凍結してしまうという問題が生じていたため、それよりも高い温度域でしか適用できないという欠点があった。

そこで本研究では、より幅広い温度域で適用できるように開発・改良されたオリジナルの水滴凍結法を用いることによって、北極域下層雲があらわれる温度条件下におけるBCや酸化鉄、ダストなどの氷晶核活性を定量的に評価することを目的とする。さらに、この水滴凍結法を大気観測にも適用できるかを検証し、実用化することによって、北極域の下層大気中には、氷晶核としての働きを持つエアロゾル粒子がどの程度の量で存在しているのかを調べる。

アジア開発途上国へのアウトリーチ

アジアでの温暖化対策としてのBCの重要性や、BC削減時の効果を定量化するための大気中BC測定法などの情報を提供することは、アジアでのBC削減を進めるための重要なステップである。アウトリーチの目的はこのようなことに関し、アジアの関係機関と連絡を取り合うことであった。

3. 研究開発方法

(1) ニーオルスンでの降雪・積雪中のBC観測

降雪の採取

降雪の採取法として「吹き流し：Windsock」と「据え置き型の箱：Box」を用いる方法を詳細に比較した。特に箱採取器はこれまでの国立極地研究所における長年の研究経験に基づいて新たに設計・製作し、2017年12月より使用している。この採取器の内面は粒子汚染が無視できるポリエチレンの薄膜で覆われている。吹き流しによる降雪の採取は2012年9月から行われている。吹き流しと箱という異なった採取法による降雪中のBCの数濃度は10%程度の範囲で一致するものの、吹き流しでは、質量濃度を約80%過大評価することが判明した。その原因を解明し、吹き流しで得られたデータの補正法を確立した。

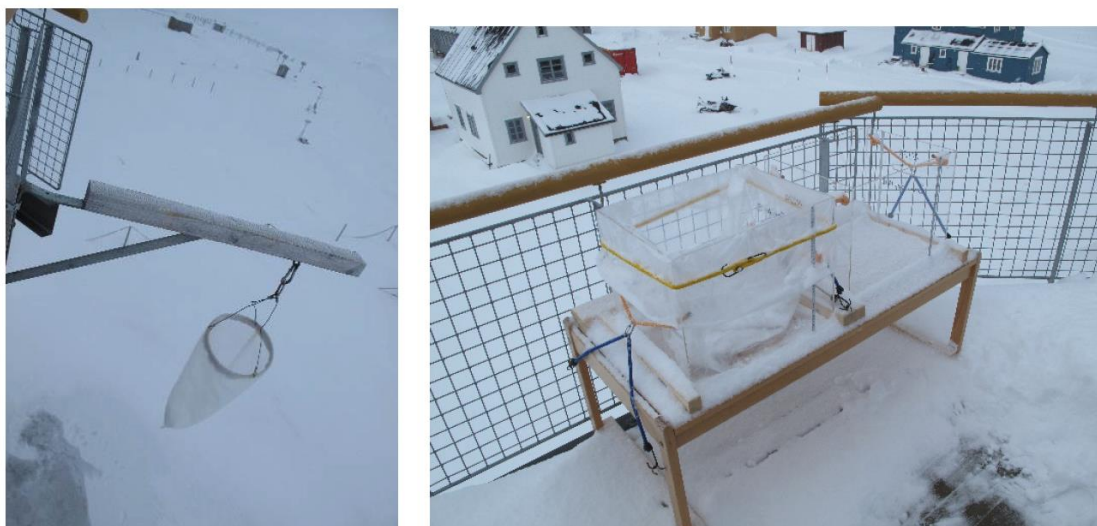


図 3.4.1 Windsock (左) と Box (右) 採取器

積雪の採取

積雪は2013年の4月に標高の異なる2地点でピットを掘り、3 cm毎の厚さで雪を採取した。積雪水量(SWE)を推定するために雪の密度も測定した。スピッツベルゲン・ニーオルスンにおいて2013年の4月に2地点(海拔高度11mおよび300 m)で積雪を採取した。また2012年9月-2013年4月に降雪を採取した。これらの試料中に含まれるBC粒子の粒径分布を測定した。積雪深と密度から直接測定されるSWEを気象観測データから得られる値と比較した。また、BC濃度の高精度測定は、東京大学において開発されたWide range SP2測定器(レーザー誘起白熱法)と噴霧による水の粒子化装置を組み合わせたシステム⁶⁾で行った。

雪中のBCの粒径分布を測定する場合、雪を融解したのち、水中でのBCの凝集により、時間の経過と共

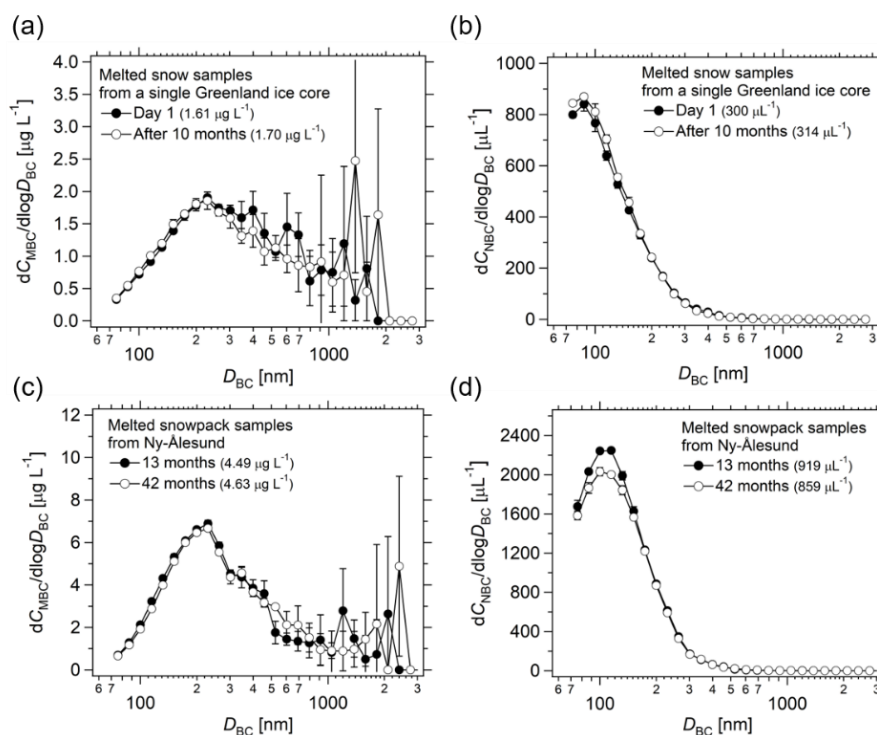


図3.4.2 グリーンランドアイスコア・ニーオルスンの積雪を融解してから10、13、42か月経過した後測定されたBC粒径分布⁷⁾

に粒径分布が変化することが考えられる。この変化の程度を調べるために、雪氷を融解してから、10-42か月経過してから、BCの粒径分布の変化を再度測定した(図3.4.2)。42か月後でも、粒径分布は大きく変化しないことが判明した。積雪・降雪は融解後約2年後に分析しているため、この変化は、無視できると考えられる。この結果は、今後の降雪中のBCの分析を行う場合にも重要な参考になる。

(2) 北極広域積雪観測

北極広域でこれまでの採取された積雪試料を分析・整理した。採取場所は北米のアラスカ、フィンランド、ロシアのシベリア、ノルウェーのニーオルスン、デンマークのグリーンランドである。積雪の採取・分析法は、場所により多少異なるが、最も深さ分解能の高いアラスカでの採取方法を記述する。

アラスカにおいて、2012年から2015年の2月下旬から3月中旬に積雪採取を行った(図3.4.3)。積雪観測では積雪採取と合わせて積雪深と密度を測定した。全層は円筒状の亚克力製スノーサンプラー(先端部のみステンレス製)、表層はステンレス製の角形密度サンプラーをそれぞれ用いて雪を採取し、質量を測定して密度を求めた。積雪深と積雪密度からSWE計算した。

2012年-2015年は全地点で全層の積雪を採取した。ここでの全層とは積雪開始日から観測日までに積もった一冬分の雪である。2015年の観測では地表面の植物などの混入を避けるため、積雪の底部分約5cmを除いて全層試料を採取した。道路からの汚染の影響は、道路から約25m以上離れていれば汚染の影響が少ないことを確認した。2013年以降は、積雪全層に加えて表面から0-2 cm、2-10 cmの積雪を採取した。積雪の各層で吸収される放射量は表面で最も大きく、BC濃度が増加すると、表面に近い層がさらに加熱される。大気と接している表面は長波放射で冷却されており、実際には深さ数cmの層が最も加熱され、内部融解が起こっている場合には、光吸収性エアロゾルがその効率を上げる効果があると考えられているため、2-10cmも採取した。

積雪試料はステンレス製の雪べらで、固体微粒子の含有量が極めて少ないパウダーフリーのポリ袋に入れ、試料の一部をガラス瓶、ポリプロピレン瓶の順に取り分けた。ガラス瓶はBC測定用、ポリプロピレン瓶はイオン成分分析用である。この操作により、ポリ袋からガラス瓶、ポリプロピレン瓶への取り分けの際のBCのポリ袋への吸着効果は最小限に抑えられたと考えられる。ガラス瓶は超音波洗浄を行ったものを、ポリプロピレン瓶は市販の洗浄済瓶をそのまま使用した。融解した試料は現地から常温で持ち帰り、ガラス瓶は冷蔵庫(4℃)で、ポリプロピレン瓶は冷凍庫(-20℃)で分析まで保管した。

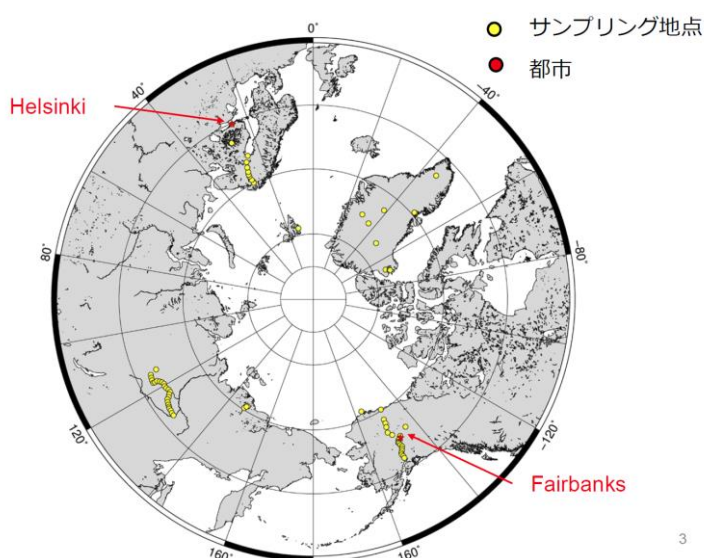


図3.4.3 北極広域での積雪の採取場所

(3) グリーンランド・アイスコアの解析

グリーンランド北西部のSIGMA-D地点（図3.4.4）で掘削されたアイスコア⁸⁾を、国立極地研究所が開発したアイスコア連続融解分析装置（CFA）⁹⁾を用いて連続的に融解しながら、CFAに接続したレーザー式水同位体分析計とICP質量分析計を用いて取得した、酸素同位体比とNaの連続データを解析した。取得したデータは深さ6～112メートルの部分である。CFAには東京大学が開発したWide range SP2測定器（レーザー誘起白熱法）と噴霧による水の粒子化装置を組み合わせたシステム⁶⁾を接続しており、このシステムで連続的に取得したBCの濃度と粒径のデータを解析した。東京大学が開発したシステムを用いることで、従来のSP2測定器では最大850nm程度の粒径までのBCのデータしか取得することができなかったのに対し、本研究では約70nm～約4 μ mの粒径範囲のBCの高精度分析データを解析することができた。CFAによる高時間分解能・連続データを用いることで、BCの濃度と粒径の変動を、ほぼ月単位で解析することができた。また、東京大学が開発したSP2測定器による酸化鉄分析法^{10,11)}を用いることで、アイスコア中の酸化鉄を世界で初めて分析した。

以下の方法でアイスコアの年代決定を行った。本研究に用いたアイスコアにおいては、酸素同位体比とNa濃度が規則正しい季節変化を示していたが、一般的に、グリーンランドでは、気温の指標となる酸素同位体比は夏に、海塩エアロゾルを起源とするNaは冬にピークになることが知られていることから、これらの季節ピークを利用して、一年一年をカウントした。酸素同位体比のピークを7月1日、Naのピークを1月1日と仮定して、両者のピークの間をそれぞれ6等分することで、月単位の年代決定を行った。この年代決定の結果に基づき、BC濃度の月平均値、年平均値、10年平均値、20年平均値を計算した。

グリーンランドのアイスコアに含まれる酸化鉄は微量であるため、国内の観測結果に基づく先行研究で示された基準でのBCと酸化鉄の分離¹¹⁾が必ずしも容易ではないことが分かった。そのため、Wide range SP2測定器で取得したデータから、BCと酸化鉄を分離する方法を検討した。検討結果に基づき、異なる2つの分離基準で酸化鉄濃度の復元を行い、結果を比較した。

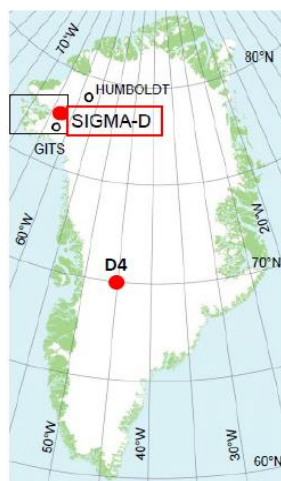


図3.4.4 グリーンランドにおけるアイスコアの掘削地点の位置

(4) BC、酸化鉄、ダストの氷晶核特性の評価

国立極地研究所では、従来の水滴凍結法の改良に取り組むことによって、約 -30°C ～ 0°C と非常に幅広い温度範囲において、ごく微量でしか存在しない氷晶核として働く微粒子を検出することが可能なオリジナルの実験系であるCRAFT¹²⁾（Cryogenic Refrigerator Applied to Freezing Test）を確立することに成功した。CRAFTでは、クリーンブース（清浄空気）内で実験を行うようにし、また低温ステージに疎水性の加工を施していた結果、約 -30°C ～ 0°C の間では、従来の水滴凍結法でみられたような微粒子を含まない水滴の凍結は殆ど起きないように工夫されている。CRAFTの測定精度の高さは、様々な種類の標準試料（標準鉱物ダスト試料、標準微生物試料等）を用いた校正実験を通して既に検証してきている¹²⁾。

そこで本研究では、このCRAFTを用いて、BCや酸化鉄、ダストの氷晶核特性を定量的に調べた。氷晶核特性を示すパラメータとしては、各試料の単位質量あたりの氷晶核数 (n_m) を測定した。つまり、 n_m 値が高い試料ほど、高い氷晶核特性を持っている試料ということになる。また、BCおよび酸化鉄に関しては、ガス吸着法 (BET法) によって比表面積 (固体単位質量当たりの全表面積) を測定した。

CRAFTを用いて氷晶核活性の評価する際は、微量の試料でも可能ではあるものの、それでも約10 mgの量が必要となる。実際の北極域において純度の高いBCおよび酸化鉄を10 mg以上集めることは、非常に困難である。そこで本研究では、市販されているBCと酸化鉄を標準試料として活用することにした (図3.4.5)。BCについては、Alfa Aesar社製のフラーレン煤 (fullerene soot、BET比表面積=329 m^2/g) を使用した。また、人為起源の黒色酸化鉄については、戸田工業製のマグネタイト (magnetite、BET比表面積=4.0 m^2/g) を使用した。それ以外にも比較対象用に黒色以外の酸化鉄として、戸田工業製のヘマタイト (hematite、BET比表面積=10.7 m^2/g) とゲーサイト (goethite、BET比表面積=40.3 m^2/g) を使用した。これらの微粒子は、いずれも数百nm~約5 μm の大きさの凝集体 (集合体) から構成されており (図3.4.6)、実際の大气中でみられる人為起源のBCや酸化鉄¹³⁾とも比較的よく似た特徴をしていた。また、BCと酸化鉄の凝集体を構成している微粒子が細粒で複雑なものほど、高いBET比表面積を示す傾向がみられた。ダストについては、低~中緯度の乾燥地帯からだけでなく、夏季に積雪が融解して地面が露出すると北極域のような高緯度の陸域からも発生することが知られてきている。特に、アウトウォッシュ・プレーン (氷河末端から流れだす網状の流路をもつ水流により、氷河の前面に形成される扇状地状の堆積平野地形) は、植生が殆どなく、氷河の浸食作用によって細粒化された微粒子を豊富に含んでいることから、北極域から発生するダストの主な供給源になっていると言われている。そこで本研究では、スバル諸島のブレッガー氷河下流に分布するアウトウォッシュ・プレーンで氷河性堆積物を採集し、そこから抽出された約5 μm 以下の大きさの固体微粒子を「高緯度 (北極陸域) 起源のダスト」の標準試料として活用し、その氷晶核特性を調べた。

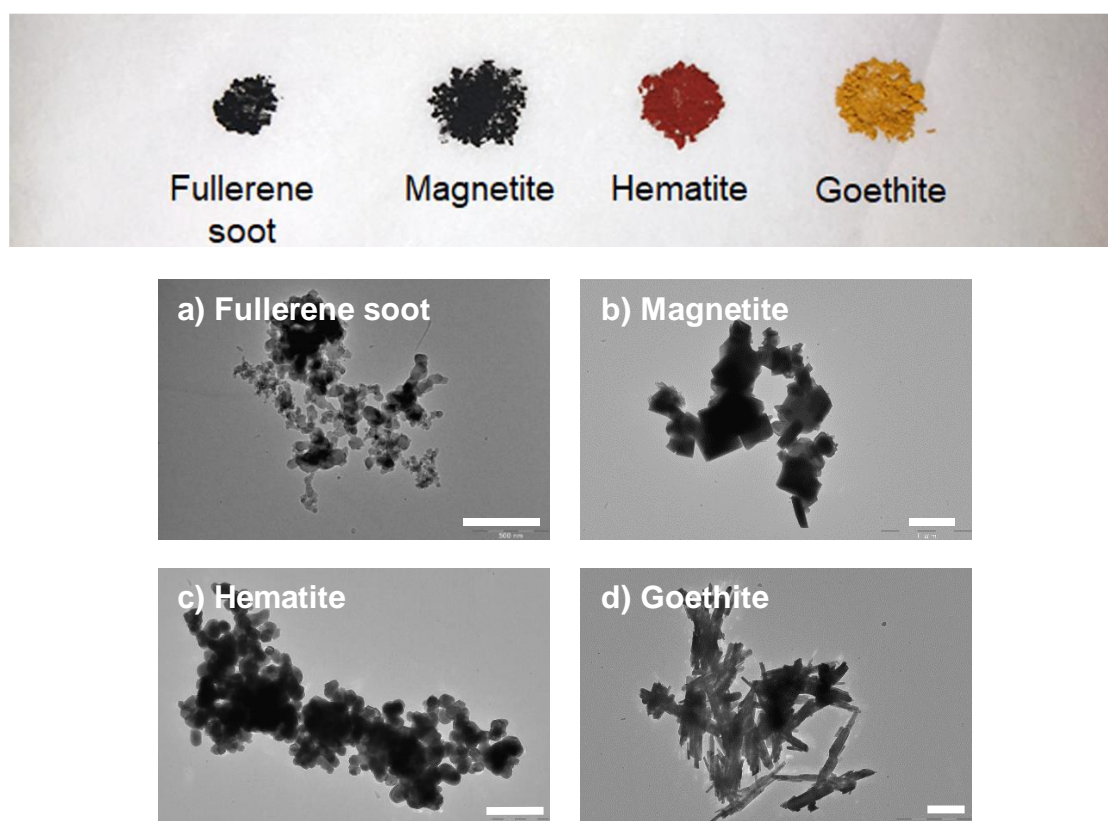


図3.4.6 氷晶核特性の測定に用いたBCおよび酸化鉄 (マグネタイト、ヘマタイト、ゲーサイト) の透過電子顕微鏡写真。図中のエラーバーの長さは、500 nmに相当。

(5) ニーオルスンでのエアロゾル・氷晶核の集中観測

本研究では、CRAFTの測定技術を応用することにより、氷晶核として働くエアロゾル粒子の大気中での数濃度の算出手法の開発と検証にも取り組んだ。その手順としては、まず大気中に浮遊するエアロゾル粒子をポリカーボネート性のメンブレンフィルター（直径47 mm、孔径0.2 μm）上に捕集した後に、エアロゾル粒子を純水（Milli-Q水）中に抽出した。そして、エアロゾル粒子を含む懸濁液を用いた水滴凍結実験をCRAFTにて行うことによって、大気中での氷晶核として働く微粒子の数濃度の算出を試みた。CRAFTによって算出された値を検証するために、コロラド州立大学との共同研究を行い、同大学の所有する小型の雲生成チャンバー（CFDC）との比較実験をコロラド州立大学の敷地内などで実施してきた。その結果、約−30℃〜−15℃の温度域において、CRAFTおよびCFDCによって得られた大気中での測定値は、概ねよく一致することを確認することができた¹⁴⁾。

北極域の下層大気中での測定には、スバル諸島・ニーオルスンのZeppelin山観測所（78.9081°N、11.8814°E、海拔474 m）で実施した集中観測の期間（2016年7月と2017年3月にそれぞれ約一週間）に得られたエアロゾル試料を使用した。これらの期間中にメンブレンフィルター上に捕集されたエアロゾル試料は、国立極地研究所に持ち帰った後、CRAFTによる水滴凍結実験に使用され、その実験結果を元に大気中での氷晶核として働くエアロゾル粒子を算出した。また、同試料の一部を気象研究所の走査型電子顕微鏡によって分析することにより、メンブレンフィルター上に捕集されていた個々のエアロゾル粒子の大きさや化学組成（元素組成）などについても調べた。

(6) アジア開発途上国へのアウトリーチ

インドのデリーで2018年7月に開催されたWGIA（アジアにおける温室効果ガスインベントリ整備に関するワークショップ）に出席し、BCの排出量推定の検証に必要なBCの高精度測定的重要性に関する発表を行なった。BCの健康影響、気候影響に関する議論を行ない、アジアにおけるエアロゾルの影響と、排出量推定の重要性の理解を深めた。さらな具体的な方策を議論するために国立物理学研究所（National Physical Laboratory (NPL)）でセミナー講演を行なった。国立物理学研究所はインドのエアロゾル測定の基準を作るための研究を行っている機関である。

4. 結果及び考察

(1) ニーオルスンでの降雪・積雪観測

本研究ではスピッツベルゲンのニーオルスンにおいて2013年の4月に2地点（海拔高度11mのBSRN地点および300 mのGlacier地点）で採取した2012年9月-2013年4月にSverdrup基地で採取した降雪の試料中に含まれるBC粒子の濃度と粒径分布を測定した。吹き流しと箱という異なった採取法による降雪中のBCの数濃度は10%程度の範囲で一致するものの、吹き流しでは、質量濃度を約80%過大評価することが判明した。その原因を解明し、吹き流しで得られたデータの補正法を確立した。この結果、積雪及び降雪中のBC観測に基づくBC沈着量の推定値は測定誤差の範囲で一致することを初めて見出した。このように開発した降雪・積雪中のBC濃度及びBC沈着フラックス測定法の高信頼性が示された。

積雪の深さ（SWE）を気象データから推定し、各SWEに対する積雪及び降水中のBCの数濃度の時間変化を比較した（図4.4.1）。また積雪及び降水中のBCの数濃度の相関を図4.4.2に示した。雪の採取された場所の違いや気象データの誤差などを考えると、積雪及び降水中のBCのSWE（すなわち時間）に対する変化はよく一致しているといえる。これは、個々の降水イベントによるBCの沈着量や雪氷アルベドへの影響をより正確に理解できることを示唆している。

積雪中のBCの粒径分布は雪の深さにより大きく変化することはなく、降雪中のBCの粒径分布が安定していたことを示唆している。2地点でのSWEは2.6倍ほど異なっているにも関わらず、BCの数濃度・質量濃度はそれぞれ19%・10%で一致した。積雪の採取地点付近で採取した降雪中のBCの数濃度・質量濃度は積雪中での値と5%・16%で一致した。言い換えると、BCの積算された沈着量は、水換算された積算降雪量・積雪量に対し、同じ傾きの直線上にのることが分かった（図4.4.3）。このことは、積雪中のBC量は降雪

に伴うBCの沈着により、測定誤差の範囲で説明できることを意味しており、乾性沈着の寄与が小さいことを示している。また積雪中BC量が降雪中BC量により説明できる事実は、雪氷アルベドを低下させる原因となるBCが、どの降雪イベントによりもたらされたのか同定可能であることを示している。さらにその大気中のBCがどの発生源からどのように輸送・沈着されたのかまで遡れる可能性を意味するものである。本研究は、数値モデルの新たな検証材料を提供するとともに、検証された数値モデルにより雪氷アルベド低下に対する発生源寄与推定への道筋を示すことができた。

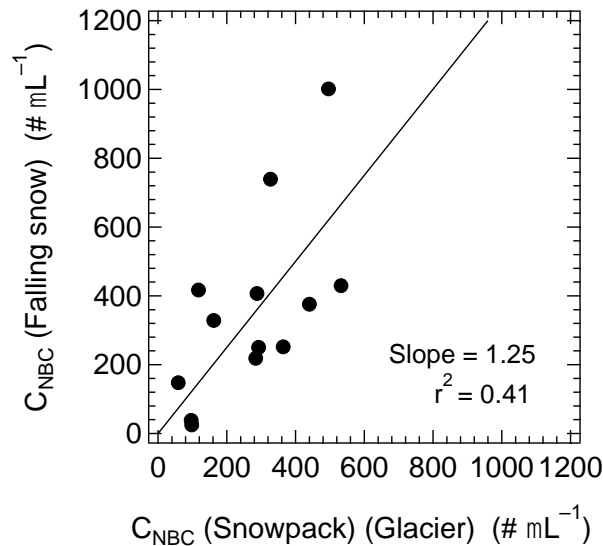


図4.4.2 積雪 (Glacier) と降水中のBC数濃度との相関。

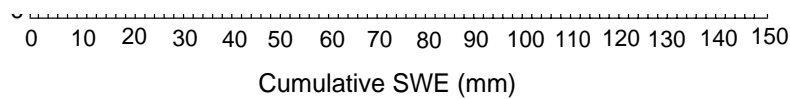


図4.4.1 積雪の深さ (SWE) に対する、積雪 (Glacier, BSRN) と降水中 (Sverdrup) のBC数濃度。上のX軸のスケールは近似的な日付を表す。

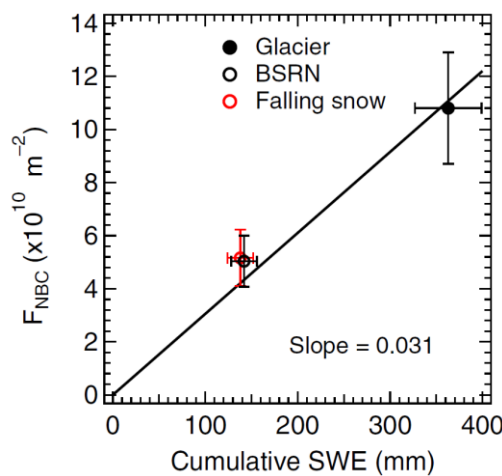


図4.4.3 BCの積算された沈着量と、水換算された積算降雪量・積雪量との関係⁷⁾

(2) 北極での広域積雪観測

図4.4.4には、2012-2016年の間に積雪中BC濃度測定のために積雪を採取した場所と、各領域での積雪中BC濃度の中央値を示した。これらの試料は、融雪が始まる前の、積雪中BC量が最大となる時期（2-5月）に採取されたものである。採取された試料中のBC濃度は、BC質量濃度測定で最も信頼性が高いとされるレーザー誘起白熱法（SP2）により定量された。この方法は、土壌粒子と区別してBCのみを測定できることが特徴である。これらの高精度測定の結果、積雪中BC濃度は南シベリアやフィンランドで濃度が高く、グリーンランドやスピッツベルゲン島で低濃度となっていることが明らかとなった。これらの濃度分布は、BC発生源からの距離や、大気中での輸送や標高に応じた降水による雪氷面への沈着過程を反映したものと考えられる。

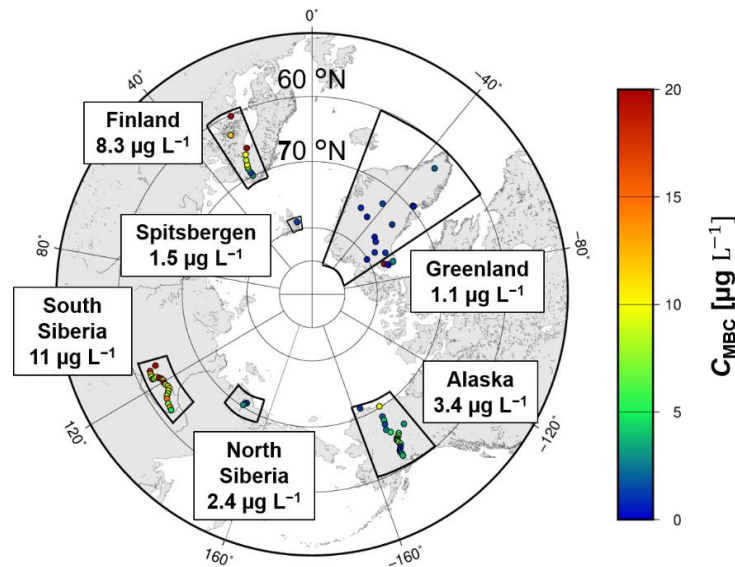


図4.4.4 各領域での積雪中BC濃度の中央値⁷⁾

さらにSP2で測定された積雪中の個々のBC粒子の質量（大きさ）に基づき粒径分布を解析したところ、積雪中BC濃度が低くなるにつれてBC粒径分布の極大径はより小粒子側へとシフトしていることが明らかとなった。図4.4.5に積雪中BC濃度とBC粒子の平均質量（ m_{BC} ）との関係を示したが、この図からもBC濃度が低くなるほどBC粒子の平均質量が小さくなること、つまり粒径が小さくなるのが分かる。この傾

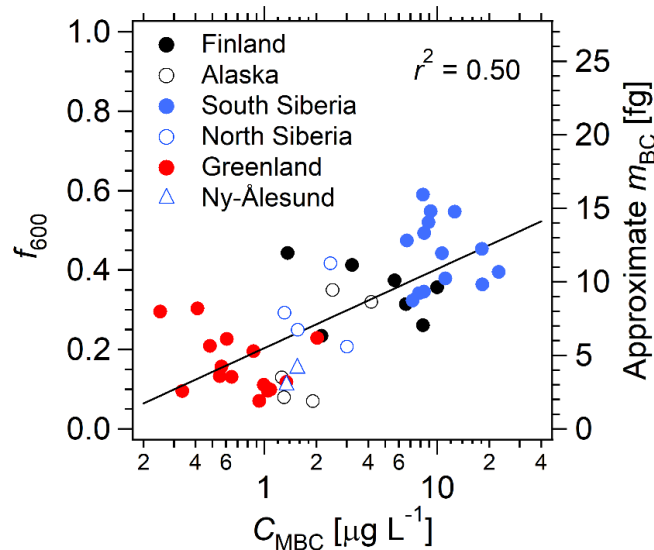


図4.4.5 積雪中BC濃度と個々のBC粒子の質量（ m_{BC} ）との関係⁷⁾

向は、一般に大きなBC粒子ほど降水による除去を受けやすいことと整合的である。すなわち発生源から北極へBCが輸送される間に降水除去が進むが、大きなBC粒子ほど除去効率が高いため、小さな粒子が相対的により多く大気中に残ったためと考えられる。

図4.4.6には本研究で得られた各領域での積雪中BC濃度の中央値と、先行研究¹⁾で示された値を比較した(試料採取の年は異なるが)。この先行研究は北極の広域にわたり数多くの試料を分析した結果として、これまでの論文などで広く引用されているものである。この図からもわかるようにこの先行研究の値は、13倍程度高いという結果となった。この先行研究では簡易光吸収法であるISSW (Integrating Sphere/Integrating Sandwich spectrometer) 法が使用されている。このBC測定法は試料中に共存する土壌粒子の影響によりBC濃度を過大評価する傾向があることが他の先行研究²⁾で示されている。本研究は、従来の北極積雪中のBC濃度は過大評価されていたこと、そして今後は、本研究で得られた値により数値モデルの検証などをやり直す必要があることを示している。また今後の積雪の調査・研究においては、本研究で確立された水中に浮遊するBCの粒径分布測定手法を使用することが推奨される。

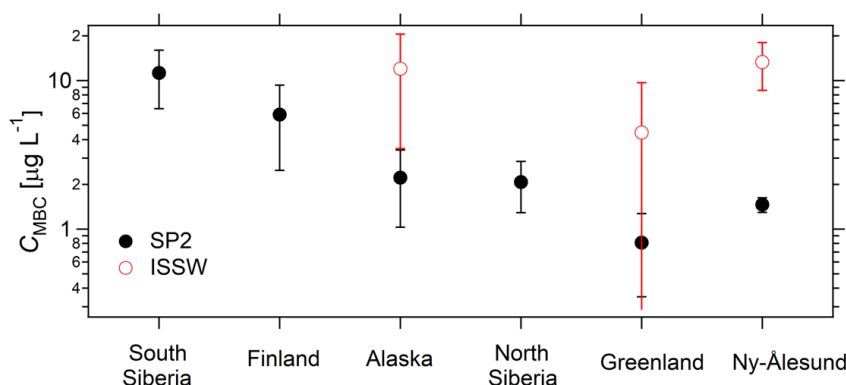


図4.4.6 各領域での積雪中BC濃度の中央値(黒丸)。先行研究¹⁾の値を赤丸で示した。

(3) グリーンランド・アイスコアによる産業革命後のBCの復元

「3. 研究開発方法」で述べたように、グリーンランドのSIGMA-D地点で掘削されたアイスコアから取得

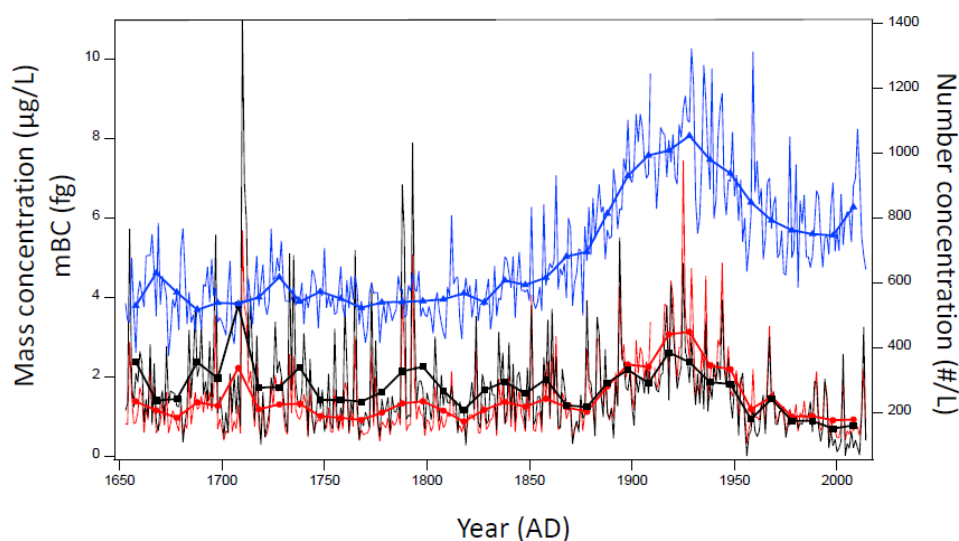


図4.4.7 SIGMA-Dコアから復元された過去350年間のBCの数濃度(黒)、質量濃度(赤)、BC粒子の平均質量(青)。細い線は年平均値、太い線は10年平均値。

したBCデータから、BC濃度の月平均値、年平均値、10年平均値、20年平均値を計算した。図4.4.7にBCの数濃度及び質量濃度の年平均値と10年平均値を示した。また、BCの粒径の指標として、BC粒子1個当たりの平均質量（BCの質量濃度を数濃度で割ったもの）を計算し、年平均値と10年平均値をこの図にプロットした。BCの数濃度と質量濃度はともに1870年代から上昇し始め、1910～1920年代にピークとなった。その後、BC濃度は減少に転じ、1960年代には、BC濃度の増加が始まる前の濃度レベルまで低下した。BC濃度の増加は、化石燃料の燃焼起源のBCがグリーンランドに流入したためであると考えられる。一方、BC濃度が増加する以前のBCの起源は森林火災等のバイオマス・バーニングであると考えられる。

図4.4.8は本研究で復元したSIGMA-D地点におけるBC質量濃度と、McConnellら³⁾がグリーンランドのD4地点（図3.4.4）で掘削したアイスコアから復元したBCの質量濃度の変化傾向を比較した図である。McConnellらの測定精度が低かったため、本研究との単純な比較はむずかしいが、グリーンランド北西部のSIGMA-D地点の方が、グリーンランド中西部のD4地点よりも化石燃料燃焼起源のBCの濃度が低かった傾向がみられる。また、化石燃料燃焼起源のBCによる濃度増加が始まったのは、SIGMA-Dの方が遅かった。これらの相違は、2地点に影響を及ぼす化石燃料燃焼起源のBCの発生源と輸送経路の違いによるものである可能性があるが、今後、エアロゾル・モデルによる検証が必要である。

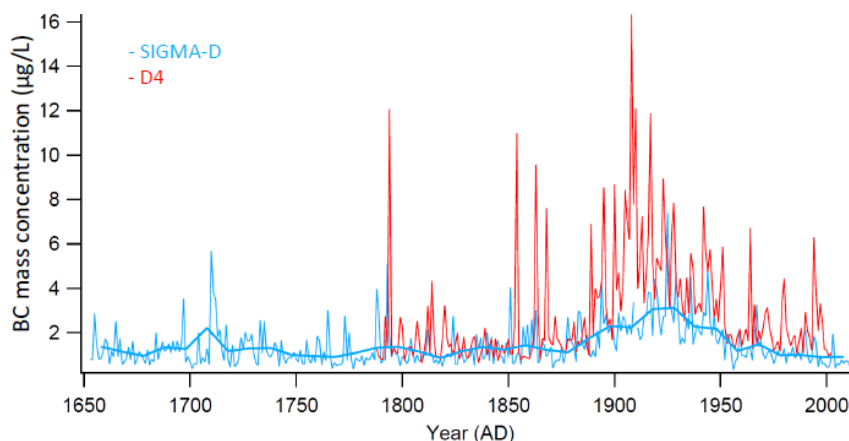


図4.4.8 SIGMA-D地点（水色）とD4地点（赤色）におけるBC濃度の経年変化の比較。水色と赤色の細線は年平均値、水色の太線は10年平均値

図4.4.7に示したように、人為起源のBCの流入に伴い、グリーンランド氷床上に沈着するBCの平均質量が増加したこと、すなわちBCの平均粒径が増加したことが、本研究により初めて明らかになった。先行研究で、発生源付近においては、バイオマス・バーニング起源のBCの方が、化石燃料燃焼起源のBCよりも大きい傾向があることが報告されており¹⁶⁾、本研究の結果は先行研究に基づく予想に反するものである。先行研究では積雪中のBCの粒径が大気中のBCに比べて大きくなることが報告されており¹⁶⁾、粒径の大きいBC粒子の方が小さい粒子よりも湿性沈着しやすいためであると考えられている。これらのことから、グリーンランドに堆積する雪に含まれるBCの粒径分布は発生源における粒径分布だけでなく、輸送・沈着過程に依存すると考えられる。バイオマス・バーニングによって発生するBCは、BCと同時に発生する有機エアロゾルとの内部混合あるいは外部混合により、親水性粒子を形成しやすく、発生源からグリーンランドまでの輸送・沈着過程において化石燃料起源のBC粒子よりも湿性沈着しやすい可能性があり、そのため、粒径の大きい粒子の割合が減少する可能性がある。BCの粒径の経年変動の要因については、今後エアロゾル・モデル研究者との連携によって、研究を進める必要がある。

本研究により、グリーンランドに流入するBCの濃度の季節変化パターンが人為起源BCの流入によって変化することが明らかになった。図4.4.9は季節変化パターンの経年変化を調べるため、1653年～2002年の間を20年または10年ごとに区切り、それぞれの20年または10年間に於ける各月のBC質量濃度の平均値を示したものである。上図は化石燃料燃焼起源のBCの流入によるBC濃度の増加が始まる前の1653年～

1852年、下図はそれ以降の時代の平均値を示したものである。化石燃料燃焼起源のBCの影響がない時代には、BCは夏期に極大となり、冬に極小となっていた。これはバイオマス・バーニングが夏期に多かったことに対応している。夏期の極大値は年々変動が非常に大きく、20年平均値で見ても夏期の極大値の変動が大きいことが分かる。これに比べて、冬の極小値の年々変動は小さかった。化石燃料燃焼起源のBCの流入によるBC濃度の増加が始まった1870年代以降、特に秋から冬にかけての濃度の増加が顕著になり、BC濃度の極大値が夏から冬にシフトした。しかし、1930年代から再びBC濃度が減少したのに伴い、

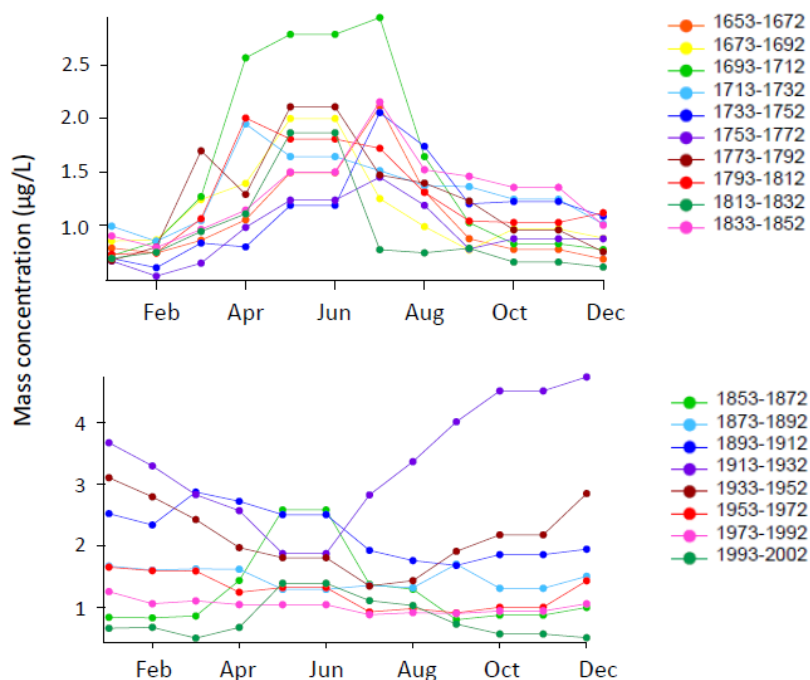


図4.4.9 SGIMA-Dコアから復元された各月ごとのBC質量濃度の20年平均値。上図は化石燃料燃焼起源BCの流入によるBC濃度の増加が始まる前の1653年～1852年、下図はそれ以降の時代の平均値を示したものである。なお、1993年～2002年については10年平均値。

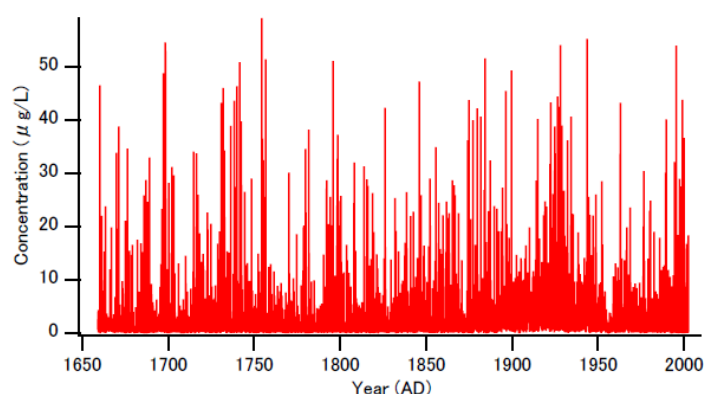


図4.4.10 SIGMA-Dコアから取得されたBC質量濃度の高時間分解能連続データ

秋～冬の濃度が大きく減少した。1990年代から2002年にかけては、BC濃度のピークが1870年以前と同様、再び夏になっており、グリーンランド北西部において、化石燃料燃焼起源のBCの影響が少なくなったことが分かる。

SGIMA-D地点における過去350年間におけるBCの質量濃度は年平均値で見ると最大でも $8 \mu\text{g/L}$ 程度であり、氷床表面積雪のアルベドに大きく影響を与えるとは考えられないが、連続融解分析装置で取得した、平均化の処理をしない高時間分解能のデータ (図4. 4. 10) を見ると、わずか数日間の間ではあるが、夏期に濃度が $40 \mu\text{g/L}$ を超えたことが度々あり、これが気温の高いときであれば、Keeganら¹⁷⁾がグリーンランドのD4地点 (図3. 4. 4) で掘削したアイスコアのデータを用いて報告しているように、BCが一時的に氷床表面のアルベドに影響を与え、融解を促進した可能性がある。

(4) グリーンランド・アイスコアによる酸化鉄濃度の復元

SP2による酸化鉄の分析は、本研究課題の研究グループが開発した方法^{10,11)}を用いて行った。しかし、グリーンランドのアイスコアに含まれる酸化鉄は微量であるため、SP 2 から同時に得られるBCと酸化鉄のシグナルを分離する方法を最適化する必要があった。図4. 4. 11はSIGMA-Dコアから求められた全SP2データをプロットしたものであるが、BCと酸化鉄の特徴を明確に分離するのは困難であることが分かる。そこで、酸化鉄の検出条件をより厳しく設定したNverと、より小粒径の酸化鉄粒子までを検出するDverの2通りの分離線を引いた。それぞれの分離線囲まれた領域の粒子を酸化鉄と判定した。DverはNverに比べて小粒径の酸化鉄粒子を検出できるが、その一方で、BC等の粒子を酸化鉄と誤判定する可能性がある。

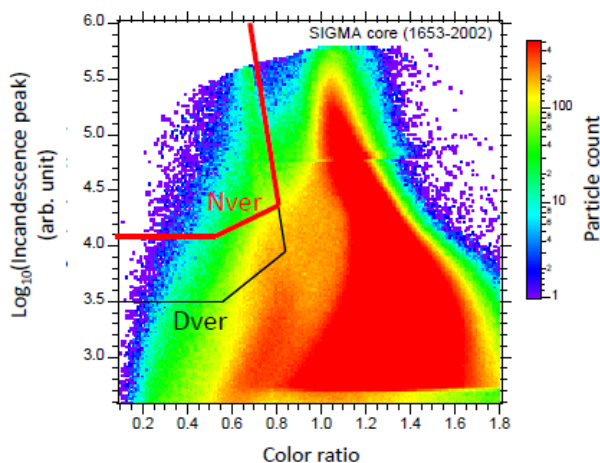


図4. 4. 11 SIGMA-Dコアに含まれる微粒子の白熱光シグナルとのカラー・レシオの関係。BCとダストの分離線を2通り (赤と黒) 示す。

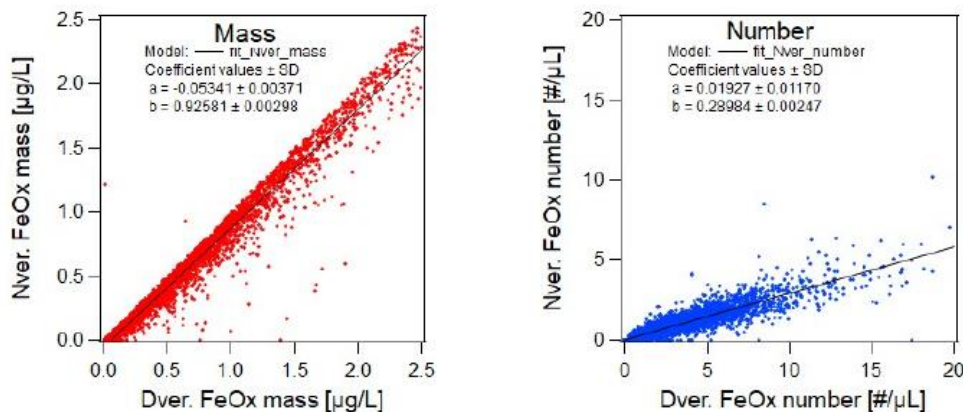


図4. 4. 12 2通りの分離線 (Never及びDver) を用いて酸化鉄の濃度を計算した場合の質量濃度と数濃度を比較

図4.4.12に2通りの分離線を用いて計算した場合の質量濃度と数濃度を比較した結果を示す。酸化鉄の質量濃度はどちらの分離線を用いても10%以内の違いしかないが、数濃度はNeverがDverの3割程度しかなく、不確定性が大きい。そのため、本研究では、以下の議論は質量濃度のみを用いる。

図4.4.13にSIGMA-Dコアから復元された酸化鉄の質量濃度の経年変動を示した。BCの経年変化とは異なり、17世紀半ば、18世紀前半、19世紀前半、及び20世紀前半に高濃度になる時期があった。19世紀前半のピークについては、ダストの主要成分と考えられるA1にも同様のピークが見られることから、ダストが酸化鉄の主な起源であると考えられる。SIGMA-Dコアの酸素同位体比の分析結果から、この時代は寒冷であったと推定されるが、一般的には寒冷期にダストが増加することが知られており、この時代の酸化鉄の増加は、寒冷化に伴うものである可能性が高い。しかし、それ以外の時代に見られる酸化鉄の濃度ピークは、必ずしもダストと一致しない。20世紀前半の酸化鉄の濃度ピークは、BCと同様に人為起源である可能性がある。今後、鉱物ダストの組成分析等も含め、総合的に解析を行う必要がある。

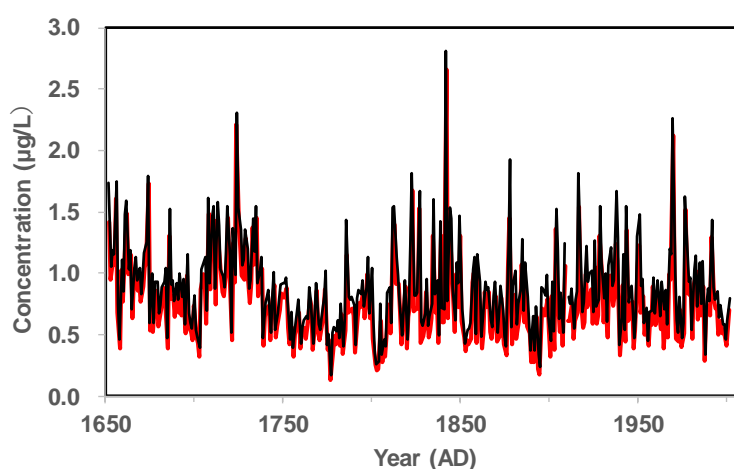


図4.4.13 SIGMA-Dコアから復元された酸化鉄濃度の経年変動。赤は図4.4.11のNever分離線、黒はDver分離線によって計算した値。

(5) BC、酸化鉄、ダストの氷晶核特性の評価

CRAFTを用いて測定されたBC（フローレンス煤）、酸化鉄（マグネタイト、ヘマタイト、ゲーサイト）、2種類のダスト（標準鉱物ダスト、高緯度（北極陸域）起源のダスト）の氷晶核特性（ n_m 値）は、図4.4.14に示したような結果になった。この図の中には、先行研究が示したBCの n_m 値の上限値^{18,19}も含めているが、これらの先行研究が採用している測定方法（従来の水滴凍結法）では、BCの測定値のS/N比が低く不確かであったため、あくまでも上限値（つまり、実際のBCの n_m 値はこの上限値よりも低いことを示唆）として報告された値である。CRAFTでは、S/N値が十分に高い状態での測定を行っているが、本研究により、BCの n_m 値は先行研究が示した上限値や標準鉱物ダストの値よりも数桁低いことが明らかになった。また、黒色酸化鉄であるマグネタイトやそれ以外の酸化鉄の n_m 値についても、先行研究が示したBCの上限値や標準鉱物ダストの値よりも低いという結果になった。つまり、正の放射強制力を有する人為起源のBCや黒色酸化鉄は、約 -20°C 以下にまで気温が下がると氷晶核としてある程度機能するものの、ダストに比べると氷晶核としてはあまり有効ではないことがわかった。

一方、スバル諸島のブレッガー氷河の下流にて採取された高緯度起源のダスト²⁰は、非常に高い n_m 値を示すことがわかった（図4.4.14）。一般的に、低～中緯度から発生するダストは、約 -15°C 以上の温度下では、氷晶核としてはあまり有効に働かないといわれているが、標準鉱物ダスト（低～中緯度の砂漠地帯などから発生するダストを模したもので、主成分はイライト）の n_m 値（図4.4.14）も、そのような結果になっている。高緯度起源のダストの n_m 値は、 -30°C 付近の温度では標準鉱物ダストとほ

ば同程度の値を示しているが、それよりも高い温度ではそれを大きく上回る高い値となっており、 -5°C 付近の温度でも氷晶核として働くということが、本研究によって初めて明らかになった。高緯度起源のダストが高い氷晶核特性を示す理由としては、鉱物組成は低～中緯度起源のダストとあまり変わらないものの、極めて氷晶核特性の高い有機物が微量に含まれていることが関係していることを強く示唆する結果が得られている²⁰⁾。この有機物の正体は、北極陸域での何らかの微生物の活動に起因する物質だと推測されるが、その詳細についてはわかっておらず、今後の課題である。

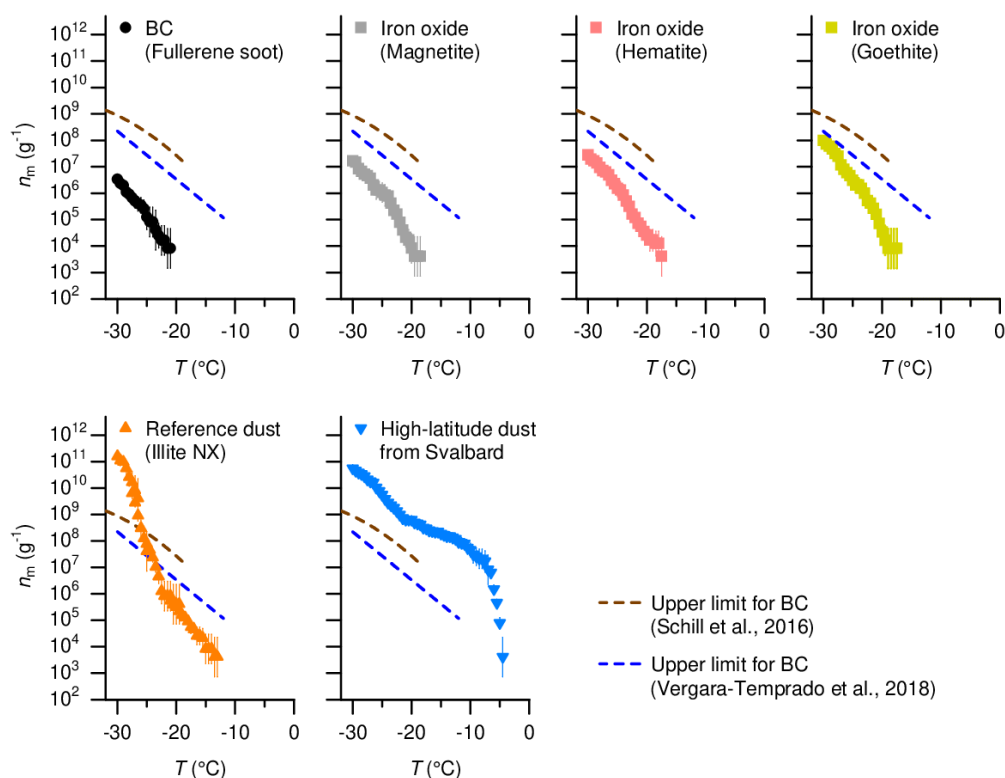


図4.4.14 CRAFTによって測定されたBC、酸化鉄（マグネタイト、ヘマタイト、ゲーサイト）、ダストの単位質量当たりの氷晶核数 (n_m) の温度依存性。ダストに関しては、標準鉱物ダスト¹²⁾ (illite NX) とスバルバル諸島の氷河起源ダスト²⁰⁾の結果を示している。エラーバーは、95%信頼区間。比較対象用に、先行研究の中で報告されているBCの n_m 値の上限値^{18, 19)}を示している。

(6) ニーオルスンでのエアロゾル・氷晶核の集中観測

夏（2016年7月）と初春（2017年3月）の集中観測時にスバルバル諸島のZeppelin山観測所にて測定された氷晶核として働くエアロゾル粒子の数濃度を図4.4.15に示した²⁰⁾。また、北極域の海洋大気境界層内で測定されてきている数濃度も例示した。この結果をみると、2017年3月のZeppelin山観測所での測定値は、北極域の海洋大気内での測定値とほぼ一致していた。一方、2016年7月のZeppelin山観測所での測定値は、それらよりも約一桁高い値を示すことが明らかになった。

2016年7月のZeppelin山観測所で氷晶核として働くエアロゾル粒子が増加していた原因について考察するため、この時のエアロゾル試料中に含まれる個々の微粒子の化学組成を分析したところ、冬季の北極域の下層大気中ではあまりみられないダスト（mineral/metallicに分類）が多くを占めていたことが明らかになった（図4.4.16）。一方、人為起源のBCや酸化鉄と思われる微粒子は、殆んど含まれていなかった。また、後方流跡線解析により、この時の空気塊の輸送履歴を調べたところ、これらのダストは低～中緯度からの長距離輸送ではなく、高緯度（スバルバル諸島内もしくはその周辺）から発生したものである可能性が高いことが示唆された（図4.4.16）。その他にも、コーネル大学の研究グループが開発したエアロゾル輸送モデルでは、夏季に積雪が融解して地面が露出すると北極陸域からもダ

ストが発生していることが示された²⁰⁾。以上の結果から、夏季のスバル諸島では、北極陸域から発生する氷晶核特性の極めて高いダスト等の影響によって、大気中の氷晶核として働くエアロゾル粒子の数濃度が増加していた可能性が高いと考えられる。

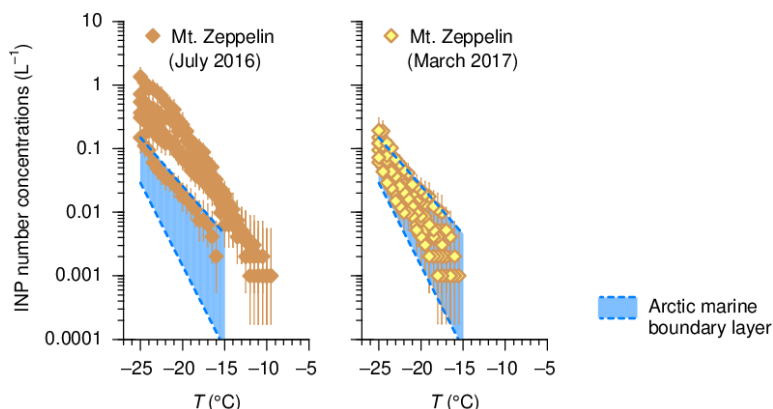


図4.4.15 夏（2016年7月）と初春（2017年3月）の集中観測時にスバル諸島のZeppelin山観測所にて測定された氷晶核として働くエアロゾル粒子（INP）の数濃度の温度依存性²⁰⁾。エラーバーは、95%信頼区間。比較対象として、これまでに報告された北極圏の海洋上空での値も例示した。

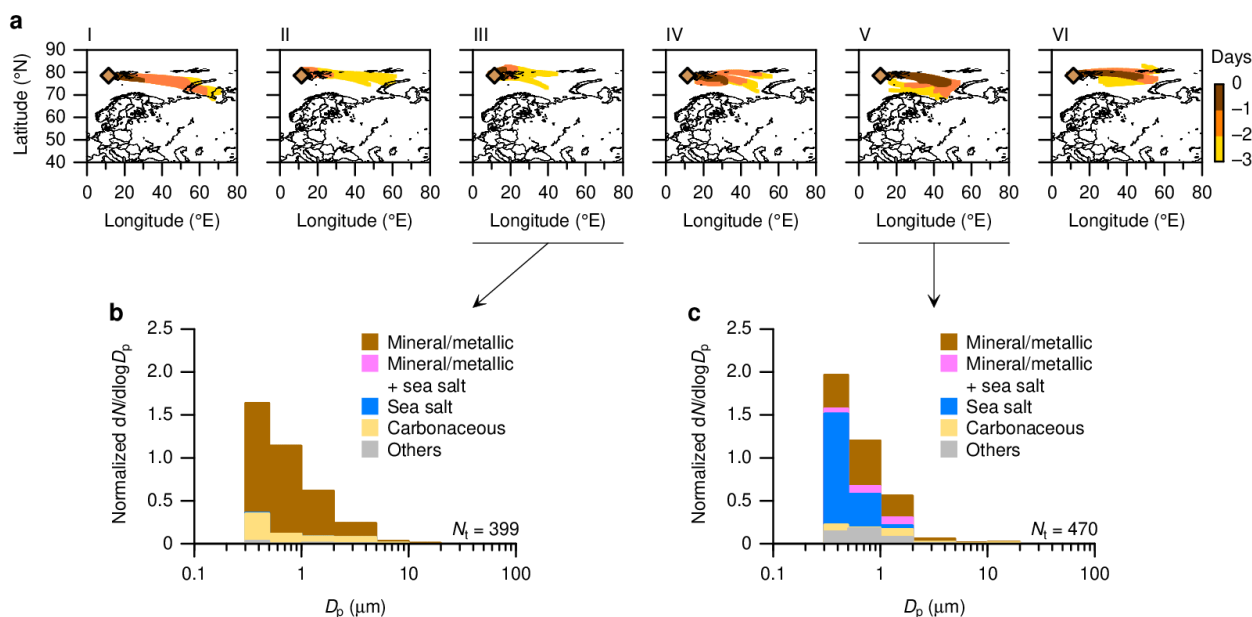


図4.4.16 夏（2016年7月）の集中観測時にスバル諸島のZeppelin山観測所で測定された (a) 空気塊の過去三日間の輸送履歴（HYSPLITモデルによる後方流跡線解析）と (b, c) エアロゾル粒子の粒径別の数濃度と化学組成の分布（エネルギー分散型X線分析装置を搭載した走査型電子顕微鏡での分析）²⁰⁾。N_tは分析した粒子の総数。

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

北極域でのブラックカーボン（BC）の沈着は雪のアルベドを低下させ北極の温暖化に寄与する。北半球中緯度で排出されるBCは中緯度から北極への輸送中および北極内での沈着により除去される。BCの雪面のアルベドへの影響を定量化する上で沈着量フラックスは鍵となるパラメーターである。しかし、これまで十分な時間・空間分解能での雪中のBCの高精度測定が乏しく、BC沈着の過程とその影響の理解は

不十分であった。この研究で初めて一地点ではあるが北極での沈着フラックスの特性を明らかにし、観測方法を確立したことは沈着過程の理解を深める上での大きな貢献である。特に降雪と積雪から推定したBC沈着量が誤差の範囲で一致したことは、降雪後の雪やBCの大きな変質がないことを示す重要な結果である。さらに、乾性沈着の効果が湿性沈着に比べて小さいという知見や、多年観測から平均BC沈着量の絶対値と季節変化を定量化しつつあることは、気候モデルによるBC沈着の計算スキームを検証する上で大きな貢献となる。

積雪中の高精度のBCの広域観測はこれまで皆無であった。本研究のデータは気候モデルによるBC沈着の時空間変化の計算結果を検証する上で極めて重要である。観測との比較を通して気候モデルが改善されることにより、BCによる大気加熱やBC沈着による雪面のアルベド低下が北極気候変動へ及ぼす影響を高精度で推定することが可能となる。

グリーンランドのアイスコアから、産業革命以後のBCの時間変動を従来にない精度で高時間分解能復元した。更に、世界で初めてBCの粒径の時間変動を明らかにした。その結果、グリーンランドに沈着したBCは、人為起源BCの影響が大きかった20世紀前半に粒径が大きかったことが明らかになった。これらはBCの輸送・沈着モデルやCMIP6のエミッション・インベントリーの検証データとして貢献する重要なデータである。また、BCと同様に放射強制力や雪面のアルベドに大きな影響を及ぼすと考えられる酸化鉄の濃度の長期変動に関するデータを初めて取得した。その結果、グリーンランドの酸化鉄はダストの影響を大きく受けていることが明らかになった。このように気候変動に伴うダスト中の酸化鉄の変動についての基礎的情報を得ることができ、ダストが放射強制力に及ぼす影響を評価する上で貴重なデータとなる。

本研究ではアジア開発途上国へのアウトリーチも実施した。インドのエアロゾル測定の基準を作る役割を担う機関である国立物理学研究所 (NPL) と共同でインドにおけるBCを含むエアロゾル測定の標準化のための研究を行うことに合意した。この共同研究はインドにおけるBCの排出量の検証を行うための観測の重要な足掛かりとなる。

BC、酸化鉄、ダストなどの微粒子の氷晶核特性を定量的に調べた結果、BCや酸化鉄は、ダストに比べると、氷晶核としてはあまり有効ではないものの、約 -20°C 以下にまで気温が下がると氷晶核として機能し始めることがわかった。北極域の大気中におけるBCや酸化鉄の濃度は、ダストほどは高くないため、これらが北極域下層雲内での微物理過程に与える影響は、かなり少ないことが予測される。その一方で、BCや酸化鉄自体が氷晶核として働くことで生じる湿性沈着プロセスは、約 -20°C 以下にまで気温が下がると機能し始めると考えられる。よって、本研究によって測定された氷晶核特性のパラメーターは、高い正の放射強制力を有する人為起源BCや黒色酸化鉄の雪面へ沈着過程を評価する際に、有効に活用できる貴重なデータになることが強く期待される。

さらに、スバルバル諸島で実施した集中観測の結果からは、北極陸域から発生する氷晶核特性の極めて高いダストの影響によって、大気中の氷晶核の数濃度が大幅に増加していた可能性が高いことが強く示唆された。今後、温暖化の進行によって積雪の融解や氷河の後退が進むと、高緯度域において地面が露出する面積と期間が増えることになるため、北極域でのダストの発生量も増えることも予測されている²¹⁾。現在、北極域で急速に進行している温暖化の影響によって、大気中のダスト濃度がどのように変動し、それらが北極域上空の雲の放射特性や寿命などにどのような影響をもたらすのかを詳しく理解することは、今後、非常に重要な課題になりうる。

(2) 環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

現在、北極評議会 (Arctic Council) のもとで短寿命気候汚染物質 (Short-lived Climate Forcers; SLCF) に関するAMAP (Arctic Monitoring and Assessment Program) の報告書が準備されつつある。本研究の成果はこの報告書に記述されることになる。一方、北評議会におけるブラックカーボンとメタンに関する専門家グループ (Expert Group on Black Carbon and Methane (EGBCM)) はBCの排出削減を進めるための提言を継続的に行ってきた。AMAP報告書はEGBCMによるBCの排出削減の提言の科学的な基礎

はAMAP報告書に置かれている。このため、本研究の成果はBCの排出削減の施策にも貢献している。

総合海洋政策本部参与会議意見書では、北極政策プロジェクトチーム（PT）報告書に基づき、BC測定器COSMOSの標準器化を目指すことが明記されている。すなわち本研究の成果等に基づき、COSMOSの標準器化を政府目標に掲げることとなった。

<行政が活用することが見込まれる成果>

IPCC の第6次報告書（AR6）でも短寿命気候汚染物質の気候影響評価が行われる予定である。本研究の成果もこの報告書による気候変動予測の精緻化に貢献すると見込まれる。

6. 国際共同研究等の状況

北極域ではアラスカ（アメリカ）、スピッツベルゲン（ノルウェー）、アラート（カナダ）、バラノバ（ロシア）、パラス（フィンランド）でのブラックカーボンの観測はアメリカ海洋大気庁（NOAA）、ノルウェー極地研（NPI）、カナダ環境・気候変動省（Environment and climate change Canada）、ロシア南極・北極研究所（AARI）、フィンランド気象研究所（FMI）と共同で行っている。またデータの解析についてはノルウェー大気研究所（NILU）と共同で実施している。またインドでは国立物理学研究所（NPL）と共同研究を行っている。

エアロゾルの氷晶核特性の定量化手法の開発・改良や計測データの解析等については、米国・コロラド州立大学の研究グループと共同で行ってきた。氷晶核として働くエアロゾル粒子に関する数値シミュレーションについては、米国・コーネル大学の研究グループと共同研究を行い、同グループが開発したエアロゾル輸送モデルを導入した。

7. 研究成果の発表状況

（1）誌上発表

<論文（査読あり）>

- 1) P. R. SINHA, Y. KONDO, M. KOIKE, J. OGREN, A. JEFFERSON, T. BARRETT, R. SHEESLEY, S. OHATA, N. MOTTEKI, H. COE, D. LIU, M. IRWIN, P. TUNVED, P. K. QUINN, and Y. ZHAO: *J. Geophys. Res.*, 122, doi:10.1002/2016JJD025843 (2017), Evaluation of ground-based black carbon measurements by filter-based photometers at two Arctic sites.
- 2) N. MOTTEKI, K. ADACHI, S. OHATA, A. YOSHIDA, T. HARIGAYA, M. KOIKE, and Y. KONDO: *Nature Comm.*, 8, 15329 (2017), Anthropogenic iron oxide aerosols enhance atmospheric heating.
- 3) P. R. SINHA, Y. KONDO, K. GOTO-AZUMA, Y. TSUKAGAWA, K. FUKUDA, M. KOIKE, S. OHATA, N. MOTTEKI, T. MORI, N. OSHIMA, E. J. FØRLAND, M. IRWIN, J.-C. GALLET, and C. A. PEDERSEN: *J. Geophys. Res.*, doi: 10.1002/2017JD028027 (2018), Seasonal progression of the deposition of black carbon by snowfall at Ny-Ålesund, Spitsbergen.
- 4) Y. TOBO, K. ADACHI, P. J. DEMOTT, T. C. J. HILL, D. S. HAMILTON, N. NAGATSUKA, J. UETAKE, Y. KONDO and M. KOIKE: *Nat. Geosci.*, 12, 253-258 (2019), Glacially sourced dust as a potentially significant source of ice nucleating particles.
- 5) S. OHATA, Y. KONDO, N. MOTTEKI, T. MORI, A. YOSHIDA, P. R. SINHA and M. KOIKE: *Aerosol Sci. Technol.*, 53.9. 1079-1091 (2019), Accuracy of black carbon measurements by a filter-based absorption photometer with a heated inlet.
- 6) T. MORI, K. GOTO-AZUMA, Y. KONDO, Y. OGAWA-TSUKAGAWA, K. MIURA, M. HIRABAYASHI, N. OSHIMA, M. KOIKE, K. KUPIAINEN, N. MOTTEKI, S. OHATA, P. R. SINHA, K. SUGIURA, T. AOKI, M. SCHNEEBELI, K. STEFFEN, A. SATO, A. TSUSHIMA, V. MAKAROV, S. OMIYA, A. SUGIMOTO, S.

TAKANO and N. NAGATSUKA: J. Geophys. Res.: Atmospheres, 124, 13, 325-13, 356 (2019),
Black carbon and inorganic aerosols in Arctic Snowpack.

- 7) T. MORI, S. OHATA, Y. MORINO, M. KOIKE, N. MOTTEKI and Y. KONDO: Proc. Japan Acad. Ser. B, 96, 122-129 (2020), Changes in black carbon aerosols in Tokyo in 2003-2017.

<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) 當房豊、足立光司、Paul J. DEMOTT、THOMAS C. J. HILL、大畑祥、植竹淳、近藤豊、小池真：日本気象学会秋季大会(2017)
「スバルバル諸島・ニーオルスンでの氷晶核の計測：2016年7月の事例」
- 2) S. OHATA, M. KOIKE, P. R. SINHA, N. MOTTEKI, K. GOTO-AZUMA, Y. TSUKAGAWA, T. MORI, A. YOSHIDA, Y. TOBO, and Y. KONDO: The 8th symposium on polar science, National Institute of Polar Research, Tokyo, December 8, 2017
“Long term and intensive measurements of black carbon aerosols in the Arctic.”
- 3) 森樹大、三浦和彦、大畑祥、茂木信宏、小池真、中込和徳、吉川昌範、岩崎綾、近藤豊：日本地球惑星科学連合2018年大会、幕張(2018)
「東アジア下流域におけるブラックカーボン粒子の湿性沈着フラックスの季節変化」
- 4) 東久美子、塚川佳美、近藤豊、ダルマイヤー・レミ、平林幹啓、尾形純、北村亨太郎、川村賢二、本山秀明、的場澄人、門田萌、青木輝夫、茂木信宏、大畑祥、森樹大、小池真、小室悠、對馬あかね、永塚尚子、繁山航、藤田耕史：雪氷研究大会、山形(2019)
「グリーンランド北西部における過去350年間のブラックカーボン及びダストの季節変化及び経年変化」
- 5) 東久美子、塚川佳美、近藤豊、ダルマイヤー・レミ、平林幹啓、尾形純、北村亨太郎、川村賢二、本山秀明、的場澄人、門田萌、青木輝夫、茂木信宏、大畑祥、森樹大、小池真、小室悠、對馬あかね、永塚尚子、繁山航、藤田耕史：日本地球惑星科学連合2019年大会、幕張メッセ(2019)
「グリーンランドにおける人為起源及び自然起源のブラックカーボンの濃度、粒径分布、季節変動の経年変化」
- 6) T. MORI, K. GOTO-AZUMA, Y. KONDO, Y. OGAWA-TSUKAGAWA, K. MIURA, M. HIRABAYASHI, N. OSHIMA, M. KOIKE, K. KUPIAINEN, N. MOTTEKI, S. OHATA, S. PUNA RAM, K. SUGIURA, T. AOKI, M. SCHNEEBELI, K. STEFFEN, A. SATO, A. TSUSHIMA, V. MAKAROV, S. OMIYA, A. SUGIMOTO and S. TAKANO: 日本地球惑星科学連合大会2019年大会、幕張メッセ(2019)
“Black carbon and inorganic aerosols in snowpack over the Arctic.”
- 7) 森樹大、近藤豊、P. R. SINHA、Y. ZHAO、小池真、B. ANDREWS、松井仁志、茂木信宏、大畑祥：大気化学討論会、蒲郡市(2019)
「BarrowにおけるBC粒子の湿性沈着フラックスの季節変動」
- 8) K. GOTO-AZUMA, Y. OGAWA-TSUKAGAWA, Y. KONDO, R. DALLMAYER, M. HIRABAYASHI, J. OGATA, K. KITAMURA, K. KAWAMURA, H. MOTOYAMA, S. MATOBA, M. KADOTA, T. AOKI, N. MOTTEKI, S. OHATA, T. MORI, M. KOIKE, Y. KOMURO, A. TSUSHIMA, and N. NAGATSUKA: EGU meeting, Vienna, Austria, April 24-28, 2017
“Variability of black carbon in Northwest Greenland during the past 350 years.”
- 9) Y. KONDO, P. R. SINHA, K. GOTO-AZUMA, Y. OGAWA-TSUKAGAWA, M. KOIKE, S. OHATA, N. MOTTEKI, T. MORI, N. OSHIMA, E. J. FØRLAND, M. IRWIN, and C. PEDERSEN: Open Science Workshop on PACES, Victoria, Canada on June 28, 2017
“Seasonal progression of the deposition of black carbon by snowfall at Ny-Ålesund,

- Spitsbergen.”
- 10) Y. KANAYA, X. PAN, T. MIYAKAWA, Y. KOMAZAKI, F. TAKETANI, I. UNO, Y. KONDO, H. MATSUI, K. YAMAJI, C. ZHU, P. MORDOVSKOI and M. TAKIGAWA: Open Science Workshop on PACES, Victoria, Canada on June 27, 2017
 “Long-term observations of black carbon at Fukue Island, western Japan, since 2009: constraining emission strengths from East Asia and wet removal rates relevant to long-range transport.” .
 - 11) T. MORI, N. MOTEKI, S. OHATA, M. KOIKE and Y. KONDO: 2017 Symposium on Atmospheric Chemistry & Physics at Mountain Sites (ACPM 2017), Gotemba, Japan, Nov. 7 - 10, 2017
 “Observational study on wet removal process of black carbon particles in Tokyo and Okinawa”
 - 12) M. KOIKE, Y. KONDO, K. GOTO-AZUMA, Y. OGAWA-TSUKAGAWA, P. R. SINHA, S. OHATA, N. MOTEKI, N. OSHIMA and H. MATSUI: AC3 workshop; Arctic snow and sea ice properties and interactions with the atmosphere, Bremerhaven, Germany, November 6, 2017
 “Black carbon in the Arctic: Observation and numerical model calculation.”
 - 13) Y. TOBO, K. ADACHI, N. NAGATSUKA, P. J. DEMOTT, T. C. J. HILL, S. OHATA, Y. KONDO and M. KOIKE: AGU fall meeting, New Orleans, USA, December, 2017
 “Enhanced concentrations of ice nucleating particles in Svalbard during summer: Possible linkage with local dust emissions.”
 - 14) Y. KONDO, P. R. SINHA, K. GOTO-AZUMA, Y. OGAWA-TSUKAGAWA, M. KOIKE, S. OHATA, N. MOTEKI, T. MORI, N. OSHIMA, E. J. FØRLAND, M. IRWIN, and C. PEDERSEN: ISAR 5, Tokyo, Japan on January 16-17, 2018
 “Seasonal progression of the deposition of black carbon by snowfall at Ny-Ålesund, Spitsbergen.”
 - 15) K. GOTO-AZUMA, Y. OGAWA-TSUKAGAWA, Y. KONDO, R. DALLMAYER, M. HIRABAYASHI, J. OGATA, K. KITAMURA, K. KAWAMURA, H. MOTOYAMA, S. MATOBA, M. KADOTA, T. AOKI, N. MOTEKI, S. OHATA, T. MORI, M. KOIKE, Y. KOMURO, A. TSUSHIMA, and N. NAGATSUKA: ISAR 5, Tokyo, Japan on January 16-17, 2018
 “Variations of black carbon and dust in Northwest Greenland reconstructed by Continuous Flow Analysis of an ice core.”
 - 16) Y. TOBO, K. ADACHI, N. NAGATSUKA, P. J. DEMOTT, T. C. J. HILL, S. OHATA, Y. KONDO, M. KOIKE: ISAR 5, Tokyo, Japan on January 16-17, 2018
 “Seasonal differences in the concentrations of ice nucleating particles on Mt. Zeppelin in Ny-Alesund, Svalbard: A case study in 2016/2017.”
 - 17) K. GOTO-AZUMA, Y. OGAWA-TSUKAGAWA, Y. KONDO, R. DALLMAYER, M. HIRABAYASHI, J. OGATA, K. KITAMURA, K. KAWAMURA, H. MOTOYAMA, S. MATOBA, M. KADOTA, T. AOKI, N. MOTEKI, S. OHATA, T. MORI, M. KOIKE, Y. KOMURO, A. TSUSHIMA, N. NAGATSUKA, W. SHIGEYAMA and K. FUJITA: AGU fall meeting, San Francisco, USA, December, 2019
 “Variations of concentrations and sizes of black carbon particles in Northwest Greenland over the past 350 years.”
 - 18) 平林幹啓、東久美子、REMI DALLMAYR、尾形純、塚川佳美、北村享太郎、川村賢二：日本分析化学会66年会、東京（2017）
 「連続融解・分析装置による雪氷コアの分析」
 - 19) K. GOTO-AZUMA, Y. OGAWA-TSUKAGAWA, Y. KONDO, R. DALLMAYR, M. HIRABAYASHI, J. OGATA, K. KITAMURA, H. MOTOYAMA, S. MATOBA, M. KADOTA, T. AOKI, N. MOTEKI, S. OHATA, T. MORI, M. KOIKE, Y. KOMURO, A. TSUSHIMA, N. NAGATSUKA and K. FUJITA: Polar 2018, Davos,

Switzerland, June 2018

“High-resolution analyses of black carbon and dust in a Greenland ice core.”

- 20) 東久美子、塚川佳美、近藤豊、ダルマイヤー・レミ、平林幹啓、尾形純、北村亨太郎、川村賢二、本山秀明、的場澄人、門田萌、青木輝夫、茂木信宏、大畑祥、森樹大、小池真、小室悠紀、對馬あかね、永塚尚子、藤田耕史：雪氷研究大会（2018・札幌）、誌上開催（2018）
「グリーンランド北西部のアイスコアを用いたブラックカーボンの高時間分解能解析」
- 21) K. GOTO-AZUMA, Y. OGAWA-TSUKAGAWA, Y. KONDO, R. DALLMAYR, M. HIRABAYASHI, J. OGATA, K. KITAMURA, K. KAWAMURA, H. MOTOYAMA, S. MATOBA, T. AOKI, N. MOTEKI, S. OHATA, T. MORI, M. KOIKE, Y. KOMURO, A. TSUSHIMA, N. NAGATSUKA, W. SHIGEYAMA and K. FUJITA: The Ninth Symposium on Polar Science, National Institute of Polar Research, Tokyo, 2018
“Concentrations and size distribution of black carbon in Northwest Greenland during the past 350 years reconstructed from an ice core.”
- 22) 當房豊：2019年度エアロゾル・雲・降水の相互作用に関する研究集会（2020）
「【総説】北極域での雲凝結核・氷晶核の研究」
- 23) Y. TOBO: 3rd PACES Open Science Meeting, Oslo, Norway, 2019
“High-latitude dust and its potential impact on atmospheric ice nucleation”
- 24) 當房豊：ニーオルスン新基地を利用した研究の新展開に関する研究集会（2019）
「大気中のダスト・微生物とその雲微物理への影響」
- 25) 當房豊：2018年度エアロゾル・雲・降水の相互作用に関する研究集会（2019）
「夏季のスヴァールバル諸島での氷晶核に関する調査研究」
- 26) 當房豊：ミニ研究集会「大気-海洋境界層における大気物質の役割」（2019）
「北極圏の海洋および陸域の上空での氷晶核の調査研究」
- 27) 當房豊、茂木信宏、足立光司、大畑祥、吉田淳、近藤豊、小池真：日本気象学会 2018年度秋季大会（2018）
「黒い微粒子の氷核活性の評価」
- 28) Y. TOBO, K. ADACHI, P. J. DEMOTT, T. C. J. HILL, D. S. HAMILTON, N. M. MAHOWALD, N. NAGATSUKA, S. OHATA, J. UETAKE, Y. KONDO, M. KOIKE, M. MAZZOLA and D. CAPPELLETTI: Ny-Ålesund Atmosphere Flagship open workshop, Potsdam, Germany, 2018
“Recent progress and perspectives in ice nucleation studies at Ny-Ålesund, Svalbard”
- 29) Y. TOBO, N. MOTEKI, K. ADACHI, S. OHATA, A. YOSHIDA, M. KOIKE and Y. KONDO: 10th International Aerosol Conference, Saint Louis, MO, USA, 2018
“Evaluation of immersion freezing properties of dark-colored particles under mixed-phase cloud conditions”
- 30) Y. TOBO: JpGU Meeting 2018, Chiba, Japan, 2018
“Potential influence of aerosols on ice nucleation in mixed-phase clouds”
- 31) 當房豊：2017年度 エアロゾル・雲・降水の相互作用に関する研究集会（2018）
「2017年度 エアロゾル・雲・降水の相互作用に関する研究集会」
- 32) Y. TOBO and K. MURATA: 8th Symposium on Polar Science, Tachikawa, Tokyo, Japan, 2017
“A novel and simple approach for measuring ice nucleating particles in the atmosphere”
- 33) 當房豊、足立光司、植竹淳、T. C. J. HILL、P. J. DEMOTT、小池真：第34回エアロゾル科学・技術研究討論会（2017）
「夏季のスヴァールバル諸島・ニーオルスンにおける氷晶核の計測」
- 34) Y. TOBO and M. KOIKE: JSPS Japan-Norway Symposium 'Past, Present, and Future of the Arctic and Antarctic', Bergen, Norway, 2017
“Challenges in understanding aerosol-cloud interactions in Svalbard”

(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) 近藤豊：国立極地研究所一般公開サイエンスカフェ（主催：国立極地研究所、2017年8月5日、東京）にて「北極温暖化と大気汚染物質」の講演
- 2) 近藤豊：Expert Group on Black Carbon and Methane (EGBCM) および Arctic Monitoring and Assessment Programme (AMAP)、北極評議会WG等に関する意見交換会（主催：国立極地研究所、2017年10月19日、東京）にて講演
- 3) 近藤豊：知求アカデミーオープンカレッジ明日館（主催：ワールド航空、2018年3月26日、東京）にて「北極における気候変動のメカニズムを知る」の講演
- 4) 近藤豊：サイエンスカフェ・イン・高輪（主催：岩村道子、2018年7月21日、東京）にて「気候変動のメカニズムを知る」の講演
- 5) 近藤豊：Expert Group on Black Carbon and Methane (EGBCM) および Arctic Monitoring and Assessment Programme (AMAP) SLCF Expert Group、北極評議会WG等に関する意見交換会（主催：国立極地研究所、2018年8月28日、東京）にて講演
- 6) 近藤豊：Expert Group on Black Carbon and Methane (EGBCM) および Arctic Monitoring and Assessment Programme (AMAP) SLCF Expert Group、北極評議会WG等に関する意見交換会、（主催：国立極地研究所、2019年10月18日、東京）にて講演
- 7) 近藤豊、小池真：国立極地研究所ホームページ、研究成果の項目（2017年9月26日より）にて「北極のブラックカーボン測定の著しい高精度化に成功」研究成果についての情報発信
- 8) 近藤豊、小池真、極地研と東京大など：国立環境研究所・環境展望台（2017年9月26日より）にて「ブラックカーボンの測定の高精度化に関する成果」を発表
- 9) 近藤豊、小池真：国立極地研究所南極北極科学館「科学館 Hot News」（2017年10月26日より）にて「北極のブラックカーボン測定の著しい高精度化に成功」ポスター掲示
- 10) 茂木信宏、小池真、足立光司、近藤豊：国立極地研究所南極北極科学館「科学館 Hot News」（2017年10月より）にて「人為起源の黒色酸化鉄粒子による大気加熱効果を発見」ポスター掲示
- 11) 近藤豊、小池真：南極・北極から学ぶ地球環境変動、2章（公益在団法人 日本極地研究振興会、2019年）にて「地球や北極の気候に影響を及ぼす大気中の微粒子（エアロゾル）ーミクロな粒子が光と織りなす世界ー」を執筆
- 12) 近藤豊：極、No 18, 2019年夏号（国立極地研究所）にて北極 Keywords 「ブラックカーボン」を執筆
- 13) 国立極地研究所一般公開・極地研探検 2019「南極・北極ライブトーク」（2019年8月3日、聴講者約100名）にてニューオルスン基地からライブ出演・活動紹介（当房豊）
- 14) サイエンスカフェ「北極圏上空に浮かんでいる微粒子と雲の話（講師：当房豊）」（主催：国立極地研究所、2018年11月9日、談話室サザンクロス、聴講者約10名）
- 15) 国立極地研究所一般公開・極地研探検 2018「南極・北極ライブトーク」（2018年8月4日、聴講者約100名）にてニューオルスン基地からライブ出演・活動紹介（当房豊）
- 16) 国立極地研究所一般公開・極地研探検 2017におけるサイエンスカフェ「北極圏におけるエアロゾルと雲の研究（講師：当房豊）」（2017年8月5日、聴講者約50名）

(5) マスコミ等への公表・報道等

- 1) 読売新聞（近藤豊、2017年10月13日、「温暖化物質東アジア発、北極圏に4割飛来；国立極地研究所・近藤豊（特任教授）の話」）
- 2) GlacierHub（2019年6月5日、インターネットメディア、「How dust from receding glaciers is affecting the climate」
<http://glacierhub.org/2019/06/05/how-dust-from-receding-glaciers-is-affecting-the-climate/>
- 3) Colorado State University College News（2019年4月26日、インターネットメディア、「Atmospheric scientists find clues to climate change in the dust」
<https://enr.source.colostate.edu/atmospheric-scientists-find-clues-to-climate-change-in-the-dust/>
- 4) 科学技術振興機構サイエンスポータル（2019年4月8日、インターネットメディア、「北極の雲は、

その材料を自前で調達している)

https://scienceportal.jst.go.jp/news/newsflash_review/newsflash/2019/04/20190408_01.html

- 5) Scientific American E&E News (2019年3月29日、インターネットメディア、「Dust from Melting Glaciers Could Create Clouds」)
<https://www.scientificamerican.com/article/dust-from-melting-glaciers-could-create-clouds/>
- 6) 成果のプレスリリース (2019年3月26日、於国立極地研究所、気象研究所、名古屋大学、東京大学「北極陸域から発生するダストが雲での氷晶形成を誘発する」)。
<https://www.nipr.ac.jp/info/notice/20190326.html>
- 7) EurekAlert! Press release (2019年3月25日、「Researchers unveil effects of dust particles on cloud properties」)
https://www.eurekalert.org/pub_releases/2019-03/rooi-rue032219.php

(6) その他

特に記載すべき事項はない。

8. 引用文献

- 1) S. J. DOHERTY, S. G. WARREN, T. C. GRENFELL, A. D. CLARKE and R. E. BRANDT: Atmospheric Chemistry and Physics, 10, 11647-11680 (2010), Light-absorbing impurities in Arctic snow.
- 2) J. P. SCHWARZ, S. J. DOHERTY, F. LI, S. T. RUGGIERO, C. E. TANNER, A. E. PERRING, et al.: Atmospheric Measurement Techniques, 5(11), 2581-2592 (2012), Assessing single particle soot photometer and integrating sphere/integrating sandwich spectrophotometer measurement techniques for quantifying black carbon concentration in snow.
- 3) J. R. MCCONNELL, R. EDWARDS, G. L. KOK, M. G. FLANNER, C. S. ZENDER, E. S. SALTZMAN, J. R. BANTA, D. R. PASTERIS, M. M. CARTER and J. D. KAHL: Science, 317, 1381-1384 (2007), 20th-century industrial black carbon emissions altered Arctic climate forcing.
- 4) I. A. WENDL, J. A. MENKING, R. FÄRBER, M. GYSEL, S. D. KASPARI, M. J. G. LABORDE and M. SCHWIKOWSKI: Atmos. Meas. Tech. 7, 8, 2667-2681 (2014), Optimized method for black carbon analysis in ice and snow using the Single Particle Soot Photometer.
- 5) S. LIM, X. FAÏN, M. ZANATTA, J. COZIC, J. L. JAFFREZO, P. GINOT and P. LAJ: Atmos. Meas. Tech., 7, 10, 3307-3324 (2014), Refractory black carbon mass concentrations in snow and ice: method evaluation and inter-comparison with elemental carbon measurement.
- 6) T. MORI, N. MOTEKI, S. OHATA, M. KOIKE, K. GOTO-AZUMA, Y. MIYAZAKI and Y. KONDO: Aerosol Science and Technology, 50, 3, 242-254 (2016), Improved technique for measuring the size distribution of black carbon particles in liquid water.
- 7) T. MORI, K. GOTO-AZUMA, Y. KONDO, Y. OGAWA-TSUKAGAWA, K. MIURA, M. HIRABAYASHI, N. OSHIMA, M. KOIKE, K. KUPIAINEN, N. MOTEKI, S. OHATA, P. R. SINHA, K. SUGIURA, T. AOKI, M. SCHNEEBELI, K. STEFFEN, A. SATO, A. TSUSHIMA, V. MAKAROV, S. OMIYA, A. SUGIMOTO, S. TAKANO, and N. NAGATSUKA: J. Geophys. Res.: Atmospheres, 124, 13, 325-13, 356 (2019), Black carbon and inorganic aerosols in Arctic Snowpack.
- 8) S. MATOBA, M. MOTOYAMA, K. FUJITA, T. YAMASAKI, M. MINOWA, Y. ONUMA, Y. KOMURO, T. AOKI, S. YMAGUCHI, S. SUGIYAMA and H. ENOMOTO: Bulletin of Glaciological Research, 33, 7-14 (2015), Glaciological and meteorological observations at the SIGMA-D site, northwestern Greenland Ice Sheet.
- 9) R. DALLMAYR, K. GOTO-AZUMA, H. A. KJÆR, N. AZUMA, M. TAKATA S. SCHÜPBACH and M. HIRABAYASHI, Bulletin of Glaciological Research, 34, 11-20 (2016), A High-Resolution

Continuous Flow Analysis System for Polar Ice Cores

- 10) A. YOSHIDA, N. MOTEKI, S. OHATA, T. MORI, R. TADA, AVLA DAGSSON-WALDHAUSEROVÁ and Y. KONDO: *Aerosol Science and Technology*, 50, 3, 1-4 (2016), Detection of light-absorbing iron oxide particles using a modified single-particle soot photometer.
- 11) A. YOSHIDA, S. OHATA, N. MOTEKI, K. ADACHI, T. MORI, M. KOIKE, A. TAKAMI: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 123, 11, 11,194-11,209 (2018), Abundance and Emission Flux of the Anthropogenic Iron Oxide Aerosols From the East Asian Continental Outflow.
- 12) Y. TOBO: *Sci. Rep.*, 6, 32930 (2016), An improved approach for measuring immersion freezing in large droplets over a wide temperature range.
- 13) N. MOTEKI, K. ADACHI, S. OHATA, A. YOSHIDA, T. HARIGAYA, M. KOIKE and Y. KONDO: *Nat. Commun.*, 8, 15329 (2017), Anthropogenic iron oxide aerosols enhance atmospheric heating.
- 14) P. J. DEMOTT, T. C. J. HILL, M. D. PETERS, A. K. BERTRAM, Y. TOBO, R. H. MASON, K. J. SUSKI, C. S. MCCLUSKEY, E. J. T. LEVIN, G. P. SCHILL, Y. BOOSE, A. M. RAUKER, A. J. MILLER, J. ZARAGOZA, K. ROCCI, N. E. ROTHFUSS, H. P. TAYLOR, J. D. HADER, C. CHOU, J. A. HUFFMAN, U. PÖSCHL, A. J. PRENNI and S. M. KREIDENWEIS: *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 11227-11245 (2017), Comparative measurements of ambient atmospheric concentrations of ice nucleating particles using multiple immersion freezing methods and a continuous flow diffusion chamber.
- 15) P. R. SINHA, Y. KONDO, K. GOTO-AZUMA, Y. TSUKAGAWA, K. FUKUDA, M. KOIKE, S. OHATA, N. MOTEKI, T. MORI, N. OSHIMA, E. J. FØRLAND, M. IRWIN, J.-C. GALLET, and C. A. PEDERSEN: *J. Geophys. Res.*, doi: 10.1002/2017JD028027. (2018), Seasonal progression of the deposition of black carbon by snowfall at Ny-Ålesund, Spitsbergen
- 16) T. C. BOND, S. J. DOHERTY, D. W. FAHEY, P. M. FORSTER, T. BERNTSEN, B. J. DEANGELO, M. G. FLANNER, S. GHAN, B. KÄRCHER, D. KOCH, S. KINNE, Y. KONDO, P. K. QUINN, M. C. SAROFIM, M. G. SCHULTZ, M. SCHULZ, C. VENKATARAMAN, H. ZHANG, S. ZHANG, N. BELLOUIN, S. K. GUTTIKUNDA, P. K. HOPKE, M. Z. JACOBSON, J. W. KAISER, Z. KLIMONT, U. LOHMANN, J. P. SCHWARZ, D. SHINDELL, T. STORELVMO, S. G. WARREN and C. S. ZENDER: *J. Geophys. Res.: Atmospheres*, 118, 1-173 (2013), Bounding the role of black carbon in the climate system: A scientific assessment.
- 17) K. M. KEEGAN, M. R. ALBERT, J. R. MCCONNELL and I. BAKER: *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 111. 22, 7964-7967 (2014), Climate change and forest fires synergistically drive widespread melt events of the Greenland Ice Sheet.
- 18) G. P. SCHILL, S. H. JATHAR, J. K. KODROS, E. J. T. LEVIN, A. M. GALANG, B. FRIEDMAN, M. F. LINK, D. K. FARMER, J. R. PIERCE, S. M. KREIDENWEIS and P. J. DEMOTT: *Geophys. Res. Lett.*, 43, 5524-5531 (2016), Ice-nucleating particle emissions from photochemically aged diesel and biodiesel exhaust.
- 19) J. VERGARA-TEMPRADO, M. A. HOLDEN, T. R. ORTON, D. O' SULLIVAN, N. S. UMO, J. BROWSE, C. REDDINGTON, M. T. BAEZA-ROMERO, J. M. JONES, A. LEA-LANGTON, A. WILLIAMS, K. S. CARSLAW, B. J. MURRAY: *J. Geophys. Res. Atmos.*, 123, 4273-4283 (2018), Is black carbon an unimportant ice-nucleating particle in mixed-phase clouds?
- 20) Y. TOBO, K. ADACHI, P. J. DEMOTT, T. C. J. HILL, D. S. HAMILTON, N. NAGATSUKA, J. UETAKE, Y. KONDO and M. KOIKE: *Nat. Geosci.*, 12, 253-258 (2019), Glacially sourced dust as a potentially significant source of ice nucleating particles.
- 21) J. E. BULLARD, M. BADDOCK, T. BRADWELL, J. CRUSIUS, E. DARLINGTON, D. GAIERO, S. GASSÓ,

G. GISLADOTTIR, R. HODGKINS, R. MCCULLOCH, C. MCKENNA-NEUMAN, T. MOCKFORD, H. STEWART and T. THORSTEINSSON: *Rev. Geophys.*, 54, 447-485 (2016), High-latitude dust in the Earth system.

II-5 数値モデルによる発生源寄与評価

国立大学法人名古屋大学
大学院環境学研究科

松井 仁志

平成29(開始年度)～令和元年度研究経費(累計額)：8,255千円(研究経費は間接経費を含む)
(平成29年度：650千円、平成30年度：3,705千円、令和元年度：3,900千円)

【要旨】

これまで開発してきたエアロゾルモデルATRASを全球気候モデルCAM5に導入し、様々な観測結果を用いてこのモデルの検証を行った。また、BCの直接効果を全球平均で 0.24 W m^{-2} 、北極域では 0.11 W m^{-2} と推定した。そして、これまでの計算法では十分に考慮されていない個々の粒子の大きさや混合状態の違いを高い精度で表現・計算することが、BCの直接効果を精度良く推定する上で不可欠であることを明らかにした。また、このような個々の粒子の違いを考慮することが、将来のBCの削減対策や温暖化対策を評価する際にも重要であることを明らかにした。さらに、北極域におけるBCの発生源寄与を推定し、地表付近では冬季にロシア・ヨーロッパの人為発生源が支配的になるのに対し、夏季はロシアやアラスカのバイオマス燃焼が大きな寄与を持つことを示した。また、地表濃度と直接効果の発生源寄与は大きく異なり、アジアからの北極BCに対する寄与は、地表濃度では3%程度であるのに対し、直接効果ではおよそ30%になることを示した。

人為起源の黒色酸化鉄について、数値モデルへの導入と全球での直接効果の推定を世界で初めて行った。黒色酸化鉄の直接効果は、全球平均では 0.021 W m^{-2} 、東アジア域では 0.22 W m^{-2} と推定され、世界的にも注目されているブラウンカーボン(光吸収性の有機エアロゾル)と同程度の値を持つことを明らかにした。また、これらの鉄が海洋への溶存鉄の重要な供給源となる可能性を示した。

【キーワード】

ブラックカーボン、エアロゾル、全球気候モデル、放射効果、地球温暖化

1. はじめに

化石燃料・バイオ燃料の燃焼やバイオマス燃焼によって放出されるブラックカーボン(BC)は、太陽放射を効率的に吸収することによって大きな正の放射強制力を持つと考えられている[e.g., Bond et al., 2013]。しかし、その推定には非常に大きな不確実性があり、エアロゾル全体や人間活動全体による気候影響を推定する上で最も大きな不確定要因の1つとなっている[Boucher et al., 2013; Myhre et al., 2013]。大気中のBC含有粒子は、太陽放射の吸収による大気加熱に加え、雲凝結核濃度や大気安定度を変化させることによって雲の物理特性や降水過程にも影響を及ぼす。また、BCが極域や高山域の雪氷面に沈着すると、雪氷アルベドを低下させ、雪氷の融解を促進すると考えられている。このBCによる雪氷アルベドの低下効果は、雪氷が存在する場所では大きな放射強制力を持ち、特に北極域では、アイスアルベドフィードバックを強化するような役割を果たし、急激な温暖化に寄与している可能性が指摘されている。

北極域のBCは、北極圏内の高緯度の発生源に加え、北極圏外の中緯度(アジア、ヨーロッパ、北アメリカ)も重要な発生源となり、長距離輸送されて北極域に到達すると考えられている。このような長距離輸送されるBC粒子は、輸送中に凝縮・凝集・酸化過程を経ることによって水を吸湿しやすい成分(硫酸塩、硝酸塩、有機エアロゾルなど)によって徐々に被覆され、光吸収効率(単位BC質量あたりの光吸収量)が大きな粒子、雲・降水過程によって大気中から除去されやすい粒子へと変化していく。しかし、このBCの変質・除去過程は数値モデルでは簡略化して表現されることが多く、北極域のBC濃度の推定が非常に大きな不確実性を持つ要因の1つとなっている。近年の全球エアロゾルモデルの相互比較研究で

は、北極域のBC質量濃度の推定には2桁程度のモデル間のばらつきがあることが報告されている。BCの変質・除去過程のモデル表現を改善し、北極域のBC濃度の予測精度を向上させることが重要な課題の1つとなっている。

これまでの私の研究では、従来のモデルでは十分に表現されてこなかったBCの粒径分布や個々の粒子の化学組成（混合状態）の情報を詳細に表現できる2次元ビン法を用いたエアロゾルモデルATRAS（Aerosol Two-dimensional bin module for foRmation and Aging Simulation）を開発してきた [Matsui et al., 2013, 2014]。このようなモデル表現を用いることによって、上で述べた大気中の変質過程とそれによるBC粒子の粒径分布と混合状態の変化、光吸収量の増大と雲・降水過程による除去の増大を理論に基づいて計算することが可能である。このモデルを領域3次元モデルWRF-chem（Weather Research and Forecasting model with chemistry）に導入し、様々な観測データを用いてモデル計算の検証を行ってきた。そして、これまでのモデルでは十分に推定できなかったエアロゾルの微物理・化学特性の様々なパラメータを計算することで、このような詳細なエアロゾルモデルの重要性・必要性を示してきた。

2. 研究開発目的

本サブテーマでは、以下の3点を目的に研究を行った。第一に、BCの変質過程とそれに伴う粒径・混合状態の変化を陽に表現できるエアロゾルモデルATRASを全球気候モデルに導入し、BCなどの光吸収性エアロゾルの数値計算を行った。第二に、他のサブテーマで得られる観測結果などを用いて、数値モデル計算の検証を行い、BCなどの光吸収性エアロゾルの放射効果を推定した。第三に、この数値モデルにタグモデルを導入し、北極域におけるBCの発生源寄与を定量化した。

3. 研究開発方法

（1）全球エアロゾルモデルCAM5-chem/ATRAS2の開発・計算・検証

まず、エアロゾルモデルATRASを大幅に改良したボックスモデルATRAS2を開発し、全球気候モデルCAM5（Community Atmospheric Model version 5）に導入した。2次元ビン表現を用いた全球エアロゾルモデルの開発にあたっては、モデルの計算コストという観点が非常に重要になる。領域モデルでは限られた領域（例えば東アジア域）について短期間（数週間～数年程度）の計算を行う一方、全球モデルでは地球全体について長期間（数年～数千年程度）の計算が必要になる。そこで、1) エアロゾルの微物理・化学過程に関する全てのプロセスのソースコードの全面的な見直し、2) 2次元ビン表現で使用するエアロゾルの変数の数の削減、を行うことで、ATRASモデルの精度を維持しつつ、10倍以上計算効率化されたボックスモデルを開発した。開発した全球エアロゾルモデルでは、粒径1 nmの超微小粒子から10000 nmの粗大粒子までを12個のビンで解像する。各粒径ビンについて8つの混合状態ビンを持ち、BC単体の粒子、BCを含まない粒子、BCとそれ以外の成分の両方を含む内部混合粒子（その比率に応じて6つのグループ）を解像する。そして、この粒径・混合状態を解像した情報をもとに、エアロゾル—放射相互作用とエアロゾル—雲相互作用を計算する。この全球エアロゾルモデルCAM5-chem/ATRAS2の現在気候についての計算を行った（水平解像度は 2.5×1.9 度、鉛直層数は30層で、計算期間は6年間）。BCの混合状態の多様性を表現することの重要性を示すために、BC混合状態を解像したモデル表現（粒径12ビン、混合状態8ビンの計算（Multiple-MS））と解像しないモデル表現（粒径12ビン、混合状態1ビンの計算（Single-MS））を用いた計算を行い、その比較を行った（図3.5.1）。2次元ビン表現を用いた（BC混合状態を詳細に表現した）全球エアロゾルモデルは世界的にも本モデルしかなく、一般的なモデルと比べてBCの変質・除去過程や光吸収量の推定をより理論に基づいて推定することが可能となった。

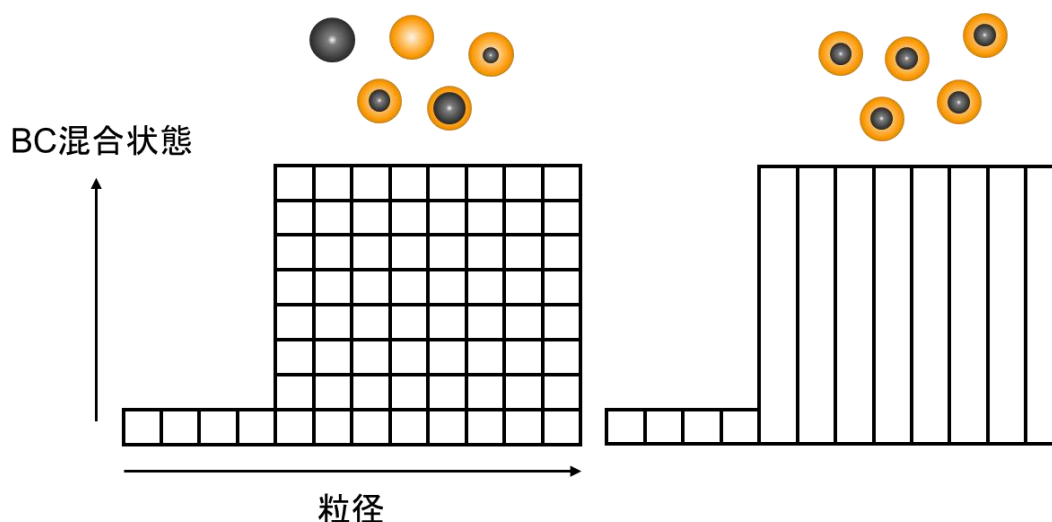


図 3.5.1. BC の混合状態を解像したモデル (Multiple-MS) と解像しないモデル (Single-MS) のビン表現。横軸がエアロゾルの乾燥直径、縦軸が BC 混合状態を示す。BC の混合状態を解像したモデル (左図) では、エアロゾルの粒径に加えて BC の混合状態を詳細に解像する。一方、混合状態を解像しないモデル (右図) では、粒径分布は詳細に表現するが、混合状態は平均的な情報のみを計算する。図の上には、解像できる粒子のイメージ図を示す。BC の混合状態を解像したモデル表現では、BC 単体の粒子、被覆の薄い粒子、被覆の厚い粒子、BC を含まない粒子を解像できる。

(2) BCの放射効果の推定

(1) の全球エアロゾルモデルを用いて、エアロゾルが放出される際の粒径分布の不確定性が、BCの直接効果 (光吸収による大気加熱効果) の推定において大きな不確定要因となることを示した。エアロゾル放出時の粒径分布の扱いには非常に大きな不確定性があり、先行研究ではこの不確定性がエアロゾルの数濃度やエアロゾル・雲相互作用の推定において重要になることが示されてきた。しかし、この放出粒径の不確定性がBCの放射効果に及ぼす影響はほとんど評価されておらず、よくわかっていない。そこで、先行研究を基に現状のエアロゾルの放出粒径の不確定性を表3.5.1.のように定義し、これらの放出粒径を用いた計算を、BC混合状態を解像したモデル表現と解像しないモデル表現のそれぞれについて行った。各計算からBCの直接効果 (BCを考慮した時としない時の大気上端での放射収支の差) を計算し、BC直接効果の推定において放出粒径の扱いがどの程度重要になるかを調べた。これらの計算では、エアロゾル質量の放出フラックスはすべての計算で同じである。また、各計算で放出粒径以外のすべての計算設定は同じである (放出粒径とエアロゾル数の放出フラックスのみ異なる)。小さい放出粒径を用いた計算では、小さい粒径の粒子が多くの数放出されるのに対して、大きい放出粒径を用いた計算では、大きい粒子が少ない数放出される。

表 3.5.1. エアロゾルの放出粒径の設定

計算	中心直径	
	化石燃料燃焼	バイオ燃料燃焼、バイオマス燃焼
Base	70 nm	100 nm
Large	80 nm	200 nm
Small	30 nm	50 nm

(3) 北極BCの発生源寄与の推定

北極域におけるBCの発生源寄与を推定するために、様々な発生源から放出されるBCの放出・輸送・変質・除去過程を個別に追跡できるタグモデルを開発し、CAM5-chem/ATRAS2に導入した。このモデルでは、

地球全体を12個にわけた各領域から放出される人為起源（化石燃料・バイオ燃料の燃焼起源）とバイオマス燃焼起源のBCについて、大気中での輸送・変質・除去過程を別々の変数を用いて追跡する。12領域は、ヨーロッパ、ロシア、中央アジア、東アジア、東南アジア、カナダ、北アメリカ（カナダ以外）、南アメリカ、アフリカ、その他、とした（図3.5.2）。全体で24の発生源（12領域×2起源）のBCを追跡することが可能である。このタグモデルでは、すべての2次元ビンについて各発生源のBCの変数を考慮しており、各発生源のBCが異なる粒径分布・混合状態を持つことを陽に表現できることが特徴的である。そのため、各起源のBCが異なる時空間分布を持つことを表現・計算できることに加え、発生源ごとにBCの大気中の滞留時間が異なること、降水過程によるBCの除去のされやすさが異なること、BCの光吸収効率（単位BC質量あたりの光吸収量）が異なることなど、一般的なタグモデルでは考慮していない点を表現・計算することが可能である。このタグモデルを用い、北極域（70度以北とした）のBCの発生源寄与を推定した。地表付近のBC質量濃度、大気中量（北極域の地表から高度約40kmまでの全領域のBCを積算した量）、沈着量、直接効果のそれぞれについて発生源寄与を定量化し、それらの違いなどについて解析した。

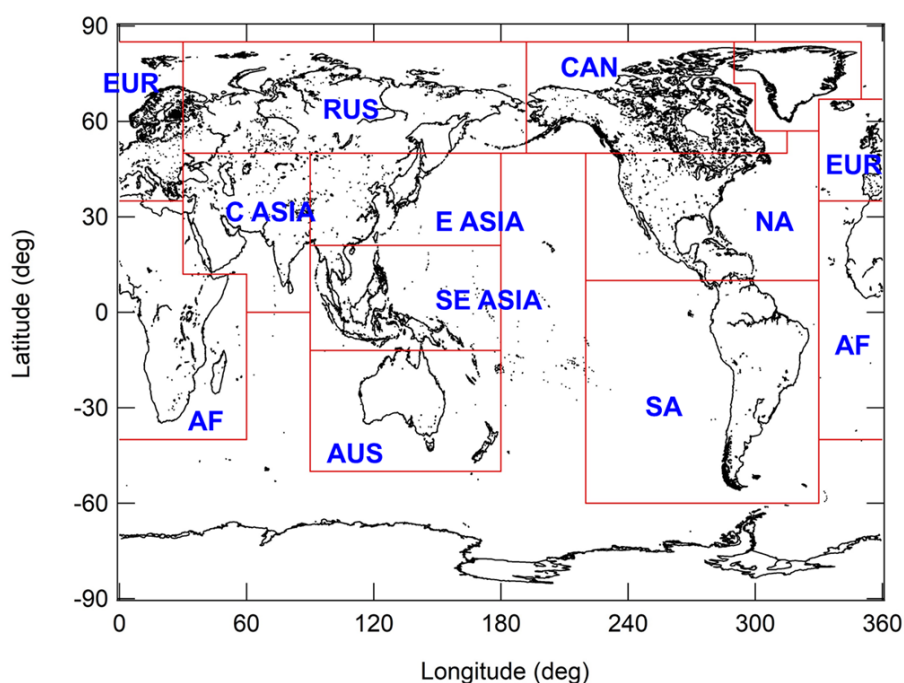


図 3.5.2 発生源領域の設定：

EUR（ヨーロッパ）、RUS（ロシア）、C ASIA（中央アジア）、E ASIA（東アジア）、SE ASIA（東南アジア）、CAN（カナダ）、NA（北アメリカ）、AF（アフリカ）、AUS（オーストラリア）、SA（南アメリカ）、その他に分類した。

（４）人為起源黒色酸化鉄の気候影響評価

人為的な光吸収性エアロゾル成分の黒色酸化鉄（マグネタイト）を全球エアロゾルモデルCAM5-chem/ATRAS2に導入した。東京大学（サブテーマ①）が開発した測定技術を用いた黒色酸化鉄（マグネタイト）の大気中濃度の多地点観測を用い、黒色酸化鉄および人為起源鉄（黒色酸化鉄は人為起源鉄の一部）の全球放出量を推定するとともに、その大気中濃度と大気加熱効果を推定した。人為起源の黒色酸化鉄を数値モデルに導入し、その全球分布や気候影響を推定したのは、世界的にも本研究が初めてである。また、この計算結果に基づいて海洋への溶存鉄の沈着量を推定した。

このほか、東京大学（サブテーマ①）が開発した、雲の最大過飽和度を観測的に推定する新手法を用

いた数値モデル計算を行った。観測から推定された雲の最大過飽和度を用いてモデル計算を制約した場合に、エアロゾルの全球分布や除去過程に対してどのような影響を及ぼすのかを調べた。全球モデルCAM5-chem/ATRAS2のエアロゾルの除去過程の計算を最大過飽和度の観測結果によって制約した感度実験を行い、北極域でのBCの輸送量や大気濃度への影響を評価した。この研究は、サブテーマ①との共同研究であり、研究開発方法および結果と考察の詳細は、サブテーマ①の中に記載する。

4. 結果及び考察

(1) 全球エアロゾルモデルCAM5-chem/ATRAS2の開発・計算・検証

開発した全球エアロゾルモデルCAM5-chem/ATRAS2の計算について、観測との比較やCAM5に導入されている既存のエアロゾルモデルMAM (Modal Aerosol Module) との比較を行った。地上観測・航空機観測・衛星観測との比較において、ATRAS2の計算がMAMと同程度の観測との一致もしくはMAMよりも良い観測との一致を持つことを示した。特に、BCや有機エアロゾルの質量濃度、エアロゾル数濃度(粒径10nm以上)、光学的厚み (Aerosol optical depth: AOD) について、ATRAS2がMAMに比べて高い値を持ち、観測とより良い一致を持つことを示した (図4.5.1)。また、ATRAS2では、MAMでは計算できない硝酸塩エアロゾルの生成過程を計算でき、地表の硝酸塩エアロゾル濃度の計算が観測と概ね整合的であることを示した。

BCの混合状態の多様性を表現することの重要性を示すために、BC混合状態を解像した計算 (Multiple-MS) と解像しない計算 (Single-MS) の比較を行った。BC混合状態を解像した計算では、BC単体の粒子や大気中のプロセスをあまり経ていない被覆の薄いBC粒子など、雲粒として活性化しにくいBC粒子を表現することができる。そのため、BC混合状態を解像しない計算と比べて、解像した計算では地表付近のBC質量濃度は全球平均で約5%増大した。この増大率は発生源付近 (中緯度域) では小さいものの、長距離輸送と輸送中の除去過程を十分に経た高緯度域や外洋域では大きく、特に北極・南極周辺では、40-200%の増大が推定された (図4.5.2)。この結果は、BCの混合状態を解像することが、BCの発生源 (主に中緯度域) から極域への輸送量を決める上で非常に重要な役割を果たしていることを示している。また、極域におけるBCの雪氷面への沈着とそれによる雪氷のアルベド低下の推定においても、BC混合状態の解像が重要になることを示唆している。

全球平均のエアロゾルの光吸収量 (Absorption aerosol optical depth: AAOD) は、BC混合状態を解像することで15%減少した。これは光学的効果と寿命効果の2つの相反する効果によるものである。BC混合状態を解像することによって、AAODは低緯度・中緯度域で10-50%減少した (図4.5.3)。これは、混合状態を解像することで、被覆がないもしくは被覆の薄いBC粒子 (無機・有機成分の被覆による光吸収量の増大効果の少ないBC粒子) を表現できているためである。それに対し、混合状態を解像しない計算では、全ての粒子が被覆の厚いBCとして表現され、被覆による光吸収量の増大効果を過大推定する。一方で、高緯度域においては、AAODは5-30%増大した (図4.5.3)。これは、前段落で述べたBC混合状態の解像による高緯度域でのBC濃度の40-200%の増大 (寿命効果) が光学的効果による光吸収量の減少よりも重要になるためである。これらの結果は、BCの混合状態の解像によって、AAODは増大する場所と減少する場所があり、AAODの緯度依存性を変化させることを示している。

また、BC含有粒子の全粒子に対する割合や、被覆の厚いBC粒子、被覆の薄いBC粒子の全BC粒子に対する割合などの空間分布の解析から、これらの割合が緯度や高度によって空間的に非常に大きな変動を示すことを示した。BC含有粒子の全粒子に対する割合は、発生源に近い東アジア域では20-30%程度、北極域では約10%と推定され、この割合はそれぞれの領域で航空機観測によって観測されたBC含有粒子の全粒子に対する割合の結果と概ね整合的であった。

これらの結果を査読付国際誌Journal of Advances in Modeling Earth Systemsに投稿し、受理・出版した [Matsui, 2017; Matsui and Mahowald, 2017]。

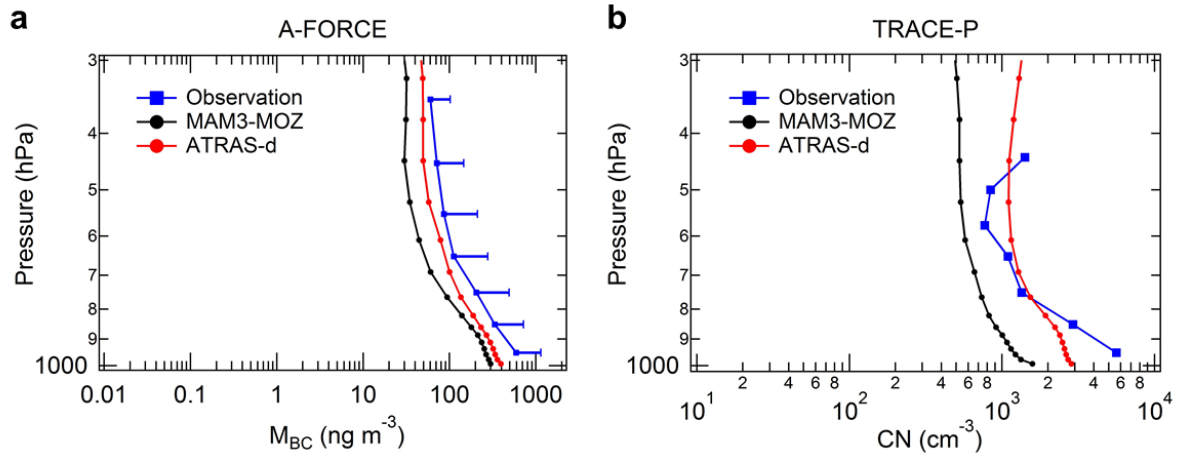


図4.5.1 BC質量濃度とエアロゾル数濃度（粒径10nm以上）の東アジア域における鉛直分布：観測（青）、既存モデルMAM（黒）、開発したモデルATRAS2（赤）。

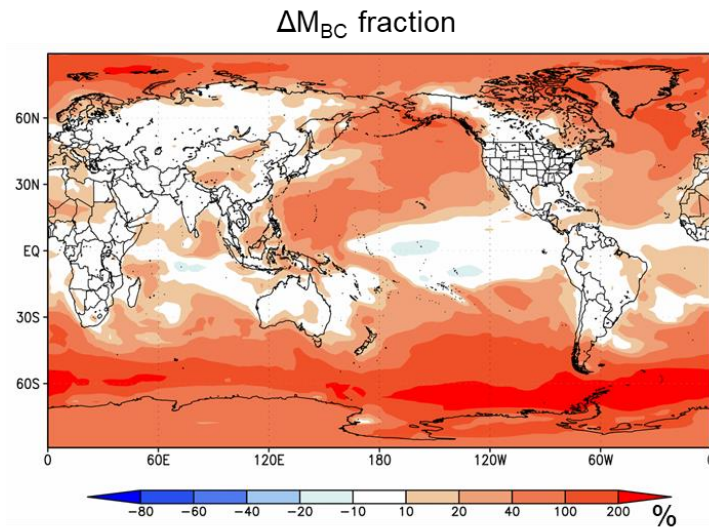


図4.5.2 BC混合状態を解像することによる地上BC質量濃度の増大率：BC混合状態を解像した計算（Multiple-MS）と解像しない計算（Single-MS）のBC質量濃度の差をSingle-MSのBC質量濃度で規格化し、100をかけた値（%）を示している。

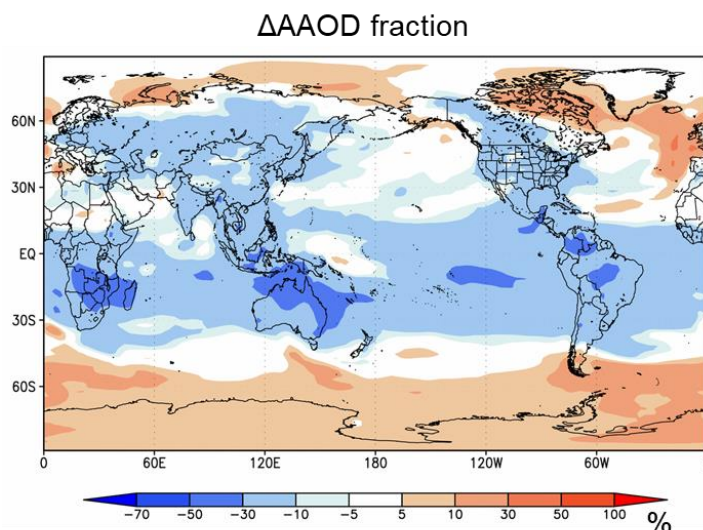


図4.5.3 BC混合状態を解像することによるBCの光吸収量（AAOD）の増大率：
BC混合状態を解像した計算（Multiple-MS）と解像しない計算（Single-MS）のBC AAODの差をSingle-MS
のBC AAODで規格化し、100をかけた値（%）を示している。

（2）BCの放射効果の推定

CAM5-chem/ATRAS2モデルを用い、BCの全球での直接効果を 0.24 W m^{-2} と推定した。また、北極域（70度以北）の直接効果を 0.11 W m^{-2} と推定した。

また、エアロゾルが放出される際の粒径分布の違いが、BCの直接効果の推定に大きな影響を及ぼすことを明らかにし、そのメカニズムを解明した。エアロゾルの放出粒径の不確定幅は表3.5.1のように定義し、それぞれの放出粒径を用いた計算を行った。放出粒径以外のすべてのモデル設定はすべての計算で同じであり、放出量の質量フラックスもすべての計算で同一である。しかし、質量フラックスが同じでも、放出粒径が異なると数濃度の放出フラックスは計算間で大きく異なる。小さい放出粒径を用いた計算では数濃度の放出フラックスは大きくなる。

表3.5.1の放出粒径を用いた計算を、BCの混合状態を解像したモデル表現（Multiple-MS）と解像しないモデル表現（Single-MS）について行い、放出粒径の違いがBCの直接効果に及ぼす影響を調べた。その結果、混合状態を解像した計算の場合にのみ、放出粒径の違いによってBCの直接効果の推定値が大きく変わることがわかった（図4.5.4）。BC直接効果の放出粒径に対する感度は、BC混合状態を解像することによって約7倍も増大し、それによってBC直接効果は2倍以上の不確定幅を持つことがわかった（BC直接効果の全球平均値の推定幅は、 $0.18 \sim 0.42 \text{ W m}^{-2}$ ）。この不確定性幅は、全球エアロゾルモデルの相互比較プロジェクトにおけるBC直接効果のモデル間のばらつきに匹敵する大きな不確定幅である。この不確定性幅は、特に極域や外洋域などBCが長距離輸送過程を経て運ばれる領域で顕著であり、そのような領域では放出粒径の不確定性が約4倍以上のBC直接効果の不確定性幅に繋がることになった（図4.5.5）。

この大きな推定幅は、放出粒径の違いによってBC粒子が経る凝縮・凝集過程の速度が変わり、その結果、BC粒子の粒径・被覆量に大きな違いをもたらし、光吸収量と直接効果が大きく変わる、というメカニズムによって作り出されることがわかった。すなわち、放出時の粒径分布の扱い方が正確でないと、BC粒子が大気中で経るプロセスの速度、被覆速度、光吸収の増大速度、滞留時間の推定が不正確になり、放射強制力の推定に大きな影響を及ぼすことを示している。この結果は、BCの直接効果を精度良く推定するためには、個々の粒子の被覆量の違いを細かく区別し、さらに粒子が放出された直後の粒径を正確に扱うことが不可欠であることを示している。この一連のメカニズムによるBCの放射強制力の不確定性は、これまで認識されてこなかったものであるため、他の気候モデルでも今後このメカニズムを考慮していくとともに、観測によって放出粒径や混合状態の不確定性を減らしていくことが大事な要素となる。

また、現在気候におけるBCの放射強制力を精度良く推定するだけでなく、将来のBC削減対策や温暖化対策を評価する際にも、このメカニズムの理解が重要であることを示した。

これらの結果を査読付国際誌Nature Communicationsに投稿し、受理・出版した[Matsui et al, 2018a]。

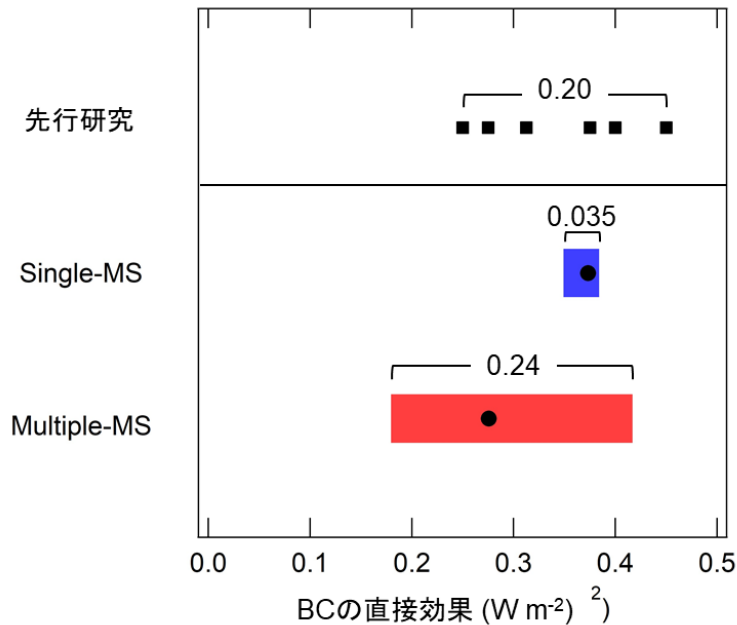


図4.5.4 BCの直接効果の推定範囲（全球平均）：

■は先行研究で推定されたBCの直接効果の値を示す。個々の先行研究では、別々の全球エアロゾルモデルが用いられているため、放出粒径だけではなく、BCに関わる全プロセス・パラメータの表現方法が各研究によって異なる。一方、Single-MS（BC混合状態を解像しないモデル表現）とMultiple-MS（BC混合状態を解像したモデル表現）の横棒は、放出粒径だけを変えた場合のBCの直接効果の範囲を示している。Single-MSとMultiple-MSの横棒内の●は、平均的な放出粒径を用いた場合のBCの直接効果の推定値を示す。

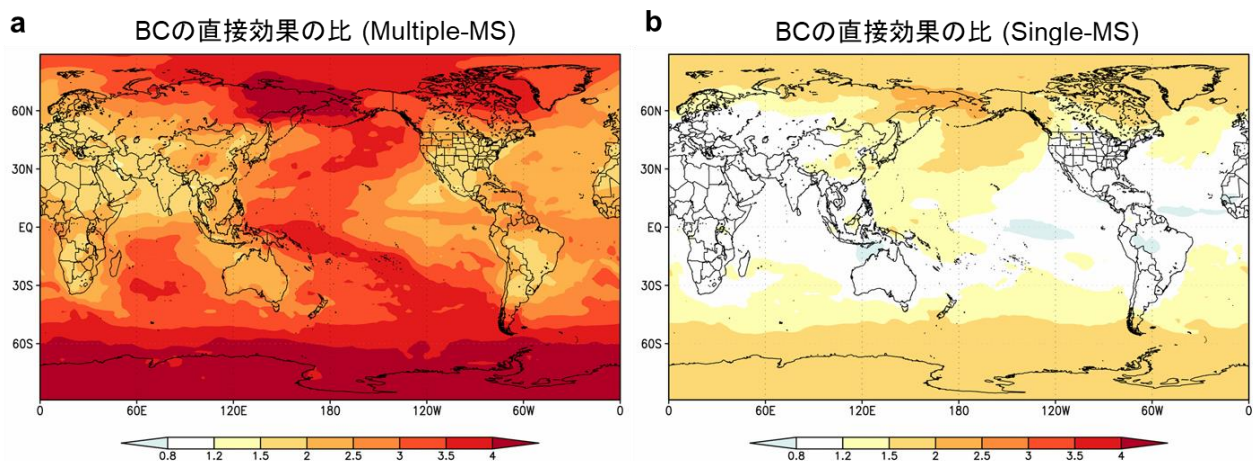


図4.5.5 放出粒径が小さい場合と大きい場合の2つの計算のBCの直接効果の比率：

放出粒径の設定は表3.5.1のSmall（小さい場合）とLarge（大きい場合）に対応する。BCの直接効果の推定において放出粒径が重要でない場合、比率は1（2つの計算の直接効果の値はほぼ同じ）に近くなる。比率が1より大きくなるほど、BCの直接効果の推定において放出粒径の扱い方がより重要になることを示している。左図がBC混合状態を解像した計算（Multiple-MS）、右図がBC混合状態を解像しない

計算 (Single-MS) を示す。

(3) 北極BCの発生源寄与の推定

開発したタグモデルを用い、北極域 (70度以北) における地表付近のBC質量濃度、大気中量、沈着量、BCの直接効果について、発生源寄与を推定した。その結果、地表BC濃度の発生源寄与には明瞭な季節変動がみられ、冬季はロシアやヨーロッパの人為起源の寄与が8-9割程度占めるのに対し、夏季はロシアやアラスカのバイオマス燃焼の寄与が大きい (全体の半分程度を占める) と推定された (図4.5.6a)。一方、大気中量と直接効果の発生源寄与では、地表濃度と比べて遠方 (中緯度) の寄与が大きくなる結果が得られた (図4.5.6b, 図4.5.6d)。アジア (東アジアや中央アジア) からの寄与は、北極域の地表付近のBC濃度に対しては年平均で3%しかないのに対し、大気中量と直接効果ではそれぞれ30%, 31%と推定され、北極域の大気加熱に少なくない寄与を持っている可能性がある。沈着量に対するアジアからの寄与は年平均で10%と推定された (図4.5.6c)。これらの結果は、北極域近傍 (ロシア、ヨーロッパなど) の発生源からのBCは比較的低高度に輸送されるのに対し、遠方 (アジアなど) の発生源からのBCは高高度に輸送されることに対応しており、これまでの航空機観測等で示唆されてきたことと整合的である [Matsui et al., 2011]。また、発生源寄与の領域分布をみると、北極域内でも場所によって寄与が大きい起源が異なることもわかった (図4.5.7)。これらの結果は、北極域におけるBCの気候影響をより精緻に推定するためには、地表付近のBC濃度だけでなく、その鉛直構造をより精度よく理解するとともに、多点におけるBC観測を継続的に行い、それらの変動の違いとその要因を明らかにしていくことが重要であることを示している。

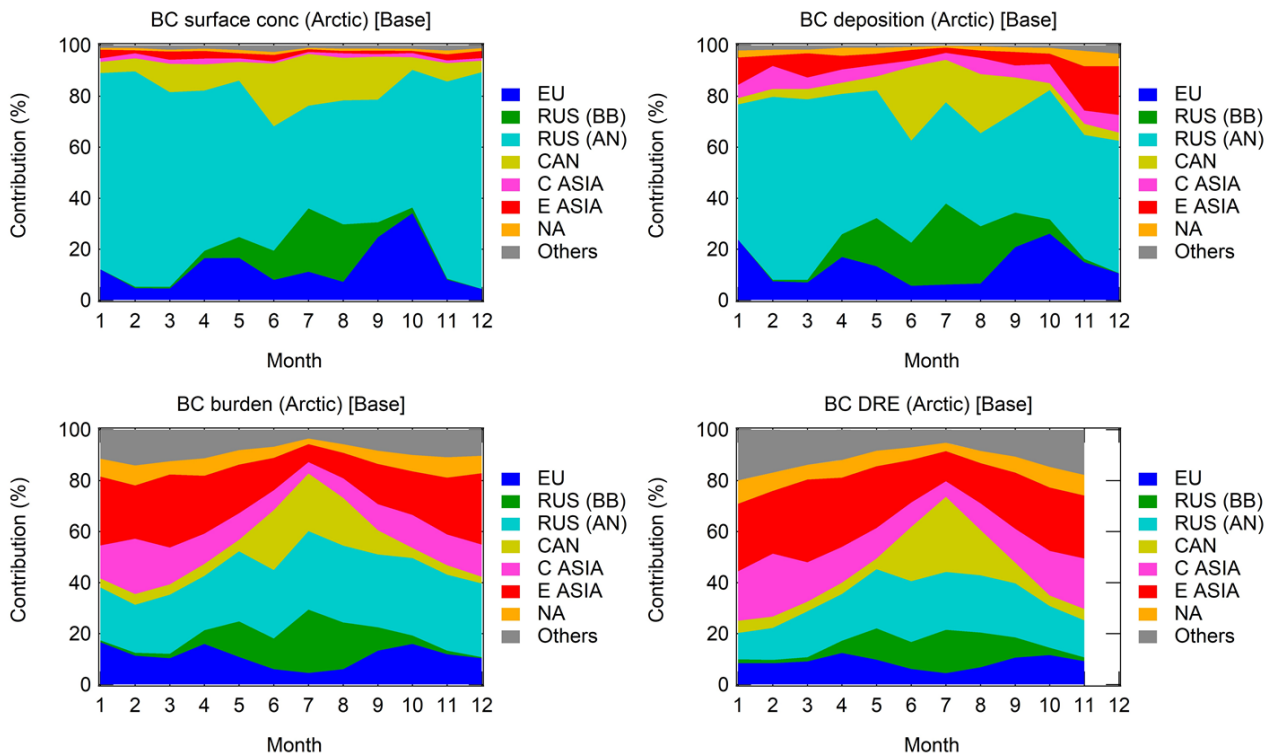


図4.5.6 北極域 (70度以北) のBC発生源寄与 :

左上図は地表濃度、右上図は沈着量、左下図は大気中量、右下図は直接効果の発生源寄与を示す。EU (ヨーロッパ)、RUS (ロシア)、CAN (カナダ)、C ASIA (中央アジア)、E ASIA (東アジア)、NA (北アメリカ)、Others (その他) の寄与を示し、ロシアは人為起源 (AN、化石燃料燃焼+バイオ燃料) とバイオマス燃焼 (BB) に分類した。

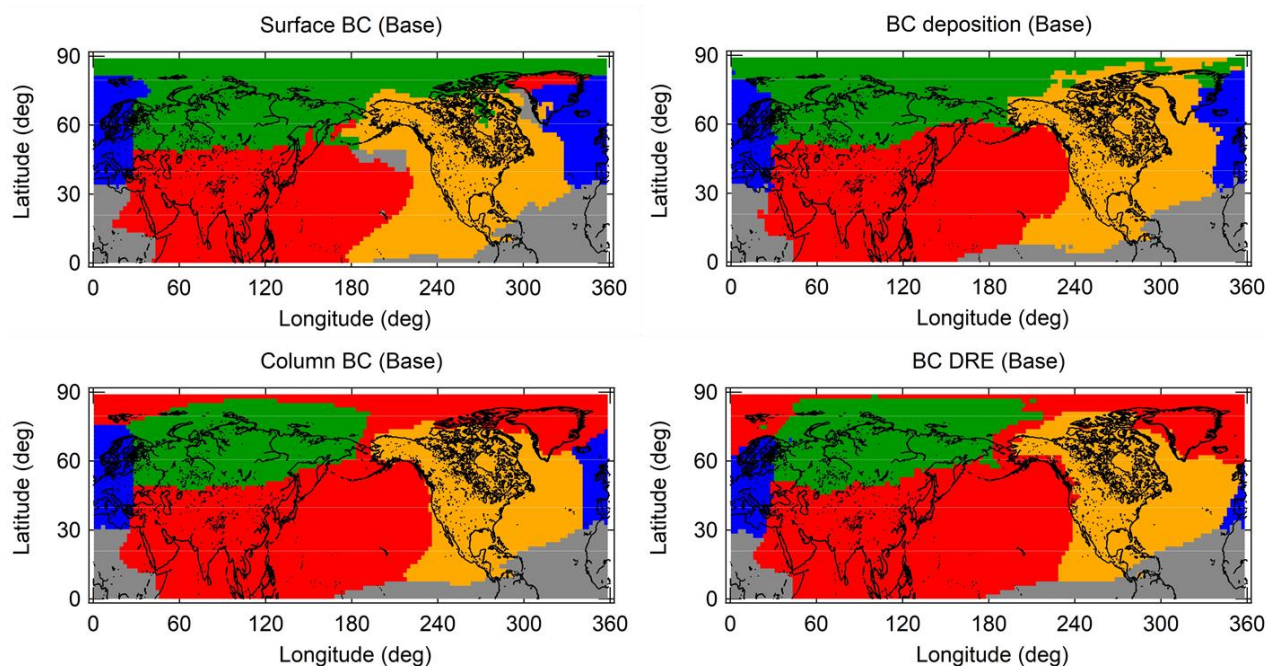


図4.5.7 BC発生源寄与が最大となる起源の分布：

左上図は地表濃度、右上図は沈着量、左下図は大気中量、右下図は直接効果について、最も大きな発生源寄与を持つ起源を色で示している。ヨーロッパを青色、ロシアを緑色、カナダ+北アメリカを橙色、中央アジア+東アジア+東南アジアを赤色、その他を灰色で示す。

(4) 人為起源黒色酸化鉄の気候影響評価

地球の表面積の7割を占める海洋は、現在の気候において人為的に放出される二酸化炭素の大きな吸収源となっており、人間活動による大気環境の急激な変化を抑制する役割を果たしている。大気中の鉄を含むエアロゾルは、溶存鉄の海洋への供給源となり、主に南大洋域などの外洋域における海洋の一次生産と二酸化炭素の吸収を変化させ、地球規模の炭素循環に影響を及ぼすと考えられている。化石燃料の燃焼等によってエアロゾルとして大気中に放出される鉄（人為起源鉄）は、海洋への溶存鉄の供給源の1つとして知られているが、その全球海洋表層への沈着量は、土壌起源の鉱物性ダストに含まれる鉄や森林火災由来の鉄（自然起源鉄）の沈着量に比べて少ないと考えられてきた。

東京大学（サブテーマ①）が開発した測定技術を用いた黒色酸化鉄の大気中濃度の多地点観測と、名古屋大学（サブテーマ⑤）がこれまで開発してきた全球エアロゾルモデルの計算により、人為起源鉄の全球排出量と大気中濃度が、従来研究の見積りのそれぞれ約5倍、約8倍になることを発見した（図4.5.8a）。この新しい全球排出量を用いた数値モデル計算によって、世界各地（特に南半球）の地表付近の大気中鉄濃度や海洋への鉄沈着量の観測結果の再現性が大きく向上した。また、このモデル計算を用い、海洋の一次生産が鉄律速であると考えられている南大洋域において、1) 溶存鉄の全沈着量（全起源の総量）が、従来の見積りより約50%増大すること（図4.5.8b）、2) 溶存鉄の全沈着量に対する人為起源鉄の寄与が、鉱物性ダストに含まれる鉄や森林火災由来の鉄の寄与よりも大きくなり得ること（従来の見積りを用いた場合の9%から39%に増大）（図4.5.8b）、3) 産業革命前から現在までの溶存鉄の沈着量の増大に対する人為起源の鉄の寄与が、南大洋の7割を超える海域で鉱物性ダスト起源の鉄の寄与を上回ること（図4.5.9）を示した。さらに、黒色酸化鉄の大気および雪氷面における加熱効果の全球評価を行い、他の光吸収性エアロゾル（BC、ブラウンカーボン）に対して、無視できない加熱効果を持つことを明らかにした（全球平均では 0.021 W m^{-2} ）。特にアジア域においては、 0.22 W m^{-2} と推定され、世界的にも注目されているブラウンカーボンと同程度、もしくはそれ以上の大気・雪氷面加熱効果を持つと推定された。この結果は、今後の温暖化や水循環・大気循環に関わる気候研究において、人為起源黒色酸化鉄を考慮する必要性を示している。

これらの結果は、大気から海洋への鉄供給源として、自然起源鉄の寄与が支配的だと考えられてきた

従来の知見を刷新するものであり、従来の気候変動研究ではそれほど注目されてこなかった人為起源鉄が、短い時間スケール（数時間～数週間程度）での大気加熱効果と、より長い時間スケール（数ヵ月～数千年程度）での海洋生態系を介した大気冷却効果の両面で、地球の気候に対して重要な役割を果たしている可能性を示している（図4.5.10）。

これらの結果を査読付国際誌Nature Communicationsに投稿し、受理・出版した[Matsui et al, 2018b]。

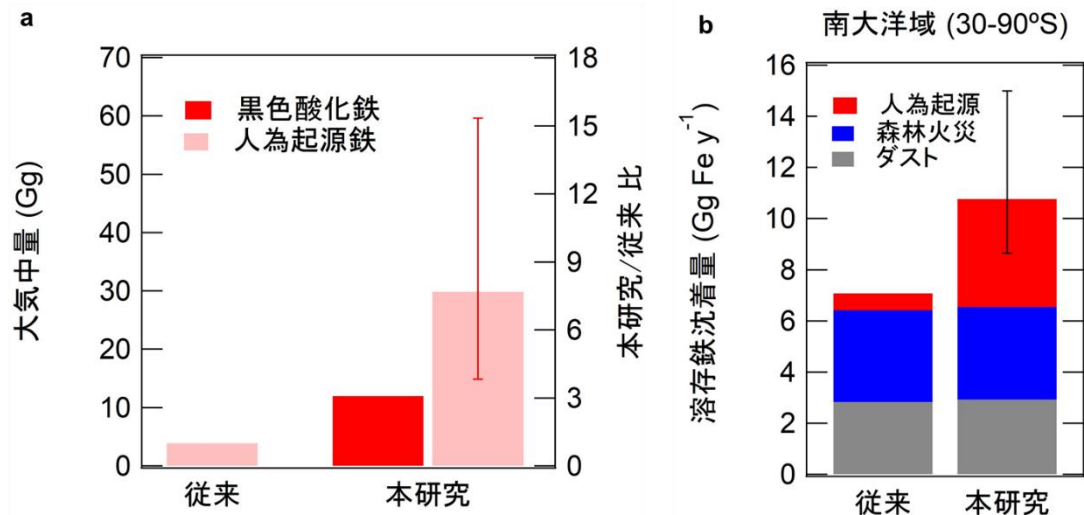


図4.5.8 人為起源鉄の大気中量と南大洋域への沈着量：

aは、黒色酸化鉄と人為起源鉄の大気中量について、従来の排出量データを使用した見積りと本研究での見積りを示している。bは、溶存鉄の南大洋域への沈着量に対する各起源の寄与を示している。エラーバーは、黒色酸化鉄の大気中量から人為起源鉄の大気中量を推定する際の誤差幅を示している。

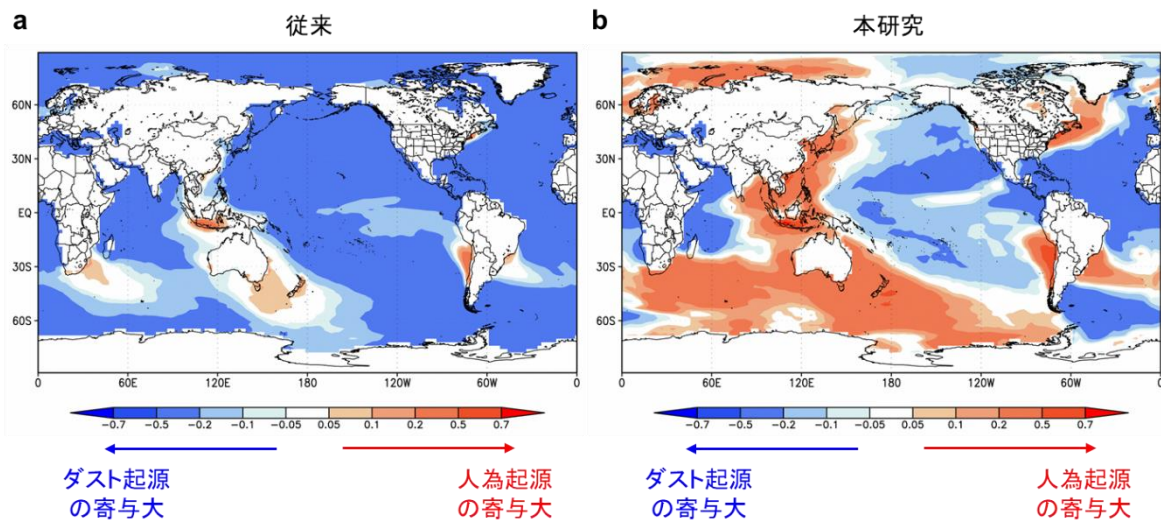


図4.5.9 産業革命前から現在に至る溶存鉄の沈着量の増大に対する人為起源鉄と鉱物性ダスト起源の鉄の相対的な重要性：

赤色は人為起源鉄の方が鉱物性ダスト起源の鉄よりも寄与が大きい海域、青色は鉱物性ダスト起源の鉄の方が人為起源鉄よりも寄与が大きい海域を示している。

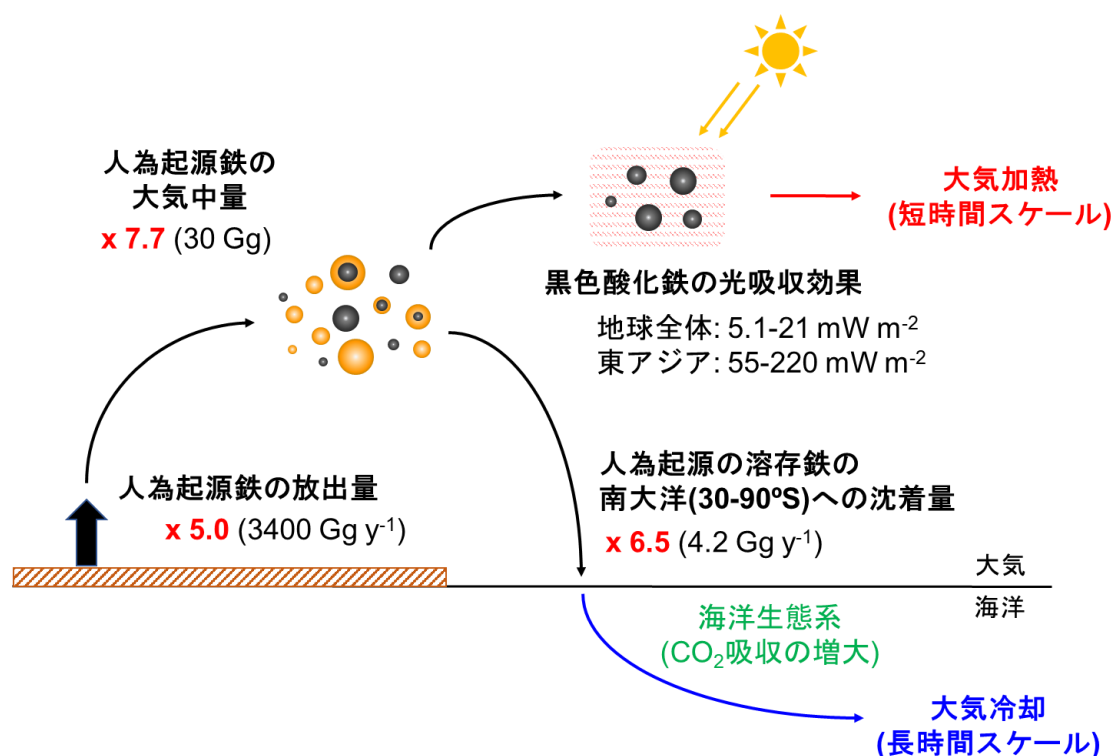


図4.5.10 人為起源鉄の大気中量・直接効果・海洋への沈着量を示した概略説明図：

黒で示した値は、本研究で見積もられた鉄の排出量 (Gg y⁻¹) ・大気中量 (Gg) 、黒色酸化鉄の加熱効果 (mW m⁻²) 、南大洋への溶存鉄の沈着量 (Gg y⁻¹) を示している。赤で示した値は、従来の排出量データを使用した見積りに対する本研究の見積りの増大比を示している。

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

2次元ビン法を用いた全球エアロゾルモデルを初めて開発し、これまで多くの仮定が用いられてきたBCの変質過程とそれに伴う粒径・混合状態の変化、光吸収効果や除去過程の変化について、より理論に基づいて計算することが可能となった。それによって、BCの北極域への輸送過程などの推定精度が大きく向上した。

BCの直接効果の推定において、これまで注目されてこなかったエアロゾルの放出粒径の扱い方が極めて重要な役割を果たすことを初めて明らかにした。この結果は、個々のBC粒子の混合状態・被覆量の違いを細かく区別することによって初めて計算されるため、一般的なエアロゾルモデルでは計算することができない。また、将来のBCの削減対策や温暖化対策の評価においても、個々のBC粒子の粒径と被覆量が気候に及ぼす影響を詳細に考慮した数値シミュレーションが必要になることを示した。

また、北極BCの発生源寄与を地表濃度や放射効果など様々な要素について推定し、それらの違いを明らかにした。それによって、地表付近のBC濃度だけでなくその鉛直構造をより精度よく理解すること、また多点BC観測を継続的に行い、それらの変動要因を明らかにしていくことが今後重要なことを明らかにした。

人為起源の黒色酸化鉄を考慮した数値シミュレーションとその気候影響評価を世界で初めて行った。今後の気候変動予測・政策において、人為起源鉄の発生源や排出量、大気中の濃度の現状と将来変化を理解・考慮することが重要であることを示した。将来的に人為起源の鉄が減少傾向にあるとすると、都市域では大気質の改善や大気の冷却（加熱効果の減少）に寄与すると考えられる一方、全球・長期的な視点では外洋域の海洋の一次生産とそれによる二酸化炭素の吸収を弱体化させ、大気二酸化炭素の増大と大気加熱に寄与する可能性が示唆される。

(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>

IPCCやAMAP (Arctic Monitoring and Assessment Programme) の報告書において、引用などが見込まれる。

6. 国際共同研究等の状況

米国コーネル大学のMahowald教授やHamilton研究員と全球気候モデルCAMを用いた共同研究を行っており、BCの直接効果の推定や人為起源鉄の溶存鉄沈着量に対する寄与の推定などにおいて、多くの助言をいただきながら研究を進めてきた。

また、CAM5-chem/ATRAS2モデルは、全球エアロゾルモデルの相互比較プロジェクトAeroComへの参加も始めており、多くの共同研究が継続的に進められている。

7. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<論文 (査読あり) >

- 1) G. S. Fanourgakis, M. Kanakidou, A. Nenes, S. E. Bauer, T. Bergman, K. S. Carslaw, A. Grini, D. S. Hamilton, J. S. Johnson, V. A. Karydis, A. Kirkevåg, J. K. Kodros, U. Lohmann, G. Luo, R. Makkonen, H. Matsui, D. Neubauer, J. R. Pierce, J. Schmale, P. Stier, K. Tsigaridis, T. van Noije, H. Wang, D. Watson-Parris, D. M. Westervelt, Y. Yang, M. Yoshioka, N. Daskalakis, S. Decesari, M. Gysel Beer, N. Kalivitis, X. Liu, N. M. Mahowald, S. Myriokefalitakis, R. Schrödner, M. Sfakianaki, A. P. Tsimpidi, M. Wu, and F. Yu: Atmos. Chem. Phys., 19, 8591-8617 (2019), Evaluation of global simulations of aerosol particle number and cloud condensation nuclei, and implications for cloud droplet formation.
- 2) 茂木信宏、森樹大、松井仁志、大畑祥：大気化学研究、41、041A03 (2019)、降水雲の過飽和度を観測から制約する：エアロゾル空間分布の予測のために
- 3) N. Moteki, T. Mori, H. Matsui, and S. Ohata: npj Clim. Atmos. Sci., 2, 6 (2019), Observational constraint of in-cloud supersaturation for simulations of aerosol rainout in atmospheric models.
- 4) C. Dong, H. Matsui, S. Spak, A. Kalafut-Pettibone, C. Stanier: Aerosol Air Qual. Res., 19, 204-220 (2019), Impacts of new particle formation on short-term meteorology and air quality as determined by the NPF-explicit WRF-chem in the Midwestern United States.
- 5) H. Matsui, D. S. Hamilton, and N. M. Mahowald: Nat. Commun. 9, 3446 (2018), Black carbon radiative effects highly sensitive to emitted particle size when resolving mixing-state diversity.
- 6) R. C. Sullivan, P. Crippa, H. Matsui, L. R. Leung, C. Zhao, A. Thota, and S. C. Pryor: npj Clim. Atmos. Sci., 1, 9 (2018), New particle formation leads to cloud dimming.
- 7) M. Wu, X. Liu, L. Zhang, C. Wu, Z. Lu, P.-L. Ma, H. Wang, S. Tilmes, N. Mahowald, H. Matsui, and R. C. Easter: J. Adv. Model. Earth Syst., 10, 1150-1171 (2018), Impacts of aerosol dry deposition on black carbon spatial distributions and radiative effects in the Community Atmosphere Model CAM5.

- 8) H. Matsui, N. M. Mahowald, N. Moteki, D. S. Hamilton, S. Ohata, A. Yoshida, M. Koike, R. A. Scanza, and M. G. Flanner: *Nat. Commun.*, 9, 1593 (2018), Anthropogenic combustion iron as a complex climate forcer.
- 9) Y. Kanaya, H. Matsui, F. Taketani, X. Pan, Y. Komazaki, Z. Wang, L. Chang, D. Kang, M. Choi, S.-Y. Kim, C.-H. Kang, A. Takami, H. Tanimoto, K. Ikeda, and K. Yamaji: *Aerosol Air Qual. Res.*, 17, 3091-3105 (2017), Observed and modeled mass concentrations of organic aerosols and PM2.5 at three remote sites around the East China Sea: Roles of chemical aging.
- 10) H. Matsui, and N. Mahowald: *J. Adv. Model. Earth Syst.*, 9, 1887-1920 (2017), Development of a global aerosol model using a two-dimensional sectional method: 2. Evaluation and sensitivity simulations.
- 11) H. Matsui: *J. Adv. Model. Earth Syst.*, 9, 1921-1947 (2017), Development of a global aerosol model using a two-dimensional sectional method: 1. Model design.

<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）

- 97) 森樹大、大畑祥、大島長、松井仁志、茂木信宏、近藤豊、小池真：エアロゾル・雲・降水の相互作用に関する研究集会（2020）
BarrowにおけるBCの湿性沈着に関する研究
- 98) K. D. Lamb, H. Matsui, D. Fahey, J. Katich, A. Perring, R. Spackman, M. Thatcher, B. Weinzierl, and J. P. Schwarz: ATOM Science Team Meeting, 2019
Global-scale constraints on light-absorbing anthropogenic combustion iron oxide aerosols.
- 99) 松井仁志：グリーンランド南東ドーム（SE-Dome）アイスコアに関する研究集会（2019）
ブラックカーボンの発生源寄与とエアロゾルの間接効果
- 100) 森樹大、近藤豊、P. R. Sinha, Y. Zhao、小池真、B. Andrews、松井仁志、茂木信宏、大畑祥：第24回大気化学討論会（2019）
BarrowにおけるBC粒子の湿性沈着フラックスの季節変動
- 101) 當房豊、植竹淳、松井仁志、宇治靖、岩本洋子、森樹大、三浦和彦、三隅良平：日本気象学会2019年度秋季大会（2019）
黄砂飛来時における東京スカイツリーでの氷晶核の観測：2017年5月の事例
- 102) M. Burgos, G. Titos, E. Andrews, H. Bian, V. Buchard, G. Curci, A. Kirkevåg, H. Matsui, C. Randles, K. Zhang, G. Myhre, T. van Noije, A. Benedetti, and P. Zieger: Aerocom meeting 2019, 2019
Effect of water uptake on aerosol light scattering: comparison of a new in-situ benchmark dataset to nine global climate models.
- 103) M. Burgos, G. Titos, E. Andrews, H. Bian, V. Buchard, G. Curci, A. Kirkevåg, H. Matsui, C. Randles, K. Zhang, and P. Zieger: European Meteorological Society Annual Meeting 2019, 2019
Assessment on the differences between climate models and in-situ measurements of aerosol optical hygroscopic growth.
- 104) M. Burgos, G. Titos, E. Andrews, H. Bian, V. Buchard, G. Curci, A. Kirkevåg, H. Matsui, C. Randles, K. Zhang, and P. Zieger: 2019 ARM/ASR PI meeting, 2019
Evaluation and improvement of the parameterization of aerosol hygroscopicity in global climate models using in-situ surface measurements.

- 105) 茂木信宏、小池真、大畑祥、近藤豊、竹川暢之、足立光司、大島長、松井仁志、北和之、森樹大、吉田淳：日本地球惑星科学連合2019年大会（2019）
航空機観測から解明された対流圏中の黒色炭素および酸化鉄エアロゾルの 基本的動態
- 106) 松井仁志：2018 年北大低温科学研究所 共同研究集会「現在気候下におけるグリーンランド氷床質量変動メカニズム解明」（2018）
北極域のブラックカーボンの数値シミュレーション
- 107) K. D. Lamb, J. Katich, H. Matsui, A. Perring, R. Spackman, M. Thatcher, B. Weinzierl, and J. P. Schwarz: 2018 ATom Science Team Meeting, 2018
Expanding the role of the SP2: in situ measurements of atmospheric iron oxide concentrations.
- 108) 松井仁志：大気雪氷物質交換研究会（2018）
北極域のブラックカーボンの数値シミュレーション
- 109) L. Lee, D. Watson-Parris, J. Muelmenstaedt, A. Gettelman, P. Stier, K. Carslaw, D. Olivie, S. Bauer, K. Tsigaridis, M. Schulz, H. Matsui, T. Takemura, J. Quass, Y. Lee: AeroCom/AeroSat 2018, 2018
The AeroCom multi-model perturbed physics ensemble (MMPPE).
- 110) H. Matsui, D. Hamilton, N. Mahowald: AeroCom/AeroSat 2018, 2018
Black carbon radiative effects highly sensitive to emitted particle size when resolving mixing-state diversity.
- 111) H. Matsui, D. Hamilton, N. Mahowald: 2018 iCACGP/IGAC Science Conference, 2018
Impact of particle size and mixing state diversity on estimates of black carbon mitigation.
- 112) C. Dong, R. Bullard, A. Singh, S. Spak, H. Matsui, C. Stanier: 10th International Aerosol Conference, 2018
Physical and Model-Based Characterization of NPF Events and Sensitivity of CN and CCN to Changes in Anthropogenic Emissions in the Midwestern United States.
- 113) 松井仁志, D. S. Hamilton, N. Mahowald: 日本地球惑星科学連合2018年大会（2018）
混合状態の多様性によるブラックカーボンの放射効果の不確定性
- 114) H. Matsui: Frontiers of Atmospheric Aerosol studies: Toward the Understanding of the Health and Climatic Effects, Nagoya, Japan, 2018
Development of a global aerosol model using a two-dimensional sectional method.
- 115) R. C. Sullivan, P. Crippa, H. Matsui, R. Leung, C. Zhao, A. Thota, and S. C. Pryor: American Meteorological Society 98th Annual Meeting, 2018
Modeling the impact of new particle formation on regional cloud radiative forcing.
- 116) 松井仁志：日本気象学会2017年度春季大会（2017）
粒径分布と混合状態を解像した二次元ビン法を用いた全球エアロゾルモデルの開発
- 117) C. Dong, H. Matsui, S. N. Spak, and C. Stanier: 36th AAAR annual conference (2017)
Impacts of new particle formation on short-term Midwestern meteorology and air quality as determined by the NPF-explicit WRF-chem.

(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

- 1) サイエンスポータル（平成31年3月6日、「雨雲が水分をどれくらい含みすぎて雨を降らせているのかが、初めてわかった」）。
- 2) プレスリリース（平成31年2月8日、「全球エアロゾル濃度を制御する「雨雲の過飽和度」の観測に成功」）。
- 3) 日本経済新聞（平成30年10月26日、29頁、「微粒子と温暖化の謎をとく」）。
- 4) 日経産業新聞（平成30年9月3日、「温暖化を高精度予測 名大、すすの成分など分析」）。
- 5) 日本経済新聞電子版（平成30年8月30日、「温暖化の予測精度、すすの成分考慮し向上 名古屋大」）。
- 6) プレスリリース（平成30年8月30日、「大気中のすす粒子による地球温暖化効果：個々の粒子の大きさや被覆量の違いを考慮する重要性を解明」）。
- 7) 朝日新聞（平成30年5月20日、5頁、「先端人 気候変動 微粒子で解く」）。
- 8) 日本経済新聞（平成30年5月6日、30頁、「人間が排出する鉄微粒子 温暖化促進も抑制も 名大など」）。
- 9) 財経新聞（平成30年4月30日、「文明が生み出す鉄エアロゾルが気候に影響、温暖化にも関与か 名大などの研究」）。
- 10) 中日新聞（平成30年4月24日、26頁、「車排出の鉄粒子 温暖化加速か」）。
- 11) 成果の記者発表（平成30年4月23日、於名古屋大学、「人間活動によって放出される鉄エアロゾルが多面的に気候へ影響を及ぼすことを発見」）。

(6) その他

特に記載すべき事項はない。

8. 引用文献

- 1) T. C. Bond et al.: J. Geophys. Res. Atmos., 118, 5380-5552 (2013), Bounding the role of black carbon in the climate system: A scientific assessment.
- 2) O. Boucher et al.: Clouds and aerosols, in Climate Change 2013: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change, edited by T. F. Stocker et al., Cambridge Univ. Press, Cambridge, U.K.
- 3) H. Matsui et al.: J. Geophys. Res., 116, D05202 (2011), Seasonal variation of the transport of black carbon aerosol from the Asian continent to the Arctic during the ARCTAS aircraft campaign.
- 4) H. Matsui, M. Koike, Y. Kondo, N. Moteki, J. D. Fast, and R. A. Zaveri: J. Geophys. Res. Atmos., 118, 2304-2326 (2013), Development and validation of a black carbon mixing state resolved three-dimensional model: Aging processes and radiative impact.
- 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) H. Matsui: J. Adv. Model. Earth Syst., 9, 1921-1947 (2017), Development of a global aerosol model using a two-dimensional sectional method: 1. Model design.
- 7) H. Matsui, and N. Mahowald: J. Adv. Model. Earth Syst., 9, 1887-1920 (2017), Development of a global aerosol model using a two-dimensional sectional method: 2. Evaluation and sensitivity simulations.
- 8) H. Matsui, D. S. Hamilton, and N. M. Mahowald: Nat. Commun. 9, 3446 (2018a), Black carbon radiative effects highly sensitive to emitted particle size when resolving mixing-state

diversity.

- 9) H. Matsui, N. M. Mahowald, N. Moteki, D. S. Hamilton, S. Ohata, A. Yoshida, M. Koike, R. A. Scanza, and M. G. Flanner: *Nat. Commun.*, 9, 1593 (2018b), Anthropogenic combustion iron as a complex climate forcer.
- 10) G. Myhre et al.: Anthropogenic and natural radiative forcing, in *Climate Change 2013: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, edited by T. F. Stocker et al., Cambridge Univ. Press, Cambridge, U.K.

III. 英文Abstract

Black Carbon and Dust Particles in the Arctic: Behavior in Association with Global Radiative Forcing

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: +81-3-5841-4666
 E-mail: koike@eps.s.u-tokyo.ac.jp

Cooperated by: National Institute for Environmental Studies, Meteorological Research Institute, National Institute of Polar Research, Nagoya University

[Abstract]

Key Words: black carbon, iron oxide, Arctic, SLCF

Black carbon (BC) particles, one of the Short-Lived Climate Forcers (SLCFs), have been intensively studied in the Arctic because reductions in their emissions can reduce positive radiative forcing on a much shorter timescale than reductions in CO₂ emissions can. In this project, we used COSMOS, a high-accuracy instrument developed in Japan, to measure BC concentrations in the atmosphere at two Arctic sites. We confirmed the accuracy of the Arctic COSMOS measurements by comparing them with measurements made with a single-particle soot photometer (SP2). We also developed a method of measuring BC mass concentrations in snow with an SP2, and then measured them in snowpack in various Arctic regions. Our results show that previous studies using an Integrating Sphere/Integrating Sandwich spectrophotometer have greatly overestimated BC mass concentrations in the Arctic snowpack. We also developed a new global aerosol model that reproduced BC observations in the Arctic better than earlier models. Then we used the model to evaluate contributions of individual BC emission sources to BC radiative forcing in the Arctic.

In this project, we also introduced a new SP2 measurement technique to study anthropogenic iron oxide (FeOx). Data from five ground-based and three aircraft-based observation campaigns in Asia and Arctic regions show that most of the detected FeOx particles were of anthropogenic origin. FeOx to BC mass ratios of 20% to 80% suggest that anthropogenic FeOx is ubiquitous in the troposphere. The data also indicate that automobiles are likely more important than iron mills as emission sources of FeOx. Based on the observation of polluted air from China, the global emissions of anthropogenic FeOx were estimated. We next estimated global emissions of anthropogenic FeOx based on our observations of polluted air from China. Then, by using these measurements to constrain numerical model calculations, we estimated global radiative forcing by FeOx for the first time. Furthermore, we showed that deposition of anthropogenic FeOx on ocean's surface may be an important source of iron to the ocean, where it may increase the ocean's ability to absorb CO₂. Consequently, anthropogenic FeOx may affect climate in two ways: a short-term climate effect by increasing positive radiative forcing, and a long-term climate effect by increasing the supply of iron to the ocean.

Finally, by analyzing an ice core from Greenland, we obtained BC data with high

accuracy and high time resolution covering the last 350 years. BC particle size distributions over this time period were also obtained for the first time. Comparisons of numerical model calculations with these ice core BC data showed that CMIP5 and CMIP6 emissions inventories may not account for long-term BC variation.

.