

課題名	2A-1101 地球温暖化対策としてのブラックカーボン削減の有効性の評価
課題代表者名	近藤 豊（東京大学大学院理学系研究科地球惑星科学専攻）
研究実施期間	平成23～25年度
累計予算額	192,136千円（うち25年度59,118千円） 予算額は、間接経費を含む。
本研究のキーワード	エアロゾル、ブラックカーボン、放射強制力、大気大循環モデル、気候変動予測

研究体制

- (1) BC観測による領域モデルの検証（東京大学大学院理学系研究科）
- (2) BCの電子顕微鏡観測と全球エアロゾルモデルによるBC削減の有効性評価（国土交通省気象庁気象研究所）
- (3) 気候モデルによるBC全球気候影響評価（東京大学大気海洋研究所）
- (4) 雲凝結核数濃度に及ぼすBCの寄与（（独）国立環境研究所地域環境研究センター）
- (5) BC放射影響の観測（千葉大学環境リモートセンシング研究センター）

研究概要

1. はじめに（研究背景等）

IPCC第4次報告書において、ブラックカーボン（BC）微粒子（エアロゾル）はCO₂の約1/3の正の放射強制力を持つと推定されている。2009年のCOP-15のコペンハーゲンの合意に従い21世紀中の全球平均気温の温度上昇を2°C以下に抑えるためには、放射強制力を2.5 W/m²以下に抑える必要があり、そのためにはCO₂の排出量を2050年までに50%近く削減する必要があることが炭素循環モデルと放射収支の計算から見積もられている。さらに、大気汚染対策の結果として、負の放射強制力をもつエアロゾル（硫酸塩、硝酸塩、有機物等）の濃度が低下し、エアロゾルの日傘効果の減少により温暖化が加速する。このため大きな正の放射強制力を持ち、大気中で寿命が2週間程度と短いBCを削減することが、有効な対策の可能性として注目されている。

しかしながら BC削減の効果には大きな不確定性があることが、国際的なBC研究の専門家からなるグループ（近藤はLead Author）によるBCの気候影響研究のアセスメント（Bounding the role of black carbon aerosol in the climate system: A scientific assessment）により明らかになりつつある。これによれば、BCの正の放射強制力（太陽光の吸収による加熱効果）の大きさは、BCの質量濃度だけでは決まらず、他のエアロゾル成分と同一の粒子として内部混合しているかどうか（混合状態）など、エアロゾルの物理化学特性に依存する。また大気中のBCの存在量は、大気中のBCの除去速度に依存し、除去速度は非水溶性のBCと水溶性のエアロゾル成分との内部混合の程度に依存する。さらに上記のBCアセスメントにより、BCが光吸収することによる直接効果とともに、BCが雲凝結核となることにより雲の反射率（アルベド）や寿命（雲量）に変化を与える間接効果も考える必要があることが指摘されている。人為的なBCの放出は大気中のエアロゾル数濃度を増加させる主要な要素であるため、BCの削減はエアロゾル数濃度の減少を通じて、間接効果による地球の冷却効果を減速させる可能性がある。

このようにBC削減は温暖化対策として有効な対策である可能性が高いものの、その相反する効果（正の直接放射効果の減少と、負の間接効果の減少）の正味の効果を精度良く推定することが極めて重要である。また各種発生源の排出量削減の影響評価においては、BCとともに排出量が削減される他のエアロゾル成分との相乗効果も評価することが、政策立案の上では重要である。しかしながら、従来のIPCCの評価などで用いられてきた全球エアロゾル気候数値モデルでは、BCをはじめとするエアロゾルをきわめて簡略的にしか取り扱ってきておらず、その推定には大きな不確定性があった。上記のBCの気候影響アセスメントでも述べられているように、現在の世界の研究状況は、大気中のBCおよび他のエアロゾルの数濃度や粒径分布あるいは混合状態を精度良く測定しその実態を把握することが必要であるとともに、数値モデルにおいてもそれらのエアロゾルの物理化学状態・特性とその変動メカニズムを物理化学過程に基づき精密に計算する必要があることを強く示している。

アジア域は人為起源BCの最大の発生源である。アジアでのBC削減はアジアの放射強制力の抑制とともに、グローバルな温暖化抑制にも貢献できる可能性がある。アジアの領域的な気候変動は社会的・経済的な影響

が極めて大きい。実際に国連環境計画（UNEP）のABC（Atmospheric Brown Cloud）プロジェクトでは、アジア域の国際的なBC観測と、その放射・気候・水循環への影響の解明に向けて活動を開始している。我々はこれまでABCに貢献するとともに、BCをはじめとするエアロゾルの観測と数値モデル研究で世界をリードしてきた。その経験と知見の集積を基盤に、BC削減効果を科学的に評価するという本研究計画の提案に至った。アジアのBCの動態把握BCとその削減効果の推定に関わる研究は、日本が果たすべき国際貢献であり、またそのような基礎的な科学研究は今後の政策立案のために必ず必要となる知見である。

2. 研究開発目的

本研究の目的は、地球温暖化対策としてのBCエアロゾル削減の有効性を評価することである。すなわち、各種の排出源から排出されるBCや他の人為起源物質の排出量を削減した場合、アジアやグローバルスケールにおいて、放射強制力、気温、降水量がどのように変化するのか、直接・間接効果を含めて総合的に評価することである。各種の排出源シナリオに基づき、10年から100年スケールでの削減効果を評価する。さらに、健康や農業生産など各種の影響評価に資するように、アジア域でのモデル計算結果（地表気温、日射量、降水量の月平均値など）を一般に公開する。

このために、以下の研究を実施する。

(1) 革新的測定技術によりBCや他のエアロゾル成分の数・質量濃度、粒径、混合状態など、これまで観測されてこなかった物理量を含めて地上・航空機観測を実施し、その実態を把握するとともに、数値モデル計算の検証データを整備する。

(2) エアロゾルの濃度や混合状態を決める各種のプロセスを物理化学法則に基づいて表現した詳細な領域数値モデルを観測に基づいて改良・検証し、短期的（10年程度）なアジアにおけるBCの放射強制力や、その削減効果（気温や降水量の変化など）の定量的評価を行う。また詳細な計算に基づいて、全球モデル用のパラメタリゼーションを開発する。

(3) 上記パラメタリゼーションを取り入れた全球モデルにより、高い信頼性で長期（100年程度）にわたるBC削減効果を予測する。

3. 研究開発の方法

(1) BC観測による領域モデルの検証

1) 観測とデータ解析

沖縄県の辺戸岬、長崎県の福江島、長野県の八方、中国の北京・大連、台湾の鹿林（ルーリン）において我々が開発したBC熱抽出・光吸収によるBC質量濃度の測定装置（Continuous Soot Monitoring System, COSMOS）を用いて長期連続観測を行ってきた。各観測点におけるBCの季節変動に関するデータ解析を行った。

2009年の春季に行ったA-FORCE-2009航空機観測の結果を用いて、BCの微物理特性を明らかにするデータ解析を行った。また、2013年の冬季と夏季に東シナ海・黄海上空および西太平洋域において、BCの微物理特性（質量濃度・混合状態・粒径分布）、エアロゾルの粒径分布・数濃度、雲粒数、COの混合比を高精度で測定する航空機観測を実施した。冬季は合計13フライト、夏季は合計15フライト行った。

この他、雨水中のBC濃度と粒径分布の測定技術の開発・長期観測、エアロゾルの数濃度とエアロゾル-雲相互作用に関するデータ解析、エアロゾルの数濃度・粒径分布測定装置の開発・改良などを行った。

2) 領域モデルの開発と検証

エアロゾルの粒径とBCの混合状態を表現した2次元ビンモデルを開発し、数値モデルにおけるBCの混合状態の表現を改善した。このモデルでは、エアロゾルの微物理過程およびそれに伴う粒径・混合状態の変化が詳細に計算される。このBCの混合状態を表現したモデルを領域3次元モデルWRF-chemに導入し、A-FORCE-2009期間の計算を行い、SP2（レーザー誘起白熱法に基づく単一BC粒子測定装置、Single Particle Soot Photometer, SP2）によって観測されたBCの混合状態を用いて検証を行った。モデル計算結果を用い、BCの混合状態の表現に伴う大気加熱率や放射強制力に対する感度など、混合状態の光学・放射特性に対する影響を評価した。

この他、BCの排出量および発生源寄与の推定、タグ付き3次元領域モデルの開発と検証、BCの空間分布と季節変動およびその発生源の解明、エアロゾルの数濃度を詳細に計算する数値モデル開発と検証、有機エアロゾルモデルの開発と検証、東アジア域におけるエアロゾル-雲相互作用に関する数値計算、放射伝達モデルの開発などを行った。

3) 全球・領域モデルの比較と放射強制力の推定

本課題ではIPCCでも用いられている2つの全球モデル(MRI-MASINGAR、MIROC-SPRINTARS)と詳細な微物理・化学特性を計算できる領域モデル(WRF-chem)を用いて研究を進めてきた。課題のまとめとして、3つの全球・領域モデルの比較を行い、モデル間のBC濃度や放射強制力の違いと、考えられる要因について調べた。

(2) BCの電子顕微鏡観測と全体エアロゾルモデルによるBC削減の有効性評価

1) BCの電子顕微鏡観測

電子顕微鏡を使って個別粒子の分析を行うことで、他の分析機器では得られないBC粒子の物理・化学特性を詳細に得る技術を開発する。具体的には、a) BC粒子の組成や形態、面積等価径などを半自動で大量に分析する手法、b) 内部混合したBC粒子を詳しく分析する方法、c) BC粒子の3次元形態を測定する電子線トモグラフィ法、などを新たに開発する。また、新規電子顕微鏡自動多点分析装置を使った分析結果のデータベースソフトを開発し、逐次データを蓄積する。

2) BCを含むエアロゾル素過程モデル開発

エアロゾルの化学組成、粒径分布、混合状態の時間発展を低計算機負荷で解く2つのエアロゾル動力学サブモデルを開発し、領域化学輸送モデルに実装し、東アジアにおけるエアロゾル観測値と比較して、化学組成、粒径分布、混合状態の再現性を検証する。また、2009年春に実施されたA-FORCE(Aerosol Radiative Forcing in East Asia)航空機観測と、エアロゾルの湿性沈着過程について独自の改良を行ったモデルを組み合わせ、BCの輸送過程と除去過程について調べる。BCの混合状態の変化を詳細に扱うボックスモデルMADRID-BC(Model of Aerosol Dynamics, Reaction, Ionization, and Dissolution - Black Carbon)を用いて、新たなパラメタリゼーションを開発する。このパラメタリゼーションを実装した全球エアロゾルモデルを用いて、全球規模でのBCの直接放射強制力を推定する。

3) 全球エアロゾルモデルによるBC削減の有効性評価

全球でのBC削減の有効性を評価する気候実験を行うため、全球エアロゾルモデルMASINGARを改良し、大気中のBC量を変化させた時の気候モデルMRI-CGCM3¹⁾による応答を調査する感度実験を行った。実験では、BCの影響の感度特性を調べるため、現在気候状態において、BC放出量を2005年で一定とした場合を基準とする。黒色炭素(BC)および有機炭素と硫酸塩の前駆気体(SO₂)の大気への排出量はIPCC第5次報告書におけるシミュレーションシナリオ用の排出源データベースRCP²⁾に基づいて与える。大気中のBCを完全に削減したと仮定した実験、大気中のBCを半分に削減したと仮定した場合の実験に加え、大気中BCを3倍とした場合の感度実験も行い、気候応答を調査した。

(3) 気候モデルによるBC全球気候影響評価

エアロゾル輸送モデルSPRINTARSは、大気大循環モデルMIROCや非静力正二十面体大気モデルNICAMと結合している。本課題では、これらのMIROC+SPRINTARSとNICAM+SPRINTARSを高度化し、100年程度の期間におけるBC削減効果の評価を目指す。H23年度は、SPRINTARSのBCに関するモジュールの改良として、Oshima and Koike(2013)³⁾によって開発されたBCの大気変質過程に関する全球モデル用のパラメタリゼーションの式をMIROC+SPRINTARSに導入して得られた新しいモデル結果の解析を行った⁴⁾。H24年度は、MIROC+SPRINTARSの継続した改良と、MIROC+SPRINTARSに局所カルマンスムーザー法を組み合わせた逆問題解析システムを利用して、エアロゾル発生源の推定についての研究を進めた⁵⁾。さらにNICAM+SPRINTARS+CHASERモデルの開発作業を行い、エアロゾルの検証を行った。H25年度は、大気海洋結合モデルMIROC-CGCMを用いて、BCの有無における気温および降水を含めたその他の物理量の応答を調べ、BC削減効果の評価を行った。比較のために、気象研究所の大気海洋結合モデルであるMRI-CGCM3の結果も用いた。また、H24年度に引き続き、NICAM+SPRINTARS+CHASERのモデル改良を行い、対流圏オゾンのモデル再現性を調べた。並行して、観測データのみから放射強制力を評価するために、衛星搭載ライダーCALIPSO/CALIOPとTerraおよびAqua衛星搭載イメージャーMODISのデータを用いて、Oikawa et al. (2013)の方法で全球放射強制力を推定した。

(4) 雲凝結核数濃度に及ぼすBCの寄与

エアロゾルの放出、生成が特に多い東アジア地域において、その実態を把握するため、地上観測を行った。2012年1月から3月にかけて、沖縄県辺戸岬(国立環境研究所、辺戸岬大気・エアロゾル観測ステーション)、2013年2月から3月にかけて、長崎県福江島(福江島大気環境観測施設)において、BCを含む大気エアロゾルを観測した。使用した装置は、エアロゾル質量分析計(Q-AMS(辺戸岬)、ACSM(福江島)、いずれもエアロダイン社)、東大近藤研で開発されたBCを自動連続観測するCOSMOS(カノマックス社)、および本推進費で新たに導入したワイドレンジ粒子スペクトロメータ(WPS、MSP社)である。大気エアロゾル以外にも、福江観測施設では

SO₂計 (Model 43i、日本サーモ社)によるSO₂濃度の測定を行った。

(5) BC放射影響の観測

1) 地上観測によるエアロゾルの光学パラメータの推定と長期データの解析

スカイラジオメータは、天空の輝度分布を計測し、その分布の特徴からエアロゾルの性質を推定するものであり、NASAのAERONETで運用しているサンホトメータと類似のものである。観測された天空輝度分布データを解析するには、「Skyrad.pack」を使用する。「Skyrad.pack」は、計測された天空輝度分布を散乱角度分布(散乱関数又は位相関数)にし、これから逆問題を解くことで、カラム平均エアロゾルの複素屈折率と光学的に等価な粒径分布を推定する数値計算プログラムパッケージである。現在まで様々な修正・改良が加えられ、雲除去プログラムもその一つである。また、前方散乱を用いた装置常数の推定プログラムも同一パッケージに組み込まれており、装置異常を早期に検出することが出来る。

本研究では、2013年6月までにSKYNETに蓄積された千葉、福江島、辺戸岬、宮古島サイトのデータを、Skyrad.pack(version 4.2)を用いて解析を行った。

2) エアロゾルによる放射影響の見積

上記エアロゾルの連続観測の結果をもとに、千葉、福江島、辺戸岬、宮古島サイトにおける月平均と季節平均の放射効果を推定する。観測のエアロゾルの光学的パラメータと放射伝達モデルを用いて、大気の上端(TOA)と下端(Surface)での放射力を推定した。大気の吸収力(ATM)は、TOAとSurfaceにおける放射力の差である。これにはスカイラジオメータによる推定値の日平均値を使った。また、地面反射率(全波長一定)及びオゾン量はそれぞれ0.1及び300DUに固定し、MaClatchey et al.(1972)⁶⁾の中緯度夏大気モデルのパラメータを使い放射伝達の計算を行った。

4. 結果及び考察

(1) BC観測による領域モデルの検証

1) 観測とデータ解析

辺戸・八方・ルーリンに設置されているCOSMOS測定器によって測定されたBC質量濃度を用いて、アジア大陸から西太平洋域に輸送されてくるBCの季節変動を明らかにした。いずれの観測点においても春季に濃度が最大となる季節変動を持つことが明らかとなった。

2009年のA-FORCE航空機観測で測定されたBCとCO濃度のデータを用いて、降水に伴うBCの除去率を支配する要因を調べ、東アジア域におけるBCの上方輸送過程を明らかにした。自由対流圏の空気塊中の降水に伴うBCの除去率は、主に空気塊が輸送中に経験する降水量によって支配されることを示した。

境界層内から自由対流圏に輸送される汚染空気塊に着目し、BCの粒径分布と降水による除去過程と対応を調べた結果、BCの輸送効率が小さくなる(降水による除去率が増大する)につれて、BCの粒径分布が小さくなっていくことを明らかにした。また、降水によって粒径の大きなBCから選択的に除去されることを示した。

2) 領域モデルの開発と検証

エアロゾルの粒径とBCの混合状態を表現した2次元ビンスキームを開発し、領域3次元気象化学モデルWRF-chemに導入した。このBCの混合状態を解像したWRF-chemモデルをA-FORCE-2009期間の計算に適用した。モデル計算は、観測されたBCの混合状態の特徴を再現することに成功した。このモデルを用いて、詳細な混合状態を考慮した場合としない場合のエアロゾルの光学・放射特性の違いを明らかにした。詳細な混合状態を考慮した場合に比べ、単一の混合状態を仮定した計算では大気境界層内の吸収係数や大気加熱率を30 - 40%程度過大推定すると見積もられた。これらの結果は、BCの気候影響や温暖化対策を考える際に混合状態の取り扱いが非常に重要になることを示しており、それらを実大気中のBCの混合状態を表現可能なモデルによって評価することが強く望まれる。

3) 全球・領域モデルの比較と放射強制力の推定

3つのモデルについてアジア域におけるBC濃度およびその放射強制力の比較を行ったところ、WRF-chemのBC放射強制力の効率(単位BC濃度あたりのBC放射強制力)が2つの全球モデルに比べて約2倍大きい結果が得られた。この要因としては、レンズ効果に伴うBCの光吸収効率の増大が1つの大きな要因と考えられる。また、この結果は、WRF-chemが全球モデルよりBCの表現が良く、BC放射強制力の効率の推定精度も高いと仮定した場合、その値を用いてBC放射強制力をスケールリングすると、BC放射強制力が約2倍増大することを示唆している。この仮定に基づく全球のBCの放射強制力は0.46 Wm⁻²と見積もられた。

(2) BCの電子顕微鏡観測と全球エアロゾルモデルによるBC削減の有効性評価

1) BCの電子顕微鏡観測

電子顕微鏡を用いた分析では、BCの放射強制力計算時に必要な混合状態の詳細な特性を様々な条件下

でこれまでにない精度で得るべく、以下の集中観測を行った。具体的なキャンペーンは、a)長野県中央アルプス駒ヶ岳山岳リモート観測サイトでの中長距離輸送BC粒子の混合状態、形態、粒径、などについての観測、b)東京で夏季におけるBCの混合状態の変化をサブ課題1と共同で行った観測、c)航空機を用いて東アジア域における越境汚染の集中観測(A-Force winter)、d)航空機を用いて東アジア域での比較的人為的影響の少ない大気でのBCを含むエアロゾルと雲の観測などである。

また、新規電子顕微鏡自動多点分析装置を使った分析結果のデータベースを開発し、現在逐次データを蓄積している。このデータベースは、粒子画像、粒子の形態(サイズ、アスペクト比、投射面積など)、元素組成データ、また、試料採取条件などを一括して管理、統計処理するシステムである。このデータベースは、将来的なデータのアーカイブや、画像、形態、サイズ、組成など多岐にわたるデータを一元管理して統計処理・考察をするのに有用である。これらのBC粒子の形態的特徴の数値化及びデータベース化は、BCの気候影響を正確に見積もり、また電子顕微鏡データをモデル計算に反映させるうえで必須である。

2) BCを含むエアロゾル素過程モデル開発

エアロゾルの化学組成、粒径分布、混合状態の時間発展を低計算機負荷で解く2つのエアロゾル動力学サブモデルMADMS(Modal Aerosol Dynamics model for multiple Modes and arbitrary Shapes)を開発・論文化し、領域対流圏エアロゾル化学輸送モデルRAQM2(Regional Air Quality Model2)に実装し、東アジアにおけるエアロゾル観測値と比較して、化学組成、粒径分布、混合状態の再現性を検証した2009年春に実施したA-FORCE航空機観測とモデル計算を組み合わせ、東アジア域におけるBCの輸送過程と除去過程を明らかにした。BCの微物理過程を詳細に扱うボックスモデルMADRID-BCを元に、新たなBCの微物理過程のパラメタリゼーションを開発した。開発したパラメタリゼーションを全球エアロゾルモデルMASINGAR(Model of Aerosol Species IN the Global Atmosphere)に導入し、全球規模でのBCの空間分布、および直接放射強制力を評価した。

3) 全球エアロゾルモデルによるBC削減の有効性評価

気象研究所の大気海洋結合モデルMRI-CGCM3による感度実験結果では、BCの地表気温への影響は地域によって大きく異なり、人為起源排出源に起因するBC濃度の高い東アジアや東欧等の北半球大陸上、および南北両極上ではBCによる気温への正の影響が見られ、中央アフリカではBCは逆に気温への負の影響が見られた。大気中のBCによる地表面温度の影響は、全球平均ではわずかに負の値となっている。また、対流圏上層ではBCの気温への影響は地表面気温よりも明瞭になり、熱帯対流圏上層においてBCは加熱の効果をもたらしている。また、北半球中緯度では平均的に対流圏全層においてBCは加熱の効果を及ぼしていることが示されている。この結果は、低緯度から中緯度にかけてBCの放射吸収による大気の加熱によって大気成層を安定化していること(準直接効果)、またこれによって全球規模での大気循環に影響を及ぼし、地域ごとに地表気温の応答が異なることを示唆している。

本研究の感度実験結果からは、大気中のBCエアロゾルによる大気の加熱効果による気温の変化は、地域および高度によって異なり、低緯度域の対流圏界面付近はBCの存在によって気温が上昇すること、地表面付近の気温は北半球中緯度域では気温が上がる場所があるが、全球平均ではわずかに冷却されている可能性がある。また、BCの存在は気温の鉛直構造に影響し、大気の大循環に影響を及ぼしていると考えられる。このことは、BCの削減による地球温暖化の緩和策は、平均的な地表面気温には影響は現れにくい、大気循環全体には影響を及ぼす可能性があることを示唆している。しかしながら、このようなBCの放射線の影響によるフィードバック効果は気候モデルによっても結果が異なるため、より多くのモデルによる数値実験の比較解析が必要となる。

(3) 気候モデルによるBC全球気候影響評価

H23年度は、異なるBCの大気変質過程パラメタリゼーションによって得たBCの質量分布を計算して、その差を検討したところ、BCの発生源付近では±10%以内、遠方では±50%程度であった。また、全BC質量に対する疎水性BC質量割合には方法間の顕著な差が見られ、新しい方法を用いることでこれまで指摘されてきたモデルの光吸収成分の過小評価を改善する方向に働くことがわかり、全球年平均での人為起源BCの放射強制力は、他の気候モデルで一般的に利用されている方法に比べて+0.25W/m²増えた。H24年度は、MIROC+SPRINTARSによるBCおよびSO₄²⁻濃度分布等の計算結果を、UNEP/ABCプロジェクトで行っているABC気候観測所での観測値と比較した。観測で得られている空間濃度勾配はモデルでも概ね再現されたが、モデル値が過小評価であったため、モデル改良を引き続き行う必要があることが明らかになった。また、排出インベントリの改良のために、MIROC+SPRINTARSを利用した逆問題解析システムから発生源の逆推定を行い、得られたエアロゾル排出インベントリを用いてエアロゾルの光学的厚さ(AOT)を計算したところ、逆推定された排出量を用いた方が衛星観測で得られているAOT値に近づくことが示された。並行して、Stretch-NICAM+SPRINTARSの開発を行い、全球と高空間分解能の領域計算を同時に行うことに成功した⁷⁾。この手法によって、通常、3段程度必要なネスティングを介さずに領域計算が可能になった。また、観測データとモデルを組み合わせたエアロゾルデータ同化手法を

開発したことで、より確からしいエアロゾル分布が得られるようになった。H25年度は、MIROC-CGCMを用いてBCの有無条件で計算を行い、気象研究所の大気海洋結合モデルとも比較を行ったところ、双方のモデルでBC発生源でのBCの存在による地表面付近の温度減少、および、上層での気温上昇の結果が得られた。また、降水が増加し、他の成分のエアロゾルの存在量が減少し、これが日射量の変化にも影響を与えた。これ以外にも様々なフィードバックが影響し、BCの存在に伴う気候・大気汚染影響の推定には大気海洋結合モデルが必須であることが示唆された。並行して、領域計算に対応するためにNICAMベースのモデルを発展させ、高分解能実験が可能なNICAM+SPRINTARS+CHASERを用いた領域スケールでの大気化学シミュレーションを行ったところ、関東地方での対流圏オゾンの観測結果を概ね表現することができた。最後に、CALIOPとMODISの観測データの組み合わせによる全エアロゾルの短波長エアロゾル直接放射強制力を見積もったところ、全天での全球年平均値は -0.78 W/m^2 (NASA成果物Version 2)および -2.02 W/m^2 (NASA成果物Version 3)となり、大きな差があることがわかった。

(4) 雲凝結核数濃度に及ぼすBCの寄与

WPSにより観測された、辺戸岬におけるエアロゾル個数濃度の粒径分布では、期間を通して、50 nmおよび200 nm付近にピークがみられた(図 1a)。このうち、200 nm付近のピークに着目して解析を行った。WPSの個数濃度の粒径分布を真空中の空力学的粒径に対する質量濃度に変換した結果、Q-AMSによる硫酸塩の粒径分布と同様に400 nm付近にピークがあった。このことからWPSによる200 nm付近のピークが、Q-AMSによる400 nm付近のピークに相当し、主要成分が硫酸塩やかなり酸化された有機物であることがわかった。したがって、辺戸岬において観測されたエアロゾルは親水性であると考えられる。これらエアロゾルの雲凝結核能について調べたところ、過飽和度0.1%において、WPSにより観測された粒径200 nmの粒子のほとんどが雲凝結核として作用すると推定された。ただし、この結果は大気試料の湿度について考慮しておらず、湿度データを含めて、さらに解析をすすめていく必要がある。

辺戸岬および福江島において得られたWPSの観測結果を比較した。辺戸岬では、期間を通して粒径分布は2峰型であったが、福江島では期間中、分布の様子に変動がみられた(図 1b)。2月23日0時過ぎには分布は2峰型を示し、ピークの位置は50 nmと最大の150 nm付近にあった。また、1峰型の分布となった2月24日の正午過ぎには粒径15–25 nmにおいて、100000個/cm³を超えるような高濃度が観測された。この核生成モード粒子がその後、夜にかけて、徐々に粒径の大きい粒子へと成長していく様子がみられ、新粒子生成イベントをとらえたと思われる。一方、辺戸岬では新粒子生成はほとんど観測されなかった。福江島周辺では新粒子生成が起こるのに十分なSO₂などのガス成分が存在していたのに対し、辺戸岬周辺ではガス成分の濃度が低い上に、すでに高濃度の硫酸塩などの粒子が存在していたため、ガス成分から新たに半揮発性の成分が生成しても、既存の粒子への凝縮が起こったと考えられる。本研究により、2地点のみではあるが東アジアにおける、雲生成に影響を及ぼすエアロゾル粒径分布に関する知見が得られた。

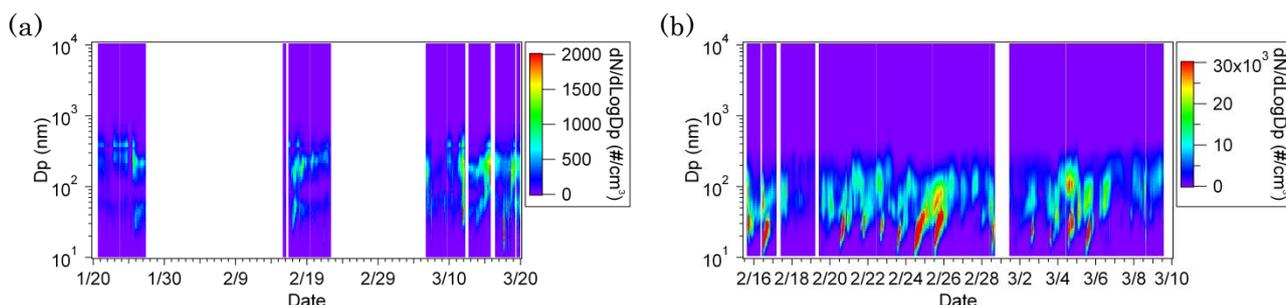


図 1 辺戸岬および福江島でのWPSによる観測結果((a) 2012年、辺戸岬;(b) 2013年、福江島)

(5) BC放射影響の観測

本研究では、SKYNET観測網の主要なサイトである千葉、福江島、辺戸岬及び宮古島におけるスカイラジオメータによるエアロゾル長期観測データを解析した。その結果、これらサイトにおけるエアロゾルの光学的特徴と放射効果の月別及び季節別変動が明らかとなった。その特徴を見ると、都市サイトである千葉では春・夏に濃く(500nmの光学的厚さ(AOT)が約0.4程度)、秋・冬に小さな濃度(同0.2程度)を示し、辺戸岬及び宮古島では春の濃い濃度は同じであるが、冬にも比較的濃く(同0.25程度)、夏から秋に低濃度(同0.15~0.2程度)を示した。一方福江島は、これらの中間的な値を示しており、比較的局地的な汚染が少ないと予想されることから、長距離輸送による大陸の影響が予想される。光学的厚さをオングストローム指数(ALPHA)と対応させると、その傾向は更に明確になる。即ち、冬季の千葉では微小粒子モードの粒子が卓越し、夏季の辺戸岬や宮古島では粗大粒子モードの粒子が卓越する結果を示しており、これらが海洋性気塊の影響下にあることを示唆している。一

方福江島のALPHAは、通年大きな変化をしないことが特徴である。これは、福江島の大気が辺戸岬や宮古島のものとは異なり、夏型の気候においても海洋性の気塊だけでなく微小粒子モードの粒子の含まれる気塊に影響されていることを示している。

単一散乱アルベド(SSA)で見ると、冬季の千葉の値は0.90程度とかなり小さく、乾燥した都市型エアロゾルのそれを示していると言える。また、辺戸岬や宮古島が通年で大きな変化を示さないのに対して、福江島では夏季に大きなAOTと比較的小さなSSA(0.92程度)を示しており、都市型汚染との複合的な影響を示唆している。これも大陸からの影響の可能性を示唆するものと言える。

放射影響評価をサイトごとの季節平均の値としてみると、エアロゾルの吸収による地表面冷却と大気加熱効果は春に最も大きく、秋・冬に小さいことが分かった。これはAOTに対応するものであり、秋・冬の日平均10W/m²程度から春の20W/m²前後まで広がっている。夏季にはAOTの変化に対応して、サイト依存性が強く現れている。一方、大気の吸収の効果(大気の加熱)は、秋・冬を春の値と比較すると、およそ2倍程度の違いのあることが示された。例えば、春季には6W/m²(宮古島)から9W/m²(福江島)程度まで変動し、冬季には3~4 W/m²程度の範囲にあることが分かった。

5. 本研究により得られた主な成果

(1) 科学的意義

- BCを高精度かつ安定的に測定できる COSMOS 測定器を用いた長期観測を、辺戸岬・福江島・八方において継続して行ったのに加え、中国の北京と台湾のルーリンに新たな COSMOS 測定器を設置した。これらのBCの観測網により、排出源近傍である中国の北京から排出源の下流にあたる辺戸・福江・八方までのBCの同時観測が可能となり、発生源寄与や季節変動など大気境界層内におけるBCの輸送過程の理解が飛躍的に進展しつつある。また、COSMOS測定器のデータを用いて、BCの最大発生源である中国からの排出量の正確な推定を行った。従来のBCの排出量推定には200%程度の大きな誤差があるとされてきたが、本研究によってその不確定性を大幅に減少するに至った。
- エアロゾルの混合状態・数濃度・粒径分布を表現可能な領域 3次元モデルを開発し、地上・航空機観測による検証を行った。このモデルにはエアロゾルの生成・変質・除去を支配する詳細な微物理過程が組み込まれており、従来の領域モデルや IPCC の評価などで用いられてきた全球気候モデルに比べて、エアロゾルの表現が格段に改善した。
- 新しく導入したBC変質過程に関するパラメタリゼーション法を用いることによって、これまで指摘されてきたモデルの光吸収成分の過小評価を改善する方向に働くことがわかった。
- 大気海洋結合モデルを用いることで、BCの存在による地表面付近での気温低下と大気上端での気温上昇、および、雲・降水を介した複雑なフィードバックが存在することがわかり、BCの存在に伴う気候・大気汚染影響の推定には結合モデルが必須であると示唆された。
- 高分解能実験が可能な NICAM+SPRINTARS+CHASER を用いた領域スケールでの大気化学モデルが完成した。また、観測データとモデルを組み合わせたエアロゾルデータ同化手法を開発したことで、より確からしいエアロゾル分布が得られるようになった。
- BCの混合状態を形状、および元素組成の観点から電子顕微鏡で取得しつつ、その結果を直截にエアロゾルモデルへ取り込むことを目指し、研究を推進してきた。電子顕微鏡による観察では他の手法では為し得ないBCの混合状態や形態情報を取得できるため、モデル化への活用の意義は大きい。また、現在の気候変動予測実験に用いられている気候モデルのBCへの感度を調査する実験を通じて、地球の気候においてBCのもつ役割を推定するための基礎的な知見を得ることができた。BCは大気大循環全体に影響し気温の鉛直構造が変化する可能性のあること、BCの存在による地表面気温への影響は全球平均で見ると変化は非常に小さいが、地域によって異なり大きな影響を受ける地域があることが示唆された。このような影響を評価するには気候フィードバックを評価できる大気海洋結合モデルを用いることが必要であるが、気候モデル間の相互比較が必要である。本推進費研究課題では、本サブ課題及びサブ課題 3 での実験結果によって、その端緒となる比較実験ができた。

(2) 環境政策への貢献

- エアロゾル微物理モデルの開発と精度向上により、エアロゾル物理・化学過程の理解に貢献し、併せてBCの輸送・変質・除去過程の予測精度向上に資する。また、気候変動実験に用いられる気候モデルにおけるBCの役割を知ることは、環境政策の有効性を判断するための基礎的なデータとなる。本研究の成果は、IPCCにおける第5次結合モデル比較実験CMIP5への気象庁から参加モデルである大気海洋結合モデルMRI-CGCM3の改良と気候実験およびその解析を行うことによって、地球温暖化予測の高度化に貢献し、

環境政策への貢献に寄与した。

<行政が既に活用した成果>

- 本研究のメンバーのうち、近藤はこれまでのエアロゾル・雲の観測的研究の実績により、IPCC 第 5 次報告書の 7 章「雲とエアロゾル」の Lead Author として選出されている。さらに中島はエアロゾル・放射・気候研究の実績により、同報告書の 5 章「放射強制力」の Lead Author として選出されている。したがって、本研究の成果を効率的に正しく IPCC に反映することができた。
- 中島は、IPCC-AR5 の放射強制力の Lead Author、世界気候研究計画(WCRP)の合同科学者委員会委員、UNEP/Atmospheric Brown Cloud-Asia サイエンスチームの主査として、本研究の成果を含むエアロゾルの気候影響に関する知見を、その評価報告書や現在行われつつある WCRP 組織体の将来構想立案において役立てた。
- IPCC へ日本から貢献した文部科学省「人・自然・地球共生プロジェクト」(2002-2007)、文部科学省「21 世紀気候変動予測革新プログラム」(2007-2012)、文部科学省「気候変動リスク情報創生プログラム」(2012-2017)などで計算されている気候モデルには、MIROC+SPRINTARS が用いられており、これらの改良を行う必要があることが示された。
- 文部科学省「気候変動適応研究推進プログラム」の中で NICAM+SPRINTARS+CHASER モデルの領域版が開発され、全球から関東平野程度の領域を従来型の 3 段階程度のネステイングを行うことなくシームレスに計算できるようになった。
- BC の気候計算を結合モデルで行うことによって、エアロゾルと雲形成に関わる様々なフィードバックループが起こり得ることが示された。このような計算システムと知見は、H26 年度から立ち上がる環境研究総合推進費 S-12「温室効果ガスおよび短寿命気候因子(SLCP)緩和策が引き起こす環境影響の能動的評価」の基礎になる。

<行政が活用することが見込まれる成果>

- 二酸化炭素やエアロゾルなどの人為起源物質の増加による気候変動を正確に予測することは、気候変動に対する対策の立案に重要である。この中で、人為起源のエアロゾルの変動とその気候影響の不確実性が、この対策の立案の大きな不確実性要因となっており、エアロゾルの気候影響の早急な解明が必要とされている。
- アジア域における地上・航空機観測およびそのデータ解析から、BC の質量濃度・粒径分布・混合状態・形態、エアロゾルの化学組成・数濃度・粒径分布の時空間変動を明らかにしてきた。また、それらの高精度の観測を表現できる領域 3 次元モデルの開発を行ってきた。このような領域 3 次元モデルを用いた計算により、アジア域における BC の削減効果を初めて定量的に評価可能になった。さらにこれを拡張してグローバル・長期的な削減効果を評価するために気候モデルを用いた計算を行った。この気候モデルの結果にもとづいて、BC の削減効果について初めて俯瞰的で定量的な政策判断の根拠を示すことが可能となる。
- 電子顕微鏡の観測結果の知見に基づき、BC の詳細な物理化学過程を考慮したパラメタリゼーションを導入した、改良型全球気候モデルにより、BC 削減が、大気加熱効果を抑えることに効果的であることが判明した。ただし気候モデルには年々の自然変動成分が存在するため、今後より長期間の積分を実施し、大気循環・気温・降水等の気候場への統計的に有意な影響を調べ、また、不確実性の評価も行ったうえで、実際に行政に活用されることが望ましい。

6. 研究成果の主な発表状況

(1) 主な誌上发表

<査読付き論文>

- 1) Kondo, Y., L. Sahu, N. Moteki, F. Khan, N. Takegawa, X. Liu, M. Koike, T. Miyakawa: Aerosol Sci. Tech., 45, 295-312, DOI: 10.1080/02786826.2010.533215 (2011)
“Consistency and traceability of black carbon measurements made by laser-induced incandescence, thermal-optical transmittance, and filter-based photo-absorption techniques”
- 2) 梶野瑞王: エアロゾル研究, 26, 296-306 (2011)
「大気エアロゾルの性質と素過程の多様性を考慮できる軽くて正確な新しい動力学モデルの開発」
- 3) Moteki, N., Y. Kondo, N. Oshima, N. Takegawa, M. Koike, K. Kita, H. Matsui, and M. Kajino:

- Geophys. Res. Lett., 39, doi:10.1029/2012GL052034 (2012)
 “Size dependence of wet removal of black carbon aerosols during transport from the boundary layer to the free troposphere”
- 4) Khatri, P., T. Takamura, A. Yamazaki, and Y. Kondo : J. Atmos. and Oceanic Techn., 29, 683–696 (2012)
 “Retrieval of key aerosol optical parameters for spectral direct and diffuse irradiances measured by a horizontal surface detector”
- 5) Goto, D., N. Oshima, T. Nakajima, T. Takemura, and T. Ohara: Atmos. Chem. Phys. Discuss., 12, 29801–29849 (2012b)
 “Impact of the aging process of black carbon aerosols on their spatial distribution, hygroscopicity, and radiative forcing in a global climate model”
- 6) Schutgens, N. A. J., M. Nakata and T. Nakajima: Remote Sens., 4, 3528–3543; doi:10.3390/rs4113528 (2012)
 “Estimating aerosol emissions by assimilating remote sensing observations into a global transport model”
- 7) Oshima, N., Y. Kondo, N. Moteki, N. Takegawa, M. Koike, K. Kita, H. Matsui, M. Kajino, H. Nakamura, J. S. Jung and Y. J. Kim: J. Geophys. Res., 117(D3), doi:10.1029/2011JD016552(2012)
 “Wet removal of black carbon in Asian outflow: Aerosol radiative forcing in East Asia (A-FORCE) aircraft campaign”
- 8) Kajino, M., Y. Inomata, K. Sato, H. Ueda, Z. Han, J. An, G. Katata, M. Deushi, T. Maki, N. Oshima, J. Kurokawa, T. Ohara, A. Takami, and S. Hatakeyama: Atmos. Chem. Phys., 12, 11833–11856, doi:10.5194/acp-12-11833-2012(2012)
 “Development of the RAQM2 aerosol chemical transport model and predictions of the Northeast Asian aerosol mass, size, chemistry, and the mixing type”
- 9) Kajino, M., M. Deushi, T. Maki, N. Oshima, Y. Inomata, K. Sato, T. Ohizumi, and H. Ueda: Geosci. Model Dev., 5, 1363–1375, doi:10.5194/gmd-5-1363-2012(2012)
 “Modeling wet deposition and concentration of inorganics over Northeast Asia with MRI-PM/c”
- 10) Bond, T. C., S. J. Doherty, D. W. Fahey, P. M. Forster, T. Berntsen, O. Boucher, B. J. DeAngelo, M. G. Flanner, S. Ghan, B. Kärcher, D. Koch, S. Kinne, Y. Kondo, P. K. Quinn, M. C. Sarofim, M. G. Schulz, M. Schulz, C. Venkataraman, H. Zhang, S. Zhang, N. Bellouin, S. Guttikunda, P. K. Hopke, M. J. Jacobson, J. Kaiser, Z. Klimont, U. Lohmann, J. P. Schwarz, D. Shindell, T. Storelvmo, S. G. Warren, and C. S. Zender : J. Geophys. Res., 118, doi:10.1002/jgrd.50171 (2013)
 “Bounding the role of black carbon aerosol in the climate system: A scientific assessment”
- 11) Matsui, H., M. Koike, Y. Kondo, N. Oshima, N. Moteki, Y. Kanaya, A. Takami, and M. Irwin : J. Geophys. Res., 118, 9947–9967, doi:10.1002/jgrd50702 (2013) “Seasonal variations of Asian black carbon outflow to the Pacific: Contribution from anthropogenic sources in China and biomass burning sources in Siberia and Southeast Asia”
- 12) Oshima, N., M. Koike, Y. Kondo, H. Nakamura, N. Moteki, H. Matsui, N. Takegawa, and K. Kita : J. Geophys. Res., 118, 13175–13198, doi:10.1002/2013JD020262 (2013)
 “Vertical transport mechanisms of black carbon over East Asia in spring during the A-FORCE aircraft campaign”
- 13) 三好猛雄、高見昭憲、下野彰夫、畠山史郎: 大気環境学会誌, 48, 1–11 (2013).
 「エアロゾル質量分析計により沖縄県辺戸岬において観測されたエアロゾル化学組成の特徴」
- 14) Nakajima, T., H. Takenaka, D. Goto, S. Misawa, J. Uchida, and T.Y. Nakajima : Simulation 32(3), 199–207 (2013)
 “Measurements and modeling of the solar radiation budget”
- 15) Oikawa, E., T. Nakajima, T. Inoue, and D. Winker : J. Geophys. Res., 118, 3687–3708, 2012, doi:10.1002/jgrd.50227 (2013)
 “A study of the shortwave direct aerosol forcing using ESSP/CALIPSO observation and GCM simulation”
- 16) Takami, A., N. Mayama, T. Sakamoto, K. Ohishi, S. Irei, A. Yoshino, S. Hatakeyama, K. Murano, Y. Sadanaga, H. Bandow, K. Misawa and M. Fujii: J. Geophys. Res. Atmos., 118, 6726–6737, doi:10.1002/jgrd.50477 (2013)
 “Structural analysis of aerosol particles by microscopic observation using a Time-of-Flight Secondary Ion Mass Spectrometer”
- 17) Matsui, H., M. Koike, N. Takegawa, Y. Kondo, A. Takami, T. Takamura, S. Yoon, S.-W. Kim, H.-C. Lim and

- J. D. Fast: *J. Geophys. Res. Atmos.*, 118, 11647–11663, doi:10.1002/jgrd.50821 (2013),
 “Spatial and temporal variations of new particle formation in East Asia using the NPF–explicit WRF–chem model”
- 18) Matsui, H., M. Koike, Y. Kondo, N. Oshima, N. Moteki, Y. Kanaya, A. Takami, and M. Irwin : *J. Geophys. Res. Atmos.*, 118, 9948–9967, doi:10.1002/jgrd.50702 (2013)
 “Seasonal variations of Asian black carbon outflow to the Pacific: Contribution from anthropogenic sources in China and biomass burning sources in Siberia and Southeast Asia”
- 19) Adachi, K. and P. R. Buseck: *J. Geophys. Res.–Atmos.*, 118, 3723–3730, doi:10.1002/jgrd.50321(2013)
 “Changes of ns–soot mixing states and shapes in an urban area during CalNex”
- 20) Kajino, M., K. Sato, Y. Inomata, and H. Ueda: *Atmos. Environ.*, 79, 67–78, doi:10.1016/j.atmos.env.2013.06.024(2013)
 “Source–receptor relationship of nitrate in East Asia and sea salt effects”
- 21) Kajino, M., R. C. Easter, and S. J. Ghan: *Modal Bin Hybrid Model: J. Geophys. Res.*, 118, 10,011–10,040, doi:10.1002/jgrd.50685(2013)
 “a surface area consistent, triple moment sectional method for process–oriented modeling of atmospheric aerosols”
- 22) 足立光司: *エアロゾル研究*, 28–3, 189–194(2013)
 「電子線トモグラフィによるエアロゾル粒子の3次元形態解析」
- 23) Oshima, N. and M. Koike: *Geosci. Model Dev.*, 6, 263–282, doi:10.5194/gmd-6-263-2013(2013)
 “Development of a parameterization of black carbon aging for use in general circulation models”
- 24) Moteki, N., Y. Kondo, and K. Adachi : *J. Geophys. Res.*, 119, doi:10.1002/2013JD020655 (2014)
 “Identification by single–particle soot photometer of black carbon particles attached to other particles: Laboratory experiments and ground observations in Tokyo”
- 25) Irei, S., A. Shimono, T. Hikida, K. Kuramoto, Y. Suzuki and A. Takami: *Aerosol Air Qual. Res.*, 14, 406–412, doi:10.4209/aaqr.2013.04.0126 (2014)
 “Qualitative evaluation of m/z 85, 87, and 133 signals in organic aerosol mass spectra of fly ash produced by coal combustion”
- 26) Goto, D., T. Dai, M. Satou, H. Tomita, J. Uchida, S. S. Misawa, T. Inoue, H. Tsuruta, K. Ueda, C. F. S. Ng, A. Takami, N. Sugimoto, A. Shimizu, T. Ohzra, and T. Nakami : *Geosci. Model Dev. Discuss.*, 7, 131–179 (2014)
 “Application of a global nonhydrostatic model with a stretched–grid system to regional aerosol simulations around Japan”
- 27) Koike, M., N. Moteki, P. Khatri, T. Takamura, N. Takegawa, Y. Kondo, H. Hashioka, H. Matsui, A. Shimizu, and N. Sugimoto : *J. Geophys. Res.*, 119, 10.1002/2013JD020163. (2014)
 “Case Study of Absorption Aerosol Optical Depth Closure of Black Carbon over the East China Sea,”
- 28) 梶野瑞王, 五十嵐康人, 藤谷雄二: *大気環境学会誌*, 49(2), 101–108(2014)
 「Fresh sootと、aged sootは、どちらが気道に沈着しやすいかー粒径分布と吸湿性の気管支・肺沈着率への影響ー」
- 29) 足立光司: *エアロゾル研究*, Vol.29, No.1, pp10–14 <http://dx.doi.org/10.11203/jar.29.10> (2014)
 「ナノスケールで見るすす粒子」
- 30) 大島長: *エアロゾル研究* 29(1), 22–31 (2014)
 「ブラックカーボン粒子のモデル研究: ミクロスケールから全球スケールまで」
- 31) Adachi, K., Y. Zaizen, M. Kajino, and Y. Igarashi: *J. Geophys. Res. Atmos.*, 119, 5386–5396, doi:10.1002/2013JD020880 (2014)
 “Mixing state of regionally transported soot particles and the coating effect on their size and shape at a mountain site in Japan,” .

<査読付論文に準ずる成果発表> (対象: 社会・政策研究の分野)

「特に記載すべき事項はない。」

(2) 主な口頭発表(学会等)

- 1) Kondo, Y., R. L. Verma, N. Oshima, H. Matsui, K. Kita, Y. Kajii, S. Kato, T. Miyakawa, L. K. Sahu, and A. Takami, AGU 2011 Fall meeting, San Francisco, USA, December 7, 2011.
 “Asian continent to the western Pacific and estimate of CO emissions from China”

- 2) Irei, S., A. Takami, T. Hikida and A. Shimono: The 7th Asian Aerosol Conference, Xi' an, China (2011).
"Application of PMF to AMS data observed at Fukue Island, Japan"
- 3) Tanaka, T. Y., MRI Earth System Modeling Group: 10th AeroCom workshop, Fukuoka, Japan (2011)
"Variability of the naturally emitted aerosols in the climate CMIP5 experiments of Meteorological Research Institute"
- 4) Igarashi, Y., Y. Zaizen, H. Naoe, M. Kajino, K. Adachi: Fifth Korea-Japan-China Joint Conference, Busan, Korea (2011)
"Aerosol research using electron microscope and mountain platform"
- 5) Tanaka, T. Y.: Fifth Korea-Japan-China Joint Conference on Meteorology, Busan, Korea (2011)
"Numerical simulation of the seasonal variation of elevated dust aerosol from Taklimakan desert."
- 6) Kajino, M.: 3rd International Workshop on Atmospheric Modeling Research in East Asia, Chengdu, Sichuan, China (2011)
"Modeling air, rain and snow precipitation quality over Northeast Asia"
- 7) Kajino, M., M. Deushi, Y. Inomata, K. Sato, H. Ueda, Z. Han, J. An, J. Kurokawa, T. Ohara : Acid Rain, Beijing, China (2011)
"Modeling air, rain and snow precipitation quality over Northeast Asia using MRI-CCM2-WRF-RAQM2 model"
- 8) Oshima, N., Yutaka Kondo, Nobuhiro Moteki, Nobuyuki Takegawa, Makoto Koike, Kazuyuki Kita, Hitoshi Matsui, Mizuo Kajino, Hisashi Nakamura, Jinsang Jung, and Young-Joon Kim: 10th AeroCom Workshop (2011)
"Wet removal of black carbon in Asian outflow: Aerosol Radiative Forcing in East Asia (A-FORCE) aircraft campaign"
- 9) Oshima, N., Yutaka Kondo, Nobuhiro Moteki, Nobuyuki Takegawa, Makoto Koike, Kazuyuki Kita, Hitoshi Matsui, Mizuo Kajino, Hisashi Nakamura, Jinsang Jung, and Young-Joon Kim: 2011 International Aerosol Modeling Algorithms Conference (2011)
"Wet Removal of Black Carbon in Asian Outflow During Aerosol Radiative Forcing in East Asia (A-FORCE) Aircraft Campaign"
- 10) Oshima, N., M. Koike, Y. Kondo, H. Matsui, N. Moteki, H. Nakamura, N. Takegawa, and K. Kita: Department of Marine, Earth, and Atmospheric Sciences, North Carolina State University, Raleigh (2011)
"Vertical transport of black carbon over East Asia in spring during the A-FORCE aircraft campaign."
- 11) Oshima, N.: International symposium on aerosol studies explored by electron microscopy, Tsukuba, Japan (2012)
"Aging of black carbon and its impact on aerosol optical properties and cloud condensation nuclei activities using a mixing state resolved model." (Invited)
- 12) Tanaka, T. Y.: MRI Earth System Modeling Group : International symposium on aerosol studies explored by electron microscopy, Tsukuba, Japan (2012)
"Climatic effect of black carbon in MRI global climate model."
- 13) Kajino, M.: International symposium on aerosol studies explored by electron microscopy, Tsukuba, Japan (2012)
"Model formulation and predictability of a variety of atmospheric aerosols."
- 14) Adachi, K.: International symposium on aerosol studies explored by electron microscopy, Tsukuba, Japan (2012)
"Aerosol particle shape revealed by transmission electron microscopy and the implications for its optical properties."
- 15) Zaizen, Y. and Naoe, H.: 92nd American Meteorological Society (AMS) Annual Meeting (2012), "Mixing state of soot collected at mountain sites in Japan."
- 16) Adachi, K., Igarashi, Y., Buseck, P. R.: Japan Geoscience Union Meeting 2012 (2012)
"Change of shape and composition of sea-salt aerosol particles in an urban atmosphere."
- 17) Oshima, N., Yutaka Kondo, Nobuhiro Moteki, Nobuyuki Takegawa, Makoto Koike, Kazuyuki Kita, Hitoshi Matsui, Mizuo Kajino, Hisashi Nakamura, Jinsang Jung, and Young-Joon Kim : 12th International Global Atmospheric Chemistry Conference (2012)
"Wet removal of black carbon in Asian outflow: Aerosol Radiative Forcing in East Asia (A-FORCE) aircraft campaign."

- 18) Oshima, N., M. Koike, Y. Zhang, and Y. Kondo : International Radiation Symposium 2012 (2012) “Aging of black carbon and its impact on aerosol optical properties using a size and mixing state resolved model.”
- 19) Kondo, Y., 2013 China emissions workshop, Wenjin hotel, Beijing, 27 June 2013
“Estimates of emissions of black carbon in Asia based on ground based observations”
- 20) Kondo, Y., Advances in Global Climate & Atmospheric Modeling: Perspectives from Tale and UTokyo@Kline Geology Laboratory Auditorium (KGL), Yale University, September 21, (2013)
“Recent studies of the effects of aerosols on climate in East Asia: Observations and modeling”
- 21) Matsui, H., M. Koike, Y. Kondo, N. Oshima, N. Moteki, Y. Kanaya, A. Takami and M. Irwin, AGU 2013 Fall meeting, San Francisco, USA, December 9, 2013.
“Seasonal variations of Asian black carbon outflow to the Pacific: Contribution from anthropogenic sources in China and biomass burning sources in Siberia and Southeast Asia”
- 22) Khatri, P., T. Takamura, and T. Y. Nakajima, 2013 AGU fall meeting, San Francisco, USA, 9–13 December, (2013)
“Study of aerosol characteristics and aerosol effects on atmospheric radiative balance over the East Asia using observation data of Skynet network”
- 23) Oshima, N., Makoto Koike, and Taichu Y. Tanaka : 2013 International Aerosol Modeling Algorithms Conference (2013)
“Development of a Parameterization of Black Carbon Aging for Use in General Circulation Models.”
- 24) Oshima, N., M. Koike, Y. Kondo, H. Matsui, N. Moteki, H. Nakamura, N. Takegawa, and K. Kita : Goldschmidt 2013 (2013)
“Vertical Transport of Black Carbon over East Asia during the AFORCE Aircraft campaign.”
- 25) Igarashi Y., K. Adachi, Y. Zaizen, and M. Kajino: Sixth China–Korea–Japan Joint Conference on Meteorology, Nanning China (2013)
“ Construction Trial of the Electron–Microscopic Aerosol Database

7. 研究者略歴

課題代表者：近藤 豊

東京大学理学部卒業、理学博士、現在、東京大学大学院理学系研究科教授

研究分担者

1) 小池 真

早稲田大学理工学部卒業、理学博士、現在、東京大学大学院理学系研究科准教授

2) 竹川 暢之

東京大学理学部卒業、理学博士、東京大学先端科学技術研究センター准教授
現在、首都大学東京都市教養学部教授

3) 茂木 信宏

東京工業大学理学部卒業、理学博士、現在、東京大学大学院理学系研究科特任助教

4) 五十嵐 康人

筑波大学第一学群自然学類卒業、理学博士、現在、国土交通省気象庁気象研究所環境・応用気象研究部第四研究室長

5) 田中 泰宙

豊田工業大学工学部卒業、理学博士、国土交通省気象庁気象研究所環境・応用気象研究部第一研究室主任研究官、現在、気象庁地球環境・海洋部化学輸送モデル開発推進官

6) 梶野 瑞王

京都大学理学部卒業、理学博士、国土交通省気象庁気象研究所環境・応用気象研究部第四研究室研究官、現在、気象庁気象研究所環境・応用気象研究部第四研究室主任研究官

7) 中島 映至

東北大学理学部卒業、理学博士、現在、東京大学大気海洋研究所地球表層圏変動研究センター教授・センター長

8) 高見 昭憲

京都大学工学部卒業、理学博士、現在、国立環境研究所地域環境研究センター室長

9) 高村 民雄

広島大学理学部卒業、理学博士、千葉大学環境リモートセンシング研究センター教授

8. 引用文献

- 1) Yukimoto, S., et al.: J. Meteorol. Soc. Jpn, 90A (2012)
“A New Global Climate Model of the Meteorological Research Institute: Global Climate Model of the Meteorological Research Institute: MRI-CGCM3 – Model Description and Basic Performance”
- 2) Lamarque, J.-F., et al.: Atmos. Chem. Phys., 10, 7017–7039, doi:10.5194/acp-10-7017-2010 (2010)
“Historical (1850–2000) gridded anthropogenic and biomass burning emissions of reactive gases and aerosols: methodology and application”
- 3) Oshima, N. and M. Koike: Geosci. Model Dev., 6, 263–282, doi:10.5194/gmd-6-263-2013 (2013)
“Development of a parameterization of black carbon aging for use in general circulation models”
- 4) Goto, D., N. Oshima, T. Nakajima, T. Takemura, and T. Ohara: Atmos. Chem. Phys. Discuss., 12, 29801–29849, doi:10.5194/acpd-12-29801-2012 (2012)
“Impact of the aging process of black carbon aerosols on their spatial distribution, hygroscopicity, and radiative forcing in a global climate model”
- 5) Schutgens, N.A.J., M. Nakata and T. Nakajima: Remote Sens., 4, 3528–3543, doi:10.3390/rs4113528 (2012)
“Estimating aerosol emissions by assimilating remote sensing observations into a global transport model”
- 6) McClatchey, R.A., R.W. Fenn, J.E.A. Selby, F.E. Volz and J.S. Garing: AFCRL Environ. Res. Papers No.411 (1972)
“Optical properties of the atmosphere (3rdEd.)”
- 7) Goto, D., et al.: Geosci. Model Dev. Discuss., 7, 131–179 (2014)
“Application of a global nonhydrostatic model with a stretched-grid system to regional aerosol simulations around Japan”

2A-1101 地球温暖化対策としてのブラックカーボン削減の有効性の評価

(1) BC観測による領域モデルの検証

東京大学大学院理学系研究科	近藤 豊
	小池 真
	茂木 信宏
東京大学先端科学技術研究センター	竹川 暢之

平成23～25年度累計予算額：120,793千円（うち、平成25年度予算額：37,339千円）
予算額は、間接経費を含む。

[要旨]

ブラックカーボン（BC）を高精度かつ安定的に測定できるCOSMOS測定器を用い、東アジア域におけるBCの長期地上観測網を作り（辺戸岬・福江島・八方、中国の北京・大連、台湾のルーリン）、継続的な観測を行ってきた。この観測網により、中国の北京などの発生源近傍から辺戸・福江・八方などの下流域に至るまでのBCの同時観測が可能となり、BCの季節変動やその輸送過程の理解を飛躍的に進展させた。

2013年の冬季、夏季に東シナ海・黄海上空および仙台・北海道周辺の西太平洋域において航空機観測を実施した（冬季は13フライト、夏季は15フライト）。この観測では、地上から高度9kmまでのBCの微物理特性（質量濃度・混合状態・粒径分布）、エアロゾルの粒径分布・数濃度、雲粒数、COの混合比を高精度で測定した。これらの観測結果と2009年の春季に行った航空機観測結果を用い、東アジア域におけるBCの微物理特性（質量濃度・粒径分布・混合状態）やエアロゾルの数濃度・粒径分布の鉛直分布を初めて明らかにした。また、BCの質量濃度や粒径分布の変動メカニズムを、アジア大陸からの大気境界層内の輸送、境界層から自由対流圏への輸送過程と合わせて理解した。さらに、アジア域におけるエアロゾル-雲相互作用（エアロゾル数と雲粒数の対応）を明らかにした。このようなデータはアジアにおける温暖化対策・大気汚染対策を国際的に議論する上での重要な知見となる。

また、エアロゾルの混合状態・数濃度・粒径分布を表現可能な領域3次元モデルを開発し、地上・航空機観測による検証を行った。このモデルにはエアロゾルの生成・変質・除去を支配する詳細な微物理過程が組み込まれており、従来の領域モデルやIPCCの評価などで用いられてきた全球気候モデルに比べて、エアロゾルの表現が格段に改善した。本研究で開発したモデルは、エアロゾルの直接・間接効果やBCの削減効果の精度の良い評価を行う上で非常に重要なツールとなることが期待される。

[キーワード]

エアロゾル、ブラックカーボン、放射強制力、大気大循環モデル、気候変動予測

1. はじめに

IPCC第4次報告書において、ブラックカーボン（BC）エアロゾルは二酸化炭素の約1/3の正の放射強制力を持つと推定されている。2009年のCOP-15におけるコペンハーゲン合意に基づき、21世紀中の全球平均気温の温度上昇を2°C以下に抑えるためには、二酸化炭素の排出量を2050年までに50%近く削減する必要があると見積もられている。また、将来の大気汚染対策の結果として、負の放射強制力をもつエアロゾル（硫酸塩、硝酸塩、有機物等）の濃度が低下し、エアロゾルの日傘効果の減少に伴って温暖化が加速すると考えられている。このため、大きな正の放射強制力を持ち、大気中の滞留時間が2週間程度と短いBCを削減することが、有効な地球温暖化対策の可能性として注目され始めている。

しかしながら、BC削減の効果には大きな不確定性があると考えられている。BCの正の放射強制力（太陽光の吸収による加熱効果）の大きさは、BCの質量濃度だけでは決まらず、他のエアロゾル成分と同一の粒子として内部混合しているかどうか（混合状態）など、エアロゾルの物理化学特性に依存する。また、大気中のBCの存在量を決定する除去速度は、BCの内部混合の程度に依存する。さらに、BCが光吸収することによる直接効果とともに、BCが雲凝結核となることにより雲の反射率（アルベド）や寿命（雲量）に変化を与える間接効果も考える必要があることが指摘されている。人為的なBCの放出は大気中のエアロゾル数濃度を増加させる主要な要素であるため、BCの削減はエアロゾル数濃度の減少を通じて、間接効果による地球の冷却効果を減速させる可能性がある。このようにBC削減は温暖化対策として有効な対策である可能性が高いものの、その相反する効果（正の直接放射効果の減少と、負の間接効果の減少）の正味の効果を精度良く推定することが極めて重要である。また各種発生源の排出量削減の影響評価においては、BCとともに排出量が削減される他のエアロゾル成分との相乗効果について評価することも政策立案の上で重要となる。

従来のIPCCの評価などで用いられてきた全球エアロゾル気候数値モデルでは、BCをはじめとするエアロゾルをきわめて簡略的にしか取り扱ってきておらず、その推定には大きな不確定性がある。上記のようなBCに関わる複雑な効果を総合的に評価するためには、まず大気中でのBCおよび他のエアロゾルの数濃度や粒径分布あるいは混合状態を精度良く測定しその実態を把握する必要がある。このような高度な観測的知見を基に、エアロゾルの詳細な物理化学過程を考慮した領域・気候モデルの開発・計算を行うことが不可欠である。

2. 研究開発目的

本研究の目的は、地球温暖化対策としてのBC削減の有効性を評価することである。すなわち、各種の排出源から排出されるBCや他の人為起源物質の排出量を削減した場合、アジアやグローバルスケールにおいて、放射強制力、気温、降水量がどのように変化するのか、直接・間接効果を含めて総合的に評価することである。このために、本研究では以下の研究を行うことを目的とした。

(1) BCを含むエアロゾルの微物理特性（質量濃度・粒径分布・混合状態・光学特性・形態）や放射パラメータの測定法の開発・改良・評価を行い、それらの最先端の測定器を用いた地上連続観測および航空機観測を実施する。

(2) 本研究およびこれまでに行われてきた地上・航空機観測の結果を用い、特にアジア域にお

けるBCを含むエアロゾルの微物理特性の実態を把握する。

(3) エアロゾルの詳細な物理化学過程を考慮した領域・気候モデルの開発・改良を行い、観測結果を用いて数値モデル計算を検証する。

3. 研究開発方法

(1) BC観測による領域モデルの検証

このサブテーマでは、アジア域におけるBCを含むエアロゾルの地上・航空機観測とそれらのデータ解析、BCおよびエアロゾルの詳細な微物理過程を考慮した領域数値モデルの開発・検証を行った。アジア域は人為起源BC・エアロゾルの最大の発生源であり、アジア域のみならずグローバルなエアロゾルの気候影響という観点からも重要な領域である。

1) 観測とデータ解析

a 地上におけるBC濃度の長期変動の観測とデータ解析

アジア域においてBCの時空間変動を明らかにするためには、精度・信頼性の高い測定を多数の観測点において長期間行うことが重要である。我々のグループは、沖縄県の辺戸岬、長崎県の福江島、長野県の八方、中国の北京・大連、台湾の鹿林（ルーリン）においてBC質量濃度の連続測定を行ってきた。測定には我々が開発したBC熱抽出・光吸収によるBC質量濃度の測定装置

(Continuous Soot Monitoring System, COSMOS) を用いており、高精度かつ安定してBCを測定できるという利点がある。

また、これまでに行ってきたBC質量濃度の長期観測の結果を用いて、各観測点におけるBCの季節変動に関するデータ解析を行った。解析には後方粒跡線解析を用い、アジア大陸からの数日程度のBCの輸送過程や観測点における発生源寄与およびそれらの季節変動を調べた。

b 航空機観測を用いたBCの微物理特性の空間分布に関するデータ解析

2009年の春季に、東シナ海・黄海上空において(0-9 kmの高度領域) BCの微物理特性(質量濃度・混合状態・粒径分布)、エアロゾルの粒径分布、雲粒数、一酸化炭素(CO)の混合比について、高精度の航空機観測(Aerosol Radiative Forcing in East Asia, A-FORCE-2009)を実施した(全21フライト)。この航空機観測の結果を用いて、BCの微物理特性の空間分布を明らかにするデータ解析を行った。BCの観測にはレーザー誘起白熱法に基づく単一BC粒子測定装置(Single particle soot photometer, SP2)が用いられた。後方粒跡線解析やBCとCOの濃度比率(降水による除去割合の指標となる)の解析を組み合わせることで、観測された空気塊の発生源や発生源からの輸送過程を推定し、各発生源・輸送過程におけるBCの除去過程およびBCの微物理特性の違いを調べた。

c 雨水中のBC濃度と粒径分布の測定

BCの除去過程は、BCの微物理特性、BCの雲への取り込み、雲粒の雨粒への変換などの多くの過程から構成される複雑な過程である。雨水中のBC濃度は、これらの除去過程を理解する上で非常に有用なパラメータである。超音波式ネビュライザーとSP2を組み合わせた独自の雨水中のBC濃度の測定方法を開発し、東京と辺戸で降水サンプリングを行い、大気中と雨水に含まれる両方に含まれるBC濃度・粒径分布の測定を行った。大気中のBC濃度は、COSMOSによって連続

的に測定した。雲量や降水量などの気象データを用い、辺戸において2010年4月から2013年3月まで長期にわたって行ってきた降水中のBC濃度の季節変動を明らかにする解析を行った。

d エアロゾルの数濃度とエアロゾル-雲相互作用に関するデータ解析

BCは直接効果だけでなく、雲凝結核数（CCN数）・雲粒数を通して間接効果にも大きく影響を及ぼすと考えられている。これらを理解するためには、BCを含むエアロゾルの粒径分布や数濃度の変動過程・エアロゾルの雲との相互作用を明らかにすることが不可欠である。

A-FORCE-2009観測では我々のグループがTSI社凝縮粒子カウンタ（CPC: 型番3771および3772）をベースに新たに開発した航空機搭載2ch粒子カウンタを用いて、エアロゾルの数濃度の観測を行った。粒径10-2500 nmのエアロゾル数濃度と10-130 nmのエアロゾル数濃度を1秒の時間解像度で測定した。これらの結果を用いることで、東アジア域におけるエアロゾル数濃度や粒径分布の鉛直分布・時間変動に関するデータ解析を行った。

また、エアロゾルとともに雲の数濃度・粒径分布も同時に測定した。雲粒数の数濃度・粒径分布の測定にはCAPS（Cloud Aerosol and Precipitation Spectrometer）を用いた。雲の観測では東シナ海・黄海上空の非降水性の層雲・層積雲を対象とした。雲底直下のエアロゾル数濃度・粒径分布と雲底直上の雲粒数濃度を測定し（マヌーバ観測）、東アジア域の海洋上におけるエアロゾル数と雲粒数の対応について調べた。

e エアロゾルの数濃度・粒径分布測定装置の開発・改良

粒径60-1000 nmのエアロゾルの数濃度・粒径分布を最高1秒の時間分解能で測定可能なUltra-High Sensitivity Aerosol Spectrometer (UHSAS: Droplet Measurement Technologies, Inc.)を導入した。UHSASは地上観測用の測定器であるが、気圧変動環境において自動制御可能でかつ高精度な流量制御システムを導入し、高精度な航空機観測が可能になるようにハード・ソフトともに再構築した。これに加え、従来は切り捨てられていた個々の計測粒子の散乱光波形データを取得できるように改造し、従来UHSASでは評価されてこなかったレーザービーム中の粒子の蒸発による系統誤差の有無を精密に評価できるようにした。

また、粒径10 nm以下の粒子数濃度を測定するために、これまで開発した航空機搭載2ch粒子カウンタに新たに極微小粒子カウンタ（UCPC: 型番3776）を追加した。UCPC3776は粒径2.5 nm以上の粒子を計数できるので、従来の3772と合わせれば粒径2.5-10 nmに含まれる粒子数を1秒の時間分解能で測定することができる。測定する粒径範囲を拡大したことに伴い、インレットマニホールド及び配管も再構築した。航空機外部のノズルから機内に導入した直後に等速吸引マニホールドを用いて第一段階分岐を行うことにより、配管内のレイノルズ数を低減させるようにした。また、ナノ粒子の拡散損失を低く抑えるために、大流量のまま3776の近傍まで吸引してから再び分岐（第二段階分岐）し、第二段階分岐から装置までの距離を可能な限り短くした。

f 東アジア域における航空機観測の実施（A-FORCE-2013W、A-FORCE-2013S）

2013年の2-3月に東シナ海・黄海上空において（0-9 kmの高度領域）、BCの微物理特性（質量濃度・混合状態・粒径分布）、エアロゾルの粒径分布・数濃度、雲粒数、COの混合比について、高精度航空機観測（A-FORCE-2013W）を実施した。観測は鹿児島空港を拠点に、韓国との往復フ

ライト2回を含む合計13フライトを行った。搭載した測定器は、SP2、UHSAS、CAPS、UCPC、CPC（東大）、CO測定器（茨城大）である。また、BCの形状や混合状態を測定する電子顕微鏡観測（気象研究所）のためのサンプルも同時に取得した。観測日時やフライト経路は2つの領域モデル（気象研究所ETM、国立環境研CFORS）を用いて決定し、様々な緯度・高度において非常に高濃度の汚染大気を測定することに成功した。また、福江・辺戸上空ではスパイラル観測によってエアロゾルの鉛直分布を測定し、同時に行った地上観測（東大、（独）国立環境研、千葉大）との整合性等を調べるための結果を得た。

また、2013年の6-7月には東シナ海・黄海上空および西太平洋域において、A-FORCE-2013Wと同様の測定器を用いて航空機観測（A-FORCE-2013S）を実施した。観測は鹿児島空港、仙台空港、女満別空港を拠点に、合計15フライト実施した。

g UHSASを用いた東アジア域のエアロゾルの粒径分布の解析

A-FORCE-2013Wでは、UHSASを用いて粒径70 – 1500 nmのエアロゾルの数濃度・粒径分布を最高1秒の時間分解能で測定した。また、BCとCO（汚染大気の指標となる）の観測結果を用いて、観測された空気塊のエアロゾルの輸送効率（降水による除去過程に伴い大気中から除去されずに残ったエアロゾルの比率）の推定を行った。そして、東アジア域におけるBCを含むエアロゾルの粒径分布とその支配要因を調べる解析を行った。

h 東シナ海におけるBCの質量濃度と光吸収量のクロージャー

A-FORCE-2009とA-FORCE-2013Wでは、福江島上空でスパイラル観測を行い、SP2によってBCの粒径分布と混合状態の鉛直分布が測定された。この観測結果を用いてミー散乱理論計算を行い、エアロゾルの光学的厚み（aerosol optical depth, AOD）と光吸収係数の鉛直積算量（absorption aerosol optical depth, AAOD）を計算した。この計算結果を、航空機観測と同じ時間に福江島で行われた放射観測（スカイラジオメーターを使用）と比較し、その整合性および不確定性を調べる解析を行った。

2) 領域モデルの開発と検証

a BCの排出量および発生源寄与の推定

これまでの個別の排出源の積み上げ方式（ボトムアップ）によるアジア域、特に中国における人為起源BCの排出量の推定には、200%程度の誤差があると報告されている。そのため、中国におけるBCの排出量の推定を、実大気観測によるトップダウン的な手法によって検証する必要がある。本研究では、辺戸におけるCOSMOSのBC観測データおよび領域3次元化学輸送モデルWRF-CMAQを用い、中国におけるBCの排出量の推定を行った。辺戸は、水平・垂直方向の濃度の不均一性・勾配が小さく、測定の代表性が高いと考えられる。それらの結果から中国の影響を強く受け、降水による除去の影響が小さいと考えられるデータのみを抽出し、ボトムアップ的に見積もられたBC排出量を定量的に評価した。

b BC濃度の空間分布の検証

東アジア域におけるBCの時空間変動についてWRF-CMAQモデルを用いて計算した。計算は

2009年の春季について行った。既存のCMAQモデルはエアロゾルの湿性沈着過程の取り扱いで、雲底下と雲中での降水に伴うエアロゾルの除去過程の違いを区別していないため、本研究ではこれらの除去過程の違いを区別するようなモデルへと改良した。また、モデル計算において、降水による除去過程の有無の差から、BCの輸送効率（降水による除去過程に伴い大気中から除去されずに残ったBCの比率）の推定を行った。航空機で観測された空気塊に対して、モデル計算結果と観測結果との比較を行った。

c タグ付き3次元領域モデルの開発と検証

BCを含むエアロゾルの排出源領域や輸送中にエアロゾルが経験する微物理過程の寄与を追跡計算できるタグ付き領域三次元モデル（WRF-CMAQ/PASCAL）を開発した。タグ付きモデルにより、観測点で測定したBC濃度に対する各発生源の寄与などの見積もりが可能となる。このモデルをアジア域に適用し、2008年から2010年の3年間に渡るエアロゾルの計算を行った。地上・航空機観測で測定されたBC濃度を用い、モデル計算の検証を行った。また、アジア大陸から西太平洋域へのBCの輸送過程とその緯度・高度依存性に着目し、東経150度におけるBCの東向きフラックスについて調べた。

d BCの混合状態を表現したモデルの開発と検証

エアロゾルの粒径とBCの混合状態を表現した2次元ビンモデルを開発し、数値モデルにおけるBCの混合状態の表現を改善した。このモデルでは、エアロゾルの微物理過程およびそれに伴う粒径・混合状態の変化が詳細に計算される。このBCの混合状態を表現したモデルを領域3次元モデルWRF-chemに導入し、東アジア域の計算に適用した。計算はA-FORCE-2009期間について行い、SP2によって観測されたBCの混合状態を用いて検証を行った。このモデル計算結果を用い、BCの混合状態に対するエアロゾルの微物理過程（凝縮・凝集過程）の重要性について評価した。また、モデル計算結果を用い、BCの混合状態の取り扱いに伴う大気加熱率や放射強制力に対する感度など、混合状態の光学・放射特性に対する影響を評価した。

e エアロゾルの数濃度を詳細に計算する数値モデル開発と検証

新粒子（気体から生成される数nm程度の粒子）の生成と成長を理論的に計算するモデルを開発し、数値モデルにおけるエアロゾルの数濃度の表現を改善した。このモデルをWRF-chemモデルに導入し、A-FORCE-2009観測との比較・検証を行った。春季東アジア域における新粒子生成の頻度とそのエアロゾル数濃度や雲粒凝結核数濃度への感度を調べた。

f 有機エアロゾルモデルの開発と検証

有機エアロゾル（OA）は大気中の微小粒子の主要な寄与を占め、BCの光吸収量や除去過程を決定する上でも重要な役割を果たすと考えられている。しかし、その生成過程は非常に複雑であるため、大気中でのOA濃度とその気候・健康影響の見積もりには依然として大きな不確実性がある。近年これまで考えられてこなかったOAの前駆気体（半揮発性の有機化合物、S/IVOC）とその酸化過程が発見され、これらを考慮した新しいOAモデルの概念が提唱された（Volatility basis set、VBS）。

この手法に基づいたOAモデルを開発し、領域3次元モデルWRF-chemに導入した。このモデルでは揮発性有機化合物（VOC）とS/IVOCの大気中での連続的な酸化過程と気相-エアロゾル相の分割を計算する。このモデルをアジア域に適用し、2次有機エアロゾル（SOA）の生成に対するVOC・S/IVOCの酸化過程の重要性、SOA生成における人為起源VOC・S/IVOCと自然起源VOC・S/IVOCの相互作用を調べた。

g 東アジア域におけるエアロゾル・雲相互作用

東アジア域は、世界的にもエアロゾル数濃度の大きい地域であるにもかかわらず、エアロゾルと雲の相互作用に関する研究が東太平洋域など他の地域に比べて進んでいない。特に、エアロゾル・雲相互作用を考慮した数値モデル計算を航空機観測などの直接観測と比較した例は極めて少ない。この研究では、エアロゾルと雲物理過程の相互作用を陽に表現した領域モデルWRF-Chemを用いて、A-FORCE-2009期間の数値モデル計算を行った。A-FORCE-2009において航空機からの直接観測で得られたエアロゾル数濃度や雲粒数濃度の観測との比較を通してモデル計算の検証を行った。また、人工衛星MODISとの比較を行い、エアロゾルや雲物理量の空間分布の検証を行った。

h 放射伝達モデルの開発

BCの放射影響を精密に評価するためには、BCの形状や混合状態の放射場への影響も評価する必要がある。そのため、放射伝達モデルに入力するための消散係数・単散乱アルベド・散乱位相関数について、任意の混合状態と形状を持ったBCの光散乱・吸収断面積・散乱位相関数を計算することが可能なコードを、離散双極子近似(Coupled Dipole Approximation: CDA)の理論に基づいて開発した。さらに、散乱・吸収・射出・境界条件を全て任意に設定可能な平行平面大気の放射伝達計算法について、離散化方位数をNとしたとき、計算量が従来では N^3 比例であったが、 N^2 比例となる方法を開発した。これは各大気層ごとに行う計算において、従来法ではN次元の行列の固有値($\sim O(N^3)$)や逆行列を求める($\sim O(N^3)$)のに対し、今回開発した方法は1回のN次元の行列積($\sim O(N^2)$)でよいためである。この方法は、離散化方位数が非常に大きい場合に従来法にくらべて高速になる可能性がある。

3) 全球・領域モデルの比較と放射強制力の推定

本課題ではIPCCでも用いられている2つの全球モデル（MRI-MASINGAR、MIROC-SPRINTARS）と詳細な微物理・化学特性を計算できる領域モデル（WRF-chem）を用いて研究を進めてきた。課題のまとめとして、3つの全球・領域モデルの比較を行い、モデル間のBC濃度や放射強制力の違いと考えられる要因について調べた。

MASINGARとSPRINTARSでは本課題で開発したBCのエイジングパラメタリゼーション¹⁾を用いている。計算は2009年の1年間の計算を行った。WRF-chemではBCの詳細な混合状態を考慮しており、凝縮・凝集過程による変質過程を陽に計算する²⁾。また、内部混合BCの光吸収量の増大（レンズ効果）を考慮している。WRF-chemの計算は2009年の4月の1ヶ月間についてアジア域を対象に行い、この領域・期間の3つのモデルの比較を行った。

4. 結果及び考察

(1) BC観測による領域モデルの検証

1) 観測とデータ解析

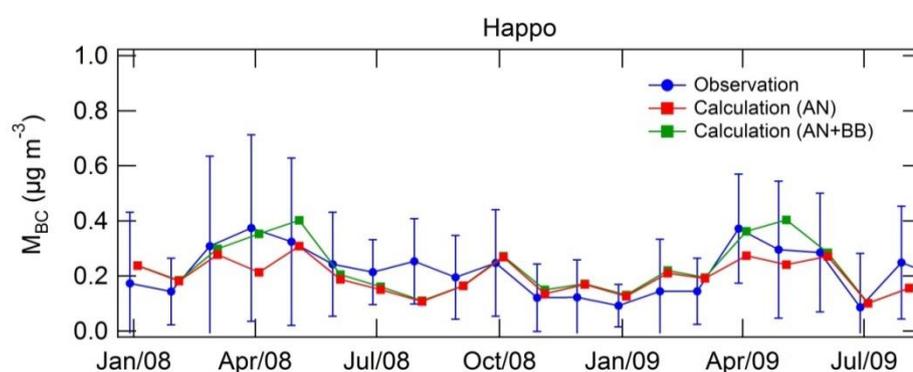
a 地上におけるBC濃度の長期変動の観測とデータ解析

沖縄県の辺戸岬、長崎県の福江島、長野県の八方、中国の北京・大連、台湾のルーリンに設置されているCOSMOS測定器のメンテナンス等が必要に応じて行い、連続的なBC濃度測定を継続している。これらのBCの観測網により、排出源近傍である中国の北京から排出源の下流にあたる辺戸・福江・八方までのBCの同時観測が可能となり、大気境界層内の輸送過程やその時間変動が明らかになることが期待される。また、台湾のルーリンは標高2000メートル超の山中にあり、主に中国南部・中央部からのBCの自由対流圏中の輸送を測定するのに適している。緯度分布（北緯20-40度程度）など東アジア域におけるBC濃度の広域的な変動過程に関する新たな知見が得られることも期待される

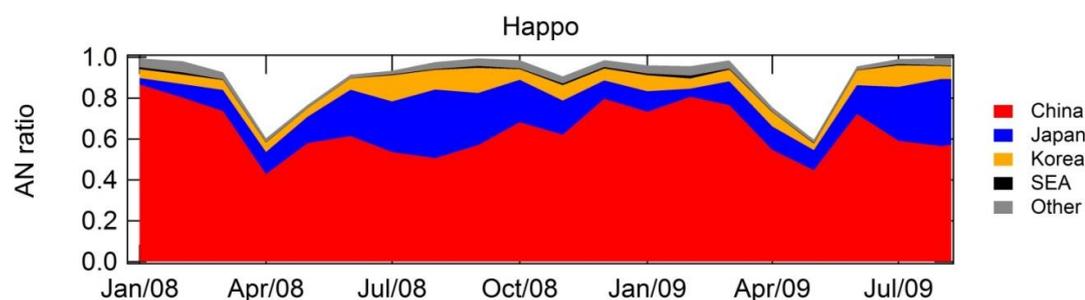
長野県の八方に設置されているCOSMOS測定器によって測定されたBC質量濃度を用いて、アジア大陸から西太平洋の自由対流圏に輸送されてくるBCの季節変動を明らかにした。八方は標高1800メートルの山岳地帯に位置し、東アジア域の自由対流圏のBC濃度を測定できる数少ない観測点の1つである。観測点近傍からの影響は極めて少なく、アジア大陸から自由対流圏を輸送されてきたBC濃度を測定可能である。本研究では、2007年8月から2009年8月までの2年間のデータを使用した。期間平均のBC濃度は $0.27 \mu\text{g m}^{-3}$ で、春季に最大となる季節変動を持つことが明らかとなった（図(1)-1）。期間中に観測されたBC濃度に占める中国北部の寄与は約67%であることが見積もられ、主要な発生源であることがわかった（図(1)-1）。

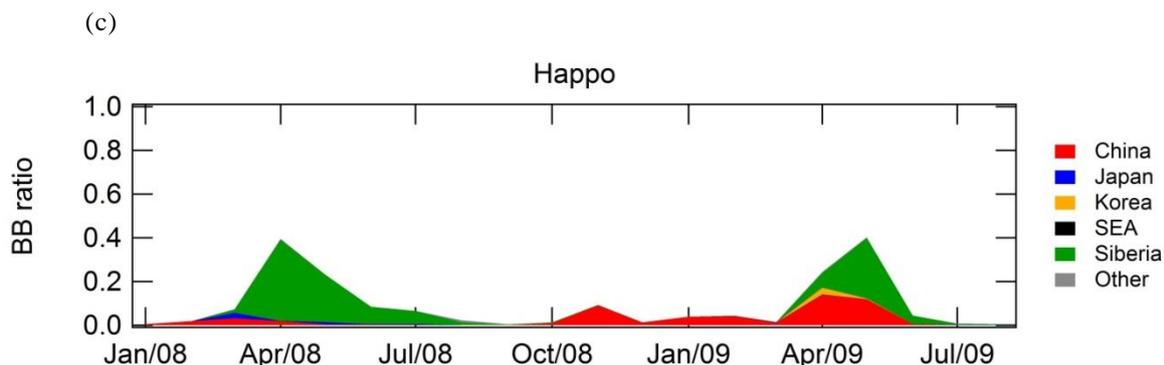
これらの結果をまとめ、Journal of Geophysical Research, Atmospheres (JGR-Atmospheres) に投稿・出版した³⁾。

(a)



(b)





図(1)-1 八方におけるBCの月平均値の変動

- (a)観測・数値モデル(CMAQ/PASCAL)結果の時系列図、
 (b)数値モデルによる化石燃料起源のBC濃度に対する発生源寄与、
 (c)数値モデルによる森林火災起源のBC濃度に対する発生源寄与

b 航空機観測を用いたBCの微物理特性の空間分布に関するデータ解析

BCの上方輸送過程と除去過程のメカニズム

A-FORCE-2009で測定されたBCとCO濃度のデータを用いて、降水に伴うBCの除去率を支配する要因を調べ、東アジア域におけるBCの上方輸送過程を明らかにした。

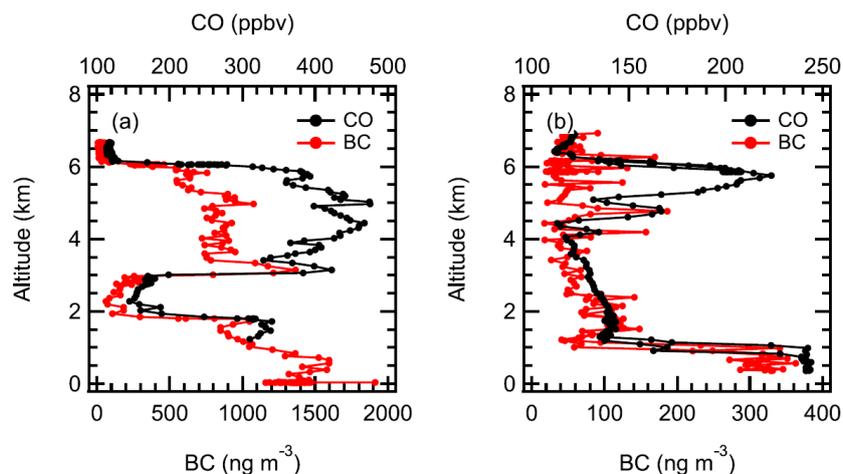
フライト8（2009年3月30日）では、黄海上の高度3-6 kmで、高濃度のCO（300 ppbv 以上）とBC（1000 ng m⁻³以上）が共に観測された（図(1)-2(a)）。これらの空気塊の後方粒跡線・気象場の解析から、観測された空気塊は、中国北東部の低気圧活動に伴い、約半日前に弱い降水活動を経て山東半島付近で上昇し、上空の西風によって輸送されたことがわかった。フライト19（2009年4月23日）では、東シナ海上の高度5-6 kmで、COが高濃度（200 ppbv 以上）であったにも拘わらず、BC濃度の増大は観測されなかった（100 ng m⁻³ 以下）（図(1)-2(b)）。これらの空気塊の後方粒跡線・気象場の解析から、観測された空気塊は、強い降水活動を伴う積雲対流活動により約1日前に中国華中地域で上昇し、上空の西風によって輸送されたことがわかった。

自由対流圏中で観測された空気塊中のBCの除去率と、空気塊が大気境界層から観測地点（フライトトラック）まで輸送される途中で経験した降水との関係を調べるために、高度2km以上で観測された空気塊の後方粒跡線（5日間）と領域気象モデル（WRF）で計算された降水量を組み合わせた解析を行った。ここで、数日間の時間スケールではCOは大気中から除去されないとみなせるので、観測されたBC濃度とCO濃度の比率（dBC/dCO：dは観測濃度とバックグラウンド濃度（数ヶ月程度の変動）の差分を意味し、数日スケールの汚染大気の影響を抽出する）の変化から、観測された空気塊中のBCの除去率を推定することができる。その結果、輸送中に多くの降水量を経験した空気塊ほど、空気塊中のBCの除去率が大きいことがわかった（図(1)-3）。また、中国華北地域で上昇した空気塊は、輸送中に経験した降水量が少なく、観測から推定されたBCの除去率は小さかった（図(1)-4(a),(b)）。一方、中国華中・華南地域で上昇した空気塊は、輸送中に経験した降水量が多く、BCの除去率は大きかった（図(1)-4(a),(b)）。A-FORCE観測期間中（2009年3月20日－4月30日）の対流圏下層において、華南・華中地域では、南方からの暖かく湿った空気が顕

著に流入していたのに対し、華北地域では、暖かく湿った空気の流入がみられなかった。このような下層における水蒸気量の違いが、華南・華中地域と華北地域での降水量の違いを生んでいた。また、華南・華中地域では主に積雲対流活動と低気圧活動に伴い、空気塊が上方輸送されていたのに対し、華北地域では主に低気圧活動に伴い、空気塊が上方輸送されていた。

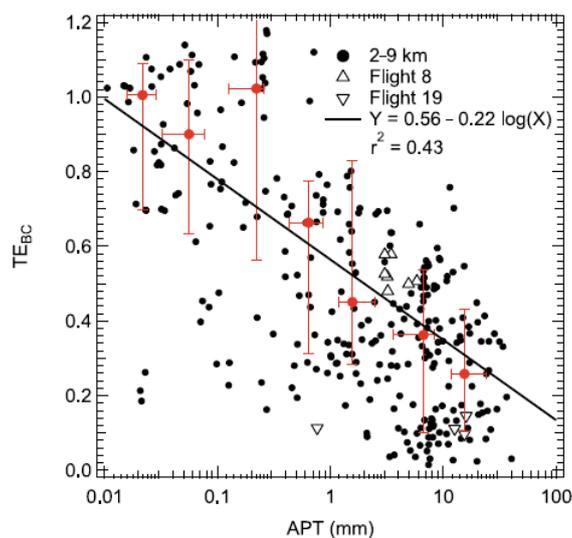
このように、自由対流圏の空気塊中の降水に伴うBCの除去率は、主に空気塊が輸送中に経験する降水量によって支配されることが示された。春季東アジア域では、下層における水蒸気の供給量と低気圧や積雲対流活動に伴う上方輸送過程が、降水活動の強度、及びBCの除去率を決めており、BCの広域空間分布を決定する上で重要な役割を果たしていたことが示された。

これらの結果をまとめ、JGR-Atmospheresに投稿・出版した⁴⁾。

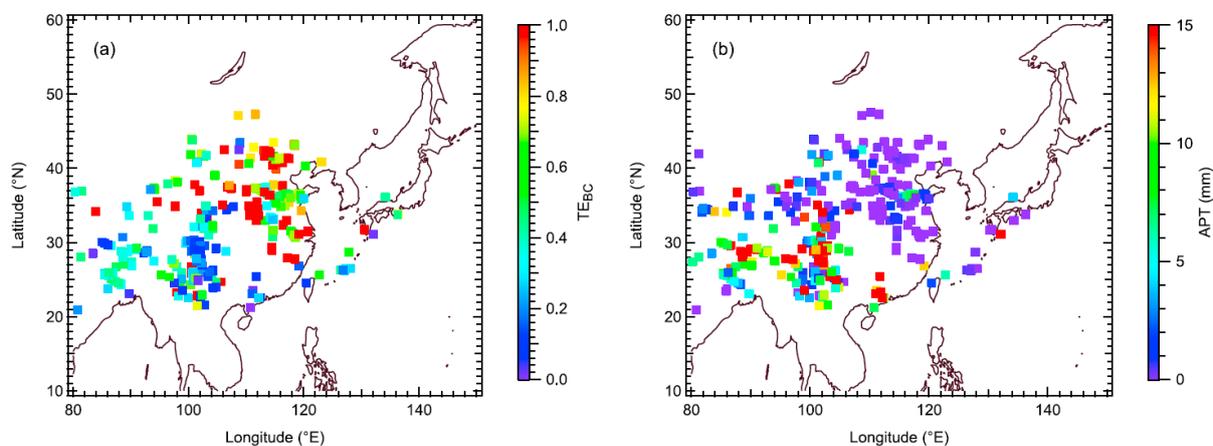


図(1)-2 A-FORCE航空機観測中のBCとCOの鉛直プロファイルの例

(a)フライト8 (2009年3月30日、黄海上空)、(b)フライト19 (2009年4月23日、東シナ海上空)



図(1)-3 A-FORCE航空機観測中のBCの輸送効率 (TE_{BC}) と輸送中に経験した降水量 (APT) の相関

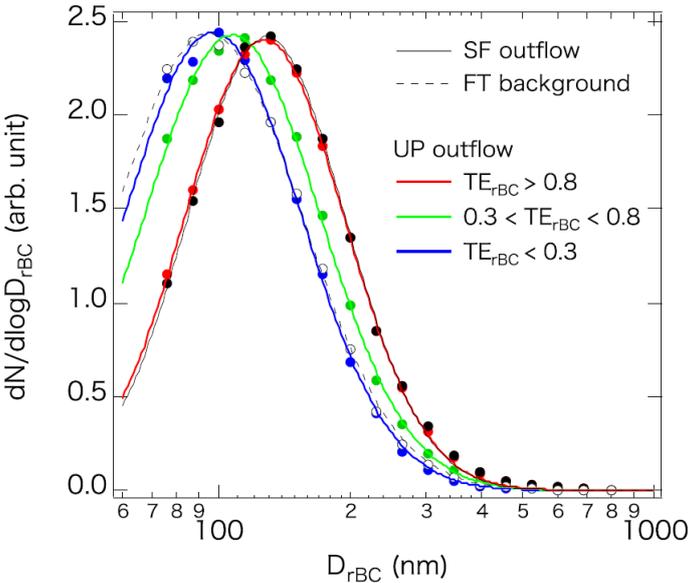


図(1)-4 A-FORCE航空機観測中の観測した空気塊の上昇領域の分布
色は(a)BCの輸送効率 (TE_{BC}) と(b)輸送中に経験した降水量 (APT) を示す

上方輸送過程と除去過程に伴うBCの粒径分布の変動

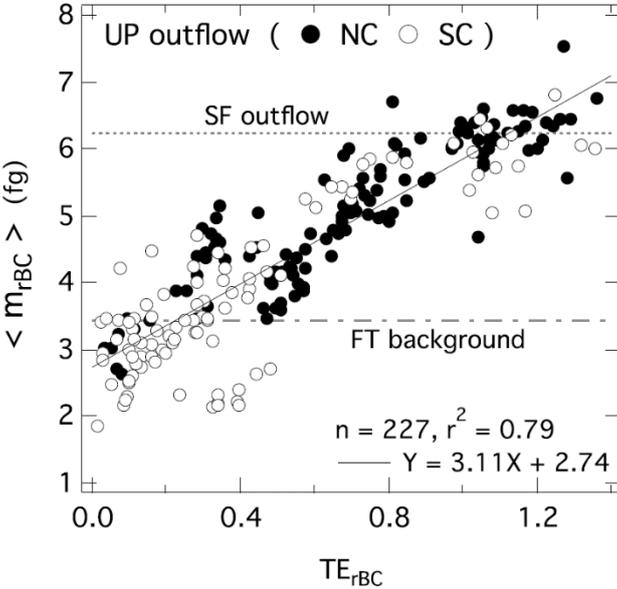
境界層内から自由対流圏に輸送される汚染空気塊に着目し、BCの粒径分布と降水による除去過程と対応を調べた結果、BCの輸送効率が小さくなる（降水による除去率が增大する）につれて、BCの粒径分布が小さくなっていくことが明らかとなった（図(1)-5）。また、BCの輸送効率とBC単粒子の平均質量（粒径分布の指標）の相関は非常に良く（図(1)-6）、降水によって粒径の大きなBCから選択的に除去されることが示された。これらの結果は降水による除去過程が自由対流圏のBCの粒径分布を決定する上で重要なメカニズムであることを示唆している。アジア域におけるBCの微物理特性と降水による除去過程を結びつけた初めての結果であり、非常に有用な知見である。

これらの結果をまとめ、Geophysical Research Letters (GRL) に投稿・出版した⁵⁾。



図(1)-5 5つの空気塊のタイプにおけるBCの粒径分布

SF outflowは境界層内を降水による除去過程なしに輸送されてきた汚染空気塊、FT backgroundは自由対流圏を輸送されてきた清浄空気塊、UP outflowは中国の排出源の影響を受け、境界層から自由対流圏に輸送されてきた汚染空気塊を示す。色はBCの輸送効率による違いを示す。



図(1)-6 BCの輸送効率と単位粒子あたりのBC質量の相関
NCは中国北部（北緯33度以北）、SCは中国南部（北緯33度以南）を示す

c 雨水中のBC濃度と粒径分布の測定

超音波式ネブライザー (Ultrasonic nebulizer, USN) とSP2を組み合わせることによって、少量 (数mL) の雨水から再現良くBCの質量濃度を測定可能な方法を開発した。

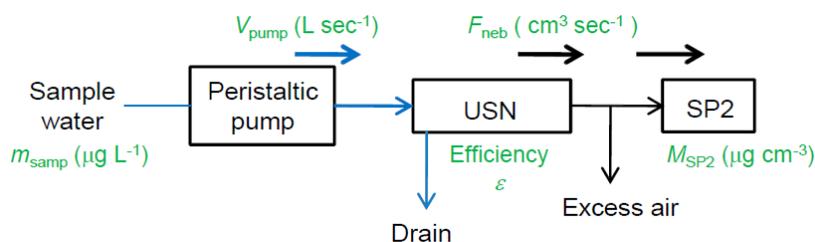
測定法の概略図を図(1)-7に示す。まず採取された雨水はペリスタルティックポンプにより一定の体積流量でUSNへと送られ、霧状の微小な液滴が一定の個数濃度で発生する。雨水中の成分は個々の液滴に含まれている。その後140℃に加熱した配管内において、個々の液滴中の水と揮発性成分は気流中で蒸発し、不揮発性の核として残った粒子がSP2へと導入される。SP2によりBCが選択的に検出され、個々のBCの粒子の質量が測定される。BCを一定の質量濃度で分散させた標準溶液を用いて、測定法の校正を行った。雨水中のBC濃度に近い様々な濃度の標準溶液を用意し測定を行った結果、この手法によって検出される雨水中のBCの質量割合 (USNの粒子化効率) ϵ の値は約11%と求まった。 ϵ の雨水中のBC濃度依存性、ネブライザーに送り込まれる雨水の流量依存性、粒子粒径依存性、水溶性物質濃度への依存性を調べるテストを行い、 ϵ の安定性を確かめた。この ϵ を用い、雨水中のBC濃度は40%程度の不確実性で求めることができる。1回の測定に必要な雨水試料は5 mL以下である。

確立した測定法を用い、東京で降水イベント中の雨水中のBC濃度を高時間分解能 (~数分) で測定した (2010年7月9日、7月13日、12月3日、12月8日)。一方沖縄では、2010年4月から2013年3月までの3年間にわたり、沖縄本島の北端に位置する辺戸岬において1日毎に雨水を採取し、雨水中のBC濃度を長期的に観測した。東京はBCの放出の多い大都市地域であり、雨水中に含まれるBC濃度は東京近郊でのBC排出量の影響を強く受けていると考えられる。一方、沖縄の辺戸岬は付近に大きなBC排出源はなく、採取された雨水中のBC濃度は中国大陸から輸送されたBCの影響を受けていると考えられる。

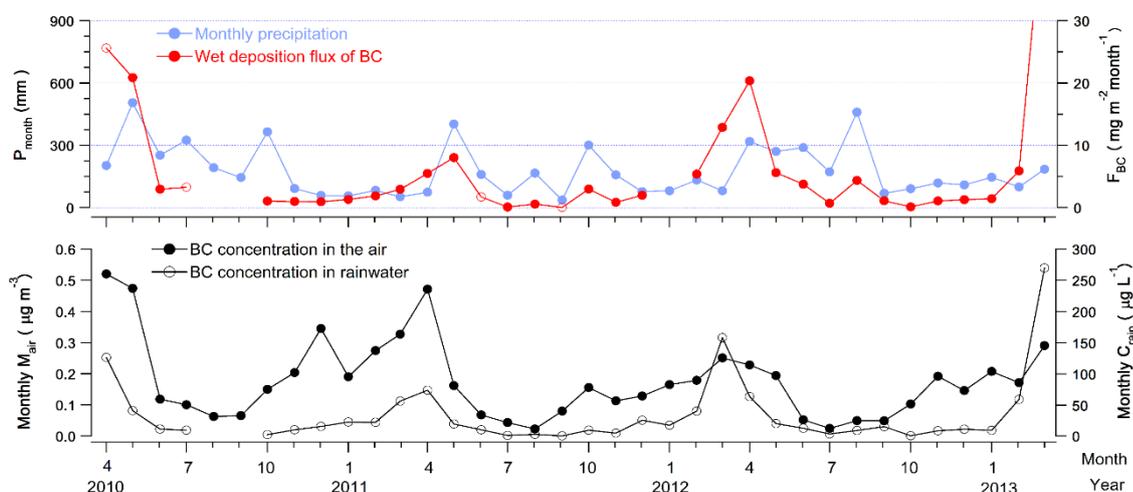
東京で行った4つの降水イベント全てについて、降り始めの最初の数分間の雨水に最も高濃度のBCが測定された。全イベントの平均BC濃度は $13.8 \mu\text{g L}^{-1}$ であり、降り始めの雨水には各平均濃度の5.1倍のBCが含まれていることがわかった。この原因として、1) 雨の降り始めにCCNとして働きやすいBCが除去されること、2) あるいは雨の降り始めは地表大気湿度が低く、落下雨滴の蒸発が進行し濃度が高くなる可能性として考えられる。

辺戸における大気中のBC濃度、雨水中のBC濃度、BCの沈着量を調べた。その結果、大気・雨水中の平均BC濃度は春季 (3-5月) が最も高く ($0.32 \pm 0.13 \mu\text{g m}^{-3}$ and $92 \pm 76 \mu\text{g L}^{-1}$)、夏季 (6-8月) が最も低い ($0.06 \pm 0.03 \mu\text{g m}^{-3}$ and $8.0 \pm 4.1 \mu\text{g L}^{-1}$) という明瞭な季節変化が得られた。(図(1)-8)。また、大気中のBC濃度と雨水中のBC濃度の月平均値は良い相関を持っていることも明らかとなった。観測期間中のBCの湿性沈着量は $65.5 \text{mg m}^{-2} \text{yr}^{-1}$ であり、そのうち約77%が春季に沈着していた。これは春季に雨水中のBC濃度が相対的に高く、かつ降水量も多かったためである。

これらの結果の一部を、Aerosol Science and Technologyに投稿・出版した⁶⁾。



図(1)-7 雨水中のBC濃度の測定法の概略



図(1)-8 辺戸における降水量とBC沈着量（上図）、大気中と雨水中のBC濃度（下図）の月変化

d エアロゾルの数濃度とエアロゾル-雲相互作用に関するデータ解析

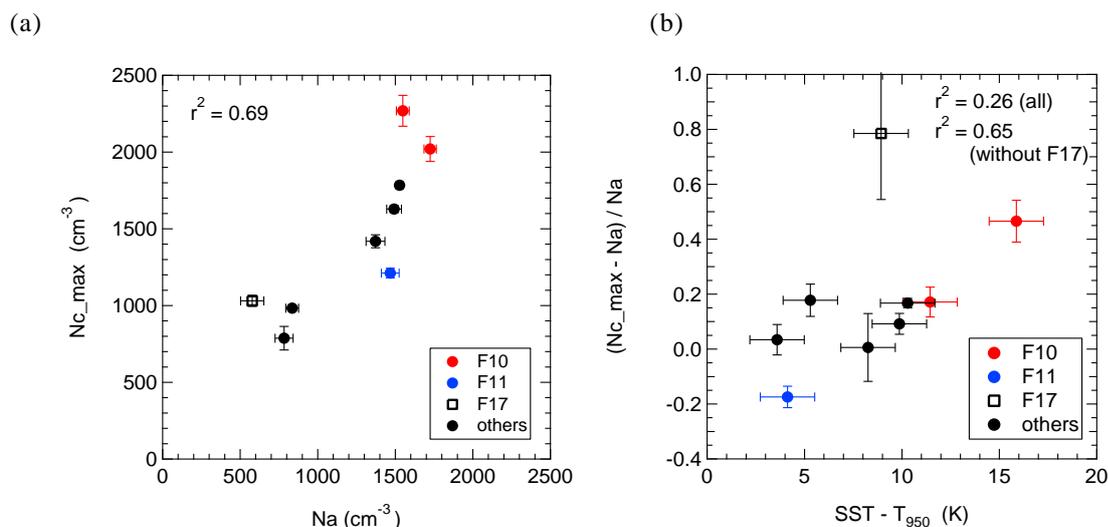
A-FORCE-2009観測ではエアロゾルと雲の数濃度が同時に測定され、東シナ海と黄海上空の層積雲・層雲を対象とした9回のマヌーバ観測が行われた。まず、雲微物理特性を測定したCAPS 測定装置の測定の妥当性および検出粒径や検出領域などのキャリブレーションを実施した。また、A-FORCE の観測データから、原理が異なる2つの測定器（粒径分布の積算法とホットワイヤーによる総量測定法）で得られた雲水量が誤差の範囲で一致しており、測定器が正常に動作していたことを確認した。

次に、マヌーバで得られた雲底下でのエアロゾル数と雲中での雲粒数の関係を調べた。この結果、雲底下の蓄積モードエアロゾル数濃度（粒径130–2500 nm）と雲粒数濃度の間には正の強い相関があることがわかった（図(1)-9(a)）。この蓄積モードエアロゾルの増大は、汚染大気（燃焼過程）の指標となる一酸化炭素（CO）濃度と正の相関があった。雲底下の空気塊のトラジェクトリー解析の結果から、高濃度のCO（250 ppbv 以上）を含む空気塊は大陸から短時間（48 時間以内）で観測地点まで輸送されており、このようなケースで観測された雲の微物理特性は人為的な汚染大気の影響を強く受けていたことが示唆された。エアロゾル数濃度と雲粒数濃度の強い相関は、層雲・層積雲の雲底付近の雲粒数濃度の変化は、主として雲底下に存在するエアロゾル数濃

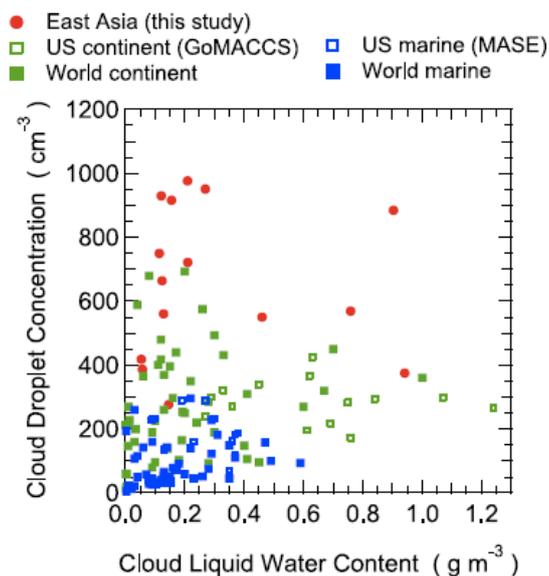
度の増減により引き起こされていることを示唆している。一方、エアロゾル数濃度と雲粒数濃度の相関関係にばらつきをもたらす要因として、地表付近における大気安定度（海表面温度と950 hPaにおける温度の差）が上昇流速度の変化を通じて重要な役割を果たし得ることが明らかとなった（図(1)-9(b)）。海表面温度と下層大気温度差は境界層の構造や境界層内に発達する雲のマクロな特徴（雲底高度や雲層厚）に影響することは知られていたが、雲物理へも影響していることが明らかとなった。西太平洋は黒潮という暖水が存在するため、アジア大陸からの寒気の吹き出しは、高濃度の人為的なエアロゾルを輸送するとともに、海表面との大きな温度差による上昇流の増加により雲粒数濃度が効果的に増大していることが示唆された。

最後に、今回観測した東シナ海・黄海における層雲・層積雲の微物理特性を、過去に世界各地で観測された雲のものと比較した。その結果、本研究で観測された雲の雲粒数濃度は、過去の航空機観測で報告されている海洋性雲の5倍、大陸性雲の2倍程度も高いことがわかった（図(1)-10）。これは今回同時観測された高濃度の蓄積モードエアロゾル数や、過去に朝鮮半島沖の済州島観測所で観測された高濃度のCCN数と整合的であった。本研究の雲粒数濃度が高いことと整合的に、同じ雲水量で比較した場合、本研究で観測された雲粒有効直径は過去の観測結果よりも小さいことがわかった。人為起源のエアロゾルによって2009年の4月に東シナ海上空の雲のアルベドが14%増大し、その結果として -5.7 W m^{-2} の放射強制力があると推定された。

これらの結果をまとめ、JGR-Atmospheresに投稿・出版した⁷⁾。



図(1)-9 A-FORCE航空機観測中の (a) 雲底直下の蓄積モードエアロゾルの数濃度 (N_a) と雲底直上の雲粒数濃度 (N_{c_max}) の関係、(b) 海表面温度 (SST) と高度950 hPaの気温 (T_{950}) の差と雲粒数濃度の増大率の関係

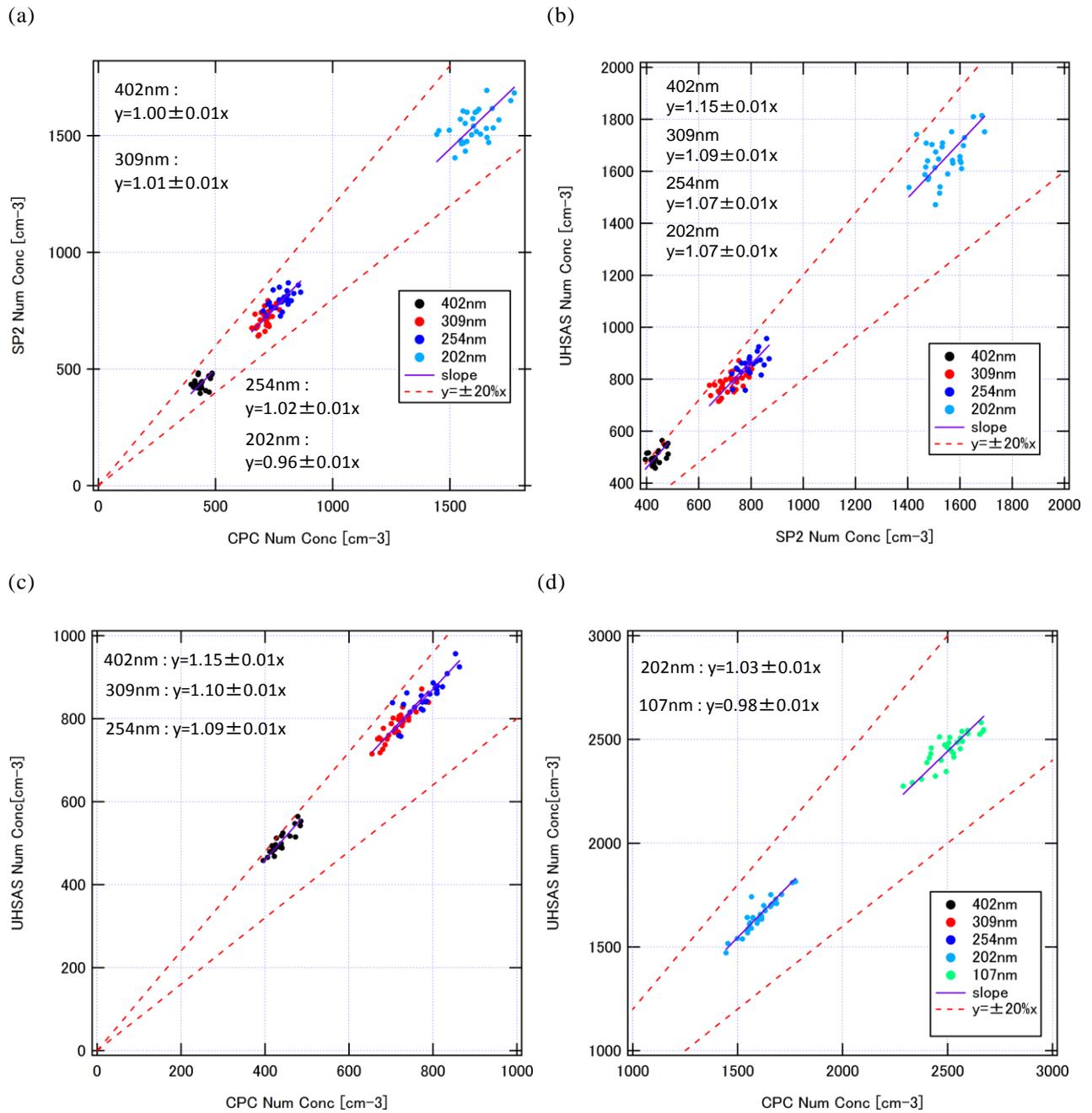


図(1)-10 A-FORCE航空機観測（赤）と過去の航空機観測で報告されている海洋性雲（青）と大陸性雲（緑）の雲粒数濃度

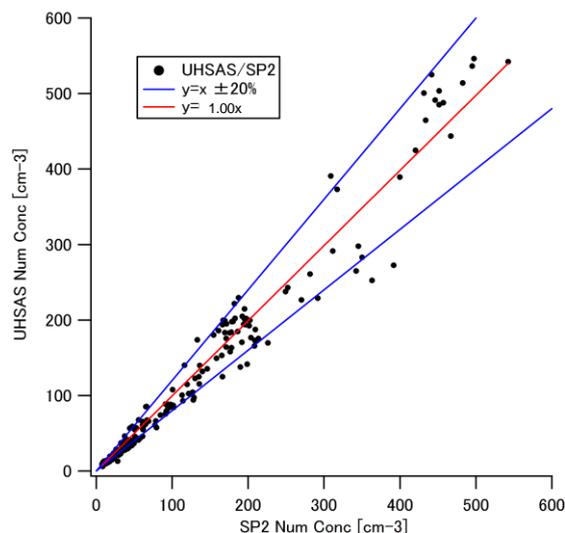
e エアロゾルの数濃度・粒径分布測定装置の開発・改良

UHSASの導入・改良およびその性能評価と航空機観測への適用を行った。まず、実験室にてポリスチレンラテックス粒子を用いて、CPCやSP2と数濃度の比較を行った。UHSASはCPC、SP2に対して過大評価が見られるが、その機差は10~15%ほどで、UHSAS、CPC、SP2の3装置間において高い整合性が見られることが分かった（図(1)-11）。

2012年2月に東アジア域で行ったテストフライトにおいて、SP2の計測範囲である200~850nmの粒径範囲においてUHSASとSP2の数濃度を比較したところ、±20%で一致した（図(1)-12）。大気中では、様々な屈折率や形状を持つ粒子が大気中に存在していることやレーザー中のBCの加熱による光散乱性エアロゾルの蒸発の影響から、このような機差が生じたと考えられる。エアロゾルの鉛直分布については、散乱性エアロゾル、BCともに高高度ほど平均粒径が小さくなる傾向が見られた。BCの輸送効率が高高度ほど減少していることから推察すると、このサイズ分布の高度依存性は、鉛直輸送過程で雲凝結核能の大きな粒子が選択的に湿性除去によって大気中から取り除かれたためと考えられる。



図(1)-11 (a) CPCとSP2、(b)SP2とUHSAS、(c, d)CPCとUHSASの数濃度比較



図(1)-12 UHSASとSP2の数濃度比較（航空機観測）

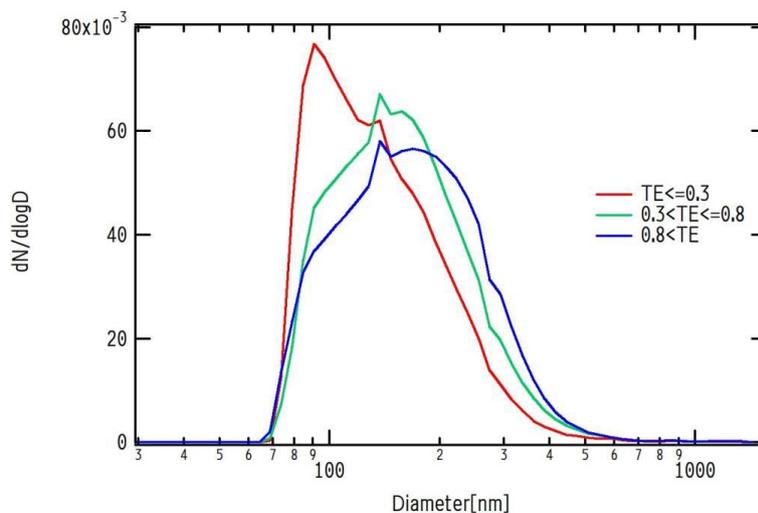
f 東アジア域における航空機観測の実施（A-FORCE-2013W、A-FORCE-2013S）

A-FORCE-2013WおよびA-FORCE-2013Sで得られた測定結果を用い、BCの微物理特性（質量濃度・形状・混合状態・粒径分布）に関する解析を開始している。2009年の観測時に比べ、新たな装置の導入や従来の装置の大幅な改良を行ってきており、これまでにはない新たな知見が得られることが期待される。

g UHSASを用いた東アジア域のエアロゾルの粒径分布の解析

A-FORCE-2013Wの結果として、UHSASを用いた粒径分布の解析結果を示す。粒径分布は高度上昇に伴い粒径が小粒径側にシフトする傾向が明らかとなった。また、湿性除去の指標であるBCの輸送効率（TE: Transport Efficiency）をBC質量濃度とCO濃度から算出したところ、高度上昇に伴い湿性除去をより強く受ける傾向が観測された。また、この湿性除去の指標と粒径分布の関係も、湿性除去を受けるほど粒径分布が小粒径側にシフトすることが明らかになった（図(1)-13）。

高度と湿性除去のどちらが粒径分布に対して支配的な要因であるかを判断する為、各高度における粒径分布をTEごとの値により区分したところ、粒径分布の傾向はどの高度においても湿性除去の度合いに依存しており、かつ同一TEの区分において粒径分布の形状はよく一致していた。この結果は粒径分布の高度依存性のメカニズムは湿性除去であることを示唆しており、湿性除去がエアロゾルの粒径に依存することを初めて観測的に明らかにした。



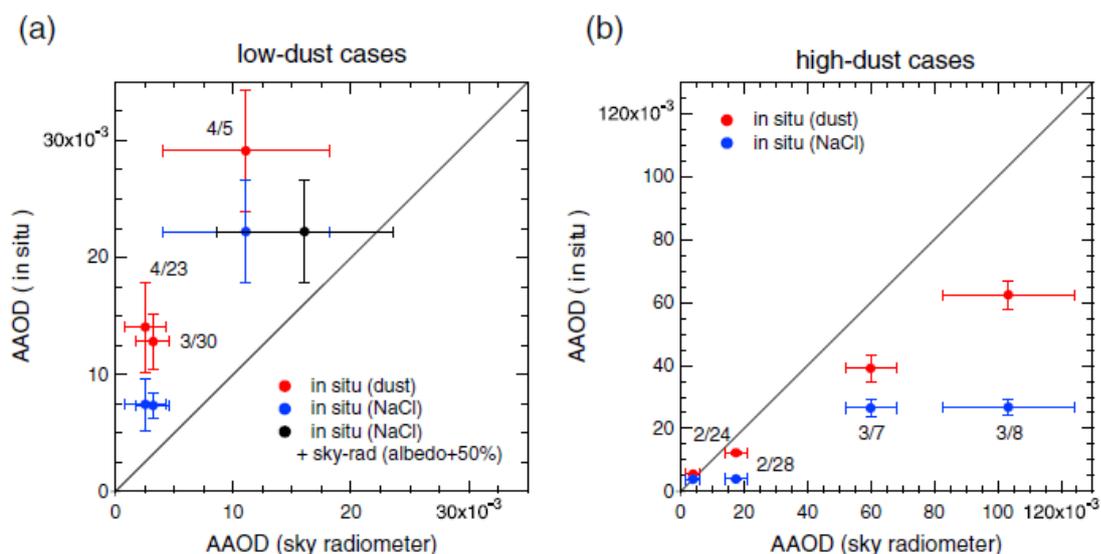
図(1)-13 A-FORCE-2013W観測における平均的なエアロゾルの粒径分布：輸送効率（TE）について0.3以下、0.3-0.8, 0.8以上の3つに区分

h 東シナ海におけるBCの質量濃度と光吸収量のクロージャー

A-FORCE-2009とA-FORCE-2013Wでは、福江上空において合計7回にわたってエアロゾルの鉛直分布（SP2）の観測とスカイラジオメーターによる放射パラメータの観測が同時に行われた。SP2の粒径分布・混合状態から理論計算したAOD, AAODとスカイラジオメーターによって観測したAOD, AAODの比較を行い、エアロゾル・BCの微物理パラメータと放射パラメータの整合性を調べた。

AODについてはSP2からの理論計算とスカイラジオメーターの観測は良い一致が得られた（ $12 \pm 18\%$ ）。一方、AAODに関しては2つの結果は2倍以上異なるケースもあり、粗大粒子のダストの濃度が低いときはスカイラジオメーターの方がSP2の理論計算に比べて低い値となり、ダストの濃度が高いときはスカイラジオメーターが高い値となる結果が得られた（図(1)-14）。また、この値は粗大粒子の化学組成やスカイラジオメーターの測定時に仮定する地表アルベドに対して大きな感度を持つことが明らかとなった。これらの結果はAAODの観測には大きな不確定性があることを示している。

これらの結果をJGR-Atmospheresに投稿・出版した⁸⁾。



図(1)-14 福江におけるSP2とスカイラジオメーターの同時観測結果によって得られたAAODの相関図：横軸がスカイラジオメーターによる観測値、縦軸がSP2によって観測された粒径・混合状態を用いて理論計算した値

2) 領域モデルの開発と検証

a BCの排出量および発生源寄与の推定

辺戸における2008年2月から2009年5月までのBCとCOの測定結果を使用した。BC濃度は中国北部（北緯33度以北）からの影響を強く受けた冬季と春季に最大である。本研究では、Zhangらによって作成された2006年の東アジアにおける人為起源BCの排出量を用いて、同期間のWRF-CMAQの計算を行った。モデル計算から見積もったBCの輸送効率と観測されたBCとCOの比率（dBC/dCO比）を用いて、降水による除去過程の影響を受けなかった空気塊を選別した。モデル計算は中国の影響が強い冬季と春季の観測BC濃度を概ね再現した。モデル計算結果から、中国全域からのBCの排出量は1.92 Tg yr⁻¹、その不確定性幅は40%と見積もられた。この値はZhangらによってボトムアップ的に見積もられた中国からのBC排出量1.81 Tg yr⁻¹と非常に近く、その絶対量の妥当性が検証された。一方、従来のBC排出量の不確定性（200%）に比べて本研究の見積りの不確定性は非常に小さく、その不確定性を大幅に減少することができた。

b BC濃度の空間分布の検証

A-FORCE-2009観測とWRF-CMAQモデルの計算結果を比較した結果、モデルは観測されたBC濃度の高度分布をやや過大評価したが、高度分布の相対的な変化をよく再現した（図(1)-15a）。また、モデルはBCの輸送効率の高度分布を良い精度で再現した（図(1)-15b）。

検証されたモデル計算結果を用いて、春季東アジア域（2009年3月20日－4月30日）におけるBCの上方輸送過程について調べた。高度700hPa面におけるBCの上向き質量フラックスを調べたところ、中国華北域と中国華中内陸域において、フラックスの極大値がみられた。これらのフラックスを平均項（40日間平均）と擾乱項（40日間平均からの偏差）とに区別して解析をした結果、中

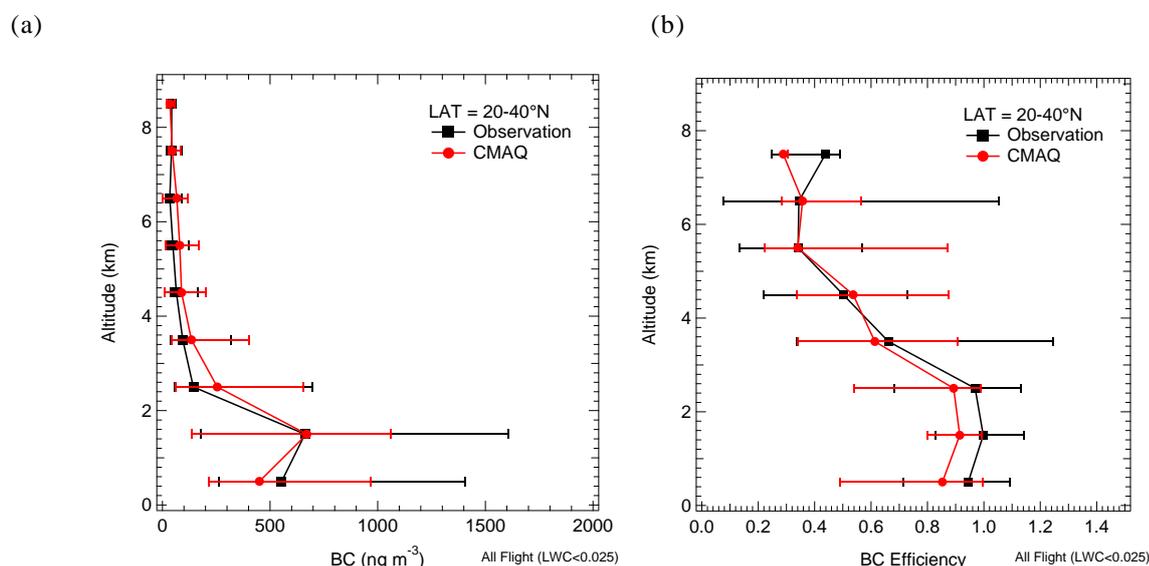
中国華北域の上方輸送では擾乱項が卓越し、中国華中内陸域の上方輸送では平均項が卓越した。中国華北域では主に低気圧活動に伴いBCが上方輸送されていたのに対し、中国華中内陸域では主に地形性の上昇流に伴いBCが上方輸送されていたことが明らかとなった。

期間積算したBCの湿性沈着量の空間分布は、期間平均した降水分布と良い対応をしていた。またBCの湿性沈着量は、中国華中内陸域において最大であった。期間平均したBCの輸送効率率は、中緯度域（北緯35-45度）で高く、亜熱帯域（北緯25-35度）で低かった。これらの結果から、中国華北域ではBCは効率的に上空へ輸送（約20%のBCが除去）されていたのに対し、中国華中内陸部では半分程度のBCが降水に伴い大気中から除去され、残り半分程度のBCが上空へ輸送されていたことが示唆された。

東経140度面におけるBCの東向き質量フラックスについて調べた結果、中緯度域の下部対流圏中と亜熱帯域の中部対流圏中において、フラックスの極大値がみられた。中緯度域で東方へ輸送されたBCは主に中国北部起源であったのに対し、亜熱帯域で東方へ輸送されたBCは主に中国南部起源と南・東南アジア起源であることが明らかとなった。

本研究期間中の下部対流圏において、中国南部では南方からの暖かく湿った空気が流入し降水量が多かったのに対し、中国北部では暖かく湿った空気の流入がみられず降水量が少なかった。春季東アジア域では、降水活動の強度と低気圧・積雲対流活動や地形性の上昇流に伴う上方輸送過程が、BCの輸送効率や上空への輸送量を決めており、BCの広域的な空間分布を決定する上で重要な役割を果たしていた。

これらの結果をJGR-Atmospheresに投稿・出版した⁹⁾。



図(1)-15 A-FORCE航空機観測で測定された(a)BC濃度と(b)BCの輸送効率の鉛直分布
(中央値と67%レンジ)

c タグ付き3次元領域モデルの開発と検証

BCを含むエアロゾルの排出源領域や輸送中にエアロゾルが経験する微物理過程の寄与を追跡計算できるタグ付きモデル (Process, age, and source region chasing algorithm, PASCAL) を開発し、

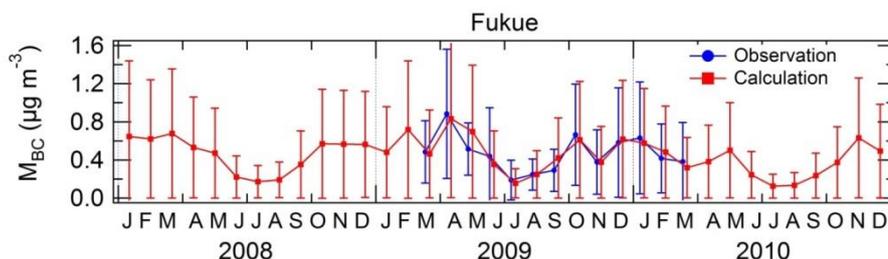
領域3次元化学輸送モデルCMAQに導入した。PASCALでは新たなタグを用いて、エアロゾルとその前駆気体の排出源領域の寄与、排出からの時間、輸送中に経験する物理化学過程を各計算格子・時間について追跡する。この手法には、計算効率が良く、大気中での化学反応など非線形性を持つ過程に影響されないという利点がある。このアルゴリズムの検証が全てのタグについて行われ、その妥当性が確かめられた。この手法は、将来のエアロゾルや微量気体成分の排出量の効率的な対策を行う上で非常に有用なツールとなり得る。

このアルゴリズムを用いたWRF-CMAQ/PASCALモデルをアジア域に適用した。計算は2008年1月から2010年12月までの3年間について行った。モデル計算は、地上で観測されたBCの季節変動やA-FORCE-2009観測のBCの鉛直分布の構造を概ね良く再現した(図(1)-16)。また、このモデル計算の結果を用い、観測されたBCに占める各排出源領域や排出プロセス(化石燃料の燃焼、森林火災等)を明らかにした。

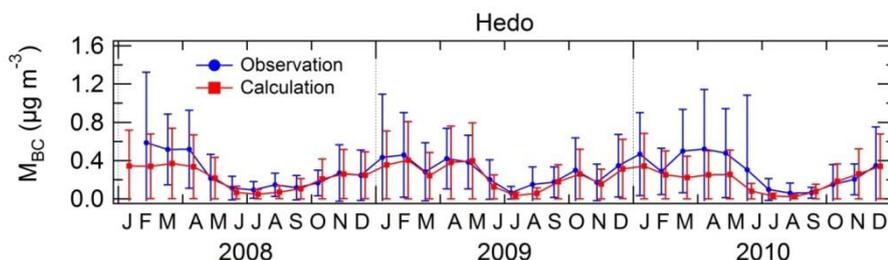
このモデルを用い、BC濃度の空間分布や太平洋上の輸送過程の季節変動を明らかにした。また、太平洋上(東経150度)の東向きフラックスの緯度・高度分布とその季節変動およびそれらに占める発生源寄与などを評価した。BCの東向きフラックス、輸送効率は春季が最も高く(26 kg s^{-1} , 33%)、夏季に最小(8 kg s^{-1} , 20%)となることが明らかになった(図(1)-17)。また、東経150度における東向きフラックスに占める発生源の寄与(3年間の平均)は、中国の人為起源排出が61%、東南アジア域のバイオマスバーニングが17%、シベリア域のバイオマスバーニングが6%であると見積もられた。

これらの結果をJGR-Atmospheresに投稿・出版した¹⁰⁾。

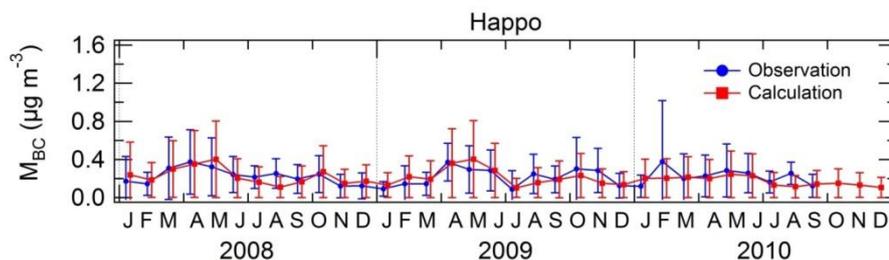
(a)



(b)

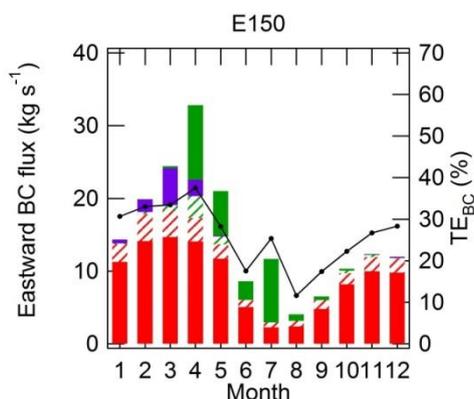


(c)



図(1)-16 (a)福江、(b)辺戸、(c)八方における観測と数値モデル計算によるBC濃度

■ Siberia BB ■ Southeast Asia and South China
■ China AN ▨ Other BB ▨ Other AN



図(1)-17 東経150度におけるBCの東向きフラックスの月変動とその発生源寄与

d BCの混合状態を表現したモデルの開発と検証

エアロゾルの粒径とBCの混合状態を表現した2次元ビンスキームを開発し、領域3次元気象化学モデルWRF-chemに導入した。この2次元ビンスキームではエアロゾルの乾燥直径(40 nm - 10 µm)が12ビン、BCの全エアロゾルに対する質量比(0-1)が10ビンで表現され、凝縮・蒸発や凝集といったエアロゾルの微物理過程およびそれに伴う粒径・混合状態の変化が120個のビン(12×10ビン)を用いて計算される。

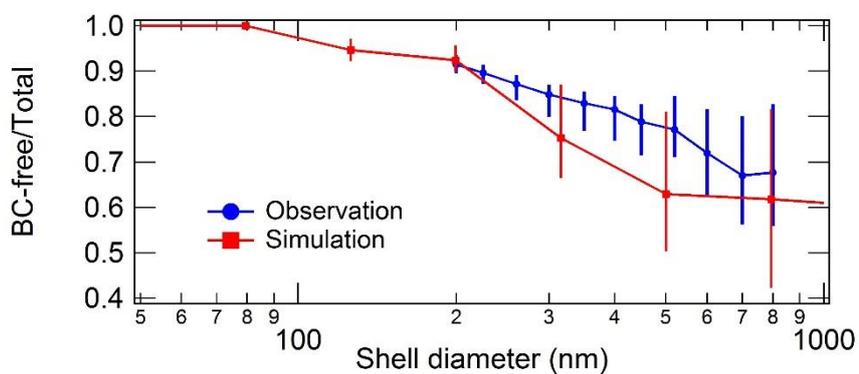
このBCの混合状態を解像したWRF-chemモデルを東アジア域の計算に適用した。計算はA-FORCE-2009期間の2009年3-4月の約1ヶ月間について行い、SP2によって観測されたBCの混合状態を用いて検証を行った。モデル計算は、観測されたBCの質量濃度・数濃度、散乱性エアロゾル(BCを含まないエアロゾル)の体積濃度・数濃度について、時間変動や鉛直分布を概ね再現した。また、BCを含む粒子数の全粒子数に対する割合、BC粒子に対する散乱性成分の被覆量(シェル・コア比)、それらの時間変動・粒径依存性など、観測されたBCの混合状態についてもその特徴を再現した(図(1)-18)。

本研究のモデルを用いて、詳細な混合状態を考慮した場合としなかった場合(従来のモデルのように各粒径について単一の混合状態を仮定)のエアロゾルの光学・放射特性の違いを明らかに

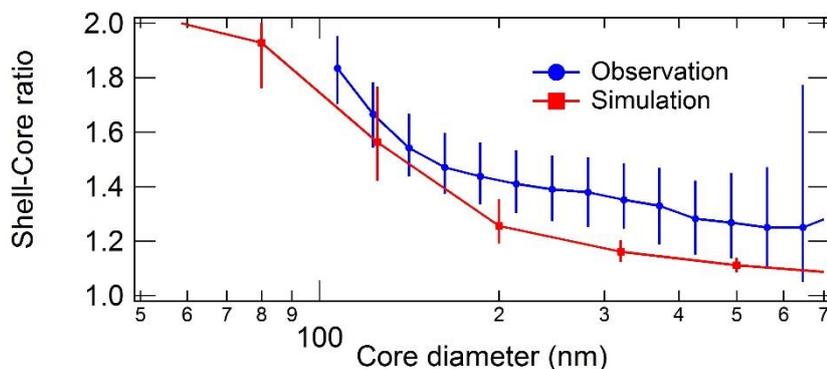
した。詳細な混合状態を考慮した場合に比べ、単一の混合状態を仮定した計算では大気境界層内の吸収係数や大気加熱率を30–40%程度過大推定すると見積もられた（東アジア全域の1ヶ月平均）（図(1)-19）。また、地上でのエアロゾルの放射強制力の絶対量を約10%（ 3 Wm^{-2} ）過大推定すると見積もられた。これらの結果は、BCの気候影響や温暖化対策を考える際に混合状態の取り扱いが非常に重要になることを示しており、それらを実大気中のBCの混合状態を表現可能なモデルによって評価することが強く望まれる。

これらの結果をまとめ、JGR-Atmospheresに投稿・出版した²⁾。

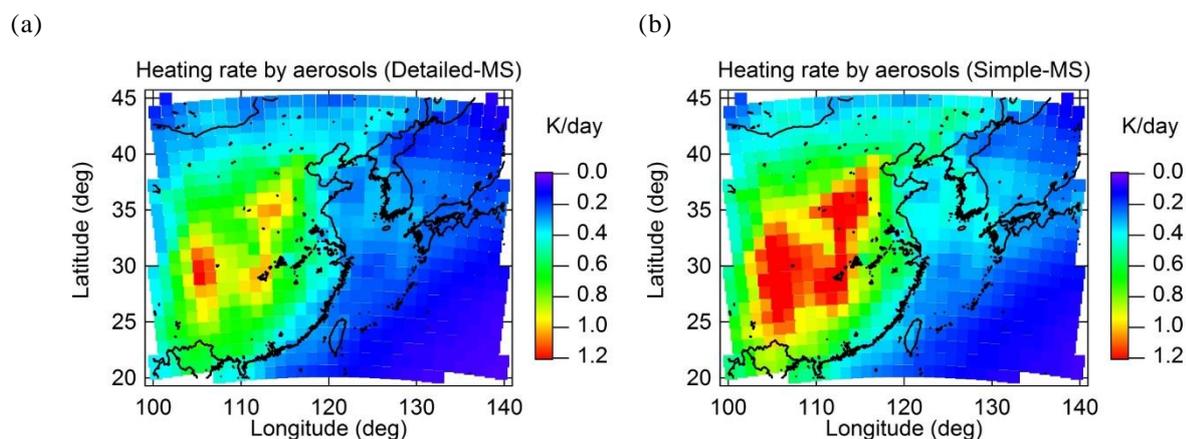
(a)



(b)



図(1)-18 A-FORCE-2009期間中の(a)BCを含む粒子数の全粒子数に対する割合、(b)BC粒子に対する散乱性成分の被覆量（シェル・コア比）の中央値と25-75パーセンタイル



図(1)-19 A-FORCE-2009期間中の高度約1kmにおけるエアロゾルの大気加熱率：(a)詳細な混合状態を考慮したモデル計算、(b)単一の（平均化した）混合状態を用いたモデル計算

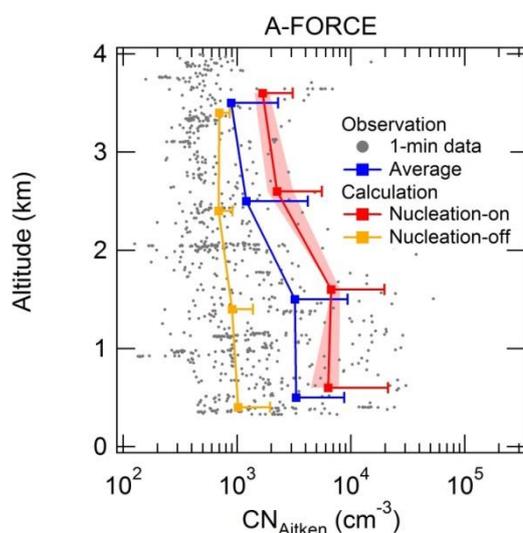
e エアロゾルの数濃度を詳細に計算する数値モデル開発と検証

新粒子生成（New particle formation, NPF）は大気中のエアロゾル数濃度およびCCN 数を決定する上で最も重要なプロセスの1 つである。本研究では、新粒子の生成と成長を理論的に計算する領域3次元モデル(NPF-explicit WRF-chem モデル)を作成した。本モデルではエアロゾルの粒径を直径1 nm から10 μm まで20 のビンにわけて表現し、近年提唱された粒子生成メカニズム (Activation-type nucleation mechanism) を用いた。NPF-explicit WRF-chem モデルを東アジア域に適用し、A-FORCE-2009観測との比較・検証を行った。

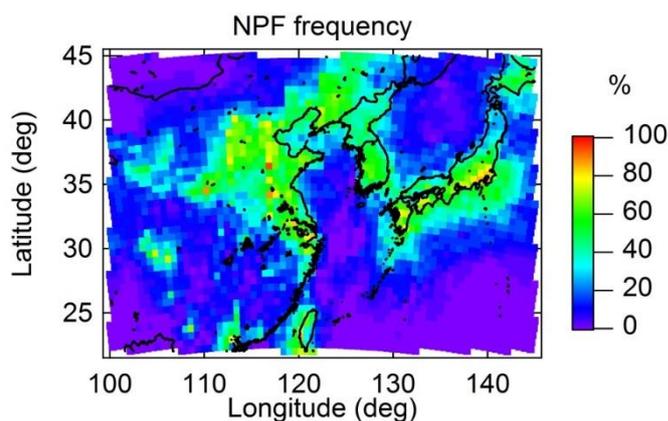
このモデルを東アジア域に適用し、A-FORCE航空機観測との比較・検証を行った。モデル計算は観測された粒子数濃度の鉛直分布などを概ね再現した（図(1)-20）。この鉛直分布は、新粒子生成を考慮しない感度実験では再現できず、大気境界層内や上部自由対流圏での新粒子生成の重要性を示している。

また、東アジア全域の新粒子生成の頻度やエアロゾル数・CCN数に対する重要性を調べた。その結果、東アジア域では新粒子生成の頻度に明瞭な南北コントラストがあり、北緯30-45度（中国北東部・韓国・日本の周辺域）では北緯20-30度に比べて約3倍も新粒子生成の頻度が大きいことが明らかになった（高度約1km）（図(1)-21）。硫酸ガス濃度とその前駆気体の二酸化硫黄の放出量の南北コントラストがこのような新粒子生成の頻度の南北コントラストを作り出す主要な要因であると考えられる。東アジア域の高度約1kmにおいて、新粒子生成のエアロゾル数（粒径10nm以上）とCCN数（過飽和度1.0%）に対する寄与はそれぞれ44%と26%と見積もられた。

これらの結果をまとめ、JGR-Atmospheresに投稿・出版した¹¹⁾。



図(1)-20 A-FORCE航空機観測中のエアロゾル数濃度（粒径10nm以上）の鉛直分布：青は観測、赤はモデル計算、橙は新粒子生成をオフにしたモデル計算結果



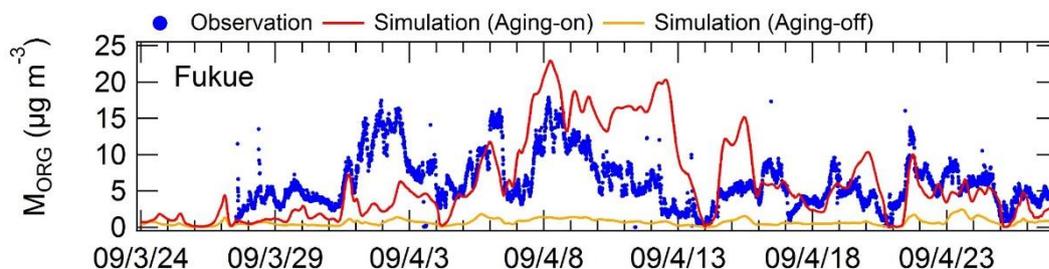
図(1)-21 A-FORCE-2009期間中の高度約1kmにおける新粒子生成が起こった日にちの頻度

f 有機エアロゾルモデルの開発と検証

東京周辺域（埼玉・騎西、2004年7-8月）および東アジア域の下流域（長崎・福江島、沖縄・辺戸岬、2009年3-4月）においてエアロゾル質量分析計を用いて行われたOA観測結果との比較を行った。VOC・S/IVOCの酸化過程を考慮したVBSモデルの計算は、観測されたOA・SOAの質量濃度や時間変動を概ね再現することに成功した（図(1)-22）。一方、S/IVOCおよびそれらの酸化過程を考慮しない計算（従来型のOAモデル）では観測されたOA・SOAの質量濃度を80~90%も過小推定する結果が得られた。アジア全域では、酸化過程を考慮することによってOA質量濃度が $0.24\mu\text{g}/\text{m}^3$ から $1.28\mu\text{g}/\text{m}^3$ へと大幅に増大した（2009年3~4月平均、高度約1km）。これらの結果は、これまで考慮されてこなかったOAの前駆気体や酸化機構がアジア域の現実的なOA・SOAの質量濃度や時間変動を表現する上で重要になることを示している。

次に、OA生成における人為起源・自然起源発生源の相互作用を調べた。その結果、人為起源のVOC・S/IVOCの酸化過程は、人為起源VOC・S/IVOCからのOA生成だけでなく、自然起源VOC・

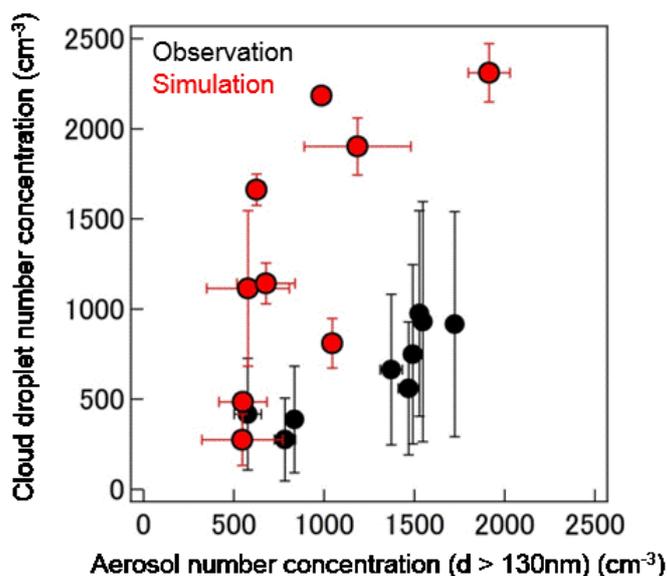
S/IVOCからのOA生成も大幅に（約50%）増大すると見積もられた。この結果は、全球で主要な割合を占めると考えられている自然起源SOAの濃度を精度よく計算するためには、人為起源VOC・S/IVOCからの現実的なSOA生成量を（自然起源SOAの増大効果を含めて）表現できるOAモデルを用いることが重要となることを示唆している。



図(1)-22 A-FORCE-2009期間中の福江における有機エアロゾルの質量濃度の時系列図

g 東アジア域におけるエアロゾル・雲相互作用

エアロゾルと雲物理過程の相互作用を陽に表現した領域モデルWRF-Chemを用いて、A-FORCE-2009期間の数値モデル計算を行った。モデル計算は、MODIS衛星から観測されたエアロゾルや雲物理量の平均的空間分布の特徴を再現した。またモデル計算は、A-FORCEにおいて航空機からの直接観測で得られたエアロゾル数濃度や雲粒数濃度のフライト毎の濃度変動の傾向を再現するとともに、エアロゾル数濃度と雲粒数濃度の相関も再現した（図(1)-23）。一方で航空機観測に比べてモデルはエアロゾル数濃度に対する雲粒数濃度の比率を2倍程度過大評価していた。過大評価の原因としては、雲粒へと活性化するエアロゾル粒径の過小評価と、サブグリッドスケールのエントレインメントをモデル計算において考慮していないことにより説明できる可能性があることを定量的に示した。



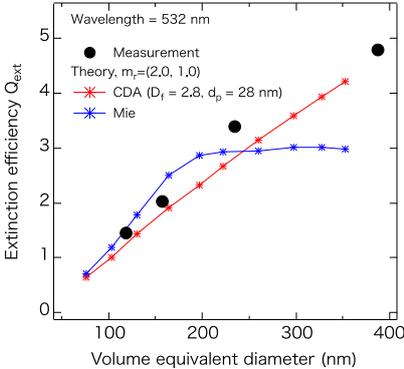
図(1)-23 A-FORCE-2009における雲底直下のエアロゾル数濃度（粒径130nm以上）と雲底の雲粒数濃度の相関図

h 放射伝達モデルの開発

任意の形状・混合状態のBCの光学特性を計算するためのコード(CDA)を離散双極子法の理論に基づいて開発した。その計算結果を実験室で発生させたBCについての光測定実験データと比較した。フラクタル次元2.8の凝集体のBC粒子について、Cavity-Ring Down Spectroscopyで計測した消散効率 (Q_{ext})とその理論計算を比較した結果を図(1)-24に示した。球形を仮定したMie理論よりも凝集体形状を考慮したCDAのほうが Q_{ext} の粒径依存性をよく再現していることが分かる。従来の大気放射伝達の研究においては、エアロゾルの形状として球形を仮定して計算が行われるのが一般的であったが、上記の結果は、とりわけBCについては現実の凝集体形状を考慮することが定量性の上で重要であることを示すものである。

次に、今回新たに開発した平行平面大気放射伝達計算法のアルゴリズムの概要を説明する。まず、従来通りに大気層・方位について放射伝達方程式を離散化する。次に、各層における放射輝度の伝達・射出を遷移行列・射出ベクトルの形式で表現すると、放射の伝搬は線形漸化式で表現される。漸化式を大気上端から下端まで走らせると、大気上端と下端の放射輝度の関係は境界条件を含んだ閉じた線形方程式に帰着される。この線形方程式を解くと大気上端、下端に於ける放射輝度が完全に求まり、各層の放射輝度は漸化式により求められる（図(1)-25左）。この計算法は各層での計算量が離散化方位数 N の2乗に比例する。従来法ではおおよそ3乗に比例するので、離散化方位数が多いときにこの計算法の方が従来法よりも高速になる可能性がある。この計算法を採用したコードで放射場が正しく計算されることはベンチマークテストで従来法との比較で検証している(図(1)-25右)。しかし、この計算法は、大気の光学的厚さと離散化方位数がともに大きくなると、線形方程式の条件数が非常に大きくなり、数値的に解く事が困難になるという問題が

あることが判明した。今後、最後の線形方程式の数値的悪条件を回避するように改良するか、または悪条件でも安定に解ける精度保証付きの行列解法を導入することを検討している。



図(1)-24 粒径100-400 nmのBCの消散効率の計測結果と、CDAによる理論計算の結果の比較

放射伝達の数値解法

平行平面大気の放射伝達方程式

$$\mu \frac{dI(\mu, \phi)}{d\tau} = I(\mu, \phi) - (1 - \omega)B - \frac{\omega}{4\pi} \int_{-1}^1 d\mu' \int_0^{2\pi} d\phi' p(\mu, \phi, \mu', \phi') I(\mu', \phi') - \frac{\omega}{4\pi} p(\mu, \phi, \mu_0, \phi_0) F_0^S e^{-\tau/\mu_0}$$

↓ 光学的厚さの微分、方位の積分を離散化

放射輝度についての行列漸化式

$$\mathbf{I}_{k+1} = \mathbf{M}_{k+1} \mathbf{I}_k + \mathbf{S}_{k+1}$$

↓ 漸化式をk = 0 から k = N-1まで実行

上下端境界値の線形関係式

$$\mathbf{I}_N = \mathbf{M} \mathbf{I}_0 + \mathbf{S}$$

↓ 単純な移項操作で変形可能

未知の放射輝度境界値を決定する線形方程式

$$\mathbf{M}' \mathbf{X} = \mathbf{S}'$$

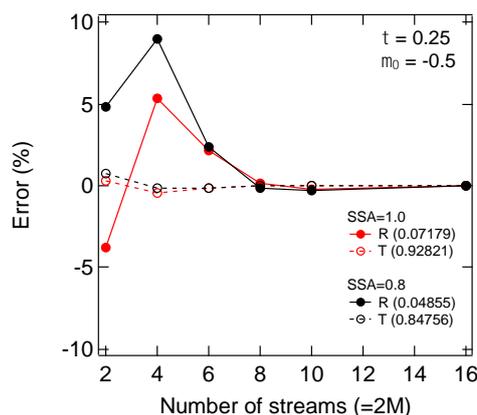
↓ 境界から行列漸化式を計算

任意の層における放射輝度の数値解

これまでの標準アルゴリズム
DISORT (Stamnes et al. (1988))
と比較した長所と短所

長所:
純粋な数値解法であるため、アルゴリズムが単純で短い。

短所:
大きな光学的厚さ、大きな離散化方位数の計算条件において、M'が数値的に悪条件になり、解けなくなる。(⇒改良を検討中)



図(1)-25 開発した放射伝達計算法の概要（上）と、ベンチマークテストでの従来法との比較（下）

3) 全球・領域モデルの比較と放射強制力の推定

MASINGARとSPRINTARSの2つのモデルを用いて、2009年について、全球平均のBC濃度、放射強制力の比較を行った（表(1)-1）。MASINGARとSPRINTARSのBCコラム濃度は 0.54 mg m^{-2} 、 0.35 mg m^{-2} 、大気上端でのBC放射強制力は 0.31 Wm^{-2} 、 0.24 Wm^{-2} 、BCの寿命は12.3日、7.0日、BC放射強制力の効率（単位BC濃度あたりのBC放射強制力）は 580 Wg^{-1} 、 700 Wg^{-1} と見積もられた。SPRINTARSの方が、BCの寿命が短く（除去過程が速く）、BC放射強制力の効率は大きいという結果が得られた。

次に2009年4月のアジア域（北緯 $0 - 70$ 度、東経 $60 - 150$ 度）についてWRF-chemを含めた3つのモデルの比較を行った（表(1)-2）。WRF-chemの結果を見ると、BCコラム濃度は2つの全球モデルに比べて低いのに対して、大気上端でのBC放射強制力は2つの全球モデルに比べて大きいことがわかる。BC放射強制力の効率は、 910 Wg^{-1} であり、2つの全球モデル（MASINGARが 450 Wg^{-1} 、SPRINTARSが 530 Wg^{-1} ）に比べて約2倍大きい結果が得られた。BCの寿命は2つの全球モデルの間の値を示している。

BC放射強制力の効率がWRF-chemで約2倍大きい要因としては、レンズ効果に伴うBCの光吸収効率の増大が1つの大きな要因と考えられる。MASINGARとSPRINTARSでは外部混合BCを仮定して光学特性の計算を行っているが、WRF-chemでは外部混合BC、内部混合BCおよびその被覆量を陽に計算し、それに基づいた光吸収量の増大効果を考慮している。最近の世界的なBCの気候影響のアセスメントによると、世界のグローバルモデルは、地上放射観測AERONET（NASA）のBC光吸収量をグローバル平均で1/3しか説明できていない¹²⁾。今回得られた全球・領域モデルの比較の結果は、レンズ効果などのBCの光吸収効率がある原因のひとつである可能性を示唆している。

また、この結果は、WRF-chemが全球モデルよりBCの表現が良く、BC放射強制力の効率の推定精度も高いと仮定した場合、その値を用いてBC放射強制力をスケールリングすると、その値が約2倍増大することを示唆する。この仮定に基づいて、グローバルなBCの排出量が 7500 Gg y^{-1} ¹²⁾とすると、BCの放射強制力は 0.46 Wm^{-2} と見積もられる。

表(1)-1 全球モデルのBC濃度・放射強制力の比較（2009年）

Global, January - December 2009	MASINGAR	SPRINTARS
Total BC column loading (mg m ⁻²)	0.54	0.35
BC lifetime (day)	12.3	7.0
BC radiative forcing at TOA (W m ⁻²)	0.31	0.24
BC radiative forcing efficiency at TOA (W g ⁻¹)	580	700

表(1)-2 アジア域における全球・領域モデルのBC濃度・放射強制力の比較（2009年4月）

Asia (0-70N, 60 - 150E), April 2009	MASINGAR	SPRINTARS	WRF-chem
Total BC column loading (mg m ⁻²)	1.25	1.85	1.22
BC lifetime (day)	7.0	4.9	6.0
BC radiative forcing at TOA (W m ⁻²)	0.56	0.42	0.58
BC radiative forcing efficiency at TOA (W g ⁻¹)	450	530	910

5. 本研究開発により得られた成果

(1) 科学的意義

BCを高精度かつ安定的に測定できるCOSMOS測定器を用いた長期観測を、辺戸岬・福江島・八方において継続して行ったのに加え、中国の北京と台湾のルーリンに新たなCOSMOS測定器を設置した。これらのBCの観測網により、排出源近傍である中国の北京から排出源の下流にあたる辺戸・福江・八方までのBCの同時観測が可能となり、発生源寄与や季節変動など大気境界層内におけるBCの輸送過程の理解が飛躍的に進展しつつある。また、COSMOSのデータを用いて、BCの最大発生源である中国からの排出量の正確な推定を行った。従来のBCの排出量推定には200%程度の大きな誤差があるとされてきたが、本研究によってその不確定性を大幅に減少するに至った。

2009年の春季に東シナ海・黄海上空で行われた航空機観測では、BCの微物理特性やエアロゾル・雲粒の数濃度が0-9 kmの高度領域で測定された。この観測のデータ解析により、東アジア域におけるBCの微物理特性（質量濃度・粒径分布・混合状態）やエアロゾルの数濃度・粒径分布の鉛直分布が初めて明らかになった。また、BCの質量濃度や粒径分布の変動メカニズムを、アジア大陸からの大気境界層内の輸送、境界層から自由対流圏への輸送過程と合わせて理解した。そして、アジア域におけるエアロゾル-雲相互作用（エアロゾル数と雲粒数の対応）を明らかにした。さらに、2013年の冬季、夏季に東シナ海・黄海上空および仙台・北海道周辺の西太平洋域には航空機観測を実施した（冬季は13フライト、夏季は15フライト）。このような東アジアでの高精度エアロゾル観測はこれまでにない非常に貴重なデータであり、アジア域におけるエアロゾル研究全体に大きな貢献をなしたと考えられる。

また、エアロゾルの混合状態・数濃度・粒径分布を表現可能な領域3次元モデルを開発し、地上・航空機観測による検証を行った。このモデルにはエアロゾルの生成・変質・除去を支配する詳細な微物理過程が組み込まれており、従来の領域モデルやIPCCの評価などで用いられてきた全球気候モデルに比べて、エアロゾルの表現が格段に改善した。このような数値モデルの開発は、エアロゾルの直接・間接効果やBCの削減効果を精度良く見積もる上で不可欠なツールとなる。特に、BCの削減効果は、正の放射強制力を低減させるのと同時に、雲粒数を増やすことにより負の放射

強制力をもたらす間接効果も同時に低減し、効果を相殺してしまう可能性も考えられ、非常に複雑な過程を含んでいる。詳細なエアロゾル過程が組み込まれた数値モデルによる精度の良い見積りが期待されており、本研究で開発したモデルはそれに答え得ることが期待される。

(2) 環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

特に記載すべき事項はない。

<行政が活用することが見込まれる成果>

本研究メンバーのうち、中島がサイエンスチーム主査、近藤がサイエンスチームメンバーを務める国連環境計画（UNEP）のABC（Atmospheric Brown Cloud-Asia）プロジェクトにおいては、BCの気候影響の研究の必要性が主張されている。したがって、本研究の内容は国際的にもその必要性が主張されているテーマである。

本研究のメンバーのうち、近藤はこれまでのエアロゾル・雲の観測的研究の実績により、IPCC第5次報告書の7章「雲とエアロゾル」のLead Authorとして選出されている。さらに中島はエアロゾル・放射・気候研究の実績により、同報告書の5章「放射強制力」のLead Authorとして選出されている。したがって、本研究の成果を効率的に正しくIPCCに反映することができる。

二酸化炭素やエアロゾルなどの人為起源物質の増加による気候変動を正確に予測することは、気候変動に対する対策の立案に重要である。この中で、人為起源のエアロゾルの変動とその気候影響の不確実性が、この対策の立案の大きな不確実性要因となっており、エアロゾルの気候影響の早急な解明が必要とされている。

本研究ではアジア域における地上・航空機観測およびそのデータ解析から、BCの質量濃度・粒径分布・混合状態・形態、エアロゾルの化学組成・数濃度・粒径分布の時空間変動を明らかにしてきた。また、それらの高精度の観測を表現できる領域3次元モデルの開発を行ってきた。このような領域3次元モデルを用いた計算により、アジア域におけるBCの削減効果を初めて定量的に評価可能になる。さらにこれを拡張してグローバル・長期的な削減効果を評価するために気候モデルを用いた計算を行う。この気候モデルの結果にもとづいて、BCの削減効果について初めて俯瞰的で定量的な政策判断の根拠を示すことが可能となる。

6. 国際共同研究等の状況

北東アジア域のブラックカーボンの発生、輸送過程に関する研究を実施した。

共同研究者： Jiming Hao 清華大学、中国
 Kebin He 清華大学、中国
 Yuxuan Wang 清華大学、中国
 Yongjing Zhao カリフォルニア大学、米国

連携状況：清華大学と共同で、北京郊外、北京市内でBC, COの濃度の観測を行った。中国のBC排出量を推定するため、これらのデータと中国の他の場所でのBC, COの観測データ

を組み合わせた解析を行った。新たな解析法により中国全体でのボトムアップ排出インベントリーの精度評価を行った。

7. 研究成果の発表状況

(1) 誌上发表

< 論文 (査読あり) >

- 1) Kondo, Y., L. Sahu, N. Moteki, F. Khan, N. Takegawa, X. Liu, M. Koike, T. Miyakawa (2011), Consistency and traceability of black carbon measurements made by laser-induced incandescence, thermal-optical transmittance, and filter-based photo-absorption techniques, *Aerosol Sci. Tech.*, *45*, 295-312, doi: 10.1080/02786826.2010.533215.
- 2) Kajino, M, Y. Kondo (2011), EMTACS: Development and regional scale simulation of a size, chemical, mixing state and shape resolved atmospheric particle model, *J. Geophys. Res.*, *116*, D02303, doi:10.1029/2010JD015030.
- 3) Moteki, N., N. Takegawa, K. Koizumi, T. Nakamura, Y. Kondo (2011), Multiangle polarimetry of thermal emission and light scattering by individual particles in airflow, *Aerosol Sci. Tech.*, *45*, 1184-1198.
- 4) Matsui, H, Y. Kondo, N. Moteki, N. Takegawa, L. K. Sahu, Y. Zhao, H. E. Fuelberg, W. R. Sessions, G. Diskin, D. R. Blake, A. Wisthaler, and M. Koike (2011), Seasonal variation of the transport of black carbon aerosol from the Asian continent to the Arctic during the ARCTAS aircraft campaign, *J. Geophys. Res.*, *116*, D05202, doi:10.1029/2010JD015067.
- 5) Kondo, Y., H. Matsui, N. Moteki, L. Sahu, N. Takegawa, M. Kajino, Y. Zhao, M. J. Cubison, J. L. Jimenez, S. Vay, G. S. Diskin, B. Anderson, A. Wisthaler, T. Mikoviny, H. E. Fuelberg, D. R. Blake, G. Huey, A. J. Weinheimer, D. J. Knapp, and H. Brune (2011), Emissions of black carbon, organic, and inorganic aerosols from biomass burning in North America and Asia in 2008, *J. Geophys. Res.*, *116*, D08204, doi:10.1029/2010JD015152.
- 6) Ohata, S., N. Moteki, and Y. Kondo (2011), Evaluation of a method for measurement of the concentration and size distribution of black carbon particles suspended in rainwater, *Aerosol Sci. Technol.*, *45*, 1326-1335.
- 7) Sahu, L. K., Y. Kondo, Y. Miyazaki, N.T. Kim Oanh, Prapat Pongkiatkul (2011), Seasonal and diurnal variations of black carbon and organic carbon aerosols in Bangkok, *J. Geophys. Res.*, *116*, D15302, doi:10.1029/2010JD015563.
- 8) Kondo, Y. N. Oshima, M. Kajino, R. Mikami, N. Moteki, N. Takegawa, R. L. Verma, Y. Kajii, S. Kato, and A. Takami (2011), Emissions of black carbon in East Asia estimated from the observations at a remote site in the East China Sea, *J. Geophys. Res.*, *116*, D16291, doi:10.1029/2011JD015637.
- 9) Matsui, H, M. Koike, Y. Kondo, N. Takegawa, A. Wiedensohler, J. D. Fast, and R.A. Zaveri (2011), Impact of new particle formation on the concentrations of aerosols and cloud condensation nuclei around Beijing, *J. Geophys. Res.*, *116*, D19208, doi:10.1029/2011JD016025.
- 10) Verma, R. L., Y. Kondo, N. Oshima, H. Matsui, K. Kita, L. K. Sahu, S. Kato, Y. Kajii, A. Takami, and T. Miyakawa (2011), Seasonal variations of the transport of black carbon and carbon monoxide from the Asian continent to the western Pacific in the boundary layer, *J. Geophys. Res.*, *116*, D21307, doi:10.1029/2011JD015830.
- 11) Matsui, H., Y. Kondo, N. Moteki, N. Takegawa, L. K. Sahu, M. Koike, Y. Zhao, H. E. Fuelberg, W. R. Sessions, G. Diskin, B. E. Anderson, D. R. Blake, A. Wisthaler, M. J. Cubison, and J. L. Jimenez (2011), Accumulation mode aerosol number concentrations in the Arctic during the ARCTAS aircraft campaign: Long-range transport of polluted and clean air from Asia, *J. Geophys. Res.*, *116*, D20217, doi:10.1029/2011JD016189.
- 12) Wang, Y., X. Wang, Y. Kondo, M. Kajino, J. W. Munger, and J. Hao (2011), Black carbon and its correlation with trace gases at a rural site in Beijing: Top-down constraints from ambient measurements on bottom-up emissions, *J. Geophys. Res.*, *116*, D24304, doi:10.1029/2011JD016575
- 13) Kondo, Y., K. Ram, N. Takegawa, L. Sahu, Y. Morino, X. Liu, and T. Ohara (2012), Reduction of black carbon aerosol in Tokyo: Comparison of real-time observations with emission estimates, *Atmos. Env.*, *54*, 242-249.
- 14) Takegawa, N., T. Miyakawa, T. Nakamura, Y. Sameshita, M. Takei, Y. Kondo, and N. Hirayama

- (2012), Evaluation of a new particle trap in a laser desorption mass spectrometer for on-line measurement of aerosol composition, *Aerosol Sci. Technol.*, *46*, 428-443.
- 15) Matsui, H. and M. Koike (2012), New source and process apportionment method using a three-dimensional chemical transport model: Process, Age, and Source region Chasing ALgorithm (PASCAL), *Atmos. Environ.*, *55*, 399-409.
 - 16) Oshima, N., Y. Kondo, N. Moteki, N. Takegawa, M. Koike, K. Kita, H. Matsui, M. Kajino, H. Nakamura, J. S. Jung, and Y. J. Kim (2012), Wet removal of black carbon in Asian outflow: Aerosol Radiative Forcing in East Asia (A-FORCE) aircraft campaign, *J. Geophys. Res.*, *117*, D03204, doi:10.1029/2011JD016552.
 - 17) Khatri, P. T. Takamura, A. Yamazaki, and Y. Kondo (2012), Retrieval of key aerosol optical parameters from spectral direct and diffuse irradiances observed by a radiometer with non-ideal cosine response characteristic, *J. Atmos. Ocean. Tech.*, *29*, 683-696.
 - 18) Moteki, N., Y. Kondo, N. Oshima, N. Takegawa, M. Koike, K. Kita, H. Matsui, and M. Kajino (2012), Size dependence of wet removal of black carbon aerosols during transport from the boundary layer to the free troposphere, *Geophys. Res. Lett.*, *39*, L13802, doi:10.1029/2012GL052034.
 - 19) Sahu, L. K., Y. Kondo, N. Moteki, N. Takegawa, Y. Zhao, M. J. Cubison, J. L. Jimenez, S. Vay, G. S. Diskin, A. Wisthaler, T. Mikoviny, and L. G. Huey (2012), Emission characteristics of black carbon in anthropogenic and biomass burning plumes over California during ARCTAS-CARB 2008, *J. Geophys. Res.*, *117*, D16302, doi:10.1029/2011JD017401.
 - 20) Koike, M., N. Takegawa, N. Moteki, Y. Kondo, H. Nakamura, K. Kita, H. Matsui, N. Oshima, M. Kajino, and T. Y. Nakajima (2012), Measurements of regional-scale aerosol impacts on cloud microphysics over the East China Sea: Possible influences of warm sea surface temperature over the Kuroshio ocean current, *J. Geophys. Res.*, *117*, D17205, doi:10.1029/2011JD017324.
 - 21) Kanaya, Y., F. Taketani, Y. Komazaki, X. Liu, Y. Kondo, L. K. Sahu, H. Irie, H. Takashima (2013), Comparison of black carbon mass concentrations observed by multi-angle absorption photometer (MAAP) and continuous soot-monitoring system (COSMOS) on Fukue Island and in Tokyo, Japan, *Aerosol Sci. Technol.*, *47*, 1-10.
 - 22) Bond, T. C., S. J. Doherty, D. W. Fahey, P. M. Forster, T. Berntsen, O. Boucher, B. J. DeAngelo, M. G. Flanner, S. Ghan, B. Kärcher, D. Koch, S. Kinne, Y. Kondo, P. K. Quinn, M. C. Sarofim, M. G. Schulz, M. Schulz, C. Venkataraman, H. Zhang, S. Zhang, N. Bellouin, S. Guttikunda, P. K. Hopke, M. J. Jacobson, J. Kaiser, Z. Klimont, U. Lohmann, J. P. Schwarz, D. Shindell, T. Storelvmo, S. G. Warren, and C. S. Zender (2013), Bounding the role of black carbon aerosol in the climate system: A scientific assessment, *J. Geophys. Res.*, *118*, 5380-5552, doi:10.1002/jgrd.50171.
 - 23) Liu, X., Y. Kondo, K. Ram, H. Matsui, N. Oshima, K. Nakagomi, T. Ikeda, N. Oshima, R. L. Verma, N. Takegawa, M. Koike, and M. Kajino (2013), Seasonal variations of black carbon observed at the remote mountain site Happo in Japan, *J. Geophys. Res.*, *118*, 3709-3722, doi:10.1002/jgrd.50317.
 - 24) Wang, X., Y. Wang, J. Hao, Y. Kondo, M. Irwin, J. W. Munger, Y. Zhao (2013) Top-down estimate of China's black carbon emissions using surface observations: sensitivity to observation representativeness and transport model error, *J. Geophys. Res.*, *118*, 5781-5795, doi:10.1002/jgrd.50379.
 - 25) Irwin, M., Y. Kondo, N. Moteki, and T. Miyakawa (2013) Evaluation of a heated-inlet for calibration of the SP2, *Aerosol Sci. Technol.*, *47*, 895-905.
 - 26) Moteki, N., and Y. Kondo (2013), A new theoretical method for calculating temperature and water vapor saturation ratio in an expansion cloud chamber, *J. Geophys. Res.*, *118*, 6633-6642, doi:10.1002/jgrd.50517.
 - 27) Takegawa, N., N. Moteki, M. Koike, N. Oshima, and Y. Kondo (2013), Condensation particle counters combined with a low pressure impactor for fast measurements of mode-segregated aerosol number concentrations, *Aerosol Sci. Technol.*, *47*, 1059-1065.
 - 28) Ohata, S., N. Moteki, J. Schwarz, D. Fahey, and Y. Kondo (2013), Evaluation of a method to measure black carbon particles suspended in rainwater and snow samples, *Aerosol Sci. Technol.*, *47*, 1073-1082.
 - 29) Matsui, H., M. Koike, Y. Kondo, N. Oshima, N. Moteki, Y. Kanaya, A. Takami, and M. Irwin (2013 a), Seasonal variations of Asian black carbon outflow to the Pacific: Contribution from anthropogenic sources in China and biomass burning sources in Siberia and Southeast Asia, *J. Geophys. Res. Atmos.*, *118*, 9948-9967, doi:10.1002/jgrd.50702.

- 30) Matsui, H., M. Koike, Y. Kondo, N. Moteki, J. D. Fast, and R. A. Zaveri (2013b), Development and validation of a black carbon mixing state resolved three-dimensional model: Aging processes and radiative impact, *J. Geophys. Res. Atmos.*, *118*, 2304-2326, doi:10.1029/2012JD018446.
- 31) Matsui, H., M. Koike, N. Takegawa, Y. Kondo, A. Takami, T. Takamura, S. Yoon, S.-W. Kim, H.-C. Lim, and J. D. Fast (2013c), Spatial and temporal variations of new particle formation in East Asia using an NPF-explicit WRF-chem model: North-south contrast in new particle formation frequency, *J. Geophys. Res. Atmos.*, *118*, 11,647-11,663, doi:10.1002/jgrd.50821.
- 32) Aoki, H., N. Moteki, and Y. Kondo (2013), Corona-imaging colorimetric method for accurate measurement of the size of water droplets in an expansion chamber, *Aerosol Sci. Technol.*, *47*, 1134-1143.
- 33) Oshima, N. and M. Koike (2013), Development of a parameterization of black carbon aging for use in general circulation models, *Geosci. Model Dev.*, *6*, 263-282, doi:10.5194/gmd-6-263-2013.
- 34) Oshima, N., M. Koike, Y. Kondo, H. Nakamura, N. Moteki, H. Matsui, N. Takegawa, and K. Kita (2013), Vertical transport mechanisms of black carbon over East Asia in spring during the A-FORCE aircraft campaign, *J. Geophys. Res. Atmos.*, *118*, 13,175-13,198, doi:10.1002/2013JD020262.
- 35) Koike, M., N. Moteki, P. Khatrri, T. Takamura, N. Takegawa, Y. Kondo, H. Hashioka, H. Matsui, A. Shimizu, and N. Sugimoto (2014), Case study of absorption aerosol optical depth closure of black carbon over the East China Sea, *J. Geophys. Res. Atmos.*, *119*, 122-136, doi:10.1002/2013JD020163.
- 36) Moteki, N., Y. Kondo, and K. Adachi (2014), Identification by single-particle soot photometer of black carbon particles attached to other particles: Laboratory experiments and ground observations in Tokyo, *J. Geophys. Res.*, *119*, 1031-1043, doi:10.1002/2013JD020655.

<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) Kondo, Y., R. L. Verma, N. Oshima, H. Matsui, K. Kita, Y. Kajii, S. Kato, T. Miyakawa, L. K. Sahu, and A. Takami, Asian continent to the western Pacific and estimate of CO emissions from China, AGU 2011 Fall meeting, San Francisco, USA, December 7, 2011.
- 2) Kondo, Y., The effect of the reduction of black carbon as a measure of mitigation of climate change; Current status of scientific understanding, International Workshop on a Co-Benefits Approach: Dialogue between Policy Makers and Researchers, IGES, Hayama, Kanagawa, January 13, 2012.
- 3) Kondo, Y., Estimates of emissions of black carbon in Asia based on ground based observations, 2013 China emissions workshop, Wenjin hotel, Beijing, June 27, 2013.
- 4) Kondo, Y., Recent studies of the effects of aerosols on climate in East Asia: Observations and modeling, Advances in Global Climate & Atmospheric Modeling: Perspectives from Yale and U Tokyo, Kline Geology Laboratory Auditorium (KGL), Yale University, September 21, 2013.
- 5) 近藤豊 アメリカの航空機観測の現状と計画、日本気象学会 2013 年度秋季大会、仙台国際センター（宮城県）、2013 年 11 月 19 日
- 6) Matsui, H., M. Koike, Y. Kondo, N. Oshima, N. Moteki, Y. Kanaya, A. Takami and M. Irwin, Seasonal variations of Asian black carbon outflow to the Pacific: Contribution from anthropogenic sources in China and biomass burning sources in Siberia and Southeast Asia, AGU 2013 Fall meeting, San Francisco, USA, December 9, 2013.

（3）出願特許

特に記載すべき事項はない。

（4）シンポジウム、セミナー等の開催（主催のもの）

特に記載すべき事項はない。

(5) マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項はない。

(6) その他

特に記載すべき事項はない。

8. 引用文献

- 1) Oshima, N. and M. Koike (2013), Development of a parameterization of black carbon aging for use in general circulation models, *Geosci. Model Dev.*, 6, 263-282, doi:10.5194/gmd-6-263-2013.
- 2) Matsui, H., M. Koike, Y. Kondo, N. Moteki, J. D. Fast, and R. A. Zaveri (2013b), Development and validation of a black carbon mixing state resolved three-dimensional model: Aging processes and radiative impact, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 118, 2304-2326, doi:10.1029/2012JD018446.
- 3) Liu, X., Y. Kondo, K. Ram, H. Matsui, N. Oshima, K. Nakagomi, T. Ikeda, N. Oshima, R. L. Verma, N. Takegawa, M. Koike, and M. Kajino (2013), Seasonal variations of black carbon observed at the remote mountain site Happo in Japan, *J. Geophys. Res.*, 118, 3709-3722, doi:10.1002/jgrd.50317.
- 4) Oshima, N., Y. Kondo, N. Moteki, N. Takegawa, M. Koike, K. Kita, H. Matsui, M. Kajino, H. Nakamura, J. S. Jung, and Y. J. Kim (2012), Wet removal of black carbon in Asian outflow: Aerosol Radiative Forcing in East Asia (A-FORCE) aircraft campaign, *J. Geophys. Res.*, 117, D03204, doi:10.1029/2011JD016552.
- 5) Moteki, N., Y. Kondo, N. Oshima, N. Takegawa, M. Koike, K. Kita, H. Matsui, and M. Kajino (2012), Size dependence of wet removal of black carbon aerosols during transport from the boundary layer to the free troposphere, *Geophys. Res. Lett.*, 39, L13802, doi:10.1029/2012GL052034.
- 6) Ohata, S., N. Moteki, J. Schwarz, D. Fahey, and Y. Kondo (2013), Evaluation of a method to measure black carbon particles suspended in rainwater and snow samples, *Aerosol Sci. Technol.*, 47, 1073-1082.
- 7) Koike, M., N. Takegawa, N. Moteki, Y. Kondo, H. Nakamura, K. Kita, H. Matsui, N. Oshima, M. Kajino, and T. Y. Nakajima (2012), Measurements of regional-scale aerosol impacts on cloud microphysics over the East China Sea: Possible influences of warm sea surface temperature over the Kuroshio ocean current, *J. Geophys. Res.*, 117, D17205, doi:10.1029/2011JD017324.
- 8) Koike, M., N. Moteki, P. Khatri, T. Takamura, N. Takegawa, Y. Kondo, H. Hashioka, H. Matsui, A. Shimizu, and N. Sugimoto (2014), Case study of absorption aerosol optical depth closure of black carbon over the East China Sea, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 119, 122-136, doi:10.1002/2013JD020163.
- 9) Oshima, N., M. Koike, Y. Kondo, H. Nakamura, N. Moteki, H. Matsui, N. Takegawa, and K. Kita (2013), Vertical transport mechanisms of black carbon over East Asia in spring during the A-FORCE aircraft campaign, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 118, 13,175-13,198, doi:10.1002/2013JD020262.
- 10) Matsui, H., M. Koike, Y. Kondo, N. Oshima, N. Moteki, Y. Kanaya, A. Takami, and M. Irwin (2013a), Seasonal variations of Asian black carbon outflow to the Pacific: Contribution from anthropogenic sources in China and biomass burning sources in Siberia and Southeast Asia, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 118, 9948-9967, doi:10.1002/jgrd.50702.
- 11) Matsui, H., M. Koike, N. Takegawa, Y. Kondo, A. Takami, T. Takamura, S. Yoon, S.-W. Kim, H.-C. Lim, and J. D. Fast (2013c), Spatial and temporal variations of new particle formation in East Asia using an NPF-explicit WRF-chem model: North-south contrast in new particle formation frequency, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 118, 11,647-11,663, doi:10.1002/jgrd.50821.
- 12) Bond, T. C., S. J. Doherty, D. W. Fahey, P. M. Forster, T. Berntsen, O. Boucher, B. J. DeAngelo, M. G. Flanner, S. Ghan, B. Karcher, D. Koch, S. Kinne, Y. Kondo, P. K. Quinn, M. C. Sarofim, M. G. Schulz, M. Schulz, C. Venkataraman, H. Zhang, S. Zhang, N. Bellouin, S. Guttikunda, P. K. Hopke, M. J. Jacobson, J. Kaiser, Z. Klimont, U. Lohmann, J. P. Schwarz, D. Shindell, T. Storelvmo, S. G. Warren, and C. S. Zender (2013), Bounding the role of black carbon aerosol in the climate system: A scientific assessment *J. Geophys. Res.*, 118, 5380-5552, doi:10.1002/jgrd.50171.

(2) BCの電子顕微鏡観測と全球エアロゾルモデルによるBC削減の有効性評価

国土交通省気象庁気象研究所	環境・応用気象研究部	第四研究室	五十嵐 康人
	環境・応用気象研究部	第一研究室	田中 泰宙
	環境・応用気象研究部	第四研究室	梶野 瑞王

<研究協力者>

国土交通省気象庁気象研究所	環境・応用気象研究部	第四研究室	財前 祐二
	環境・応用気象研究部	第四研究室	足立 光司
	環境・応用気象研究部	第一研究室	大島 長

平成23～25年度累計予算額：29,634千円（うち、平成25年度予算額：8,664千円）

予算額は、間接経費を含む。

[要旨]

本サブ課題では、電子顕微鏡を用いて東アジアのBCの混合状態・粒径分布等を把握し、その知見に基づきBC混合状態のパラメタリゼーションを開発してエアロゾル過程を詳細に記述した全球気候モデルに導入した。そして、BC排出量を削減した場合に放射強制力・気温等がどのように変化するのか、直接・間接効果を含めて総合的に評価した。まず電子顕微鏡を用いた分析では、サブ課題（1）と共同も含む山岳・都市・航空機での観測で得られた試料の電子顕微鏡分析を行った。これらの電子顕微鏡観測では、BCの放射強制力計算時に必要な混合状態の詳細な特性がこれまでにない精度で、様々な条件下で観測され、BC混合状態のモデルパラメタリゼーション化に向けて大きく前進した。また、観測で得られたBC粒子の電子顕微鏡観察から、BC粒子の物理的特徴をnanosphere soot (ns-soot)と定義づけた。これらとともに、エアロゾルモデルの高度化に資するため、電子顕微鏡で得られる大量のデータの統計解析を可能とすべく電顕エアロゾルデータベースの構築を進めた。BCを含むエアロゾル素過程モデルの開発では、エアロゾルの化学組成・粒径分布・混合状態を解く2つのエアロゾル動力学サブモデルMADMSとMBHMを開発し、領域対流圏エアロゾル化学輸送モデルRAQM2に実装して再現性を検証した。またBCの輸送・除去過程を観測に基づいて改良し、さらに電子顕微鏡観察に基づき新たなBCの微物理過程のパラメタリゼーションを開発して全球モデルに導入し、全球規模でのBCの空間分布、および直接放射強制力を評価した。これらの知見の基に、気候モデルMRI-CGCM3を用いて大気中のBCエアロゾルの直接効果による気候への影響を評価する実験を行い、BC削減による地球温暖化対策としての有効性評価を試みた。数値モデルでは、BCは大気大循環全体に影響し、気温は大気上層では上昇、大気下層では低下し、鉛直構造が大きく変化すること、BCの存在による地表面気温への影響は全球平均で見ると変化は小さいが地域によっては大きな影響を受けることが示唆された。

[キーワード]

電子顕微鏡、混合状態、吸湿特性、パラメタリゼーション、全球モデル

1. はじめに

BCは、化石燃料・植物由来燃料・バイオマス等の不完全燃焼過程によって大気中に排出される。大気中の多くのエアロゾル成分が太陽放射を散乱するのに対し、BCは太陽放射を強く吸収し、大気を加熱する（正の直接効果）。この加熱効果により、大気の鉛直安定度が増大し、対流活動が抑制される結果、雲の生成や降雨が抑制される可能性がある（準直接効果）。また雪氷面に沈着したBCが太陽光を吸収することにより、雪氷の融解を促進し、地表面の光反射率（アルベド）を低下させることで、温暖化を助長させる可能性がある（アイス・アルベド・フィードバック効果）。さらにBCが雲凝結核や氷晶核として働くことで、雲の微物理特性を変調させ、雲の寿命や降水形成に影響を及ぼす可能性も指摘されている（間接効果）。

全球規模でのBCの直接放射強制力の推定精度を向上させるためには、BCの空間分布の推定精度を向上させる必要がある。特に放射強制力はBCの鉛直分布に強く依存する¹⁾。しかしながら、現在の全球モデルによるBCの鉛直分布の再現性は不十分であり、モデル間で大きなばらつきがあるとともに²⁾、北極域などにおいては観測とモデルで大きな差がある³⁾。全球モデルによるBCの空間分布の再現性が不十分である主な要因としては、前述した排出量や除去過程に含まれる不確定性の他に、疎水性粒子として排出されたBC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エイジング過程（BCの混合状態の変化）の取り扱いが挙げられる。そこで本サブ課題では、電子顕微鏡による東アジアのBCの混合状態の詳細な観測結果に基づいたエイジングのパラメタリゼーションを構築し、それを導入した全球気候モデルにより、BCの排出量を削減した場合、アジアやグローバルスケールにおいて、放射強制力、気温、降水量がどのように変化するか、直接・間接効果を含めて総合的かつ高確度で評価した。

このため本サブ課題では、このために、以下の構成で研究を推進した。

- 1) 電子顕微鏡やその他のエアロゾル観測機器により、BCや他のエアロゾル成分の数・質量濃度、粒径、混合状態などについて観測を実施し、その実態を把握するとともに、数値モデル計算の検証データを整備する。
- 2) エアロゾルの濃度や混合状態を決める各種のプロセスを物理化学法則に基づいて表現した詳細なエアロゾルモデル（領域エアロゾルモデル）を観測に基づいて改良・検証し、全球エアロゾルモデル用のパラメタリゼーションを開発する。
- 3) 上記パラメタリゼーションを取り入れた全球気候モデルにより、高い信頼性で長期にわたるBC削減効果の予測計算を実施する。

2. 研究開発目的

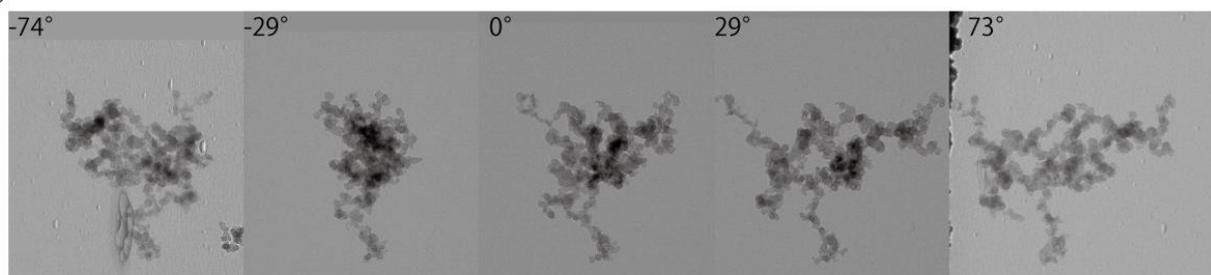
本研究の目的は、地球温暖化対策としてのBCエアロゾル削減の有効性を評価することである。本サブ課題では、電子顕微鏡を用いて東アジアのBCの混合状態、粒径分布を把握し、その知見に基づいてBC混合状態のパラメタリゼーションを構築し、全球気候モデルに導入する。そして、各種の排出源から排出されるBCや他の人為起源物質の排出量を削減した場合、アジアやグローバルスケールにおいて、放射強制力、気温、降水量がどのように変化するか、直接・間接効果を含めて総合的かつ高確度で評価することを目的として来た。

3. 研究開発方法

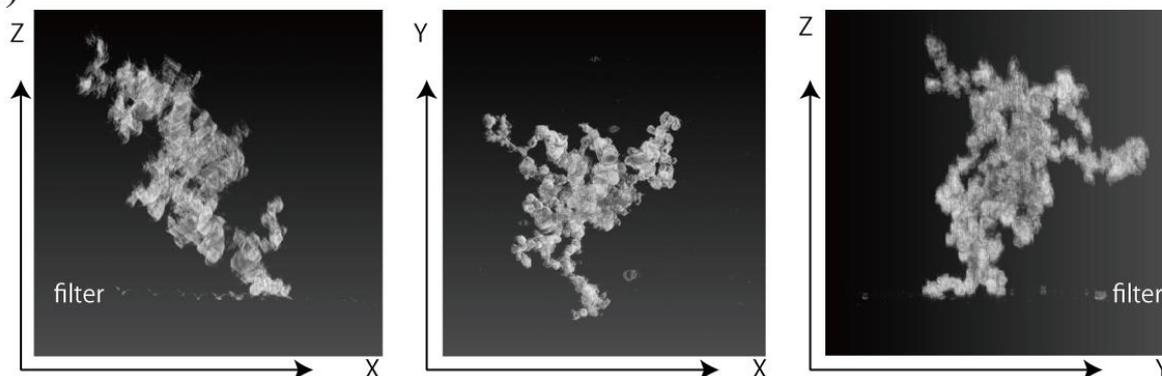
(1) BCの電子顕微鏡観測

電子顕微鏡を使って個別粒子の分析を行うことで、他の分析機器では得られないBC粒子の物理・化学特性を詳細に得る技術を開発した。具体的には、1) BC粒子の組成や形態、面積等価径などを半自動で大量に分析する手法（1時間に150粒子程度）⁴⁾、2) 電子顕微鏡の電子線でBC粒子のコーティング物質（硫酸塩など）を昇華させて、内部混合したBC粒子を詳しく分析する方法⁴⁾、3) BC粒子の3次元形態をデジタルデータとして計測し、そのフラクタル次元や体積などBCの形態に関するパラメーターを測定する電子線トモグラフィ法⁵⁾、などを新たに開発した。これらの電子顕微鏡を使った分析手法によって、他の分析器では観測が不可能であった個別BC粒子の組成、形態（2次元および3次元；図(2)-1参照）、混合状態、粒径などが詳細に理解できるようになり、モデルの開発や他の測定機器との比較（たとえばSingle Particle Soot Photometer(SP2)など）がより高精度で行うことが可能となった。

a)



b)



図(2)-1 中央アルプスで採取したBC（すす粒子）の3次元トモグラフィ像。図は足立⁵⁾を基に作成した。a) 様々に傾斜を変えて撮影したBC粒子像, b)電子顕微鏡データを基に作成したトモグラフィ像。この複雑な形態はBC粒子の光学特性に大きな影響を与える⁶⁾。3次元化は、気象研究所新規電子顕微鏡（JEM-1400）とそのトモグラフィシステムのデモ機を用いて行った。

また、新規電子顕微鏡自動多点分析装置を使った分析結果のデータベースを開発し、現在逐次データを蓄積している。このデータベースは、粒子画像、粒子の形態（サイズ、アスペクト比、投射面積など）、元素組成データ、また、試料採取条件などを一括して管理、統計処理するシス

テムである。このデータベースは、将来的なデータのアーカイブや、画像、形態、サイズ、元素組成など多岐にわたるデータを一元管理して統計処理・考察をするのに有用である。これらのBC粒子の形態的特徴の数値化及びデータベース化は、BCの気候影響を正確に見積もり、また電子顕微鏡データをモデル計算に反映させるうえで必須である。

(2) BCを含むエアロゾル素過程モデルの開発

1) エアロゾル素過程モデル開発

エアロゾルの化学組成、粒径分布、混合状態の時間発展を低計算機負荷で解く2つのエアロゾル動力学サブモデルMADMS (Modal Aerosol Dynamics model for multiple Modes and arbitrary Shapes)^{7), 8)}、MBHM (Modal Bin Hybrid Model;)⁹⁾を開発・論文化し、領域対流圏エアロゾル化学輸送モデルRAQM2 (Regional Air Quality Model2)に実装した¹⁰⁾。また、全球成層圏・対流圏化学気候モデルMRI-CCM2 (Chemistry Climate Model 2)¹¹⁾との1-way nesting model system (全球モデル結果を側面・上部境界条件にして領域モデルを走らせるシステム)を構築した¹²⁾。

2) BCの除去過程と輸送過程

エアロゾルの降水による除去過程は、現在のエアロゾルモデルが含む最大の不確定性の一つである。BCの空間分布を直接的に決定する除去過程と輸送過程についての理解を深めるために、2009年春に行われた航空機観測とモデル計算を組み合わせた研究を行った。その際、モデルで扱われるエアロゾルの湿性沈着過程に独自の改良を加え、A-FORCE (Aerosol Radiative Forcing in East Asia)¹³⁾ 航空機観測との比較を通じて、BCの輸送過程と除去過程について詳細に調べた。

3) BCの微物理特性のパラメタリゼーションの開発と全球エアロゾルモデルへの適用

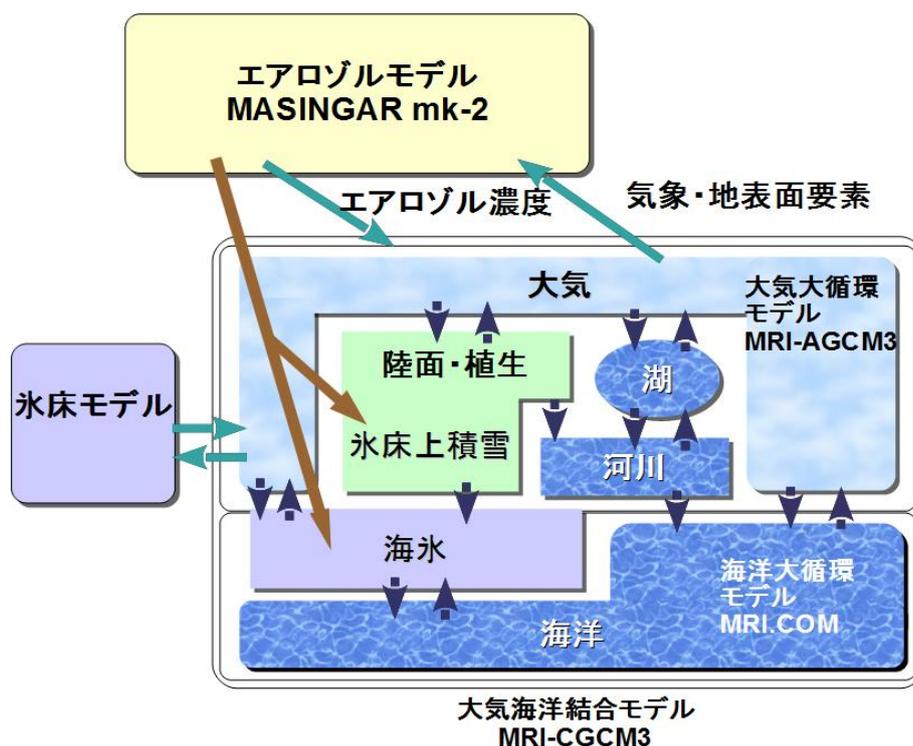
継続して開発を行っている、BCの混合状態の変化を詳細に扱うボックスモデルMADRID-BC (Model of Aerosol Dynamics, Reaction, Ionization, and Dissolution - Black Carbon)^{14) 15)}を元に、物理化学法則に基づきBCの混合状態の変化を表現する新たなパラメタリゼーションを開発した。このパラメタリゼーションを気象研究所の地球システムモデルを構成する全球エアロゾルモデルMASINGAR (Model of Aerosol Species IN the Global Atmosphere)¹⁶⁾に導入した。新たなパラメタリゼーションを導入したMASINGARを用いて、全球規模でのBCの空間分布、およびBCの直接放射強制力を推定した。

(3) 全球エアロゾルモデルによるBC削減の有効性評価

全球でのBC削減の有効性を評価する気候実験を行うため、全球エアロゾルモデルMASINGAR¹⁶⁾を改良し、大気中のBC量を変化させた時の気候モデルによる応答を調査する感度実験を行った。H23年度は、気象研究所で開発されている既存の気候モデルでの予備的な気候実験を実施した。H24年度には実験解析およびモデルの継続的な改良を行い、H25年度はBC削減を想定した気候応答実験を実施した。

BC削減の有効性評価を行うための感度実験には、気象研究所の気候モデルMRI-CGCM3¹⁷⁾を用いた。このモデルは、気候変動に関する政府間パネル (IPCC) における第5次結合モデル比較実験CMIP5 (Model Intercomparison Project Phase 5)に参加し、数値シミュレーションによる温暖化変動予測に貢献している。図(2)-2に、気候モデルMRI-CGCM3の構成を模式的に示す。このモデルは大気大循環モデルMRI-AGCM3、海洋大循環モデルMRI.COM、エアロゾルモデルMASINGAR mk-2から構成され、各モデルコンポーネントはカップラーライブラリScup (Simple

Coupler; Yoshimura and Yukimoto, 2008)¹⁸⁾で結合される。全球エアロゾルモデルMASINGAR¹⁶⁾は、エアロゾルの大規模移流、乱流拡散、積雲対流、重力沈降による輸送過程と、地表面近くでの乾性沈着、降水による湿性沈着による除去過程を扱う。主要な大気エアロゾル成分として、このモデルには硫酸塩、黒色炭素 (BC)、有機炭素 (OC)、海塩、鉱物ダストが含まれている。BCおよびOCと硫酸塩の前駆気体 (SO₂) の大気への排出量は IPCC第5次報告書におけるシミュレーションシナリオ用の排出源データベース RCP (The Representative Concentration Pathways)¹⁹⁾ に基づいて与える。鉱物ダストは地表面における風速や地表面の状態を考慮したパラメタリゼーションを、また海塩エアロゾルは海面付近の風速に基づくパラメタリゼーションを用い、気象条件に基づいて放出量を計算する。エアロゾルモデルによって計算された硫酸塩・BC・OC・海塩・鉱物ダストの分布はカップラーを通じて大気モデルにオンラインで渡され、大気放射伝達計算と雲粒生成過程の計算に用いられる。エアロゾルの放射への効果は種別毎に外部混合を仮定して計算される。また、光吸収性をもつBCおよび鉱物ダストの沈着量フラックスも大気モデルに引き渡され、陸面雪氷および海氷上のアルベド計算に反映される。モデルの水平解像度は大気モデルMRI-AGCM3は約1.1°、エアロゾルモデルMASINGAR mk-2 は 約1.8°、鉛直方向格子は大気モデル・エアロゾルモデルとも、地表付近では地形に沿い、大気上層では気圧面に沿うハイブリッド (η) 座標系で、地表から0.4hPa まで48層である。



図(2)-2 気象研究所気候モデル MRI-CGCM3 の概要模式図

実験では、BCの影響の感度特性を調べるため、現在気候状態において、BC放出量を 2005年で一定とした場合を基準として、大気中のBCを完全に削減したと仮定し、大気中濃度を0とした実験（大気中BC濃度を大気モデルにフィードバックさせない）、大気中のBCを半分に削減した

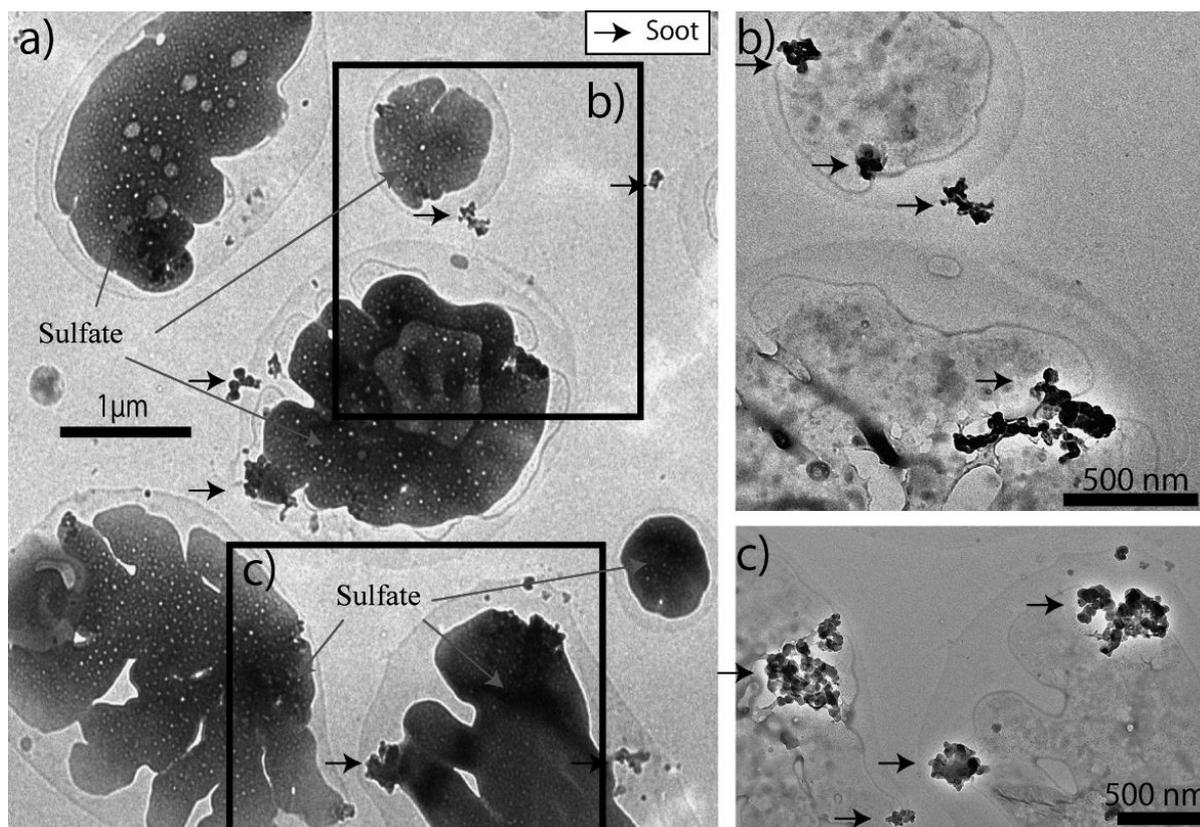
と仮定した場合の実験を行った。また、Bond et al. (2013)²⁰⁾ による最近の評価では、現在の数値モデルによる黒色炭素の影響は過小評価されており、観測から得られる推定では影響はその3倍程度大きい、と論じられていることから、大気中BCを3倍とした場合の感度実験も行い、気候応答を調査した。H23年度に行った予備実験では、大気中BCを2005年の基準実験の10倍とした感度実験も行った。BC以外の境界条件としては温室効果気体および硫酸塩の前駆物質であるSO_xの放出量は2005年で一定とした。各実験は10年間の積分の統計量を比較した。

4. 結果及び考察

(1) BCの電子顕微鏡観測

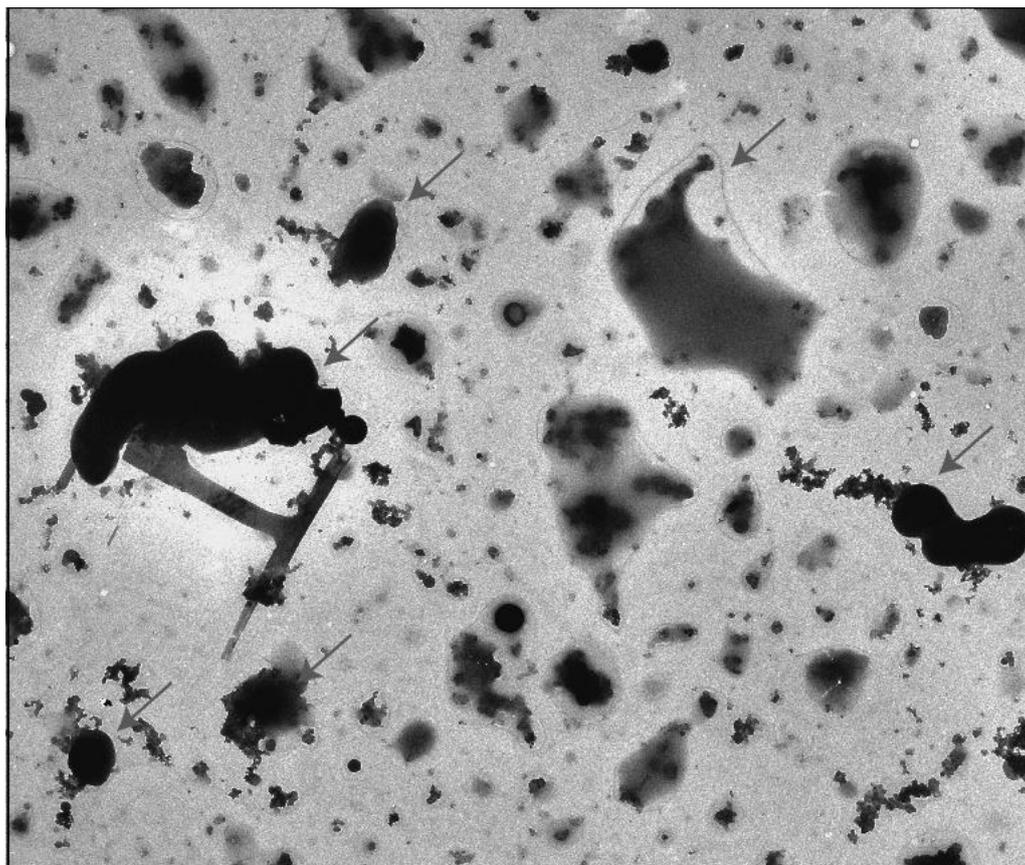
日本国内における電子顕微鏡試料採取の予備的な実験として、2010年にカリフォルニアで行われたCalNex観測プロジェクト (the California Research at the Nexus of Air Quality and Climate Change campaign) で採取した試料を分析し、含まれるBCの混合状態や形態について分析を行った⁶⁾。その結果、日射量が増える昼間に内部混合BC粒子が二次エアロゾルの成長とともに多く生成することがわかった。加えて、電子顕微鏡によって得られたBC粒子の形態データは、単純な球を仮定したモデル計算に比べより実際の光吸収観測結果を説明することが明らかになった²¹⁾。

また、長野県中央アルプス駒ヶ岳山岳観測サイトでの中長距離輸送BC粒子の混合状態、形態、粒径、などについての観測を行い、以下の結果を得た (図(2)-3)²²⁾。1) 粒径60–350 nmのエアロゾル粒子では、約10%がBCと内部混合していることが明らかとなった、2) 内部混合BC粒子はエアロゾルの粒径が大きくなるほどその混合比率は大きくなり、>0.5 μmの粒子では約85%が内部混合をしていた、3) 75%のBC粒子は内部混合をしており、残りの25%はコーティングを受けない外部混合粒子であった、4) BC内部混合粒子はその他のエアロゾル粒子に比べてその粒径分布ピークが粗大側にシフトしていた、5) BC粒子のshape factor (形状の複雑さ) は、コーティングの有無にかかわらず同じ傾向であり、BCのコーティングはBC形態には大きく関与していないことが示唆された。



図(2)-3 山岳サイトで採取されたエアロゾル粒子の電子顕微鏡分析例
 Adachi et al. (2014)²²⁾から引用。a)エアロゾルの電子顕微鏡像。それぞれの成分は矢印で示してある。b)とc)内部混合したBC粒子 (soot)。硫酸塩は電子線によって昇華し、内部混合BC粒子が現れた。

サブ課題1と連携し、東京夏季におけるBCの混合状態の変化をSP2との同時観測を行った²³⁾。その結果、ともにBC粒子の混合状態を測定するSP2と電子顕微鏡分析結果がよい相関を示し、また、SP2で付着型と分類されたBC粒子が海塩と内部混合をしている粒子であることがその形態と組成分析から明らかとなった(図(2)-4)。この結果は、特に海の近くの大都市において、そのBCと海塩の混合が光吸収を効果的に行わない状態であることを示唆するものであり、その結果を考慮すればより正確なBCの光特性が推測できる可能性がある。



図(2)-4 2012年夏季に東京で採取されたエアロゾル粒子の電子顕微鏡像。矢印はBC粒子と海塩粒子が混合している（付着型）ことを示す。

航空機を用いて東アジア域における越境汚染（冬季）と比較的人為的影響の少ない大気（夏季）の集中観測（A-FORCE2013）を、サブ課題（1）などと合同で行った。その結果、九州・沖縄上空に大陸からの汚染空気塊が流入し、そのエアロゾル試料では内部混合をしたBC粒子が多く見られた。特に、汚染空気塊中エアロゾルは一粒子中に多くの成分を内包する複雑な混合状態をしており、その詳細な解析は日本にも大きな影響を及ぼす中国からの汚染空気塊中BC粒子の解析に大いに貢献する。また、東北や北海道上空では、BC粒子の数密度は小さかったものの、エアロゾルの核として存在していた。また、雲粒の残さを電子顕微鏡で分析すると、有機エアロゾルが多く存在しており、雲がエアロゾル生成に及ぼす影響が示唆された。

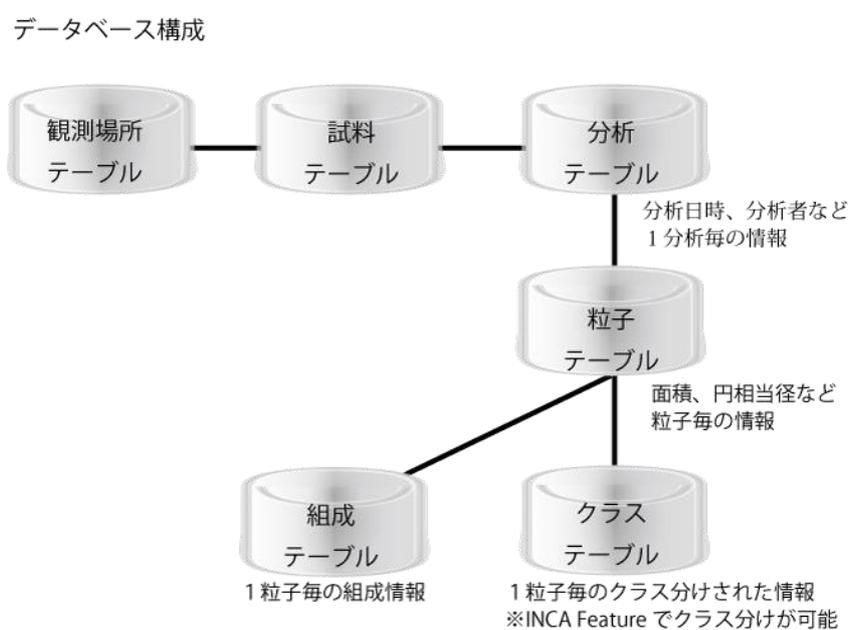
以上の野外観測で得られた試料の電子顕微鏡分析によって、BCの放射強制力計算時に必要な混合状態の詳細な特性がこれまでにない精度で、様々な条件下での観測が達成でき、BC混合状態のモデルパラメタリゼーション化へ向けて大きく前進した。また、様々な環境で採取されたBC粒子の電子顕微鏡分析から、BC粒子をその物理的特徴からnanosphere soot (ns-soot)と定義づけを行い²⁴⁾、また、その生成プロセスに関する考察を行った²⁵⁾。

エアロゾルモデルの高度化の検証と開発に資するため、電子顕微鏡の自動解析によって取得できる大量のデータセットを統計解析に付すことを可能とすべく、データベースの構築を進めた。

データベースでは、TEMに付属するエネルギー分散型X線マイクロアナライザ（EDS）装置の

ソフトウェアINCA Feature TEMの粒子解析結果のエクスポータデータ（CSVファイル）を、Webシステムを使用しデータベース（MySQL）に保管している。分析に使用した試料の観測場所の情報、試料採取時の天候などの情報の入力を可能とし、テーブルにユニークとなる観測場所番号、試料番号などの紐付け情報を保有し、粒子解析結果と結びつける事で、分析作業の向上、またデータの管理を明確にしている（図(2)-5）。また、エクスポータデータとストレージデータとの一致確認は、マニュアル作業でエクセルシート上での一致を確認している。

現在使用している試験用サーバPCのOSは、Red Hat Enterprise Linux Serverである。データベースソフトには、オラクルのMySQLを使用している。MySQLの特徴は、オープンソースで提供されているリレーショナルデータベース管理システムということであり利用がしやすく、大規模サイトでも利用される。粒子解析1回につきテーブルへの登録によって使用されるデータ容量は、合計約600 kb（粒子数を200として計算）となる。現状の試験用PCのOSによってテーブルサイズの最大値の制限を受けるが、論理的には約5000分析回程度の登録が可能である。また、将来のハードウェアの追加によりデータベース容量の増設は可能である。今後、粒子検索条件の追加や組み合わせ等により試験を実施し、具体的にモデルの検証やモデル開発に際して利用可能なパラメータ抽出を行っていき、有効なデータベースとして発展させて行く。また、個別粒子のTEM画像との分析データのリンクを図るべく、作業を継続している。



図(2)-5 構築を進めている電顕エアロゾルデータベース

(2) BCを含むエアロゾル素過程モデルの開発

1) エアロゾル素過程モデル開発

エアロゾルの化学組成、粒径分布、混合状態の時間発展を低計算機負荷で解く2つのエアロゾル動力学サブモデルMADMS^{7), 8)}を実装した、領域対流圏エアロゾル化学輸送モデルRAQM2により、東アジアにおけるエアロゾル観測値と比較して、化学組成（BCとその他の無機成分）、粒径

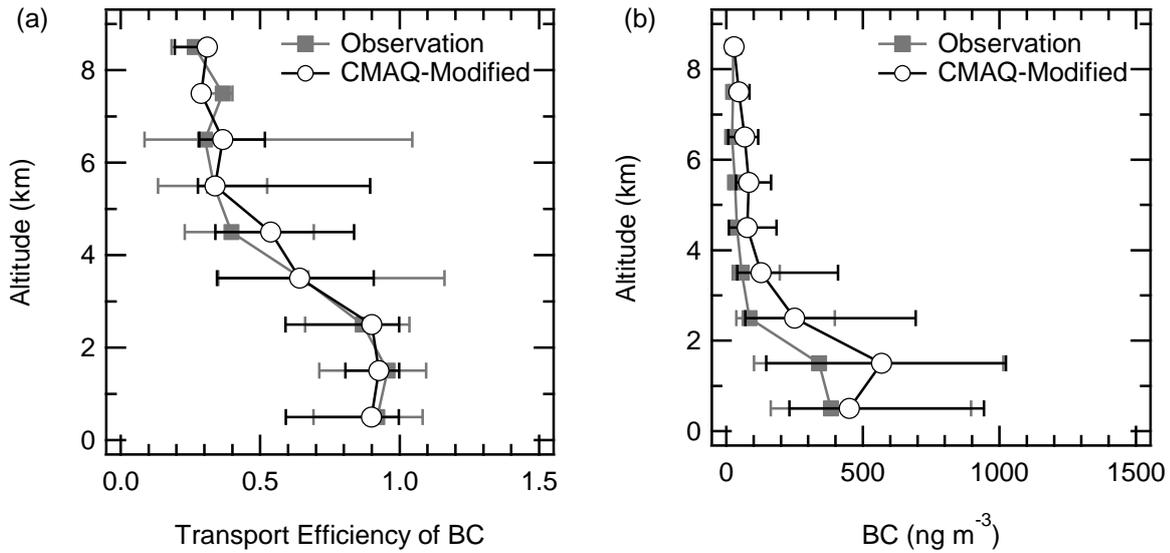
分布（化学組成のPM_{2.5}/PM₁₀分配）、混合状態（主要無機成分である硫酸塩、硝酸塩のBC、BC以外のサブミクロン粒子、海塩粒子との内部混合状態）の再現性を検証した¹⁰⁾。また、東アジアにおけるオゾンと降水中のイオン濃度（硫酸、硝酸、アンモニウム、ナトリウム等）の観測値と比較して、再現性を検証した¹²⁾。

また、上記MADMSの定式化を応用してMBHM⁹⁾を開発した。MBHMは、モーダル法の軽量化特性と、ビン法の正確性を両方兼ね備えたモデルである。その結果、従来のビン法に比べて、同程度の精度を確保するために必要な計算機負荷が、MBHMでは4分の1になることが判明した。とはいえ、全球気候モデルに組み込んで長期間積算するためには十分な計算機負荷量とは言えないため、向後5年ないし10年間は、あくまで全球気候モデルを評価するための素過程モデルとして利用する方法が適切である。

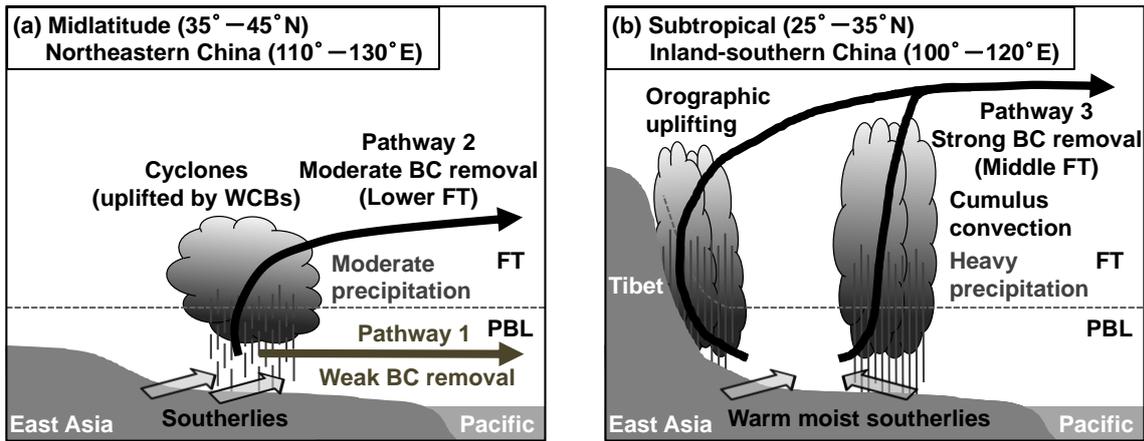
2) BCの除去過程と輸送過程

BCの除去過程と輸送過程についての理解を深めるために、2009年3-4月に黄海・東シナ海・西太平洋上において実施されたA-FORCE航空機観測の解析を行った²⁶⁾。この研究では、一酸化炭素(CO)をトレーサとして扱い、観測された空気塊中のBC濃度とCO濃度の比率の変化を用いて、大気中に排出されたBCの何割が除去されずに観測点まで輸送されたかを示す輸送効率(除去過程の指標)を導出した。A-FORCE航空機観測により得られたBCの輸送効率とその質量濃度の高度分布を図(2)-6に示す(図中の灰色)。このBCの輸送効率は、空気塊が輸送中に経験する降水量に応じて減少し、高度2-4 kmでは70-90%、高度4-9kmでは30-50%程度であった。

続いて、Oshima *et al.* (2013)²⁶⁾は、これらの観測から得られた知見に基づき、領域モデルWRF-CMAQ(the Weather Research and Forecasting-the EPA Community Multiscale Air Quality coupled model)で扱われるエアロゾルの湿性沈着過程に独自の改良を加え、A-FORCE航空機観測との比較を通じて、BCの除去過程について調べた。改良したWRF-CMAQで計算されたBC濃度およびその輸送効率の鉛直分布と観測との比較を図(2)-6に示す(図中の白色が改良したモデル結果)。モデルは観測から推定した輸送効率を全高度においてよく再現しており、これはモデルで取り扱われているエアロゾルの除去過程の妥当性を示している。一方、モデルはBCの質量濃度を自由対流圏中(高度2-9 km)において2倍程度過大評価している。上で確認した降水による除去過程の妥当性とBCの質量濃度の再現性を考えると、モデルに与えたBCの排出源データが過大推定されていること、境界層から自由対流圏へと上方輸送される量がモデルで過大推定されていることが示唆される。またOshima *et al.* (2013)²⁶⁾は、航空機観測により除去過程を検証したモデル結果と気象場の解析を組み合わせることで、春季東アジア域におけるBCの輸送過程と除去過程を明らかにした(図(2)-7)。アジア大陸からのBCの輸送経路は主に3通りあり、大気境界層内を東向きに輸送される経路(BCの降水による除去は弱い)に加えて、中国北東域(低気圧活動に伴う上昇、中程度の除去)と中国南部の内陸域(地形性と積雲対流活動に伴う上昇、強い除去)において境界層内から自由対流圏中へと上方輸送され、引き続き西風によって下部対流圏中と中部対流圏中をそれぞれ輸送される経路が存在することを明らかとした。



図(2)-6 A-FORCE航空機観測結果（灰色四角）とモデル計算結果（白丸）の比較
 (a) BCの輸送効率、(b) BCの質量濃度 (ng m^{-3})。全観測期間（2009年3/18-4/25）における中央値と67%レンジを高度1kmごとに示す。



図(2)-7 春季東アジア域におけるBCの主要な輸送経路と輸送過程・除去過程の概念図。

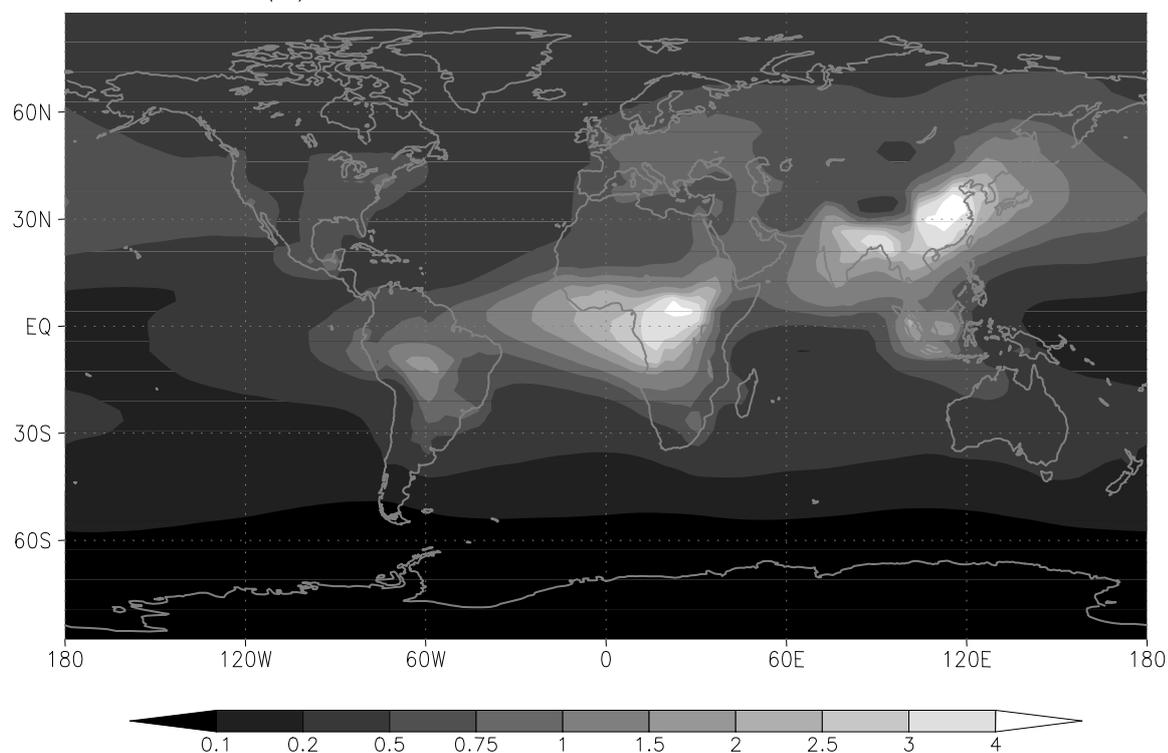
3) BCの微物理特性のパラメタリゼーションの開発と全球エアロゾルモデルへの適用

BCの混合状態の変化を詳細に扱うボックスモデルMADRID-BCの開発を継続して行った^{14) 15)}。このボックスモデルを用いて、物理化学法則に基づきBCの混合状態の変化を表現する新たなパラメタリゼーションを開発した²⁷⁾。このパラメタリゼーションでは、被覆成分の生成速度を疎水性BCの総量で規格化することで、BCの疎水性から親水性への変換速度を表現しており、汚染大気から清浄大気までのあらゆる条件下において使用可能である。このパラメタリゼーションを気象研究所の気候モデル¹⁷⁾を構成する全球エアロゾルモデルMASINGAR¹⁶⁾に導入することで、大気環境に応じたBCの疎水性から親水性への変換を表現できるモデルへと発展させた（従来は1.2日の時定数）。なお、このパラメタリゼーションはサブ課題（3）と連携して提供し、全球エアロゾルモデルSPRINTARS（Spectral Radiation-Transport Model for Aerosol Species）²⁸⁾にも導入され

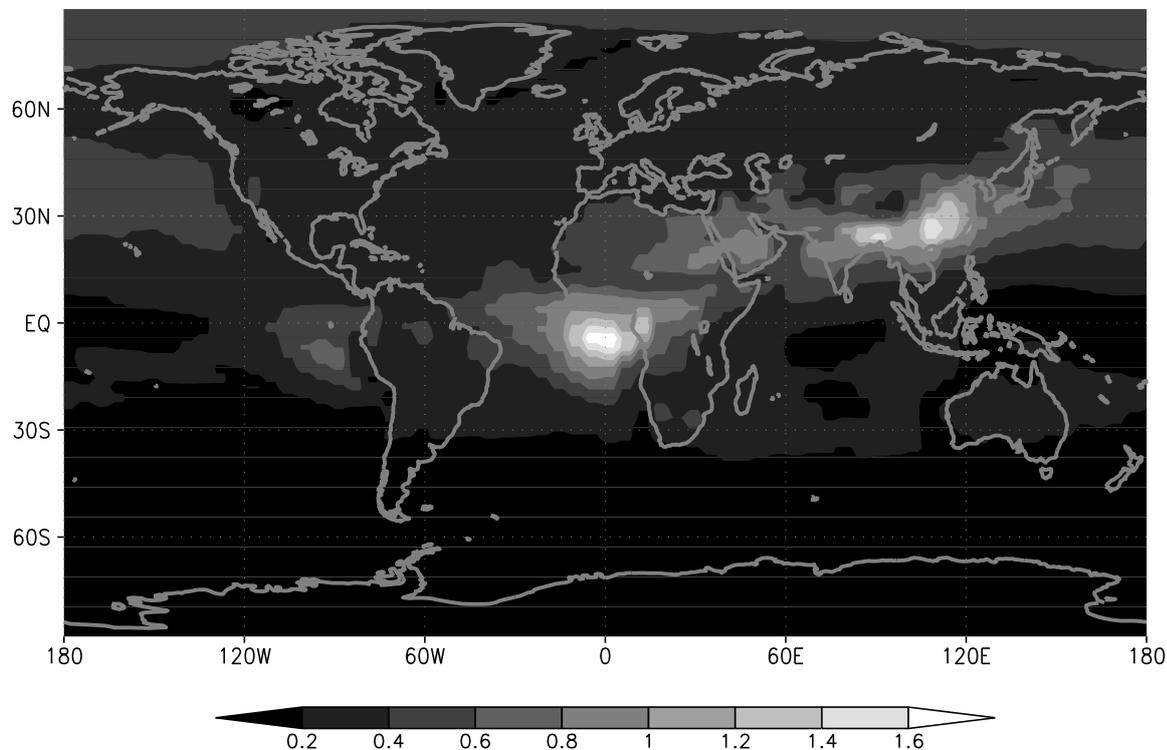
た²⁹⁾。

新たなパラメタリゼーションを導入したMASINGARを用いることで、BCが疎水性から親水性へと変換される時間スケールは、東アジア域などの発生源域では1-2日程度であるのに対し、北極域では10-20日程度と、地域によって大きく変化することが示された（共に地表面における年平均値）。また一定値の時定数（1.2日）を仮定した従来のモデル計算結果と本計算結果を比較したところ、北極域などの発生源遠方域において、従来のモデルでは過小評価されていたBC濃度が本計算では増大し、観測値の再現性が向上した³⁰⁾。本計算による年平均でのBCの大気中コラム量と大気上端におけるその直接放射強制力を図(2)-8に示す。本計算では、全球平均での大気上端におけるBCの直接放射強制力は $+0.31 \text{ W m}^{-2}$ （従来は $+0.21 \text{ W m}^{-2}$ ）と推定された。これらの結果はパラメタリゼーションを通じて、ミクロスケールのBCの微物理特性が、全球スケールの空間分布や放射強制力に大きな影響を及ぼしていることを示している。

(a) Annual Mean Black Carbon Burden



(b) Annual Mean Direct Radiative Forcing of Black Carbon

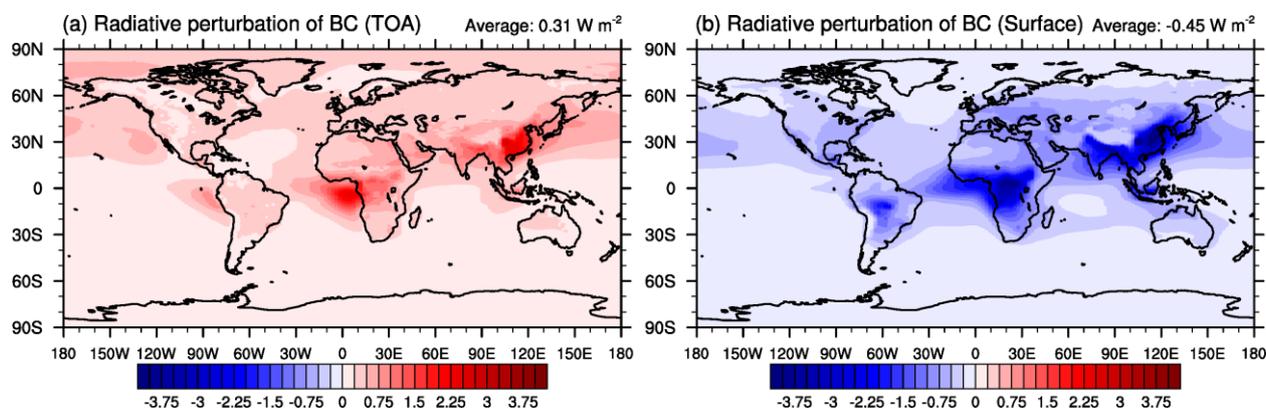


図(2)-8 新たなパラメタリゼーションを導入したMASINGARによる計算結果。(a) BCの大気中コラム量 (mg m^{-2})、(b) 大気上端におけるBCの直接放射強制力(W m^{-2})。2008-2009年の年平均値。

(3) 全球エアロゾルモデルによるBC削減の有効性評価

気象研究所の大気海洋結合モデルMRI-CGCM3によって計算されたBCエアロゾルの放射収支への影響の全球分布を図(2)-8に示す。この図はRCPインベントリの2005年のBC放出量を用いて計算した時の、大気上端(a)および地表面(b)での大気中のBCの存在の有無による放射収支の差の年平均値を示したものである。BCの影響は人為起源の排出量の大きい中国やインド北部、また森林火災起源の排出量の多いアフリカ中央部で卓越している。また、大気上端(図(2)-9a)においてはほぼ全域で放射収支差の値が正となっており、BCの存在によって地球全体への放射収支は正味で正になり、BCは地球全体を加熱する方向に働くことが示されている。全球平均でのBCによる放射への影響は $+0.31 \text{ W m}^{-2}$ となっている。この値はIPCC第4次報告書に報告されている気候モデルの値の範囲にあるが、Bond et al. (2013)²⁰⁾による観測からの最近の評価である $+1.1 \text{ W m}^{-2}$ よりも小さな値となっている。地表面(図(2)-9b)では、分布のパターンは大気上端と似ているものの、放射収支差の値は全域で負となっており、大気中にBCが存在することによって地表面は冷却されることが示されている。地表面におけるBCの放射収支への影響の全球平均値は -0.45 W m^{-2} となっており、大気上端における放射収支差よりも絶対値が大きくなっている。このシミ

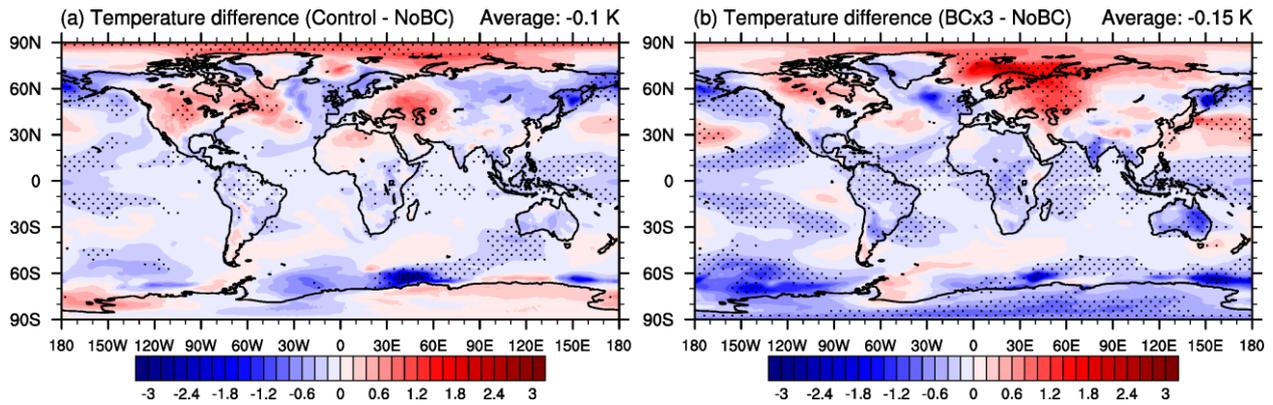
ュレーション結果では、BCは大気上端と地表面における放射収支差の $+0.76 \text{ W m}^{-2}$ だけ大気を加熱していることになる。



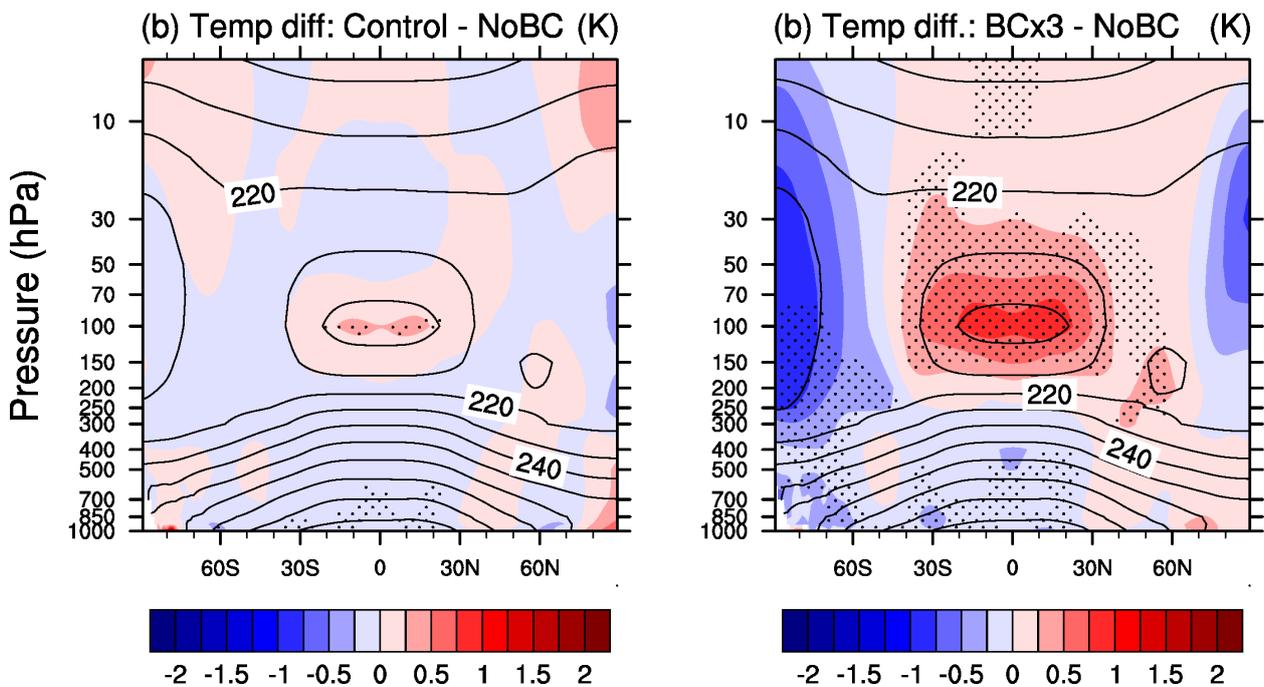
図(2)-9 黒色炭素(BC)の存在による大気上端(a)および地表面(b)での放射収支の差の年平均値。
シミュレーションにおけるBCの排出量はRCPインベントリで2005年の値としている。

MRI-CGCM3でのBCの有無による平均気温差を図(2)-10に示す。数値実験の結果では、BCの地表気温への影響は地域によって大きく異なり、人為起源排出源に起因するBC濃度の高い東アジアや東欧等の北半球大陸上、および南北両極上ではBCによる気温への正の影響が見られ、中央アフリカではBCは逆に気温への負の影響が見られた。大気中のBCによる地表面温度の影響は、全球平均ではわずかに負の値となっている。これは地表におけるBCの放射収支への影響が負であることと整合的である。また、本推進費研究のサブ課題(3)「気候モデルによるBC全球気候影響評価」において、東京大学・国環研・JAMSTECの開発している気候モデルMIROC (Model for Interdisciplinary Research On Climate) によって行われた実験結果とも整合的である。しかしながら、地域ごとの地表面付近の気温への影響のパターンはMRI-CGCM3とMIROCでは異なっており、BCによる放射への影響の地表面気温の反映は用いる気候モデルによって依存することが示唆されている。

図(2)-11はMRI-CGCM3のシミュレーションによるBC量に対する帯状平均気温の差を示している。この図に示される気温変化の3次元構造を調べると、対流圏上層ではBCの気温への影響は地表面気温よりも明瞭になり、熱帯対流圏上層においてBCは加熱の効果をもたらしている。また、北半球中緯度では平均的に対流圏全層においてBCは加熱の効果을及ぼしていることが示されている。また、本推進費研究のサブ課題3でのMIROCでの帯状平均気温の変化も同じ傾向を示している。この結果は、低緯度から中緯度にかけてBCの放射吸収による大気の加熱によって大気成層を安定化していること(準直接効果)、またこれによって全球規模での大気循環に影響を及ぼし、地域ごとに地表気温の応答が異なることを示唆している。



図(2)-10 大気中のBC量による地表面気温差の水平分布の年平均値。(a) 基準実験とBC効果なしの差, (b) 大気中BCを3倍としたときとBC効果なしの差。陰影は t 検定による95%信頼区間検定で有意とされる部分。



図(2)-11 大気中のBC量による帯状平均気温差の年平均値。(a) 基準実験とBC効果なしの差, (b) 大気中BCを3倍としたときとBC効果なしの差。陰影は t 検定による95%信頼区間検定で有意とされる部分。

この実験の結果からは、大気中のBCエアロゾルによる大気の加熱効果による気温の変化は、地域および高度によって異なり、低緯度域の対流圏界面付近はBCの存在によって気温が上昇すること、地表面付近の気温は北半球中緯度域では気温が上がる場所があるが、全球平均ではわずかに冷却されている可能性がある。

本実験結果は、大気中のBCエアロゾルによる大気の加熱効果による気温の変化は、地域およ

び高度によって異なり、低緯度域の対流圏海面付近はBCの存在によって気温が上昇するが、地表面付近の気温は北半球中緯度域では気温が上がるところがあるか、全球平均ではわずかに冷却されている可能性があることを示唆している。また、BCの存在は気温の鉛直構造に影響し、大気の大循環に影響及ぼしていると考えられる。このことは、BCの削減による地球温暖化の緩和策は、平均的な地表面気温には影響は現れにくい、大気循環全体には影響及ぼす可能性があることを示唆している。しかしながら、このようなBCの放射線の影響によるフィードバック効果は気候モデルによっても結果が異なるため、より多くのモデルによる数値実験の比較解析が必要となる。

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

BCの混合状態を形状、および元素組成の観点から電子顕微鏡で取得しつつ、その結果を直裁にエアロゾルモデルへ取り込むことを目指し、研究を推進してきた。電子顕微鏡による観察では他の手法では為し得ないBCの混合状態や形態情報を取得できるため、モデル化への活用の意義は大きい。また、現在の気候変動予測実験に用いられている気候モデルのBCへの感度を調査する実験を通じて、地球の気候においてBCのもつ役割を推定するための基礎的な知見を得ることができた。

また、本研究ではIPCCの大気海洋結合モデル比較実験CMIP5に参加した気象研究所の気候モデルMRI-CGCM3を用いて大気中のBCエアロゾルの直接効果による気候への影響を調査する実験を行った。BCは大気大循環全体に影響し、気温は大気上層では上昇、大気下層では低下し、その鉛直構造が変化する可能性のあること、BCの存在による地表面気温への影響は全球平均で見ると変化は非常に小さいが、地域によって異なり大きな影響を受ける地域があることが示唆された。このような影響を評価するには気候フィードバックを評価できる大気海洋結合モデルを用いることが必要であるが、フィードバックを伴う効果は気候モデルによって異なるため、気候モデル間の相互比較が必要である。本推進費研究課題では、本サブ課題及びサブ課題3での実験結果によって、その端緒となる比較実験ができた。

(2) 環境政策への貢献

エアロゾル微物理モデルの開発と精度向上により、エアロゾル物理・化学過程の理解に貢献し、併せてBCの輸送・変質・除去過程の予測精度向上に資する。また、気候変動実験に用いられる気候モデルにおけるBCの役割を知ることは、環境政策の有効性を判断するための基礎的なデータとなる。また、本研究ではIPCCにおける第5次結合モデル比較実験CMIP5への気象庁から参加モデルである大気海洋結合モデルMRI-CGCM3の改良と気候実験およびその解析を行うことによって、地球温暖化予測の高度化に貢献し、環境政策の貢献に寄与した。

<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>

電子顕微鏡の観測結果の知見に基づき、BCの詳細な物理化学過程を考慮したパラメタリゼー

ションを導入した改良型全球気候モデルにより、BC削減が、大気加熱効果を抑えることに効果的であることが判明した。ただし気候モデルには年々の自然変動成分が存在するため、今後より長期間の積分を実施し、大気循環・気温・降水等の気候場への統計的に有意な影響を調べ、また、不確定性の評価も行ったうえで、実際に行政に活用されることが望ましい。

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) 梶野瑞王: エアロゾル研究, 26, 296-306 (2011)
「大気エアロゾルの性質と素過程の多様性を考慮できる軽くて正確な新しい動力学モデルの開発」
- 2) Oshima, N., Y. Kondo, N. Moteki, N. Takegawa, M. Koike, K. Kita, H. Matsui, M. Kajino, H. Nakamura, J. S. Jung and Y. J. Kim: *J. Geophys. Res.*, 117(D3), doi:10.1029/2011JD016552 (2012)
“Wet removal of black carbon in Asian outflow: Aerosol radiative forcing in East Asia (A-FORCE) aircraft campaign”
- 3) Kajino, M., Y. Inomata, K. Sato, H. Ueda, Z. Han, J. An, G. Katata, M. Deushi, T. Maki, N. Oshima, J. Kurokawa, T. Ohara, A. Takami, and S. Hatakeyama: *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 11833-11856, doi:10.5194/acp-12-11833-2012 (2012)
“Development of the RAQM2 aerosol chemical transport model and predictions of the Northeast Asian aerosol mass, size, chemistry, and the mixing type”
- 4) Kajino, M., M. Deushi, T. Maki, N. Oshima, Y. Inomata, K. Sato, T. Ohizumi, and H. Ueda: *Geosci. Model Dev.*, 5, 1363-1375, doi:10.5194/gmd-5-1363-2012 (2012)
“Modeling wet deposition and concentration of inorganics over Northeast Asia with MRI-PM/c”
- 5) Moteki, N., Y. Kondo, N. Oshima, N. Takegawa, M. Koike, K. Kita, H. Matsui, M. Kajino: *Geophys. Res. Lett.*, 39, L13802, doi:10.1029/2012GL052034 (2012)
“Size dependence of wet removal of black carbon aerosols during transport from the boundary layer to the free troposphere”
- 6) Thompson, J. E., P. L. Hayes, J. L. Jimenez, K. Adachi, X. Zhang, J. Liu, R. J. Weber, and P. R. Buseck: *Atmos. Environ.*, 55, 190-200, doi:10.1016/j.atmosenv.2012.03.011 (2012)
“Aerosol optical properties at Pasadena, CA during CalNex 2010”
- 7) Koike, M., N. Takegawa, N. Moteki, Y. Kondo, H. Nakamura, K. Kita, H. Matsui, N. Oshima, M. Kajino, and T. Y. Nakajima: *J. Geophys. Res.*, 117, D17205, doi:10.1029/2011JD017324 (2012)
“Measurements of regional-scale aerosol impacts on cloud microphysics over the East China Sea: Possible influences of warm sea surface temperature over the Kuroshio ocean current”
- 8) Adachi, K. and P. R. Buseck: *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 118, 3723-3730, doi:10.1002/jgrd.50321 (2013)
“Changes of ns-soot mixing states and shapes in an urban area during CalNex”

- 9) Kajino, M., K. Sato, Y. Inomata, and H. Ueda: *Atmos. Environ.*, 79, 67-78, doi:10.1016/j.atmos.env.2013.06.024 (2013)
“Source-receptor relationship of nitrate in East Asia and sea salt effects”
- 10) Kajino, M., R. C. Easter, and S. J. Ghan: *J. Geophys. Res.*, 118, 10,011-10,040, doi:10.1002/jgrd.50685 (2013)
“Modal Bin Hybrid Model: a surface area consistent, triple moment sectional method for process-oriented modeling of atmospheric aerosols”
- 11) 足立光司 : エアロゾル研究, 28-3, 189-194 (2013)
「電子線トモグラフィによるエアロゾル粒子の3次元形態解析」
- 12) Oshima, N., M. Koike, Y. Kondo, H. Nakamura, N. Moteki, H. Matsui, N. Takegawa, and K. Kita: *J. Geophys. Res. Atmos.*, 118, 13,175-13,198, doi:10.1002/2013JD020262 (2013)
“Vertical transport mechanisms of black carbon over East Asia in spring during the A-FORCE aircraft campaign”
- 13) Matsui, H., M. Koike, Y. Kondo, N. Oshima, N. Moteki, Y. Kanaya, A. Takami, and M. Irwin: *J. Geophys. Res. Atmos.*, 118, 9948–9967, doi:10.1002/jgrd.50702 (2013)
“Seasonal variations of Asian black carbon outflow to the Pacific: Contribution from anthropogenic sources in China and biomass burning sources in Siberia and Southeast Asia”
- 14) Takegawa, N., N. Moteki, M. Koike, N. Oshima, and Y. Kondo: *Aerosol. Sci. Technol.*, 47:10, 1059-1065, doi:10.1080/02786826.2013.822462 (2013)
“Condensation particle counters combined with a low-pressure impactor for fast measurement of mode-segregated aerosol number concentration”
- 15) Liu, X., Y. Kondo, K. Ram, H. Matsui, K. Nakagomi, T. Ikeda, N. Oshima, R. L. Verma, N. Takegawa, M. Koike, and M. Kajino: *J. Geophys. Res. Atmos.*, 118, 3709–3722, doi:10.1002/jgrd.50317 (2013)
“Seasonal variations of black carbon observed at the remotemountain site Happo in Japan,”
- 16) Oshima, N. and M. Koike: *Geosci. Model Dev.*, 6, 263-282, doi:10.5194/gmd-6-263-2013 (2013)
“Development of a parameterization of black carbon aging for use in general circulation models”
- 17) Moteki, N., Y. Kondo, and K. Adachi: *J. Geophys. Res.*, doi:10.1002/2013JD020655 (2014)
“Identification by single-particle soot photometer of black carbon particles attached to other particles: Laboratory experiments and ground observations in Tokyo”
- 18) 足立光司 : エアロゾル研究, 29(1), 10-14, doi:10.11203/jar.29.10 (2014)
「ナノスケールで見るすす粒子」
- 19) 大島長: エアロゾル研究, 29 (1), 22-31, (2014)
「ブラックカーボン粒子のモデル研究 : ミクロスケールから全球スケールまで」
- 20) Katata, G., M. Kajino, K. Matsuda, A. Takahashi, K. Nakaya: *Atmos. Environ.* (2014)
“Effects of aerosol hygroscopic properties on dry deposition onto a broad-leaved forest: a numerical study” (accepted)
- 21) Buseck, P. R., K. Adachi, A. Gelencser, E. Tompa, and M. Posfai: *Aerosol Sci. Tech.* (2014)
“Ns-soot: a material-based term for strongly light-absorbing carbonaceous particles” (in press)
- 22) Adachi, K., Y. Zaizen, M. Kajino, and Y. Igarashi: *J. Geophys. Res.* (2014)

“Mixing state of regionally transported soot particles and the coating effect on their size and shape at a mountain site in Japan” (in press)

<その他誌上発表（査読なし）>

- 1) Kajino, M., K. Sato, Y. Inomata, H. Ueda: 14th Expert Meeting for the Long-range Transboundary Air Pollutants in Northeast Asia (2011)
“II. Modeling Part. Modeling study on long-range transboundary air pollutants in Northeast Asia”
- 2) Buseck, P. R., K. Adachi, A. Gelencsér, É. Tompa, and M. Pósfai: Atmos. Chem. Phys. Discuss., 12, 24821-24846 (2012)
“Are black carbon and soot the same?”
- 3) 梶野瑞王：大気化学研究会ニュースレター, 26, 6-7 (2012)
「Acid Rain 2011 国際会議の参加報告」
- 4) Goto, D., N. Oshima, T. Nakajima, T. Takemura, and T. Ohara: Atmos. Chem. Phys. Discuss., 12, 29801-29849, doi:10.5194/acpd-12-29801-2012 (2012)
“Impact of the aging process of black carbon aerosols on their spatial distribution, hygroscopicity, and radiative forcing in a global climate model”
- 5) Adachi, K.: Technical Reports of The Meteorological Research Institute No.68, 18-19 (2013)
“Aerosol particle shape revealed by transmission electron microscopy and the implications for its optical properties”
- 6) Buseck, P. R., K. Adachi, E. Freney, T. Kojima, W. J. Li and M. Posfai: Technical Reports of The Meteorological Research Institute No.68, 6-9 (2013)
“Identification and analysis of atmospheric aerosol particles (& climate implications)”
- 7) Oshima, N.: Technical Reports of the Meteorological Research Institute, 68, 32-35 (2013)
“Aging of black carbon and its impact on aerosol optical properties and cloud condensation nuclei activities using a mixing state resolved model”
- 8) Goto, D., N. Oshima, T. Nakajima, and T. Takemura: Technical Reports of the Meteorological Research Institute, 68, 24-27 (2013)
“Treatment of black carbon and availability of electron microscope for global climate models”
- 9) Tanaka, T. Y. and MRI Earth System Modeling Group: Technical Reports of the Meteorological Research Institute, 68, 65-68 (2013)
“Climatic effect of black carbon in the MRI global climate model”

(2) 口頭発表（学会等）

- 1) Inomata, Y., M. Kajino, K. Sato, T. Ohara, J.-I. Kurokawa, H. Ueda, N. Tang, K. Hayakawa, T. Ohizumi, H. Akimoto: American Geophysical Union Fall meeting, San Francisco, U.S. (2011)
“Transport and deposition of PAHs in East Asia using Regional Emission Inventory in ASia (REAS) and Regional Air Quality Model (RAQM) for POP version.”
- 2) 梶野瑞王、出牛真、眞木貴史、青柳曉典、橋本明弘、三上正男：日本気象学会 2011 年秋季大会（2011）
「非静力学気象化学モデル（NHM-Chem）の開発」

- 3) 出牛真、梶野瑞王、中里真久、眞木貴史、永井智広、酒井哲、柴田清孝：日本気象学会 2011 年秋季大会（2011）
「対流圏オゾンライダー観測を用いた気象研光化学オキシダント予測システムの検証」
- 4) Tanaka, T. Y., and MRI Earth System Modeling Group: 10th AeroCom workshop, Fukuoka, Japan (2011)
“Variability of the naturally emitted aerosols in the climate CMIP5 experiments of Meteorological Research Institute”
- 5) 田中泰宙、関山剛、J.-Y. Kang、眞木貴史、三上正男：日本気象学会 2011 年度秋季大会（2011）
「次期全球エアロゾル予測モデルの開発：エアロゾル予測の高度化に向けて」
- 6) 梶野瑞王、出牛真、眞木貴史、青柳暁典、田中泰宙、関山剛、大島長、五十嵐康人、三上正男、猪股弥生、堅田元喜：大気化学討論会（2011）
「気象研パッシブトレーサーモデル（MRI-PM）の開発」
- 7) 足立光司、Peter R. Buseck、五十嵐康人：第 17 回大気化学討論会（2011）
「透過型電子顕微鏡を用いたメガシティ（メキシコシティ及びロサンゼルス）由来のエアロゾル分析」
- 8) Igarashi, Y., Y. Zaizen, H. Naoe, M. Kajino, K. Adachi: Fifth Korea-Japan-China Joint Conference, Busan, Korea (2011)
“Aerosol research using electron microscope and mountain platform”
- 9) Tanaka, T. Y.: Fifth Korea-Japan-China Joint Conference on Meteorology, Busan, Korea (2011)“Numerical simulation of the seasonal variation of elevated dust aerosol from Taklimakan desert.”
- 10) Kajino, M.: 3rd International Workshop on Atmospheric Modeling Research in East Asia, Chengdu, Sichuan, China (2011)
“Modeling air, rain and snow precipitation quality over Northeast Asia”
- 11) 猪股弥生、梶野瑞王、佐藤啓市、大原利眞、黒川純一、唐寧、早川和一、植田洋匡、大泉毅、秋元肇：大気環境学会（2011）
「RAQM-POP モデルによる北東アジアにおける多環芳香族炭化水素の濃度および沈着量の変動解析」
- 12) 梶野瑞王：エアロゾル科学技術討論会（2011）
「大気エアロゾルの多様性に対応できる軽くて正確な動力学モデルの開発」
- 13) 田中泰宙：環境省推進費 A-1101 第一回研究連絡会議（2011）
「全球エアロゾルモデルによる BC 削減の有効性評価～研究計画の概要～」
- 14) 五十嵐康人、財前祐二、田中泰宙、梶野瑞王、直江寛明：環境省推進費 A-1101 第一回研究連絡会議（2011）
「サブ課題 2：BC の電子顕微鏡観測と全球エアロゾルモデルによる研究」
- 15) Inomata, Y., M. Kajino, K. Sato, H. Ueda, N. Tang, K. Hayakawa, J. Kurokawa, T. Ohara, T. Ohizumi, H. Akimoto: Acid Rain, Beijing, China (2011)
“Emission, transport and deposition of simulated polycyclic aromatic hydrocarbons in East Asia.”
- 16) Kajino, M., M. Deushi, Y. Inomata, K. Sato, H. Ueda, Z. Han, J. An, J. Kurokawa, and T. Ohara: Acid Rain, Beijing, China (2011)

- “Modeling air, rain and snow precipitation quality over Northeast Asia using MRI-CCM2-WRF-RAQM2 model.”
- 17) 梶野瑞王、大島長：日本気象学会 2011 年春季大会（2011）
「大気エアロゾルの多様性を考慮しながらダイナミクスを解くモーダル・ビンハイブリッドモデル（MBHM）の開発」
 - 18) 梶野瑞王：日本気象学会 2011 年春季大会（2011）
「多重モードとフラクタル凝集形状を考慮した自由分子領域と近連続領域における粒子ダイナミクスモデル（MADMS）の開発」
 - 19) 大島長、小池真、近藤豊、茂木信宏、中村尚、竹川暢之、北和之：第 17 回大気化学討論会、2K7、(2011)
「領域モデルを用いた春季東アジア域におけるブラックカーボンの上方輸送過程」
 - 20) 大島長、小池真、近藤豊、茂木信宏、中村尚、竹川暢之、北和之：日本気象学会 2011 年度秋季大会（2011）
「春季東アジア域におけるブラックカーボンの上方輸送過程」
 - 21) Oshima, N., Y. Kondo, N. Moteki, N. Takegawa, M. Koike, K. Kita, H. Matsui, M. Kajino, H. Nakamura, J. Jung, and Y.-J. Kim: 10th AeroCom Workshop (2011)
“Wet removal of black carbon in Asian outflow: Aerosol Radiative Forcing in East Asia (A-FORCE) aircraft campaign”
 - 22) Oshima, N., Y. Kondo, N. Moteki, N. Takegawa, M. Koike, K. Kita, H. Matsui, M. Kajino, H. Nakamura, J. Jung, and Y.-J. Kim: 2011 International Aerosol Modeling Algorithms Conference (2011)
“Wet Removal of Black Carbon in Asian Outflow During Aerosol Radiative Forcing in East Asia (A-FORCE) Aircraft Campaign”
 - 23) Oshima, N.: Department of Marine, Earth, and Atmospheric Sciences, North Carolina State University, Raleigh (2011)
“Vertical transport of black carbon over East Asia in spring during the A-FORCE aircraft campaign.”
 - 24) Buseck, P. R., K. Adachi, A. Gelencser, and M. Posfai: 3rd International Symposium on Polycyclic Aromatic Compounds (2011)
“Soot, Elemental Carbon (EC), Black Carbon (BC), and Brown Carbon (BrC): A Transmission Electron Microscopy Perspective.”
 - 25) Oshima, N.: International symposium on aerosol studies explored by electron microscopy, Tsukuba, Japan (2012)
“Aging of black carbon and its impact on aerosol optical properties and cloud condensation nuclei activities using a mixing state resolved model.” (Invited)
 - 26) Tanaka, T. Y. and MRI Earth System Modeling Group: International symposium on aerosol studies explored by electron microscopy, Tsukuba, Japan (2012)
“Climatic effect of black carbon in MRI global climate model.”
 - 27) Kajino, M.: International symposium on aerosol studies explored by electron microscopy, Tsukuba, Japan (2012)
“Model formulation and predictability of a variety of atmospheric aerosols.”

- 28) Adachi, K. International symposium on aerosol studies explored by electron microscopy, Tsukuba, Japan (2012)
“Aerosol particle shape revealed by transmission electron microscopy and the implications for its optical properties.”
- 29) Buseck, P. R., K. Adachi, E. Freney, T. Kojima, W. J. Li, and M. Posfai: International symposium on aerosol studies explored by electron microscopy, Tsukuba, Japan (2012)
“Identification and analysis of atmospheric aerosol particles (& climate implications).”
- 30) Zaizen, Y., and H. Naoe: 92nd American Meteorological Society (AMS) Annual Meeting (2012)
“Mixing state of soot collected at mountain sites in Japan.”
- 31) Adachi, K., Igarashi, Y., and Buseck, P. R.: Japan Geoscience Union Meeting 2012 (2012)
“Change of shape and composition of sea-salt aerosol particles in an urban atmosphere.”
- 32) 田中泰宙, 青木輝夫, 坂見智法, 保坂征宏, 足立恭将, 行本誠史, 地球システムモデル開発グループ: 日本気象学会 2012 年度春季大会 (2012)
「気候モデルによる黒色炭素エアロゾル削減の有効性評価のための感度実験」
- 33) Oshima, N., Y. Kondo, N. Moteki, N. Takegawa, M. Koike, K. Kita, H. Matsui, M. Kajino, H. Nakamura, J. Jung, and Y.-J. Kim: 12th International Global Atmospheric Chemistry Conference (2012)
“Wet removal of black carbon in Asian outflow: Aerosol Radiative Forcing in East Asia (A-FORCE) aircraft campaign.”
- 34) 五十嵐康人: H24 年度環境省環境研究総合推進費アドバイザーボード会合 (2012)
「BC の電子顕微鏡観察」
- 35) Oshima, N., M. Koike, Y. Zhang, and Y. Kondo: International Radiation Symposium 2012 (2012)
“Aging of black carbon and its impact on aerosol optical properties using a size and mixing state resolved model.”
- 36) Thompson, J., L. Ma, J. L. Jimenez, P. Hayes, K. Adachi, P. Buseck, R. Weber, X. Zhang, and J. Liu : American Meteorological Society 93rd Annual Meeting(2013)
“Insights on Direct Forcing: Aerosol Albedo Measurements in the Visible and Near UV.”
- 37) Tanaka, T. Y.: The 3rd SIGMA workshop (2013)
“Simulation of BC and dust deposition over Greenland”
- 38) Oshima, N., M. Koike, and T. Y. Tanaka: 2013 International Aerosol Modeling Algorithms Conference (2013)
“Development of a Parameterization of Black Carbon Aging for Use in General Circulation Models.”
- 39) Oshima, N., M. Koike, Y. Kondo, H. Matsui, N. Moteki, H. Nakamura, N. Takegawa, and K. Kita: Goldschmidt 2013 (2013)
“Vertical Transport of Black Carbon over East Asia during the AFORCE Aircraft campaign.”
- 40) 大島長、小池真、近藤豊、松井仁志、茂木信宏、中村尚、竹川暢之、北和之: 日本地球惑星科学連合 2013 年大会 (2013)
「春季東アジア域におけるブラックカーボンの上方輸送過程 (A-FORCE 航空機観測)」

- 41) 大島長、小池真、近藤豊、松井仁志、茂木信宏、中村尚、竹川暢之、北和之：日本気象学会 2013 年度春季大会 (2013)
「春季東アジア域におけるブラックカーボンの上方輸送過程と輸送経路」
- 42) 五十嵐康人：H25 年度環境省環境研究総合推進費アドバイザーボード会合 (2013) 「BC の電子顕微鏡観察」
- 43) 田中泰宙、青木輝夫、保坂征宏、足立恭将：第 30 回エアロゾル科学・技術研究討論会, (2013)
「気候モデルによる光吸収性エアロゾルの影響評価：大気の加熱と積雪汚染」
- 44) 五十嵐康人、足立光司、財前祐二、梶野瑞王：第 30 回エアロゾル科学・技術研究討論会, (2013)
「電子顕微鏡データの活用：エアロゾルデータベース構築の試み」
- 45) Igarashi Y., K. Adachi, Y. Zaizen, and M. Kajino: Sixth China-Korea-Japan Joint Conference on Meteorology, Nanning China (2013)
“Construction Trial of the Electron-Microscopic Aerosol Database”

(3) 出願特許

特に記載すべき事項はない。

(4) シンポジウム、セミナーの開催 (主催のもの)

- 1) International symposium on aerosol studies explored by electron microscopy (電子顕微鏡を用いたエアロゾル研究-モデル研究とのリンクをどう進めるか) (2012 年 2 月 16-17 日、気象研究所講堂、参加者 80 名)
表記の公開シンポジウムを気象研究所で開催した。このシンポジウムでは、電子顕微鏡等を用いた大気エアロゾルの研究と微物理モデルを用いた研究の双方の分野から、海外を含む多数の研究者が参加し、電子顕微鏡とモデルのリンクの意義、現在の試み、将来の可能性について意見交換を行った。この国際シンポジウムの海外招待講演者 (Prof. Peter R. Buseck および Dr. Weijun Li) の招聘費用は「地球温暖化対策としての BC 削減の有効性の評価」によるもので、この招聘により BC に関する最先端の知見が当該研究の研究メンバーに共有された。
Igarashi, Y.: Technical Reports of the Meteorological Research Institute No.68, 2-4, (2012)
“International symposium on aerosol studies explored by electron microscopy: How can electron microscopy improve atmospheric models? Foreword”

(5) マスコミ等への公表・報道等

- 1) 日経サイエンス (2013 年 5 月号, 特集記事「中国からの PM2.5」, 五十嵐康人, 足立光司)

(6) その他

特に記載すべき事項はない。

8. 引用文献

- 1) Hansen, J., Sato, M., Ruedy, R., Nazarenko, L., Lacis, A., Schmidt, G. A., Russell, G., Aleinov, I., Bauer, M., Bauer, S., Bell, N., Cairns, B., Canuto, V., Chandler, M., Cheng, Y., Del Genio, A., Faluvegi, G., Fleming, E., Friend, A., Hall, T., Jackman, C., Kelley, M., Kiang, N., Koch, D., Lean,

- J., Lerner, J., Lo, K., Menon, S., Miller, R., Minnis, P., Novakov, T., Oinas, V., Perlwitz, J., Perlwitz, J., Rind, D., Romanou, A., Shindell, D., Stone, P., Sun, S., Tausnev, N., Thresher, D., Wielicki, B., Wong, T., Yao, M., and Zhang, S.: *J. Geophys. Res.*, 110, doi:10.1029/2005JD005776, d18104 (2005)
“Efficacy of climate forcings”
- 2) Shindell, D. T., Chin, M., Dentener, F., Doherty, R. M., Faluvegi, G., Fiore, A. M., Hess, P., Koch, D. M., MacKenzie, I. A., Sanderson, M. G., Schultz, M. G., Schulz, M., Stevenson, D. S., Teich, H., Textor, C., Wild, O., Bergmann, D. J., Bey, I., Bian, H., Cuvelier, C., Duncan, B. N., Folberth, G., Horowitz, L. W., Jonson, J., Kaminski, J. W., Marmer, E., Park, R., Pringle, K. J., Schroeder, S., Szopa, S., Takemura, T., Zeng, G., Keating, T. J., and Zuber, A.: *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 5353-5372, doi:10.5194/acp-8-5353-2008 (2008)
“A multi-model assessment of pollution transport to the Arctic”
- 3) Koch, D., Schulz, M., Kinne, S., McNaughton, C., Spackman, J. R., Balkanski, Y., Bauer, S., Berntsen, T., Bond, T. C., Boucher, O., Chin, M., Clarke, A., De Luca, N., Dentener, F., Diehl, T., Dubovik, O., Easter, R., Fahey, D. W., Feichter, J., Fillmore, D., Freitag, S., Ghan, S., Ginoux, P., Gong, S., Horowitz, L., Iversen, T., Kirkevåg, A., Klimont, Z., Kondo, Y., Krol, M., Liu, X., Miller, R., Montanaro, V., Moteki, N., Myhre, G., Penner, J. E., Perlwitz, J., Pitari, G., Reddy, S., Sahu, L., Sakamoto, H., Schuster, G., Schwarz, J. P., Seland, O., Stier, P., Takegawa, N., Takemura, T., Textor, C., van Aardenne, J. A., and Zhao, Y.: *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 9001-9026 (2009)
“Evaluation of black carbon estimations in global aerosol models”
- 4) Adachi, K., Y. Zaizen, M. Kajino, and Y. Igarashi: *J. Geophys. Res. Atmos.*, 119, 5386–5396, doi:10.1002/2013JD020880 (2014), “Mixing state of regionally transported soot particles and the coating effect on their size and shape at a mountain site in Japan,”
- 5) 足立光司：エアロゾル研究，28-3，189-194 (2013)
「電子線トモグラフィによるエアロゾル粒子の3次元形態解析」
- 6) Adachi, K. and P. R. Buseck: *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 118, 3723-3730, doi:10.1002/jgrd.50321 (2013)
“Changes of ns-soot mixing states and shapes in an urban area during CalNex”
- 7) Kajino, M: *J. Aerosol Sci.*, 42(4), 224-248, doi:10.1016/j.jaerosci.2011.01.005, (2011)
“MADMS: Modal Aerosol Dynamics model for multiple Modes and fractal Shapes in the free-molecular and near-continuum regimes”
- 8) 梶野瑞王，五十嵐康人，藤谷雄二：大気環境学会誌，49 (2)，101-108 (2014)
「Fresh soot と，aged soot は、どちらが気道に沈着しやすいか—粒径分布と吸湿性の気管支・肺沈着率への影響—」
- 9) Kajino, M., R. C. Easter, and S. J. Ghan: *J. Geophys. Res.*, 118, 10011-10040, doi:10.1002/jgrd.50685 (2013)
“Modal Bin Hybrid Model: a surface area consistent, triple moment sectional method for process-oriented modeling of atmospheric aerosols”
- 10) Kajino, M., Y. Inomata, K. Sato, H. Ueda, Z. Han, J. An, G. Katata, M. Deushi, T. Maki, N. Oshima, J. Kurokawa, T. Ohara, A. Takami, and S. Hatakeyama: *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 11833-11856, doi:10.5194/acp-12-11833-2012 (2012)

- “Development of the RAQM2 aerosol chemical transport model and predictions of the Northeast Asian aerosol mass, size, chemistry, and the mixing type”
- 11) Deushi, M., K. Shibata: *Papers in Meteorology and Geophysics*, 62, 1-46, (2011)
 “Development of a Meteorological Research Institute Chemistry-Climate Model version 2 for the Study of Tropospheric and Stratospheric Chemistry”
 - 12) Kajino, M., M. Deushi, T. Maki, N. Oshima, Y. Inomata, K. Sato, T. Ohizumi, and H. Ueda: *Geosci. Model Dev.*, 5, 1363-1375, doi:10.5194/gmd-5-1363-2012 (2012)
 “Modeling wet deposition and concentration of inorganics over Northeast Asia with MRI-PM/c”
 - 13) Oshima, N., Y. Kondo, N. Moteki, N. Takegawa, M. Koike, K. Kita, H. Matsui, M. Kajino, H. Nakamura, J. S. Jung, and Y. J. Kim: *J. Geophys. Res.*, 117, D03204, doi:10.1029/2011JD016552, (2012)
 “Wet removal of black carbon in Asian outflow: Aerosol Radiative Forcing in East Asia (A-FORCE) aircraft campaign”
 - 14) Oshima, N., M. Koike, Y. Zhang, Y. Kondo, N. Moteki, N. Takegawa, and Y. Miyazaki: *J. Geophys. Res.*, 114(D6), doi:10.1029/2008JD010680, (2009a)
 “Aging of black carbon in outflow from anthropogenic sources using a mixing state resolved model: Model development and evaluation”
 - 15) Oshima, N., M. Koike, Y. Zhang, Y. Kondo: *J. Geophys. Res.*, 114(D18), doi:10.1029/2008JD011681, (2009b)
 “Aging of black carbon in outflow from anthropogenic sources using a mixing state resolved model: 2. Aerosol optical properties and cloud condensation nuclei activities.”
 - 16) Tanaka, T. Y., K. Orito, T. T. Sekiyama, K. Shibata, M. Chiba, and H. Tanaka: *Papers in Meteorology and Geophysics*, 53(4), 119-138, (2003)
 “MASINGAR, a global tropospheric aerosol chemical transport model coupled with MRI/JMA98 GCM: Model description”
 - 17) Yukimoto, S., Y. Adachi, M. Hosaka, T. Sakami, H. Yoshimura, M. Hirabara, T. Y. Tanaka, E. Shindo, H. Tsujino, M. Deushi, R. Mizuta, S. Yabu, A. Obata, H. Nakano, T. Koshiro, T. Ose, and A. Kitoh: *J. Meteorol. Soc. Jpn.*, 90A, 23-64, (2012)
 “A New Global Climate Model of the Meteorological Research Institute: MRI-CGCM3 —Model Description and Basic Performance —”
 - 18) Yoshimura, H and Yukimoto, S: *Pap. Met. Geophys.*, 59, 19-29, (2008)
 “Development of a Simple Coupler (Scup) for Earth System Modeling”
 - 19) Lamarque, J.-F., Bond, T. C., Eyring, V., Granier, C., Heil, A., Klimont, Z., Lee, D., Liousse, C., Mieville, A., Owen, B., Schultz, M. G., Shindell, D., Smith, S. J., Stehfest, E., Van Aardenne, J., Cooper, O. R., Kainuma, M., Mahowald, N., McConnell, J. R., Naik, V., Riahi, K., and van Vuuren, D. P.: *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 7017-7039, doi:10.5194/acp-10-7017-2010, (2010)
 “Historical (1850–2000) gridded anthropogenic and biomass burning emissions of reactive gases and aerosols: methodology and application”
 - 20) Bond, T. C., Doherty, S. J., Fahey, D. W., Forster, P. M., Berntsen, T., DeAngelo, B. J., Flanner, M. G., Ghan, S., Karcher, B., Koch, D., Kinne, S., Kondo, Y., Quinn, P. K., Sarofim, M. C., Schultz, M.

- G., Schulz, M., Venkataraman, C., Zhang, H., Zhang, S., Bellouin, N., Guttikunda, S. K., Hopke, P. K., Jacobson, M. Z., Kaiser, J. W., Klimont, Z., Lohmann, U., Schwarz, J. P., Shindell, D., Storelvmo, T., Warren, S. G., Zender, C. S.: *J. Geophys. Res.*, doi:10.1002/jgrd.50171, (2013)
“Bounding the role of black carbon in the climate system: A scientific assessment”
- 21) Thompson, J. E., P. L. Hayes, J. L. Jimenez, K. Adachi, X. Zhang, J. Liu, R. J. Weber, and P. R. Buseck: *Atmos. Environ.*, 55, 190-200, doi:10.1016/j.atmosenv.2012.03.011 (2012)
“Aerosol optical properties at Pasadena, CA during CalNex 2010”
- 22) Adachi, K., Y. Zaizen, M. Kajino, and Y. Igarashi: *J. Geophys. Res.*, (2014)
“Mixing state of regionally transported soot particles and the coating effect on their size and shape at a mountain site in Japan” (in press)
- 23) Moteki, N., Y. Kondo, and K. Adachi: *J. Geophys. Res.*, doi:10.1002/2013JD020655, (2014)
“Identification by single-particle soot photometer of black carbon particles attached to other particles: Laboratory experiments and ground observations in Tokyo”
- 24) Buseck, P. R., K. Adachi, A. Gelencser, E. Tompa, and M. Posfai: *Aerosol Sci. Tech.*, (2014)
“Ns-soot: a material-based term for strongly light-absorbing carbonaceous particles” (2014)
- 25) 足立光司 : エアロゾル研究, 29(1), 10-14, doi:10.11203/jar.29.10 (2014)
「ナノスケールで見るすす粒子」
- 26) Oshima, N., M. Koike, Y. Kondo, H. Nakamura, N. Moteki, H. Matsui, N. Takegawa, and K. Kita: *J. Geophys. Res. Atmos.*, 118, 13,175-13,198, doi:10.1002/2013JD020262, (2013)
“Vertical transport mechanisms of black carbon over East Asia in spring during the A-FORCE aircraft campaign”
- 27) Oshima, N. and M. Koike: *Geosci. Model Dev.*, 6, 263-282, doi:10.5194/gmd-6-263-2013 (2013)
“Development of a parameterization of black carbon aging for use in general circulation models”
- 28) Takemura, T., T. Nozawa, S. Emori, T. Y. Nakajima, and T. Nakajima: *J. Geophys. Res.*, 110, D02202, doi:10.1029/2004JD005029, (2005)
“Simulation of climate response to aerosol direct and indirect effects with aerosol transport-radiation model”
- 29) Goto, D., N. Oshima, T. Nakajima, T. Takemura, and T. Ohara: *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 12, 29801-29849, doi:10.5194/acpd-12-29801-2012, (2012)
“Impact of the aging process of black carbon aerosols on their spatial distribution, hygroscopicity, and radiative forcing in a global climate model”
- 30) 大島長 : エアロゾル研究, 29 (1), 22-31, (2014)
「ブラックカーボン粒子のモデル研究 : ミクロスケールから全球スケールまで」

(3) 気候モデルによるBC全球気候影響評価

東京大学大気海洋研究所

中島 映至

平成 23～25 年度累計予算額：6,136 千円（うち、平成 25 年度予算額：1,768 千円）

予算額は、間接経費を含む。

[要旨]

H23年度は、Oshima and Koike¹⁾によって開発されたBCの大気変質過程に関するパラメタリゼーションをMIROC+SPRINTARSに導入し、従来の方法や他のモデルで一般的に利用されている方法と比較したところ、これまで過小評価傾向であった光吸収分を増大させることができ、全球年平均での人為起源BCの放射強制力は、他の気候モデルで一般的に利用されている方法に比べて $+0.25\text{W}/\text{m}^2$ 増えた。H24年度は、MIROC+SPRINTARSの計算結果をUNEP/ABCプロジェクトで行っているABC気候観測所での観測値とも比較した。観測で得られている空間濃度勾配はモデルでも概ね再現されたが、モデル値が過小評価であったため、モデル改良を引き続き行う必要があることが明らかになった。また、排出インベントリの改良するために、MIROC+SPRINTARSを利用した逆問題解析システムから発生源の逆推定を行い、排出インベントリの改良を行った。並行して、Stretch-NICAM+SPRINTARSの開発を行い、全球と高空間分解能の領域計算を同時に行うことに成功した。H25年度は、大気海洋結合モデル（MIROC-CGCM）を用いてBCの気候影響評価を行い、気象研究所のCGCMとも比較を行ったところ、双方のモデルでBC発生源でのBCの存在による地表面付近の温度減少（850hPa面で全球平均値が -0.01K ）、および、上層での気温上昇（200hPaで全球平均値が $+0.13\text{K}$ ）が得られた。また、降水が増加し、他の成分のエアロゾルの存在量が減少し、これが日射量の変化にも影響を与えた。これ以外にも様々なフィードバックが影響し、BCの存在に伴う気候・大気汚染影響の推定には大気海洋結合モデルが必須であることが示唆された。並行して、Stretch-NICAM+SPRINTARS+CHASERの開発を行い、より詳細な大気化学モデルとして、高空間分解能の領域計算を同時に行うことに成功した。最後に、CALIOPとMODISの観測データ組み合わせによる全エアロゾルの短波長エアロゾル直接放射強制力を見積もったところ、全天での全球年平均値は $-0.78\text{W}/\text{m}^2$ （NASA成果物Version 2）および $-2.02\text{W}/\text{m}^2$ （NASA成果物Version 3）となり、観測データ間にも大きな差があることがわかった。

[キーワード]

MIROC/NICAM+SPRINTARS/CHASERモデル、大気海洋結合モデル、放射強制力、逆問題、CALIPSO+MODIS

1. はじめに

本研究課題の目的は、高精度エアロゾル計測技術、広域観測、領域・気候モデルの系統的な連携により、これまで扱いが不十分であったBCの物理化学過程を改良し、大気モデルおよび大気海洋結合モデルによるBCの削減効果を評価することである。本サブ課題では、MIROC/NICAM-SPRINTARS/CHASER-AGCMモデルと大気海洋結合モデルであるMIROC-CGCMを使用した

シミュレーションを行う。特にMIROC-CGCMは領域モデルでは計算できない気候システム要素の応答・相互作用を含めた計算を行うことができ、IPCC-AR4(2007)およびIPCC-AR5(2013)を始め、様々な国際気候プロジェクトに貢献してきたモデルであり、同じく国際貢献してきた気象研究所の大気海洋結合モデルと比較することで、モデル間の相違を把握し、BCの排出量の削減にともなう気温・降水量などの応答をより良く評価することを目指す。

2. 研究開発目的

本サブ課題の研究目的は、他サブ課題の観測結果による知見を導入して、エアロゾルの詳細な物理化学過程を考慮した領域・気候モデルの開発・改良を行い、観測結果を用いて数値モデル計算を検証する。使用するモデルは、MIROC/NICAM-SPRINTARS/CHASER-AGCMモデルと大気海洋結合モデルであるMIROC-CGCMであり、特にMIROC-CGCMを用いた計算ではBCの排出量によって領域・全球スケールにおいて、気温や降水量がどのように変化するかを、海洋循環も含めた様々なフィードバックを含めて評価することが目的である。また、これらのモデルを評価するために、逆問題による排出インベントリの推定や衛星搭載センサーのCALIOPとMODISを用いたエアロゾルの放射強制力の算出も行うことが目的である。

3. 研究開発方法

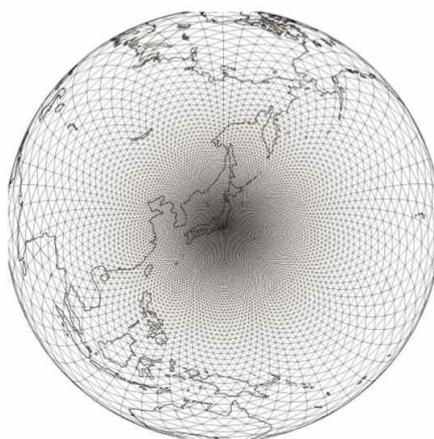
エアロゾル輸送モデルSPRINTARSは、大気大循環モデルMIROCや非静力正二十面体大気モデルNICAM^{2,3)}と結合している。本課題では、これらのMIROC+SPRINTARSとNICAM+SPRINTARSを高度化し、100年程度の期間におけるBC削減効果の評価を目指す。MIROCは主に気候変動予測モデルとして開発されており、気候変動に関する政府間パネル（IPCC; Intergovernmental Panel on Climate Change）や国際的な気候モデル相互比較プロジェクト（CMIP; Coupled Model Intercomparison project）にも参画している全球モデルであり、大気大循環モデル（AGCM: Atmospheric General Circulation Model）および大気海洋結合モデル（CGCM; Coupled GCM）として用いられてきた。また、NICAM（Nonhydrostatic ICosahedral Atmospheric Model）は、一般的な全球モデルが必要とする積雲パラメタリゼーションが不要な、全球雲解像モデルである。Miura et al.⁴⁾では、全球3.5km実験を行い、世界で初めてマッデンジュリアン振動（MJO）をモデルで再現した。また、Suzuki et al.⁵⁾では全球7 km実験を行い、これまでにない高分解能でエアロゾル分布を再現した。ごく近年では、世界最高分解能の全球870 mメッシュによる実験を成功させている⁶⁾。また、NICAMは低分解能実験も行うことができ、AGCMとしても利用可能である^{7,8)}。さらに、ストレッチ格子法を用いた“Stretch-NICAM”モデル（図(3)-1）として、領域スケールでの高分解能実験を行うことができる^{9,10)}。各年度の開発方法を以下に示す。

H23年度:SPRINTARSのBCに関するモジュールの改良をMIROC+SPRINTARSモデルを用いて行った¹¹⁾。まず、Oshima and Koike¹⁾によって開発されたBCの大気変質過程に関する全球モデル用のパラメタリゼーションの式を、MIROC+SPRINTARSに導入して得られた新しいモデル結果の解析を行った。このパラメタリゼーションでは、疎水性と親水性の二種類のBCを仮定したときの、疎水性から親水性への変換時定数(τ)を計算するもので、BCに凝縮する主成分である硫酸の濃度と、BC濃度に依存した関係を有している。この方法をAGV法(BC aging process with variable τ)と呼ぶ。

この手法による結果をこれまで使用されていた方法(Original Method; 以後ORIG法)と、他の気候モデルで一般的に用いられている変質過程の方法(BC aging method with fixed τ ; 以後AGF法)を比較した。

H24年度：MIROC+SPRINTARSの継続した改良と、MIROC+SPRINTARSに局所カルマン smoother法を組み合わせた逆問題解析システムを利用して、エアロゾル発生源の推定についての研究を進めた¹²⁾。さらにNICAMにSPRINTARSと化学輸送モデルCHASER¹³⁾を組み込んだNICAM+SPRINTARS+CHASERモデルの開発作業を行った。効率的に10kmスケールの領域高解像実験を行うために、Stretch-NICAMモデルを用いて東アジア領域に適用して、関東平野におけるBC（一次生成粒子代表）と硫酸塩（二次生成粒子代表）の動態に関するモデル再現性を調べた。

H25年度：MIROC-CGCM（MIROC version 5）¹⁴⁾を用いて、BCの有無における気温および降水を含めたその他の物理変数の応答を調べ、BC削減効果の評価を行った。比較のために、気象研究所の大気海洋結合モデルであるMRI-CGCM3の結果も用いた。なお、両モデルのBCに関する相違点は表(3)-1にある。また、前年度に引き続き、NICAM+SPRINTARS+CHASERのモデル改良を行い、対流圏オゾンに注目してモデル再現性を調べた。並行して、観測データのみから放射強制力を評価するために、衛星搭載ライダーCALIPSO/CALIOPとTerraおよびAqua衛星搭載イメージャーMODISのデータを用いて、放射伝達コードFSTAR (*openCLASTR*: <http://157.82.240.167/~clastr/>)^{15,16)}を使用し、全球規模の放射強制力を推定した。



図(3)-1 NICAMモデルで使用されるストレッチ格子法の例

ストレッチの中心は関東地方（140°E, 35°N）に設定しており、中心に向かうほどグリッド間隔が小さくなっている。

表(3)-1 MIROC-CGCMとMRI-CGCM3におけるBCの取り扱い方の相違点

		MIROC-CGCM	MRI-CGCM3
エアロゾルモデル		SPRINTARS ¹⁷⁾	MASINGAR ¹⁸⁾
BCの分類		親水性BCと疎水性BC	
疎水性BC	排出量	化石燃料燃焼の50%	疎水性BC
	大気変質過程	考慮無	1.2日
	湿性沈着過程	考慮有	考慮無
	乾性沈着過程	考慮有	
親水性BC	排出量	化石燃料燃焼の50%を除いた全排出量	親水性BC
	疎水性BCからの生成	考慮無	考慮有
	混合状態	有機炭素との内部混合	考慮無
	湿性沈着過程	考慮有	
	乾性沈着過程	考慮有	

4. 結果及び考察

H23年度: AGV法、AGF法、ORIG法によってBCの質量分布を計算して、その差を検討した(図(3)-2)。それによると、BCの発生源付近である中国やインドでは、方法によるBC質量の差は±10%以内であり、遠方では±50%程度であることがわかった。また、北アメリカ、ヨーロッパ、中国、インド、中国・インド以外のアジア域でAGV法によるモデル結果と観測結果を比較した。北アメリカでのBCの値が、モデルの方が過大評価するが、モデルの方法間での差が10%以内であることから、BCの変質過程の取り扱いに伴う影響だけで観測とモデルの差は埋まらない。従って、この差は、BCの排出インベントリに含まれる不確定性性によるものと推定される。同様の傾向が他のBC発生源地域でも見られるため、これらの地域ではBCの変質過程の取り扱いの違いがもたらすBC質量の違いは小さいと結論づけられる。

一方、BCの変質過程の取り扱いによる結果の差は、全BC質量に対する疎水性BC質量割合を見ると顕著であった。BCの大気変質過程を取り扱っているAGVとAGF法では、BC発生源から遠方にかけてその割合が小さくなっていることがわかる。これは大気中に漂う中で変質され、疎水性BCとして大気中に放出されたBC粒子が、親水性BCとして存在することを示している。このような傾向は、Moteki et al.¹⁹⁾やShiraiwa et al.²⁰⁾のような観測で得られている結果とも整合的である。モデルで計算したBCが変質されていく傾向は上空での結果でも見てとれる。一方、BCの大気変質過程を考慮していないORIG法では、発生源と遠方での疎水性BCの割合の変遷が逆の傾向になっている。そしてORIG法を用いると、上空でのBCはほぼ100%疎水性であるという結果になった。このような疎水・親水BCの違いによる結果の差は、吸収成分の光学的厚さ(AAOT)に顕著に現れる。すなわち、BC発生源付近ではAAOT値が大きく、3つの方法の中でAGV法が最大値を得た。特にバイオマス燃焼地域での差が目立つ。従って、AGV法を用いることによって、これまでKoch

et al.²¹⁾などで指摘されてきたモデルの光吸収成分の過小評価を改善する方向に働くことがわかった。

最終的に、全球年平均での人為起源BCの放射強制力の推定値を見積った(表(3)-2)。その結果、他の気候モデルで一般的に利用されているAGF法の結果は、今回導入したAGV法と従来の方法であるORIG法に比べて、吸収量が小さく見積もられることがわかった。また、エアロゾルの気候影響で重要な指標となる全天での大気上端における全球年平均値での放射強制力の値を見ると、AGV法とORIG法の差は小さくなった。これは、両方法で仮定しているBCの光学特性の違いと疎水性BCの割合がうまく相殺されたことと、遠方や上空ではそもそもBCの絶対量が少ないことが理由として挙げられる。

H24年度：MIROC+SPRINTARSによるBC濃度分布等の計算結果を、UNEP/ABCプロジェクトで行っているABC気候観測所での観測値とも比較した。中国におけるBC濃度では、排出インベントリの不確実性が大きいこともあり、観測値との差が大きい場所もあるが、濃度勾配はよく再現されていることがわかった(図(3)-3a)。また、中国の発生源付近から日本に輸送される領域(北緯30-40度)におけるSO₄²⁻濃度勾配は、モデルが観測よりも濃度減衰が小さいことがわかった(図(3)-3b)。このことから、モデル改良を引き続き行う必要があることが明らかになった。

モデル改良と同時に、排出インベントリの改良するために、MIROC+SPRINTARSを利用した逆問題解析システムから2009年1月9日から30日の期間平均のSO₂、土壌粒子、海塩エアロゾルの発生源の逆推定を行った(図(3)-4)¹²⁾。さらに、得られたエアロゾル排出インベントリを用いて、MIROC+SPRINTARSから計算された波長550nmにおけるエアロゾルの光学的厚さ(AOT)と、対応するAQUA衛星搭載のMODISイメージャーから得られた値を比較した。その結果、逆推定された排出量を用いた方が衛星観測で得られているAOT値に近づくことが示された。しかし、同時に回帰線のまわりのばらつきは減少していないことが示された。これはモデル値と観測値に含まれるランダムな誤差は今回行った排出量の改訂では説明できない様々なランダムな要因で作られていることが推定される。

並行して、領域計算に対応するために、Stretch-NICAM+SPRINTARSによって、全球と高空間分解能の領域計算を同時に行った¹⁰⁾。この手法によって、通常、3段程度必要なネスティングを介さずに領域計算が可能になる。計算された2007年8月10日から13日の期間平均について、BCと硫酸塩の濃度分布図を見ると、大陸からの汚染と国内で発生した汚染が複合している様子がよく計算されていることがわかった。輸送されたBC濃度は最大0.5μg/m³、硫酸塩濃度は最大2μg/m³程度と計算された。それに対して、日本の都市域で発生した汚染による影響は、BC濃度は関東で最大2μg/m³、硫酸塩濃度は関東で最大6μg/m³程度と計算された。

さらに関東域でのStretch-NICAM+SPRINTARSで計算されたPM_{2.5}(粒径2.5μm以下のエアロゾル)の再現性を、東京都環境局による観測値を用いて比較した。モデルの結果は、PM_{2.5}の変動パターンを概ね再現していることがわかったが、絶対値が過小評価であった(図(3)-5)。また、Stretch-NICAM+SPRINTARSでは二次生成有機炭素エアロゾルがうまく考慮されていないためか、所々日中に観測で見られる高濃度が再現されていない傾向がある。このような過小評価傾向は、大気化学モデルCMAQのような領域エアロゾル輸送モデルにおいてもPM_{2.5}を3-4割程度過小評価

していると報告されている²²⁾ので、そもそのモデルで仮定している成分では網羅できない未確認の成分があることも示唆される。

以上のようなPM2.5の過小評価を解消し、より確からしい分布を得るための方法として、これまで本研究で行っていた全球のエアロゾルデータ同化手法を関東域で適用できるようにした。今年度は環境省大気汚染物質広域監視システムで観測された浮遊粒子状物質（Suspended Particulate Matter; SPM, 空気力学径が約8 μ m以下程度）を用いたデータ同化システムを構築した²³⁾。図示していないが、データ同化無しの結果では関東内陸部分でのエアロゾル高濃度があまり再現できていなかったが、SPMのデータ同化システムを適用することによってそれが改善され、より良いエアロゾル分布が得られるようになった。

H25年度：前2年間で開発したMIROC+SPRINTARSを用いて、BCの気候影響を計算した。図(3)-7には、MIROC-CGCMで計算したBCの存在の有無（図(3)-6）に伴う気温変化を示した。図にはBCの存在有無の変化だけではなく、BCを10倍にした状況を仮定したときの気温変化も調べた。その結果、MIROC-CGCMではBCが大気中に増加すると、地表面付近よりも大気上層において気温が増加することがわかり、この傾向は気象研究所の大気海洋結合モデル（MRI-CGCM3）でも同様であった。またBCが多く存在するほど気温増加が大きくなることも、MIROC-CGCMおよびMRI-CGCM3の両方のモデルで示された。しかし、両方のモデルにおいて、現在気候におけるBCの存在の有無に伴う気温変化では、下層ほど気温が減少することも示された。気温変化の水平分布を比較するために、図(3)-8には地表面での気温変化を載せた。これによると、どの結果においてもBCの排出領域であった中央アフリカや中国から東南アジアの地域では、BCの増加に伴って気温が低下していた。また、北米ではBCの存在によって気温が低下することがMIROC-CGCMでもMRI-CGCM3でも確認されたが、BCが10倍増加した状況ではどちらのモデルにおいても気温が上昇していた。また北極では、MIROC-CGCMではBCの存在によって気温が低下する傾向が見られたが、BCが10倍になると気温が上昇するという結果を得られたのに対して、MRI-CGCM3ではBCの存在によって気温が上昇する傾向が見られたが、BCが10倍になると気温が低下するというMIROC-CGCMとは逆のセンスが得られた。異なる高度における気温変化を見るために、図(3)-9と図(3)-10には850hPa、500hPa、200hPa面における気温変化を提示した。図(3)-7で見たように上層になるほどBCの存在に伴う気温増加が見られ、上層ほど地域的な偏りは小さくなっていることがわかった。各高度での全球平均値を見ると、BCの存在に伴う850hPa面における気温変化だけは-0.01Kとマイナス値になったが、他の高度およびBCが10倍増加した状況における実験では気温は増加していた。以上のような結果は、BCの直接効果放射強制力が大気上端で正であり、地表面付近では負であることと整合的な結果であるが、大気下層ではBCの発生源付近で気温が減少することで、様々なフィードバックがかかり、気温変化の全球平均値はそれほど小さくならなかったとも解釈できる。このような傾向はMRI-CGCM3においても見られた。

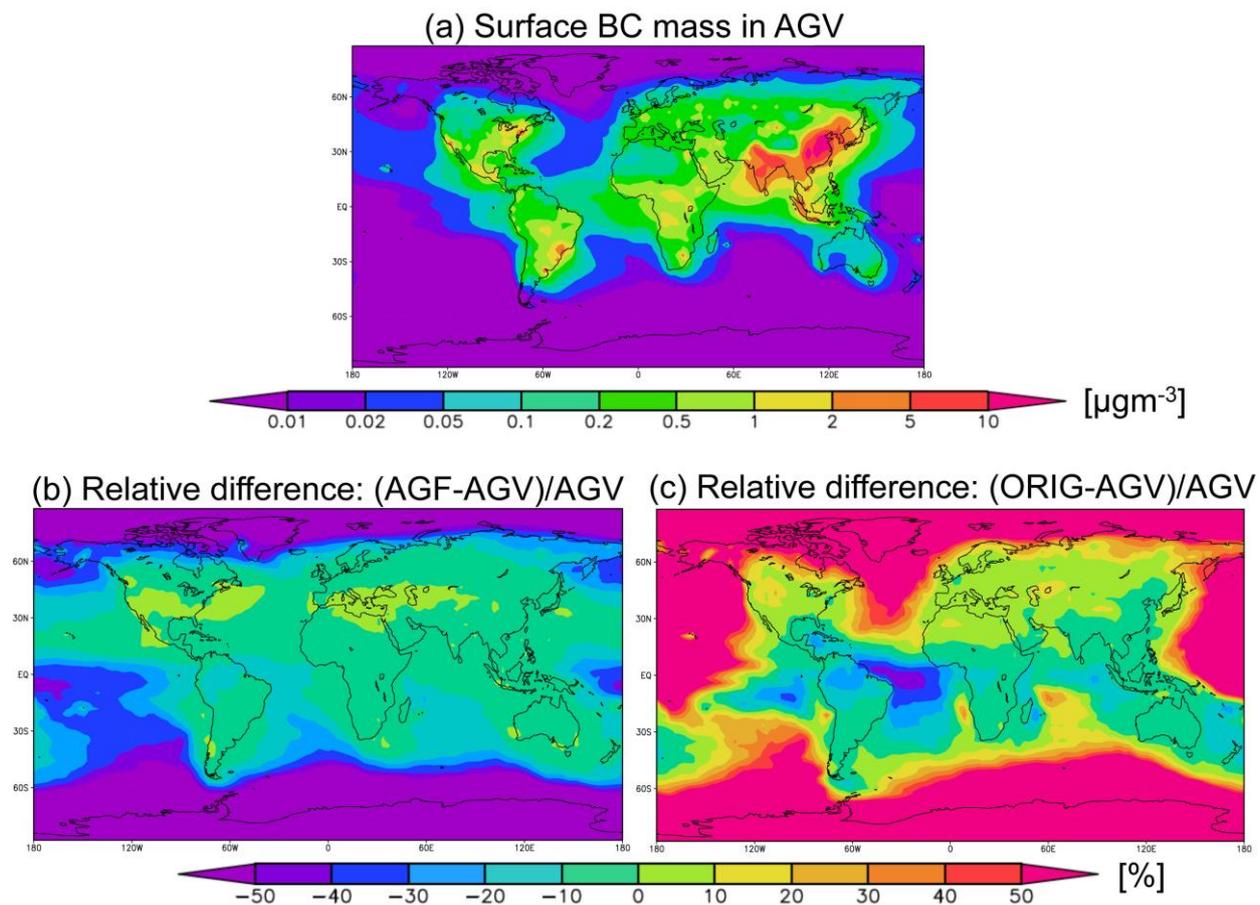
次にBCの発生源付近における気温および他の物理量の変化のメカニズムを考察するために、図(3)-11には放射・雲・降水場の変化を、図(3)-12にはエアロゾル場の変化を提示した。図(3)-11には、晴天と全天における下向き短波放射（日射量）、上昇流速度、積雲の雲底高度と雲頂高度、積雲による降水量、上中下の各層における雲量に関して、BC存在実験（“BC×1”実験）結果から

BC不在実験（“BC×0”実験）結果を差し引いたものである。なお、この図に提示していない他の雲関係（例えば層状性の雲に由来する降水量など）の物理量は、実験間で正味の増減が顕著に見られなかった。中央アフリカ付近に注目して解析すると、BCが存在することで日射量が減少していることがわかる。また、鉛直p速度が増加し、積雲の雲底高度と雲頂高度が上昇し、降水量がやや増加していることがわかる。さらに、低層における雲量の増加も見られた。また、図(3)-12には、BC、有機炭素エアロゾル（OC）、硫酸塩（Sulfate）、土壌粒子（Dust）、海塩粒子（Sea salt）、雲凝結核（Cloud condensation nuclei; CCN）、氷晶核（Ice nuclei; IN）の鉛直積算量と層状性雲頂付近に置けるCCNとINの数濃度に関して、“BC×1”実験結果と“BC×0”実験結果の差を提示した。図から、BCの存在によって、中央アフリカではOCの鉛直積算量が減少していたことがわかる。これは積雲からの降水量の増加に伴う除去されるOCが増加したことが原因であると考えられる。また硫酸塩も除去される量が増加したと考えられるが、雲量増加から示唆されるように、雲中における硫酸生成が促進された結果、硫酸塩の鉛直積算量に減少は見られなかったと考えられる。硫酸塩の鉛直積算量に関しては、ユーラシア大陸での減少が見られるが、これは低層雲の雲量減少に伴った硫酸塩生成が抑制された結果と考えられる。この結果、CCN数濃度も大幅に減少していた。しかしBCが増加したことによってINが増加し、ユーラシアではINが顕著に増加した。その他、土壌粒子は結果的には発生量が増加したのだが、“BC×10”実験結果では“BC×1”実験よりも土壌粒子の発生量が低下していた（図は省略）。また、海塩粒子は風速の増減に伴って発生量および鉛直積算量の増減が見られた。以上の結果から、BCが存在することによって起こりうるフィードバックメカニズムのまとめを図(3)-13に示した。MIROC-CGCMの実験結果から、BCの気温への影響を考えた場合にはBC粒子が太陽からの短波放射を散乱・吸収することによる日射量低下が主要な原因となって、BC発生源付近の気温を下げると思われる。そして、気温が変化した後、大気海洋結合系の大循環システムに影響を与え、大規模な循環も変化し、結果的に地表面付近の風速変化および土壌水分量の変化に伴って土壌粒子や海塩粒子の発生量が変化したといえる。また“BC×1”実験と“BC×0”実験の結果から、BCの量を現在の半分などに削減した場合には、その気温-雲-降水に対する応答メカニズムは似たようなセンスになると考えられるが、その正味の変化量はかなり小さいと予想される。

次に、Stretch-NICAM+SPRINTARS+CHASER（以後、Stretch-NICAM-Chem）の結果を述べる²⁴⁾。図(3)-14には、夏季の典型的な様子として関東地方におけるオゾンの水平分布図を示し、モデル再現性を検証した。図に示した2007年8月7日は関東地方の天気は概ね晴れで、関東地方全域で南よりの風が卓越しており、Stretch-NICAM-Chemによる風の場合もそれを良く再現しており、都心部で発生した大気汚染物質が南よりの風によって北へ運ばれる様子が再現できた。この一連の時間経過によるオゾン分布図の変化は観測値の分布図と比較すると、各時刻とも非常によく再現できていることがわかる。また、8月7日においては世界中で広く利用されている領域モデルのWRF-CMAQ²⁵⁾の結果よりもStretch-NICAM-Chemの結果の方が観測値に近かった。図(3)-15に示した関東地方3地点におけるオゾン濃度の時系列変化も、Stretch-NICAM-Chemでは観測で見られるようなオゾンの典型的な日変動が再現でき、WRF-CMAQによる結果と比較しても同程度の結果であった。観測値に対するStretch-NICAM-Chemのより詳細な評価を行った結果、新宿や土浦では単回帰直線の傾き（図(3)-15）の各パネルの右上にある相対バイアス値（*Br*）は1に近く、非常に高い相関であった。しかし絶対バイアス値（単回帰直線におけるY切片の値；*Ba*）は、

Stretch-NICAM-Chemの結果は観測よりも17ppbvから20ppbv過大評価していた。このような過大評価傾向は、モデルで計算した夜間のオゾン濃度が低下しにくいことが理由として挙げられる。同様の傾向は、Chatani and Sudo²⁶⁾で報告されているように、他の大気化学輸送モデルであるWRF-CMAQやMIROC+CHASERでも見られるため、その主要因はStretch-NICAM-Chem自体の問題ではない。可能性としては、乾性沈着などの除去過程を過小評価していることが考えられ、今後取り組むべき課題である。

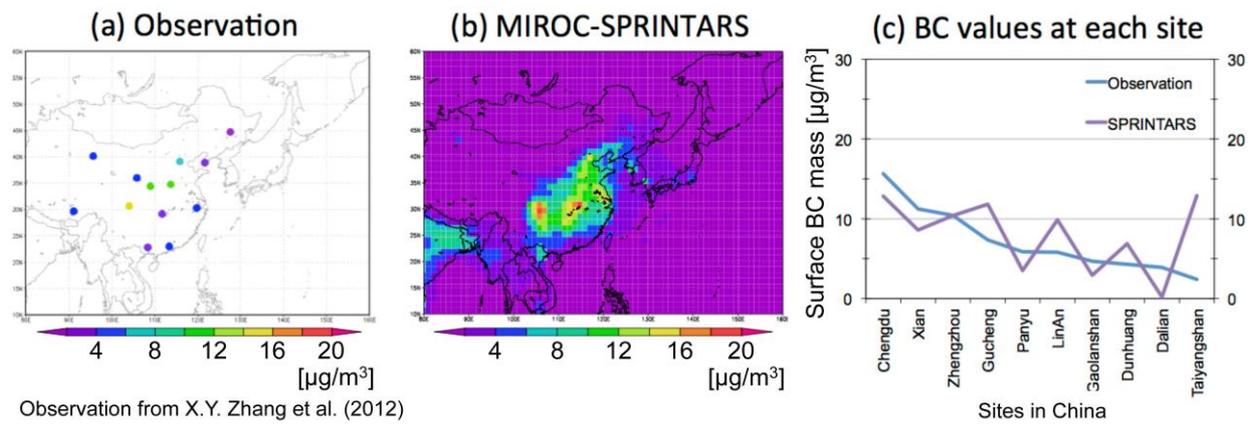
最後に、CALIOPライダーとMODISセンサによる観測データによる全エアロゾルの短波長エアロゾル直接放射強制力 (SWDARF) の評価を述べる。2007年から2009年までのNASA CALIOP成果物version 2およびversion 3 (CALIOP Level 2 Cloud and Aerosol Layer Products Version 2 and Version 3) の解析をOikawa et al.²⁷⁾と同様の方法を用いた比較を行った。Version 3アルゴリズムでは放射校正、雲スクリーニング、エアロゾル・雲型分類がVersion 2に比べて改良されている²⁸⁾。そのため、エアロゾルと雲の分布がVersion 2と比べて大きく変わっている。特に、エアロゾルが雲の上にある場合の全雲量及び出現確率が減少した。また、晴天大気の場合に海洋性エアロゾルが増加したために、エアロゾルの一次散乱アルベドが海上で増加した。曇天大気の場合は、煙と汚れた土壌粒子が減少した。これらの変更のために、南緯60度から北緯60度の範囲での年平均SWDARFは、Version 2データの場合は -2.85 W/m^2 (晴天大気)、 -0.16 W/m^2 (曇天大気)、 -0.78 W/m^2 (全天大気) であり、Version 3データの場合は -3.70 W/m^2 (晴天大気)、 -1.07 W/m^2 (曇天大気)、 -2.02 W/m^2 (全天大気) となった (図(3)-16および表(3)-3)。また、放射計算の際に仮定する鉛直層数を40から60層に変えたが、SWDARFの値はほとんど変化しなかった。以上のことは、衛星搭載ライダーアルゴリズムによるエアロゾルと雲の分類によって結果が大きく変わることを意味しており、成果の検証とアルゴリズムの改良が今後も必要であることを意味している。表(3)-3で示しているMIROC+SPRINTARSモデルによる算出値は2007年の1年間の平均値であるが、全天大気で -0.58 W/m^2 とV3データとの違いが大きく、この点も検討する必要がある。現段階では衛星解析値とモデル値の違いが双方に含まれている誤差による可能性があり、両者の比較を詳細に行う必要がある。



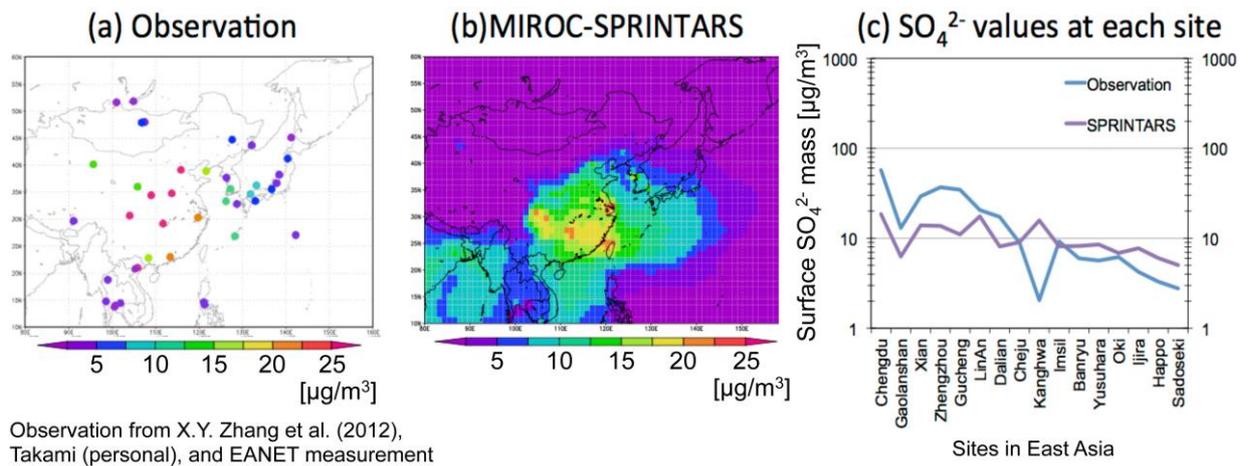
図(3)-2 地表面付近の年平均BC質量濃度の計算結果。(a)はAGV法で得られたもの、(b)はAGF法で得られたものをAGVとの相対変化で表したもの、(c)はORIG法をAGVとの相対変化で表したものである。

表(3)-2 人為起源BCの直接効果放射強制力(全天大気上端における全球年平均値)

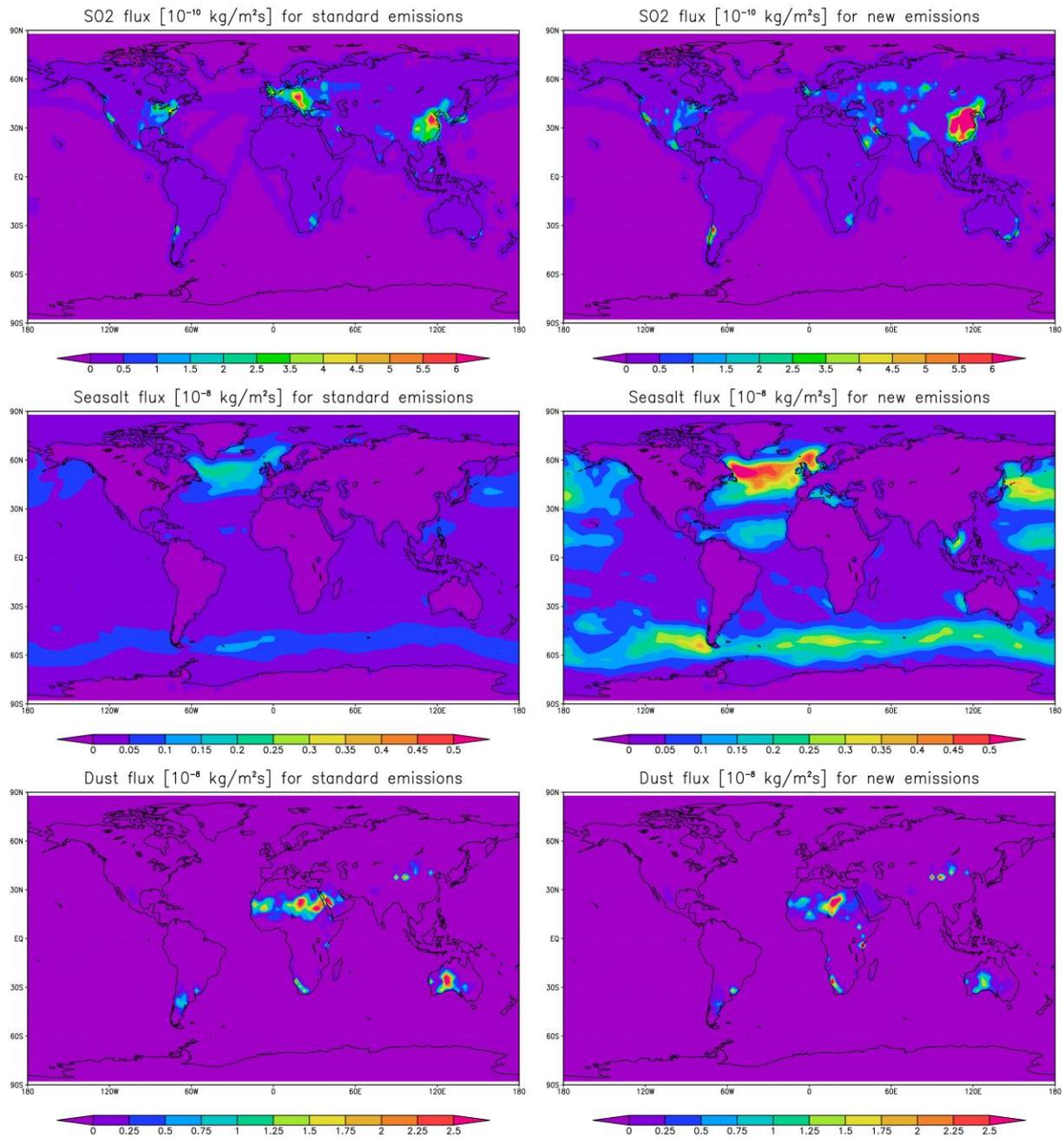
	AGV	AGF	ORIG	Reference
放射強制力 (W/m^2)	+0.300	+0.047	+0.356	+0.51to+0.81 ²⁹⁾ ; +0.313 ³⁰⁾ ; +0.23 ³¹⁾ ; +0.26 to +0.33 ³²⁾



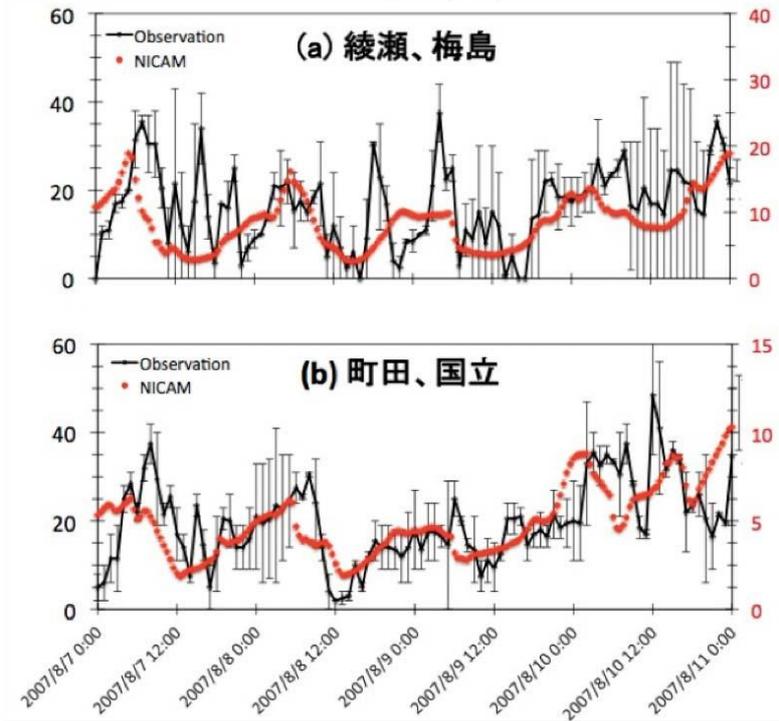
図(3)-3a 2006年4月における東アジアのBC濃度場の(a)観測値と(b)MIROC-SPRINTARSモデル値、および(c)は中国におけるサイト毎の比較結果



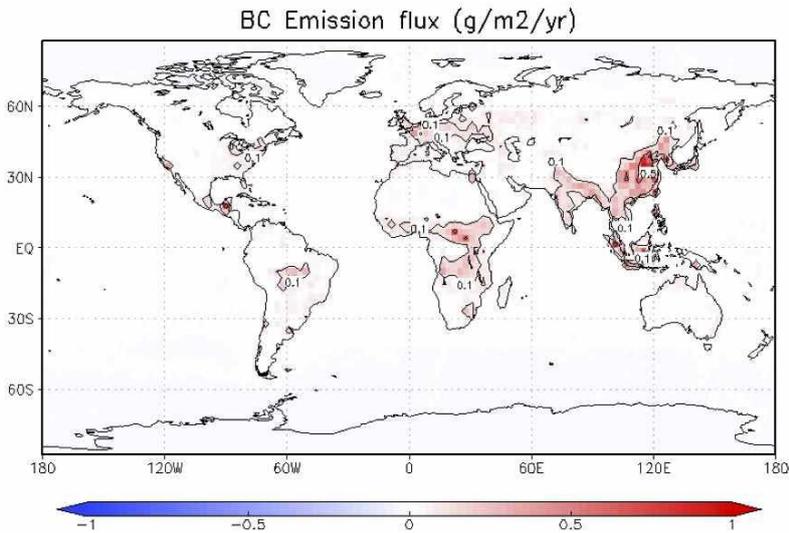
図(3)-3b 図(3)-3aと同じだが、 SO_4^{2-} 濃度場に対する結果。(c)は30-40°Nに含まれる観測サイト毎の比較結果で、用いた観測データにはZhang et al.³³⁾の他、辺戸での結果(国立環境研究所・高見氏提供)、EANET観測網が含まれる。



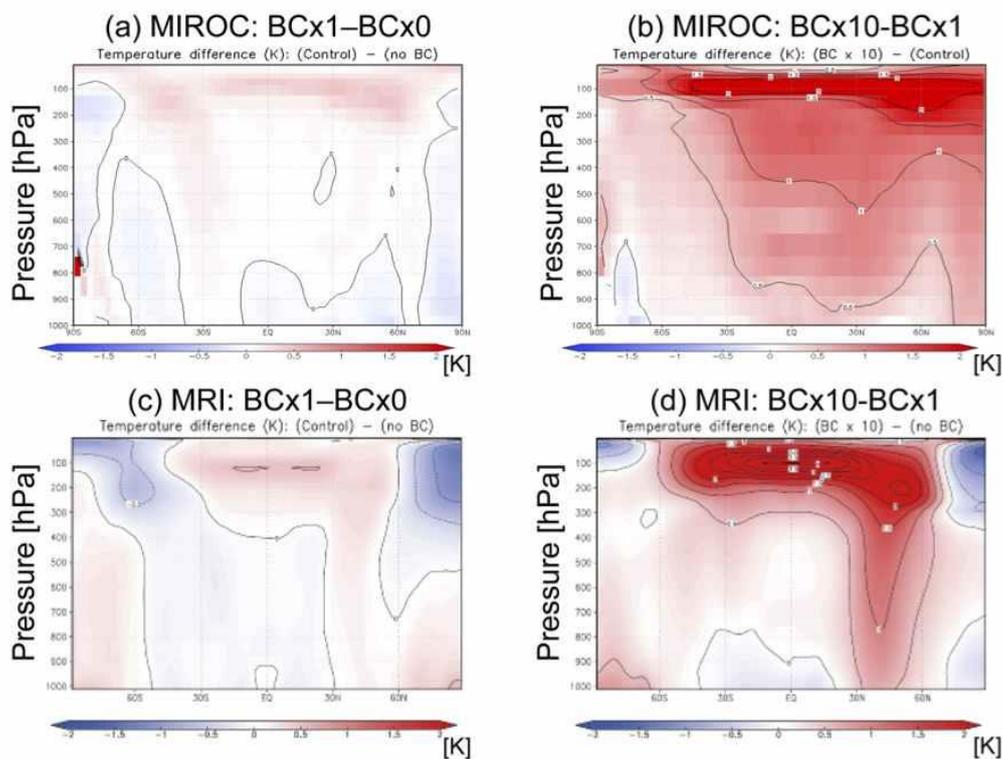
図(3)-4 SO₂、海塩エアロゾル、土壌性エアロゾルの発生源の標準排出インベントリー（左列）と逆推定した発生源推定値（2009年1月9日-30日の平均値）¹²⁾。



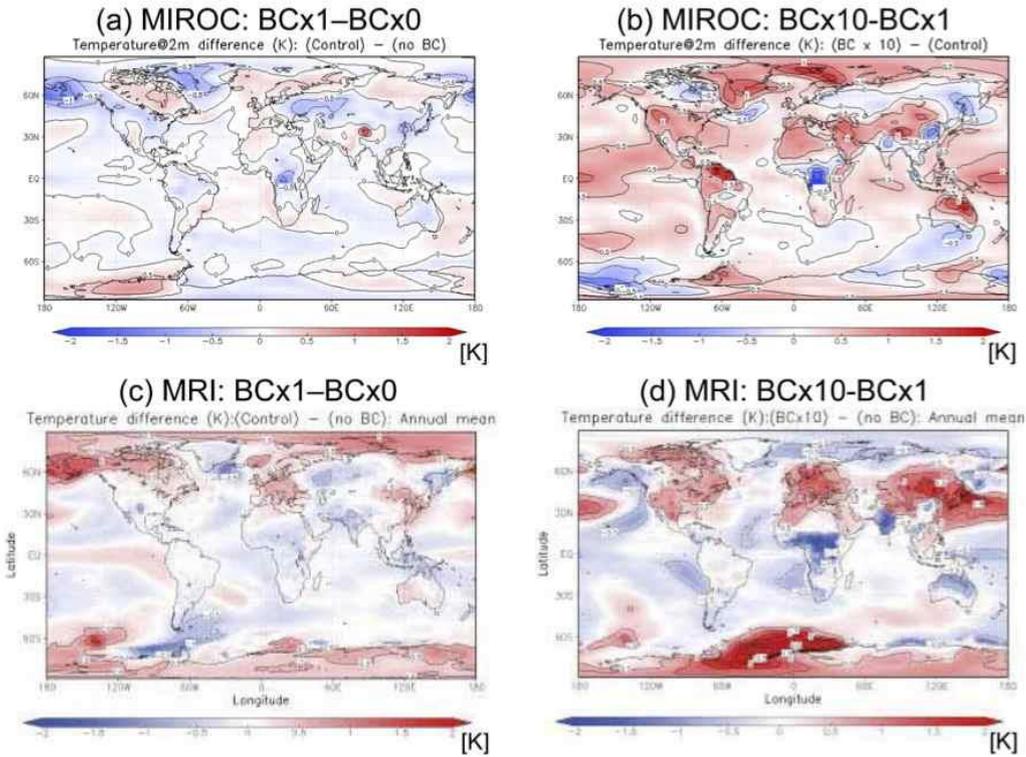
図(3)-5 東京都におけるPM2.5時系列変動のモデルと観測の比較図。(a)は綾瀬と梅島、(b)は町田と国立における結果である。黒線が東京都環境局で観測された値で左軸に対応、赤丸がStretch-NICAM+SPRINTARSで計算した値で右軸に対応している。縦軸の単位は $\mu\text{g}/\text{m}^3$ である。



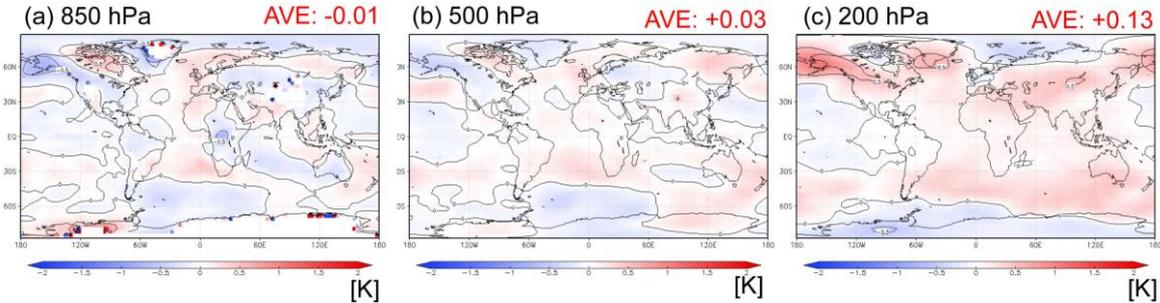
図(3)-6 “BC×1”実験 (BCあり) と“BC×0”実験 (BCなし) のBC排出フラックスの差 (単位は $\text{g}/\text{m}^2/\text{年}$)。



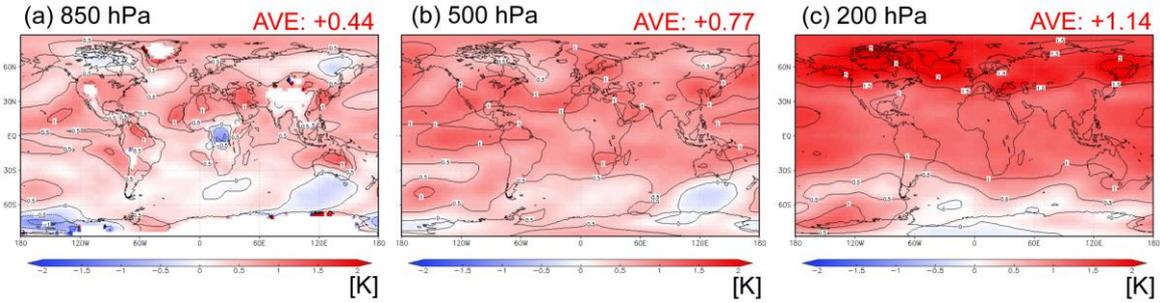
図(3)-7 MIROC-CGCMおよびMRI-CGCM3で計算したBCに伴う気温変化平均値の緯度断面図。結果はそれぞれ、(a) MIROC-CGCMを用いて計算した”BC×1”実験と”BC×0”実験の気温差、(b) MIROC-CGCMを用いて計算した”BC×10”実験と”BC×1”実験の気温差、(c) Tanaka et al.³⁴⁾によるMRI-CGCM3を用いて計算した”BC×1”実験と”BC×0”実験の気温差、(d) Tanaka et al.³⁴⁾によるMRI-CGCM3を用いて計算した”BC×10”実験と”BC×1”実験の気温差、を示している。



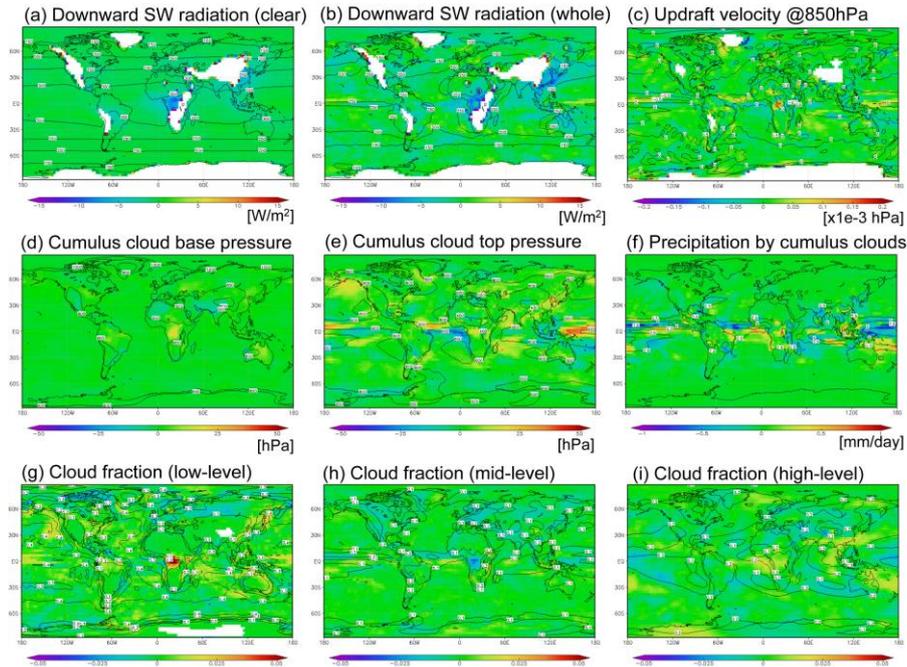
図(3)-8 図(3)-7と同じだが、地表面気温変化の平均値。



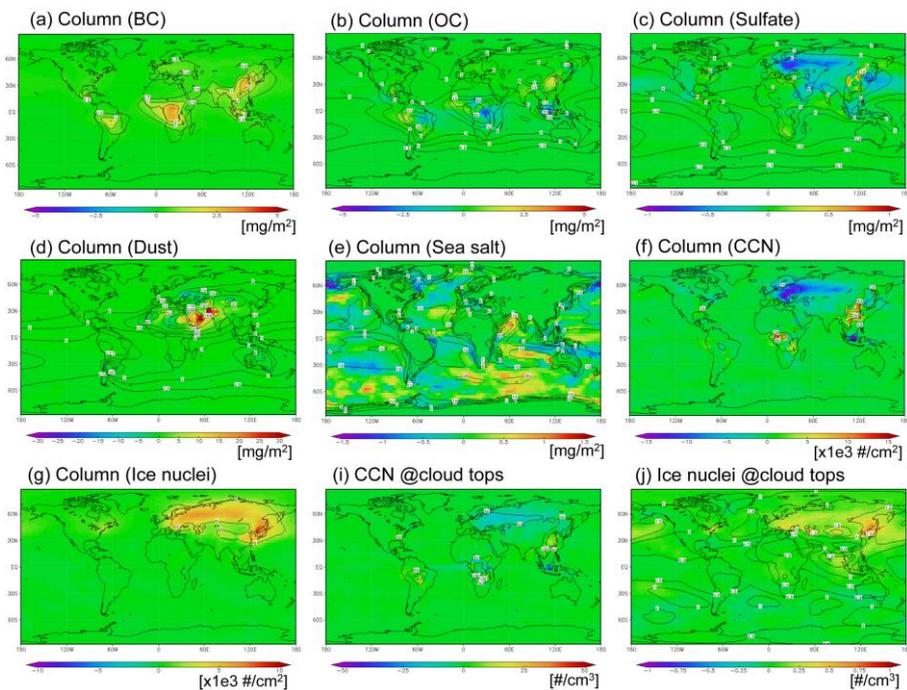
図(3)-9 (a) 850hPa面、(b) 500hPa面、(c) 200hPa面におけるMIROC-CGCMによる”BC×1”実験と”BC×0”実験との気温差の水平分布図。各パネルの右上の値は全球平均値を示す。



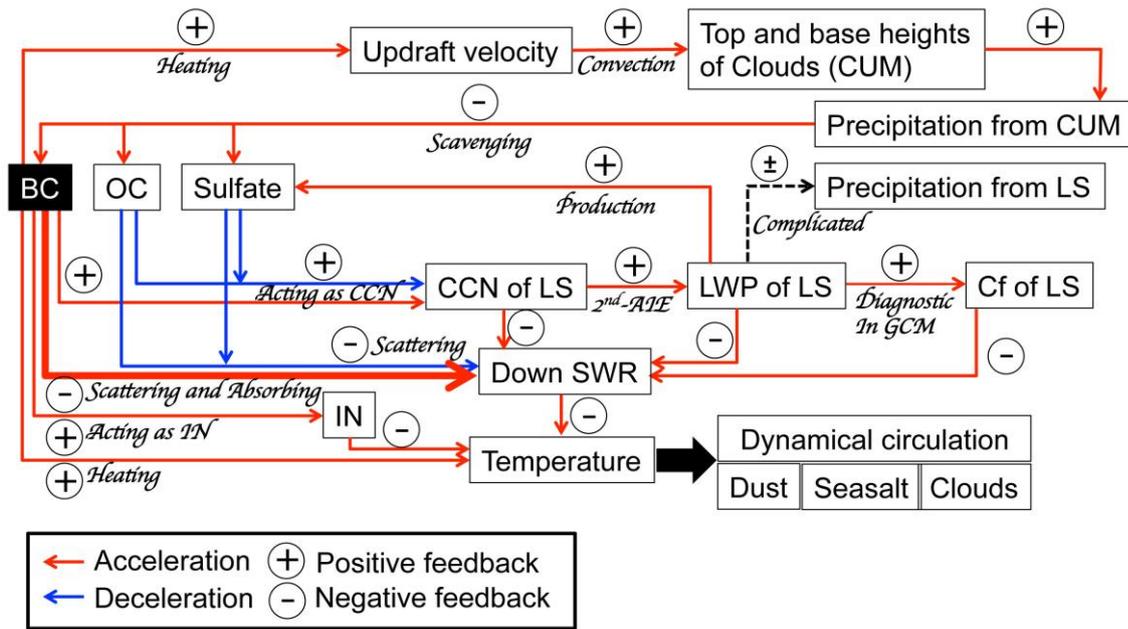
図(3)-10 図(3)-9と同じだが、”BC×1”実験と”BC×0”実験の気温差の水平分布図。



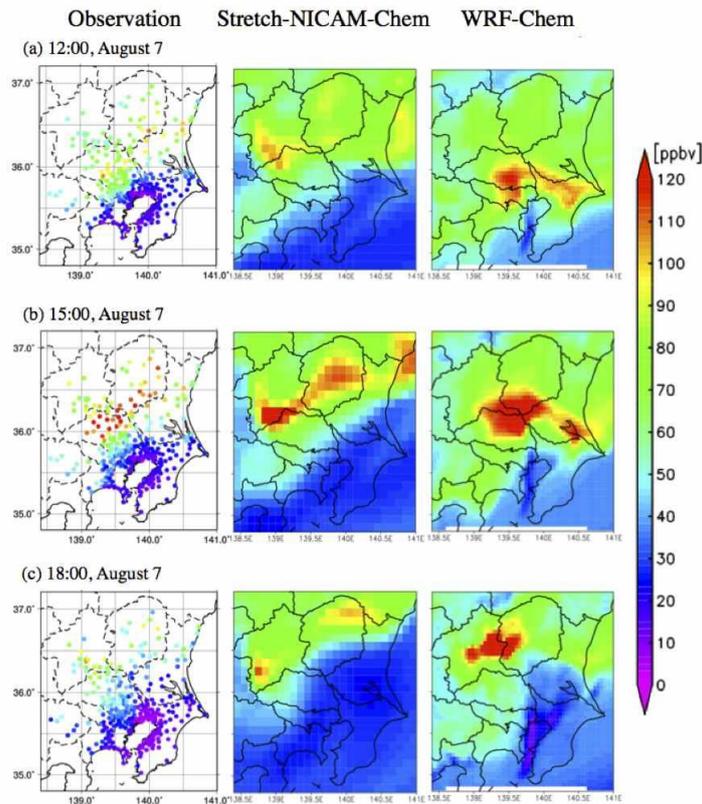
図(3)-11 MIROC-CGCMによる“BC×1”実験と“BC×0”実験との(a) 晴天時における下向き短波放射、(b) 全天における下向き短波放射、(c) 上昇流速度、(d) 積雲の雲底高度、(e) 積雲の雲頂高度、(f) 積雲に伴う降水量、(g) 低層における雲量、(h) 中層における雲量、(i) 高層における雲量、に関する実験間の差の水平分布図。



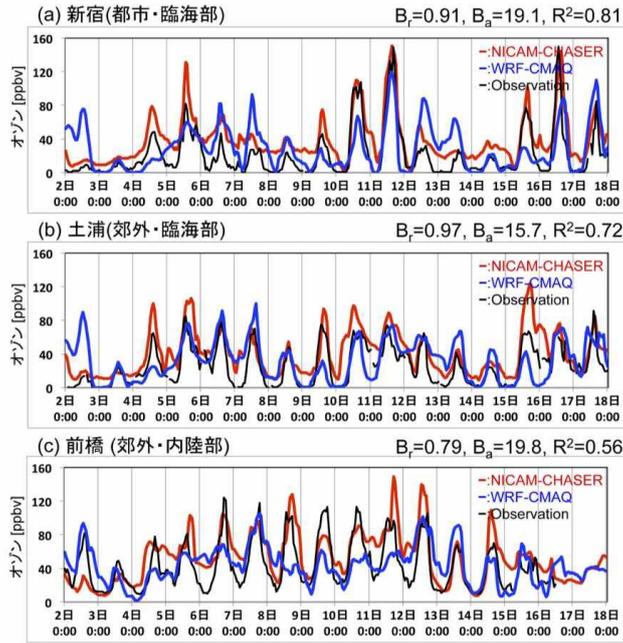
図(3)-12 MIROC-CGCMによる”BC×1”実験と”BC×0”実験との、(a) BC、(b) 有機炭素エアロゾル (OC)、(c) 硫酸塩、(d) 土壌粒子、(e) 海塩粒子、(f) 雲凝結核、(g) 氷晶核、の鉛直積算量と、(i) 雲凝結核と(j) 氷晶核の雲頂付近における数濃度、に関する実験間の差の水平分布図。



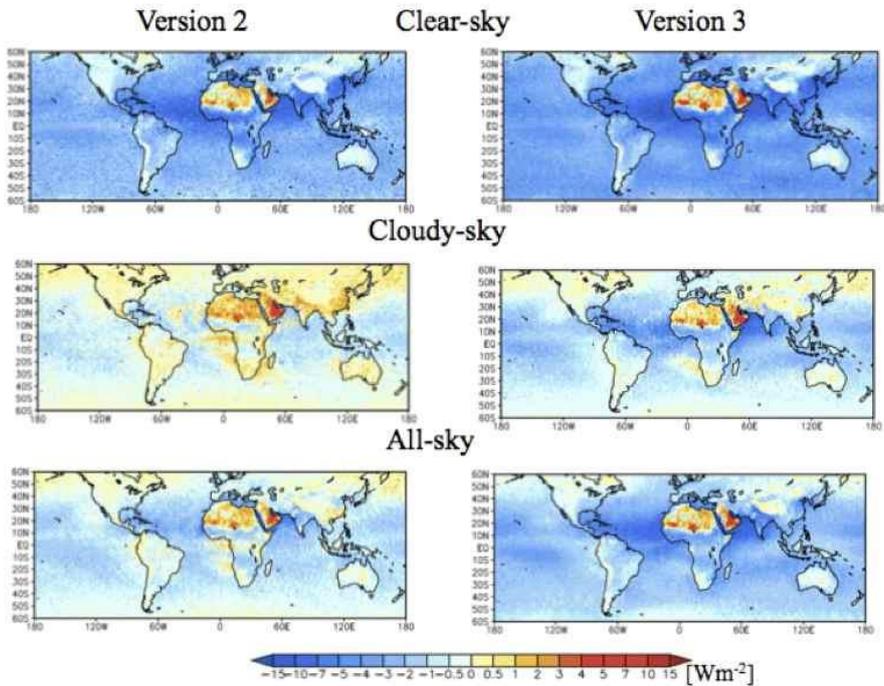
図(3)-13 BCの存在による気温影響のフィードバックメカニズム。



図(3)-14 (a) 2007年8月7日12JST、(b) 同日15JST、(c) 同日18JSTにおける地表面オゾン分布図。左列が自治体観測による結果、中央列がStretch-NICAM-Chemで計算した結果、右列がWRF-CMAQで計算した結果。単位は全てppbvで表示。



図(3)-15 Stretch-NICAM-Chem (図中ではNICAM-CHASERの表示) およびWRF-CMAQ²⁷⁾ で計算したオゾン濃度と観測結果の時系列変化。各パネル右上にある数字は、Stretch-NICAM-Chemと観測の相関をとり、単回帰直線を考えたときの傾きが相対バイアス (B_r)、Y切片が絶対バイアス (B_a)、決定係数 (R^2) を提示している。



図(3)-16 NASA L2成果物Version 2 (Version 2) とNASA L2成果物Version 3 (Version 3) を基に計算した全エアロゾルの短波長直接放射強制力 (SWDARF) の年平均値 (2007-2009年)。

表(3)-3 2007年から2009年の期間における、南緯60度から北緯60度の帯状平均全エアロゾルの短波長エアロゾル直接放射強制力 (SWDARF) の値。NASA L2成果物Version 2 (Version 2)、NASA L2成果物Version 3 (Version 3)、Oikawa et al.²⁷⁾で計算したMIROCの比較を用い、Version 3では大気層を40、50、60層 (L40, L50, L60) に近似した場合も示す。

Satellite/Model	SWDARF (W/m ²)				
	Clear-sky	Above-cloud	Below-cloud	Cloudy-sky	All-sky
Version 2 (L60)	-2.85	+3.94	-5.29	-0.16	-0.78
Version 3 (L60)	-3.70	+2.58	-4.25	-1.07	-2.02
Version 3 (L50)	-3.71	+2.54	-4.25	-1.07	-2.03
Version 3 (L40)	-3.71	+2.45	-4.22	-1.07	-2.03
MIROC	-2.78	+2.51	-1.13	+1.07	-0.58

5. 本研究開発により得られた成果

(1) 科学的意義

- 新しく導入した BC 変質過程に関するパラメタリゼーション法を用いることによって、これまで指摘されてきたモデルの光吸収成分の過小評価を改善する方向に働くことがわかった。
- 世界中のモデルで様々な使用されている BC 変質過程の方法を、同一モデルを用いて比較することで、その素過程に起因する影響を定量的に評価できた。
- MIROC+SPRITNARS を用いた同化・逆推計モデルを開発して、衛星および地上の天空輝度計ネットワークから得られるエアロゾルの光学的厚さに整合的な改訂されたエアロゾルと前駆物質の排出インベントリを得た。
- これまで不確実性が高かったエアロゾル発生源付近におけるエアロゾル分布に関して、NICAM+SPRINTARS を使うことによって、計算コストを抑制したまま高解像度実験を行うことができるようになった。また、観測データとモデルを組み合わせたエアロゾルデータ同化手法を開発したことで、より確からしいエアロゾル分布が得られるようになった。
- 大気海洋結合モデル (MIROC-CGCM) を用いることで、BC が多く発生している中央アフリカ付近では BC の存在によって地表面付近の温度が減少する効果が見られたが、上層に行くほど気温が上昇することがわかった。BC が世界中で不均一に分布しているため、それぞれの発生源が気温に与える影響が異なることも示唆された。このことは BC の削減効果を行う上で、地域的な削減目標を設定することが重要であることを示している。
- BC 発生源では BC の存在によって積雲性の雲による降水が増加し、他の成分のエアロゾルの存在量が減少し、これが日射量の変化にも影響を与えた。また、本研究の実験結果から BC を現在の量から削減したシナリオによる気温・降水応答に関して考察すると、様々なフィードバックが影響するため、その正味の変化が小さいと予想された。以上のような BC の存在に伴う気候・大気汚染影響の推定には大気海洋結合モデルが必須であることが示唆された。
- 高分解能実験が可能な NICAM+SPRINTARS+CHASER を用いた領域スケールでの大気化学シミュレーションの改良によって、関東地方での対流圏オゾンが観測結果を概ね表現できるモデルが完成したので、今後は全球実験に適用していきたい。

- NASA 成果物のバージョンの違いが大きい点も検討する必要があり、衛星解析値とモデル値の違いが双方に含まれて得る誤差の調査を詳細に行う必要があることが明らかとなった。

(2) 環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

- 中島は、IPCC-AR5 の放射強制力の Lead Author、世界気候研究計画 (WCRP) の合同科学者委員会委員、UNEP/Atmospheric Brown Cloud-Asia サイエンスチームの主査として、本研究の成果を含むエアロゾルの気候影響に関する知見を、その評価報告書や現在行われつつある WCRP 組織体の将来構想立案において役立てた。

<行政が活用することが見込まれる成果>

- IPCC へ日本から貢献した文部科学省「人・自然・地球共生プロジェクト」(2002-2007)、文部科学省「21世紀気候変動予測革新プログラム」(2007-2012)、文部科学省「気候変動リスク情報創生プログラム」(2012-2017)などで計算されている気候モデルには、MIROC+SPRINTARS で行われており、これらの改良を行う必要があることが示された。
- 文部科学省「気候変動適応研究推進プログラム」の中で NICAM+SPRINTARS+CHASER モデルの領域版が開発され、全球から関東平野程度の領域を従来型の3段階程度のネスティングを行うことなくシームレスに計算できるようになった。
- 上記、MIROC および NICAM に SPRINTARS が組み込まれているために、MIROC による気候影響計算と、NICAM による領域規模の大気汚染計算に対応できるようになったために、モデル開発者の少ない我が国の環境研究のインフラ整備にとって有利な状況をもたらした。
- BC の気候計算を結合モデルで行うことによって、エアロゾルと雲形成に関わる様々なフィードバックループが起り得ることが示された。このような計算システムと知見は、H26年度から立ち上がる戦略推進費 S-12「温室効果ガスおよび短寿命気候因子 (SLCP) 緩和策が引き起こす環境影響の能動的評価」の基礎になる。

6. 国際共同研究等の状況

特に記載すべき事項はない。

7. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<論文(査読あり)>

- 1) N. NURHAYATI, and T. NAKAJIMA: Atmos. Environ., 46, 597-606 (2012)
“A study of aerosol optical properties at the global GAW station Bukit Kototabang, Sumatra, Indonesia”
- 2) D. GOTO, T. TAKEMURA, T. NAKAJIMA and K.V.S. BADARINATH: Atmos. Environ., 45, 3277-3285 (2011a)
“Global aerosol model-derived black carbon concentration and single scattering albedo over Indian region and its comparison with ground observations”
- 3) D. GOTO, K.V.S. BADARINATH, T. TAKEMURA and T. NAKAJIMA: Ann. Geophys., 29, 955-963 (2011b)
“Simulation of aerosol optical properties over a tropical urban site in India using a global model and its comparison with ground measurements”
- 4) D. GOTO, T. NAKAJIMA, T. TAKEMURA, and K. SUDO: Atmos. Chem. Phys., 11, 10889-10910

- (2011c)
 “A study of uncertainties in the sulfate distribution and its radiative forcing associated with sulfur chemistry in a global aerosol model“
- 5) D. GOTO, N.A.J. SCHUTGENS, T. NAKAJIMA, and T. TAKEMURA: *Geophys. Res. Lett.*, 38, L17810, doi:10.1029/2011GL048675 (2011d)
 “Sensitivity of aerosol simulation for Asia to assumed optical properties”
 - 6) D. GOTO, S. KANAZAWA, T. NAKAJIMA, and T. TAKEMURA: *Atmos. Environ.*, 49, 294-301 (2012a)
 “Evaluation of a relationship between aerosols and surface downward shortwave flux through an integrative analysis of modeling and observation”
 - 7) D. GOTO, N. OSHIMA, T. NAKAJIMA, T. TAKEMURA, and T. OHARA: *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 12, 29801-29849 (2012b)
 “Impact of the aging process of black carbon aerosols on their spatial distribution, hygroscopicity, and radiative forcing in a global climate model”
 - 8) M. HASHIMOTO, T. NAKAJIMA, O. DUBOVIK, M. CAMPANELLI, H. CHE, P. KHATRI, T. TAKAMURA, and G. PANDITHURAI: *Atmos. Meas. Tech.*, 5, 2723-2737, doi:10.5194/amt-5-2723-2012 (2012)
 “Development of a new data processing method for the SKYNET skyradiometer observation”
 - 9) T. IGUCHI, T. NAKAJIMA, A. P. KHAIN, K. SAITO, T. TAKEMURA, H. OKAMOTO, T. NISHIZAWA, AND W. K. TAO: *J. Atmos. Sci.*, 69, 2566-2586, doi: 10.1175/JAS-D-11-0213.1 (2012)
 “Evaluation of Cloud Microphysics in JMA-NHM Simulations Using Bin or Bulk Microphysical Schemes through Comparison with Cloud Radar Observations”
 - 10) Y. SATO, K. SUZUKI, T. IGUCHI, I.-J. CHOI, H. KADOWAKI, and T. NAKAJIMA: *J. Atmos. Sci.*, 69, 484-503 (2012a)
 “Characteristics of correlation statistics between droplet radius and optical thickness of warm clouds simulated by a three-dimensional regional-scale spectral bin microphysics cloud model”
 - 11) Y. SATO, T. Y. NAKAJIMA and T. NAKAJIMA: *J. Atmos. Sci.*, 69, 2012-2030 (2012b)
 “Investigation of the vertical structure of warm-cloud microphysical properties using the Cloud Evolution Diagram, CFODD, simulated by a three dimensional spectral bin microphysical model”
 - 12) N. A. J. SCHUTGENS, M. NAKATA and T. NAKAJIMA: *Remote Sens.*, 4, 3528-3543; doi:10.3390/rs4113528 (2012)
 “Estimating aerosol emissions by assimilating remote sensing observations into a global transport model”
 - 13) T. NAKAJIMA, H. TAKENAKA, D. GOTO, S. MISAWA, J. UCHIDA, and T.Y. NAKAJIMA: *Simulation*, 32(3), 199-207 (2013)
 “Measurements and modeling of the solar radiation budget”
 - 14) E. OIKAWA, T. NAKAJIMA, T. INOUE, and D. WINKER: *J. Geophys. Res.*, 118, 3687-3708, 2012, doi:10.1002/jgrd.50227 (2013)
 “A study of the shortwave direct aerosol forcing using ESSP/CALIPSO observation and GCM simulation“
 - 15) N. A. J. SCHUTGENS, M. NAKATA and T. NAKAJIMA: *Atmos. Meas. Tech.*, 6, 2455-2475, doi:10.5194/amt-6-2455-2013 (2013)
 “Validation and empirical correction of MODIS AOT and AE over ocean”
 - 16) T. DAI, D. GOTO, N. A. J. SCHUTGENS, X. DONG, G. SHI, and T. NAKAJIMA: *Atmos. Environ.*, 82, 71-82 (2014)
 “Simulated aerosol key optical properties over global scale using an aerosol transport model coupled with a new type of dynamic core”
 - 17) S. FUKUDA, T. NAKAJIMA, H. TAKENAKA, A. HIGURASHI, N. KIKUCHI, T.Y. NAKAJIMA, and H. ISHIDA: *J. Geophys. Res., Atmosphere*, 118, doi:10.1002/2013JD020090 (2014)
 “New approaches to removing cloud shadows and evaluating the 380-nm surface reflectance for improved aerosol optical thickness retrievals from the GOSAT/TANSO-Cloud and Aerosol Imager”
 - 18) D. GOTO, T. DAI, M. SATOH, H. TOMITA, J. UCHIDA, S. MISAWA, T. INOUE, H. TSURUTA, K. UEDA, C. F. S. NG, A. TAKAMI, N. SUGIMOTO, A. SHIMIZU, T. OHARA, and T. NAKAJIMA: *Geosci. Model Dev. Discuss.*, 7, 131-179 (2014)
 “Application of a global nonhydrostatic model with a stretched-grid system to regional aerosol simulations around Japan”

<その他誌上発表（査読なし）>

- 1) M. RUPAKHETI and T. NAKAJIMA: No. 60 Autumn 2011, Nepal (2011)
“Satellite view of particulate pollution in the Hindu. Sustainable Mountain Development“
- 2) 中島映至：天気、58、506-510 (2011)
「気候問題にかかわるエアロゾルの直接・間接のシグナルについて」
- 3) 中島映至：天気、58、810-812 (2011)
「世界気候研究計画（WCRP）の現状と気候研究の方向性」
- 4) 中島映至：天気、58、1087-1089 (2011)
「世界気候研究計画（WCRP）公開科学会議の報告と所感」
- 5) 中島映至：理工図書、エアロゾルの観測（分担執筆）、日本リモートセンシング学会編、ISBN978-4-8446-0779-3、pp13-16 (2011)
「基礎からわかるリモートセンシング」
- 6) D. GOTO, N. OSHIMA, T. NAKAJIMA, and T. TAKEMURA: Technical reports of the meteorological research institute, 68, 24-27 (2012)
“Treatment of black carbon by a global climate model and the potential contribution of electron microscopy”
- 7) 五藤大輔：クリーンテクノロジー、22(12)、14-18 (2012)
「近年における全球エアロゾル輸送モデル～計算機の発展でどう進化してきたか?～」
- 8) 中島映至：天気、58(9)、48-50 (2012)
「世界気候研究計画（WCRP）と気候研究の方向性」
- 9) 中島映至：学術の動向、2012年11月号、56-61 (2012)
「世界気候研究計画（WCRP）と気候研究の方向性」
- 10) 中島映至、田近英一：技術評論社、ISBN 978-4-7741-5432-9 (2013)
「正しく理解する気候の科学—論争の原点にたち帰る」
- 11) 中島映至、鶴田治雄、滝川雅之、森野悠、関山剛、梶野瑞王、渡邊明、篠原厚、北和之：Radioisotope, 62, in press (2013)
「地球科学分野における活動と緊急災害時における研究者の対応」
- 12) 中島映至：岩波科学、2013年3月号 (2013)
「広域大気汚染の問題と大気清浄化に向けた努力」

(2) 口頭発表（学会等）

- 1) D. GOTO, N. OSHIMA, T. NAKAJIMA and T. TAMEKURA: IUGG 2011, Melbourne, Australia, 2011
“A modeling study of black carbon aerosol using a global aerosol model with parameterized aging processes”
- 2) D. GOTO, N. OSHIMA, T. NAKAJIMA, and T. TAKEMURA: 10th AeroCom Workshop, Fukuoka, Japan, 2011
“Impact of aging process for black carbon aerosol on its distribution and radiative forcing”
- 3) D. GOTO: UNEP/ABC Modeling and Impact Workshop, Seoul, Korea, 2011
“Model comparison over Asia: preliminary results under the ABC/IAP activity”
- 4) T. NAKAJIMA: 2nd Asia/Oceania Meteorological Satellite Users' Conference, Tokyo, Japan, 2011
“Activities of World Climate Research Programme (WCRP)”
- 5) T. NAKAJIMA: 2nd Asia/Oceania Meteorological Satellite Users' Conference, Tokyo, Japan, 2011
“Overview of the EarthCARE mission”
- 6) T. NAKAJIMA: Invited, 10th AerCom Workshop, Fukuoka, Japan, 2011
“Detecting aerosol effects from satellites and their limitations”
- 7) T. NAKAJIMA: UNEP/ABC Modeling and Impact Workshop, Seoul, Korea, 2011
“Use of ABC modeling for their impact studies”
- 8) T. NAKAJIMA: Workshop on Observations and modeling of aerosol and clouds properties for climate studies, Paris, France, 2011
“A history of aerosol direct and indirect effect studies from observation and modeling”
- 9) 五藤大輔、大島長、中島映至、竹村俊彦：日本気象学会 2011年度春季大会 (2011)

- 「全球モデルを用いたブラックカーボンの大気変質過程に関する研究」
- 10) 中島映至：地球惑星科学連合公開講演会、東京大学（2011）
「地球温暖化問題と原発環境汚染問題：科学的知見の重要性と科学者の役割」
 - 11) D. GOTO, N. OSHIMA, T. NAKAJIMA, and T. TAKEMURA: International symposium on aerosol studies explored by electron microscopy, Tsukuba, 2012
“Treatment of black carbon and availability of electron microscope for global climate models”
 - 12) D. GOTO, S. KANAZAWA, T. NAKAJIMA, and T. TAKEMURA: International Radiation Symposium, Berlin, German, 2012
“Evaluation of a relationship between aerosols and surface downward shortwave flux through an integrative analysis of modeling and observation”
 - 13) D. GOTO, T. DAI, K. SUZUKI, T. NAKAJIMA and SALSA PROJECT TEAM: 2012 AGU Fall Meeting, San Francisco, USA, 2012
“Simulation of atmospheric aerosols around Tokyo in summer using a new-type seamless model from global to regional scales”
 - 14) T. NAKAJIMA: Invited lecture, European Research Course on Atmospheres 2012, 2012
“Climate impacts of atmospheric aerosols and clouds”
 - 15) T. NAKAJIMA: Invited lecture, European Research Course on Atmospheres 2012, 2012
“What we learn from the Fukushima nuclear power plant accident”
 - 16) H. TSURUTA, E. OIKAWA, T. INOUE, D. GOTO, T. TAKEMURA, T. TAKAMURA, S. SUDO, S. YONEMURA, K. SERA, J. CHOTPITAYASUNON, B. THANANA, Y. SHIRASUNA, K. HIRANO, T. HAYASAKA, and T. NAKAJIMA: 12th IGAC Open Science Conference, Beijing, China, 2012
“Long-range transport of polluted and dust aerosols at Phimai, Thailand by surface measurements and CALIOP data analysis”
 - 17) 五藤大輔、中島映至、竹村俊彦：日本エアロゾル学会 30 周年記念シンポジウム（2012）
“Evaluation of spatial distribution of Asian aerosol simulated by a global climate model”
 - 18) 五藤大輔、中島映至、Tie Dai、他 20 名：日本気象学会 2012 年秋季大会（2012）
「SALSAプロジェクトにおける夏季関東領域での大気微量物質シミュレーション」
 - 19) 五藤大輔、中島映至、Tie Dai、他 23 名：第 18 回大気化学討論会（2012）
「全球から領域スケールに対応した大気化学モデル実験とその応用」
 - 20) D. GOTO: International Workshop on Inventory, Modeling and Climate Impacts of Greenhouse Gas emissions (GHG's) and Aerosols in the Asian Region, Tsukuba, Japan, 2013
“Simulation of aerosol spatial distribution over Asia using a global aerosol model”
 - 21) D. GOTO, K. SUZUKI, and SALSA PROJECT TEAM: Goldschmidt2013, Florence, Italy, 2013
“A study of combustion aerosols in Japan using a Nonhydrostatic icosahedral atmospheric model (NICAM)”
 - 22) D. GOTO, and SALSA PROJECT TEAM: ABC-SLCP Symposium, Seoul, Korea, 2013
“Simulation and application of anthropogenic aerosols in Japan using a non-hydrostatic icosahedral atmospheric model”
 - 23) D. GOTO, T. OHARA, T. NAKAJIMA, T. DAI, T. TAKEMURA, M. KAJINO, H. MATSUI, A. TAKAMI, S. HATAKEYAMA, K. AOKI, N. SUGIMOTO, and A. SHIMIZU: 2013 AGU Fall Meeting, San Francisco, USA, 2013
“Model intra-comparison of transboundary sulfate loadings over springtime east Asia”
 - 24) D. GOTO, K. SUZUKI, T. INOUE, T. NAKAJIMA and SALSA PROJECT TEAM: European Geosciences Union General Assembly 2013, Vienna, Austria, 2013
“Evaluation of simulated meteorological and aerosol fields around Tokyo during August 2007 using a new-type seamless model with global-to-regional scales”
 - 25) T. NAKAJIMA: International Workshop on Inventory, Modeling and Climate Impacts of Greenhouse Gas emissions (GHG's) and Aerosols in the Asian Region, Tsukuba, Japan, 2013
“Satellite remote sensing of aerosols –Past, present and future–”
 - 26) T. NAKAJIMA: ABC-SLCP Symposium, Seoul, Korea, 2013
“Prospects of using the UNEP/ABC-Asia project heritage for SLCP impact studies”
 - 27) T. NAKAJIMA, D. GOTO, S. MISAWA, E. OIKAWA, M. HASHIMOTO, J. UCHIDA, T. DAI, and N. A. J. SCHUTGENS: 2013 AGU Fall Meeting, San Francisco, USA, 2013
“A strategy for studying the air pollution effects on climate and public health in Asia”
 - 28) H. TSURUTA, E. OIKAWA, S. WATANABE, T. INOUE, M. HASHIMOTO, J. CHOTPITAYASUNON, B. THANANA, D. GOTO, N. SUGIMOTO, T. TAKEMURA, K. ERA, S. SUDO, S. YONEMURA, Y. SHIRASUNA, K. HIRANO, P. KHATRI, T. TAKAMURA, M. YABUKI, S.

- KATAGIRI, W. TAKEUCHI, T. HAYASAKA, and T. NAKAJIMA: International Workshop on Inventory, Modeling and Climate Impacts of Greenhouse Gas emissions (GHG's) and Aerosols in the Asian Region, Tsukuba, Japan, 2013
 “Biomass burning in Southeast Asia from field studies to satellite data analysis and the SPRINTARS model”
- 29) H. TSURUTA, B. THANA, T. TAKAMURA, D. GOTO, M. YABUKI, E. OIKAWA, T. INOUE, and T. NAKAJIMA: ABC-SLCP Symposium, Seoul, Korea, 2013
 “Optical and chemical properties of atmospheric aerosols in Phimai, Thailand by surface measurements, satellite data analysis, and the SPRINTARS model”
- 30) H. TSURUTA, B. THANA, T. TAKAMURA, M. HASHIMOTO, M. YABUKI, E. OIKAWA, and T. NAKAJIMA: 2013 AGU Fall Meeting, San Francisco, USA, 2013
 “Chemical and optical properties of atmospheric aerosols in Phimai, Thailand by intensive surface measurements and satellite data analysis”
- 31) 五藤大輔、中島映至、SALSA project team : 第 54 回大気環境学会年会 (2013)
 「MEXT/RECCA/SALSAプロジェクトにおける領域スケールでのエアロゾルシミュレーションとその応用」
- 32) 五藤大輔、大原利眞、中島映至、Tie Dai、竹村俊彦、梶野瑞王、松井仁志、高見昭憲、畠山史郎、青木一真、杉本伸夫、清水厚 : 日本気象学会 2013 年秋季大会 (2013)
 「多角的観測とモデル相互比較を通じたアジア域における硫酸塩エアロゾル分布の不確実性評価」
- 33) 鶴田治雄、及川栄治、井上豊志郎、Jinchula Chotpitayasunon、Boossarasiri Thana、高村民雄、Pradeep Khatri、世良耕一郎、須藤重人、米村正一郎、竹村俊彦、五藤大輔、杉本伸夫、竹内渉、早坂忠裕、中島映至 : 日本気象学会 2013 年秋季大会 (2013)
 「ピマイ(タイ)の大気エアロゾルの化学組成と光学特性(第 5 報) - 乾期における AOT と PM2.5 粒子との関係 -」

(3) 出願特許

特に記載すべき事項はない。

(4) シンポジウム、セミナーの開催 (主催のもの)

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) 日本経済新聞 (2012年4月30日、全国版、「温暖化予測、精度課題に」)
- 2) マイナビニュース (2013年3月6日、「黄砂の季節到来! PM2.5「越境汚染」で日本が危ない」)
- 3) マイナビニュース (2013年5月3日、「PM2.5 かつての日本の数字に驚愕!」)
- 4) マイナビニュース (2014年1月4日、「中国の大気汚染は深刻化を増しています!近い将来、早死にする人が倍に?!」)
- 5) マイナビスチューデント (2014年1月5日、「中国の大気汚染は深刻さを増しています!近い将来、早死にする人が倍に!?!」)
- 6) 花王マイカジスタイル (2014年2月10日、「なぜこわい? PM2.5 が私たちの身体に与える影響」、<http://mykaji.kao.com/8175/>)
- 7) 花王マイカジスタイル (2014年2月20日、「現在の大気中の PM2.5 濃度を知るなら「そらまめ君」、<http://mykaji.kao.com/8183/>」)
- 8) 花王マイカジスタイル (2014年2月21日、「洗濯物を干しても OK? PM2.5 の影響と家事対策」、<http://mykaji.kao.com/8190/>)

(6) その他

特に記載すべき事項はない。

8. 引用文献

- 1) Oshima, N. and M. Koike: *Geosci. Model Dev.*, 6, 263-282, doi:10.5194/gmd-6-263-2013 (2013)
“Development of a parameterization of black carbon aging for use in general circulation models”
- 2) Tomita, H. and M. Satoh: *Fluid Dynamics Research*, 34, 357-400 (2004)
“A new dynamical framework of nonhydrostatic global model using the icosahedral grid”
- 3) Satoh, M., T. Matsuno, H. Tomita, H. Miura, T. Nasuno and S. Iga: *Journal of Computational Physics*, 227, 3486-3514 (2008)
“Nonhydrostatic Icosahedral Atmospheric Model (NICAM) for global cloud resolving simulations”
- 4) Miura, H., M. Satoh, T. Nasuno, A. T. Noda, and K. Oouchi: *Science*, 318, 1763-1765 (2007)
“A Madden-Julian Oscillation event simulated using a global cloud-resolving model”
- 5) Suzuki, K., T. Nakajima, M. Satoh, H. Tomita, T. Takemura, T. Y. Nakajima, and G. L. Stephens: *Geophys. Res. Lett.*, 35, L19817, doi:10.1029/2008GL035449 (2008)
“Global cloud-system-resolving simulation of aerosol effect on warm clouds”
- 6) Miyamoto, Y., Y. Kajikawa, R. Yoshida, T. Yamaura, H. Yashiro, and H. Tomita: *Geophys. Res. Lett.*, 40(18), 4922-4926. doi:10.1002/grl.50944 (2013)
“Deep moist atmospheric convection in a subkilometer global simulation”
- 7) Niwa, Y., H. Tomita, M. Satoh, and R. Imasu: *J. Meteor. Soc. Jpn.*, 89, 255–268 (2011)
“A three-dimensional icosahedral grid advection scheme preserving monotonicity and consistency with continuity for atmospheric tracer transport”
- 8) Dai, T., D. Goto, N. A. J. Schutgens, X. Dong, G. Shi, and T. Nakajima: *Atmos. Environ.*, 82, 71-82 (2014)
“Simulated aerosol key optical properties over global scale using an aerosol transport model coupled with a new type of dynamic core”
- 9) Tomita, H.: *J. Meteor. Soc. Japan*, 86A, 107-119 (2008)
“A stretched grid on a sphere by new grid transformation”
- 10) Goto, D., T. Dai, M. Satoh, H. Tomita, J. Uchida, S. Misawa, T. Inoue, H. Tsuruta, K. Ueda, C. F. S. Ng, A. Takami, N. Sugimoto, A. Shimizu, T. Ohara, and T. Nakajima: *Geosci. Model Dev. Discuss.*, 7, 131-179 (2014)
“Application of a global nonhydrostatic model with a stretched-grid system to regional aerosol simulations around Japan”
- 11) Goto, D., N. Oshima, T. Nakajima, T. Takemura, and T. Ohara: *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 12, 29801-29849 (2012b)
“Impact of the aging process of black carbon aerosols on their spatial distribution, hygroscopicity, and radiative forcing in a global climate model”
- 12) Schutgens, N.A.J., M. Nakata and T. Nakajima: *Remote Sens.*, 4, 3528-3543; doi:10.3390/rs4113528 (2012)
“Estimating aerosol emissions by assimilating remote sensing observations into a global transport model”
- 13) Sudo, K., M. Takahashi, J. Kurokawa, and H. Akimoto: *J. Geophys. Res.*, 107, doi:10.1029/2001JD001113 (2002)
“CHASER: A global chemical model of the troposphere 1. Model description”
- 14) Watanabe, M., et al: *J. Climate*, 23, 6312-6335 (2010)
“Improved climate simulation by MIROC 5: mean states, variability, and climate sensitivity”
- 15) Nakajima, T. and M. Tanaka: *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 35, 13-21 (1986)
“Matrix formulation for the transfer of solar radiation in a plane-parallel scattering atmosphere”

- 16) Nakajima, T. and M. Tanaka: *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 40, 51-69 (1988)
“Algorithms for radiative intensity calculations in moderately thick atmosphere using a truncation approximation”
- 17) Takemura, T., et al.: *J. Geophys. Res.*, 110, D02202, doi:10.1029/2004JD005029 (2005)
“Simulation of climate response to aerosol direct and indirect effects with aerosol transport-radiation model”
- 18) Yukimoto, S., et al.: *J. Meteorol. Soc. Japan*, 90A (2012)
“A New Global Climate Model of the Meteorological Research Institute: Global Climate Model of the Meteorological Research Institute: MRI-CGCM3 – Model Description and Basic Performance –“
- 19) Moteki, N., et al.: *Geophys. Res., Lett.*, 34, L11803, doi:10.1029/2006GL028943 (2007)
“Evolution of mixing state of black carbon particles: Aircraft measurements over the western Pacific in March 2004”
- 20) Shiraiwa, M., Y. Kondo, N. Moteki, N. Takegawa, L. K. Sahu, A. Takami, S. Hatakeyama, S. Yonemura, and D. R. Blake: *J. Geophys. Res.*, 113, D24210, doi:10.1029/2008JD010546 (2008)
“Radiative impact of mixing state of black carbon aerosol in Asian outflow“
- 21) Koch, D., et al.: *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 9001-9026 (2009)
“Evaluation of black carbon estimations in global aerosol models”
- 22) 茶谷聡、森川多津子、中塚誠次、松永壮：大気環境学会誌、第46巻、第2号（2011）.
「3次元大気シミュレーションによる2005年度日本三大都市圏PM2.5濃度に対する国内発生源・越境汚染の感度実験」
- 23) 三澤翔大、東京大学大学院理学系研究科地球惑星科学専攻修士論文（2013）.
「Stretch-NICAMを用いた領域スケールでのエアロゾル同化に関する基礎研究」
- 24) 村田諒、東京大学大学院新領域創成科学研究科環境学研究系自然環境学専攻修士論文（2014）.
「NICAM-CHASER非静力学大気モデルによる領域スケールの大気化学モデリングの研究」
- 25) Morino, Y., S. Chatani, H. Hayami, K. Sasaki, Y. Mori, T. Morikawa, T. Ohara, S. Hasegawa, and S. Kobayashi: *Asian Journal of Atmospheric Environment*, 4, 150-156 (2010)
“Evaluation of ensemble approach for O3 and PM2.5 simulation”
- 26) Chatani, S., and K. Sudo: *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 8745-8758, doi:10.5194/acp-11-8745-2011 (2011)
“Influence of the variation in inflow to East Asia on surface ozone over Japan during 1996-2005”
- 27) Oikawa, E., T. Nakajima, T. Inoue, and D. Winker: *J. Geophys. Res.*, 118, 3687-3708, 2012, doi:10.1002/jgrd.50227 (2013)
“A study of the shortwave direct aerosol forcing using ESSP/CALIPSO observation and GCM simulation”
- 28) Powell, K. A., M. A. Vaughan, R. R. Rogers, R. E. Kuehn, W. H. Hunt, K-P. Lee, and T. D. Murray, 25th International Laser Radar Conference (ILRC), St. Petersburg, Russia, (2010)
“The CALIOP 532-nm Channel Daytime Calibration: Version 3 Algorithm”
- 29) Chung, S. H., and J. H. Seinfeld: *J. Geophys. Res.*, 107(D19), 4407, doi:10.1029/2001JD001397 (2002)
“Global distribution and climate forcing of carbonaceous aerosols”
- 30) Unger, N., S. Menon, D. M. Koch, and D. T. Shindell: *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 4115-4130 (2009)
“Impacts of aerosol-cloud interactions on past and future changes in tropospheric composition”
- 31) Koch, D., et al.: *J. Climate*, 24, 2693-2714 (2011)
“Coupled aerosol-chemistry-climate twentieth-century transient model investigation: trends in short-lived species and climate responses”
- 32) Myhre, G., et al.: *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 1365-1392 (2009)
“Modelled radiative forcing of the direct aerosol effect with multi-observation evaluation”
- 33) Zhang, X. Y., et al.: *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 779-799 (2012)
“Atmospheric aerosol compositions in China: spatial/temporal variability, chemical signature, regional haze distribution and comparisons with global aerosols”
- 34) Tanaka, T. Y., and MRI Earth System Modeling Group: *TECHNICAL REPORTS OF THE METEOROLOGICAL INSTITUTE*, 68 (2012)
“Climate effect of black carbon in the MRI global climate model”

(4) 雲凝結核数濃度に及ぼすBCの寄与

(独) 国立環境研究所 地域環境研究センター 広域大気環境研究室 高見昭憲

平成 23～25 年度累計予算額：30,269 千円（うち、平成 25 年度予算額：9,995 千円）

予算額は、間接経費を含む。

[要旨]

エアロゾルの放出、生成が特に多い東アジア地域において、その実態を把握するため、地上観測を行った。2012 年 1 月から 3 月にかけて、沖縄県辺戸岬（(独) 国立環境研究所、辺戸岬大気・エアロゾル観測ステーション）、2013 年 2 月から 3 月にかけて、長崎県福江島（福江島大気環境観測施設）において、BC を含む大気エアロゾルを観測した。使用した装置は、エアロゾル質量分析計（Q-AMS（辺戸岬）、ACSM（福江島）、いずれもエアロダイン社）、東大近藤研で開発された BC を自動連続観測する COSMOS（カノマックス社）、および本推進費で新たに導入したワイドレンジ粒子スペクトロメータ（WPS、MSP 社）である。辺戸岬において、WPS により観測されたエアロゾル個数濃度の粒径分布では、期間を通して 50 nm および 200 nm 付近にピークがみられた。このうち、200 nm 付近のピークは主要成分が硫酸イオンや酸化された有機物であることから、辺戸岬において観測されたエアロゾルは親水性であると考えられる。これらエアロゾルの雲凝結核能について調べたところ、過飽和度 0.1% において、WPS により観測された粒径 200 nm の粒子のほとんどが雲凝結核として作用すると推定された。ただし、この結果は大気試料の湿度について考慮しておらず、湿度データを含めて、さらに解析をすすめていく必要がある。辺戸岬および福江島における WPS の観測結果の比較を行った。辺戸岬では、期間を通して粒径分布は二峰型であったが、福江島では期間中、分布の様子に変動がみられた。一峰型の分布となった 2 月 24 日の正午過ぎには粒径 15–25 nm において、 10^5 個/cm³ を超えるような高濃度が観測された。この核生成モード粒子がその後、夜にかけて、徐々に粒径の大きい粒子へと成長していく様子がみられ、新粒子生成イベントをとらえたと思われる。一方、辺戸岬ではこのような現象はみられなかった。本研究で得られた結果は二地点のみではあるが、雲生成に影響を及ぼすエアロゾル粒径分布の東アジアでの空間分布に関する知見を与えるものである。

[キーワード]

ワイドレンジ粒子スペクトロメータ、個数濃度粒径分布、東アジア、雲凝結核能、新粒子生成

1. はじめに

東アジアは近年、経済発展が著しく、二酸化硫黄、窒素酸化物、一酸化炭素、非メタン揮発性有機化合物などのガス成分やブラックカーボン（BC）、有機炭素などの大気エアロゾルといった様々な人為起源物質が大量に大気中に放出されている。中でもエアロゾルには多様なものが存在しており、粒子として発生し、大気中に放出された一次粒子（例えば、ディーゼル排気に由来する BC）とガス状物質として放出されたものが凝縮して粒子となった二次粒子（例えば、酸性雨

の原因となる硫酸イオンや硝酸イオン)がある。これらエアロゾルは大気環境や人体、そして気候に影響を及ぼしている。気候への影響に関して、エアロゾルは直接効果と間接効果の二つの効果をもつことが指摘されている。直接効果とは、エアロゾルが太陽光や地球からの赤外放射を散乱・吸収することにより放射収支に影響を及ぼす効果である。一方、間接効果とは、エアロゾルが雲核となるために、その増減により雲粒の大きさが変わり、その結果、雲の反射率に変化を引き起こす効果である。しかし、エアロゾルのもつ放射強制力については正確には評価されておらず、エアロゾルの放出、生成が特に多い東アジア地域において、エアロゾルの観測を行うことが重要である。

2. 研究開発目的

地球温暖化対策として、正の放射強制力を持つと考えられる BC を削減することがどれだけ有効であるかを評価することが目的である。現時点では BC の削減による効果の見積もりには大きな不確定性が含まれている。そこで、新たに導入した装置等を用いて、BC や硫酸イオン等、エアロゾル中に含まれる各成分の数・質量濃度、粒径、混合状態など、これまで観測されることが少なかった物理量を含めて地上観測を実施し、その実態を把握する。

3. 研究開発方法

2012年1月から3月にかけて、(独)国立環境研究所、辺戸岬大気・エアロゾル観測ステーション(以下、辺戸ステーション;北緯:26.9度、東経:128.3度)、2013年2月から3月にかけて、福江島大気環境観測施設(以下、福江観測施設;北緯:32.8度、東経:128.7度)において、BCを含む大気エアロゾルの観測を行った。両観測ステーションとも、大陸から輸送される物質の観測に適した場所に位置している^{1,2)}。使用した装置は、エアロゾル質量分析計(Q-AMS: Quadrupole Aerosol Mass Spectrometer(辺戸ステーション)、ACSM: Aerosol Chemical Speciation Monitor(福江観測施設)、いずれもエアロダイン社)、東大近藤研で開発されたBCを自動連続観測するCOSMOS(Continuous Soot-Monitoring System、カノマックス社)、および本推進費で新たに導入したワイドレンジ粒子スペクトロメータ(WPS: Wide-Range Particle Spectrometer、MSP社)である。

エアロゾル化学組成の観測を、辺戸ステーションではQ-AMSにより10分間隔で、福江観測施設ではACSMによりおよそ15分間隔で行った。Q-AMSについて、大気試料は6枚のアーチャーからなる空力学的レンズを通過することにより、試料中の粒子がビームへと収束し、気体成分は大部分が除去される。空力学的粒径が60-600nmの粒子はほぼ100%、さらに、小さい方で20nmまで、大きい方で2000nmまでの粒子が部分的にレンズを通過する。その後、粒子は試料導入部と空力学的粒径測定チャンバーとの圧力差を利用して加速される。TOFモードでは、粒子がチョッパーを通過してから検出部に到達するまでの時間を計測することで空力学的粒径が測定される。MSモードでは、電子衝撃イオン化により生成した各成分のフラグメントを四重極質量分析計で分析し、エアロゾル化学組成を測定する。この際、Q-AMSは高真空下において、ヒーター(およそ600°C)により蒸発する成分のみを測定することができる。過去の研究結果に基づき、辺戸ステーションでの観測ではQ-AMSの捕集効率(CE: Collection Efficiency)は1を用いた²⁾。福江観測施設における観測で使用したACSMは簡易型エアロゾル質量分析計であるた

め、粒径分布の測定はできないが、エアロゾル化学組成の高時間分解測定が可能である。測定はQ-AMSと同様、ヒーター（およそ600℃）により蒸発する成分を対象としている。CEの値は0.5とした³⁾。

COSMOSは大気試料を加熱し、抽出されるBCを連続的にフィルター上に捕集して、光吸収量の変化をフォトダイオードで検出することにより濃度を測定する。COSMOSによるBCの観測は常時、行われており、装置については、辺戸ステーションでは東大近藤研が、福江観測施設では海洋研究開発機構の金谷博士が管理している^{4,5)}。

WPSによるエアロゾル個数濃度の粒径分布の測定をおよそ5分間隔で行った。WPSは電気移動度による分級を行い、粒子を凝結成長させて個数濃度を測定する凝結粒子計測部(DMA-CPC)、および光散乱を用いて個数濃度を測定する光散乱計測部(LPS)から構成されている。粒径が5-350 nm（または10-500 nm）の微小粒子は凝結粒子計測部で、350-10000 nmの粒子は光散乱計測部で測定される。この装置を用いることで広い粒径範囲の粒子を同一の測定器を用いて観測することができる。測定時のチャンネル数は、DMAが48チャンネル、LPSが24チャンネルとした。また、サンプリング流量はDMAが0.3 L/min、LPSが0.7 L/minで、合計1 L/minとなっている。

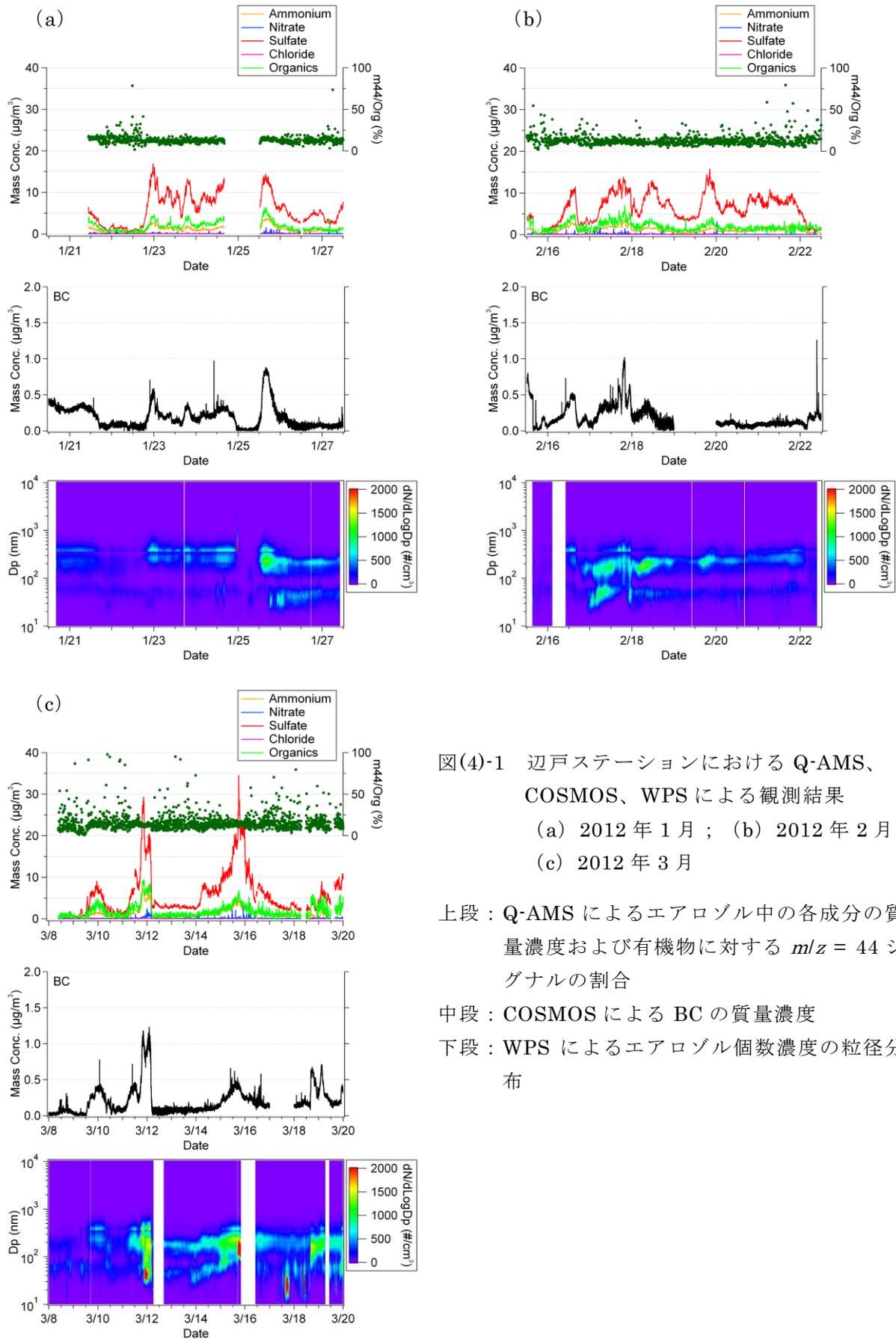
大気エアロゾル以外にも、福江観測施設ではSO₂計（Model 43i、日本サーモ社）による二酸化硫黄濃度の測定を行った。

4. 結果及び考察

(1) 辺戸ステーションにおいて観測されたエアロゾルの雲凝結核能

図(4)-1に辺戸ステーションでのQ-AMS、COSMOS、WPSによる観測結果（(a) 2012年1月、(b) 2012年2月、(c) 2012年3月）を示す。上段はQ-AMSによる観測結果であり、エアロゾル中の各成分（アンモニウムイオン、硝酸イオン、硫酸イオン、塩化物イオン、有機物）の質量濃度および有機物に対する $m/z = 44$ シグナルの割合の変動を示す。ここで m/z は質量と電荷の比であり、 $m/z = 44$ のシグナルはCOO⁺のフラグメントである。COO⁺はカルボン酸の官能基であり、有機物が酸化された場合に生成すると考えられるため、酸化された有機物の指標となる。Q-AMSによるエアロゾルの化学組成分析の結果、平均濃度で比較すると、硫酸イオン濃度が最も高く、次いで、有機物、アンモニウムイオンの順であった。中段はBCの質量濃度であり、各月の平均濃度は0.2 μg/m³程度であった。2008年春季の辺戸ステーションでの観測におけるBCの平均濃度0.4 μg/m³より低かった⁴⁾。BCの最高濃度は約1.2 μg/m³であり、硫酸イオンや有機物濃度に比べてかなり低いことがわかる（表(4)-1）。月別の化学組成を比較すると、1月と2月に観測された化学組成はほぼ同じであったが、3月は、やや有機物やアンモニウムイオンの割合が高かった。有機物に対する $m/z = 44$ の割合は、3月に少しばらつきがみられるものの、どの月もほぼ10-20%の範囲で変動していた（1月：13.4%、2月：14.0%、3月：16.2%）。各月により多少の差はみられるものの、その差は小さく、誤差を考慮すると1月から3月にかけての化学組成はほぼ同じであったと考えられる（図(4)-2）。

図(4)-1の下段はWPSによる観測結果である。縦軸が粒径、横軸が時間、色調の違いで個数濃度分布を表している（例えば、赤は濃度が高かったことを示している）。ほぼ全期間を通して、200 nm付近にピークがみられる。また、濃度は低いものの、50 nm付近にもピークがみられた。装置



図(4)-1 辺戸ステーションにおける Q-AMS、COSMOS、WPS による観測結果

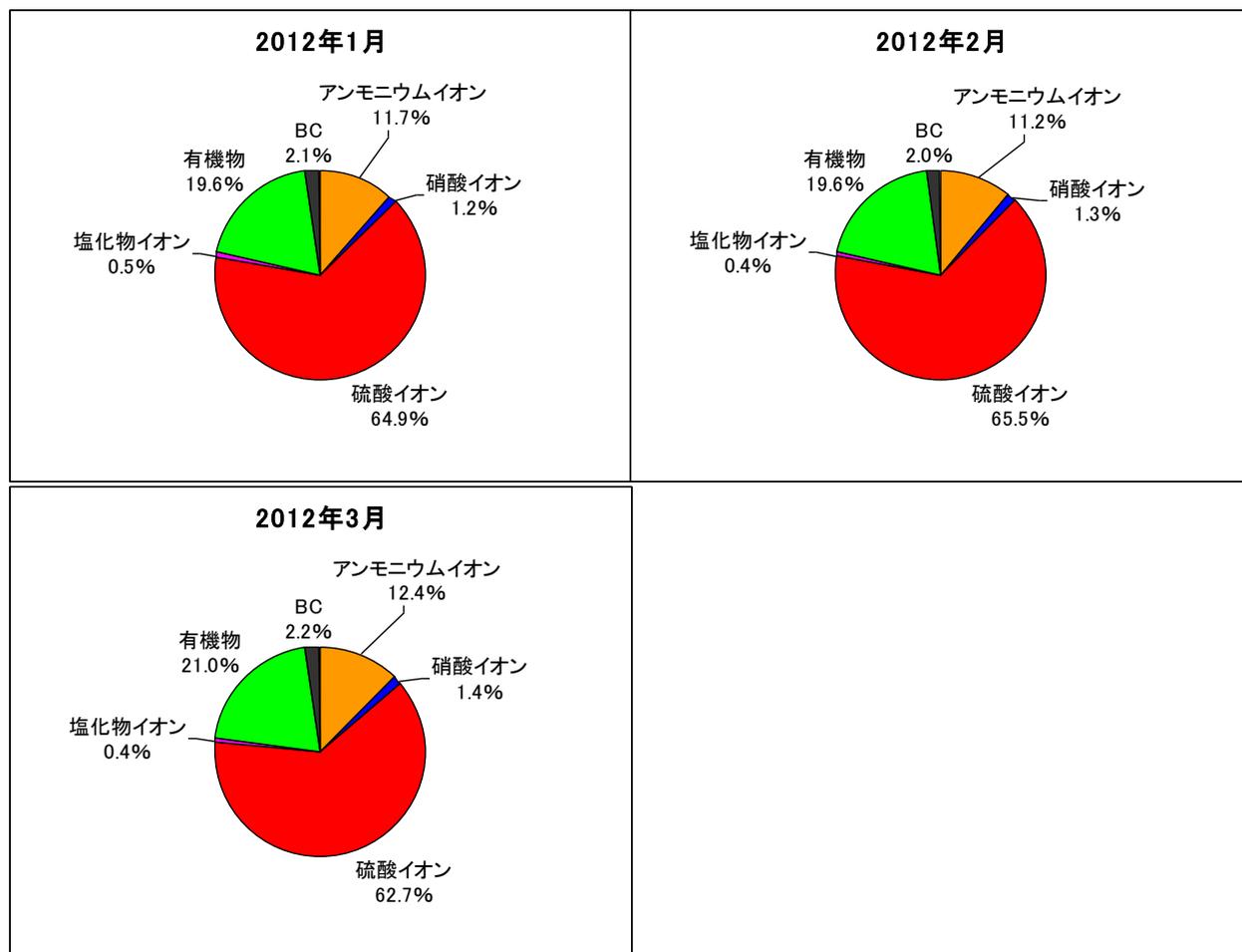
(a) 2012 年 1 月 ; (b) 2012 年 2 月

(c) 2012 年 3 月

上段 : Q-AMS によるエアロゾル中の各成分の質量濃度および有機物に対する $m/z = 44$ シグナルの割合

中段 : COSMOS による BC の質量濃度

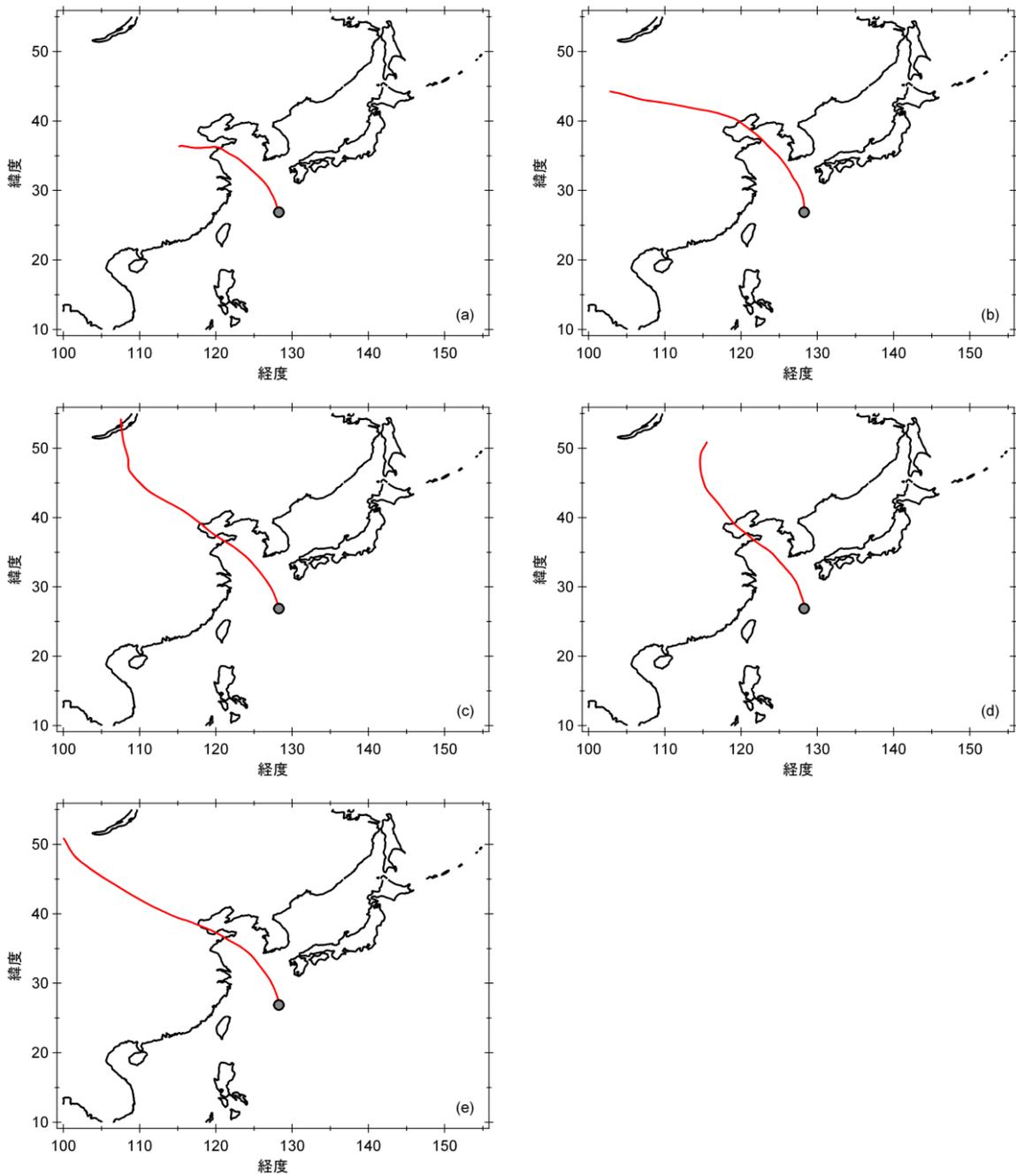
下段 : WPS によるエアロゾル個数濃度の粒径分布



図(4)-2 辺戸ステーションにおいて、Q-AMS、COSMOSにより観測されたエアロゾル化学組成（割合で表示）

表(4)-1 Q-AMS、COSMOSにより観測された各月におけるそれぞれの成分の濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) と割合（カッコ内が合計に対する割合（%））

	アンモニウムイオン	硝酸イオン	硫酸イオン	塩化物イオン	有機物	BC	合計
1月	1.07 (11.7)	0.11 (1.2)	5.96 (64.9)	0.05 (0.5)	1.80 (19.6)	0.19 (2.1)	9.18
2月	1.08 (11.2)	0.13 (1.3)	6.32 (65.5)	0.04 (0.4)	1.89 (19.6)	0.19 (2.0)	9.64
3月	1.13 (12.4)	0.12 (1.4)	5.72 (62.7)	0.03 (0.4)	1.91 (21.0)	0.20 (2.2)	9.12



図(4)-3 バックトラジェクトリー解析結果

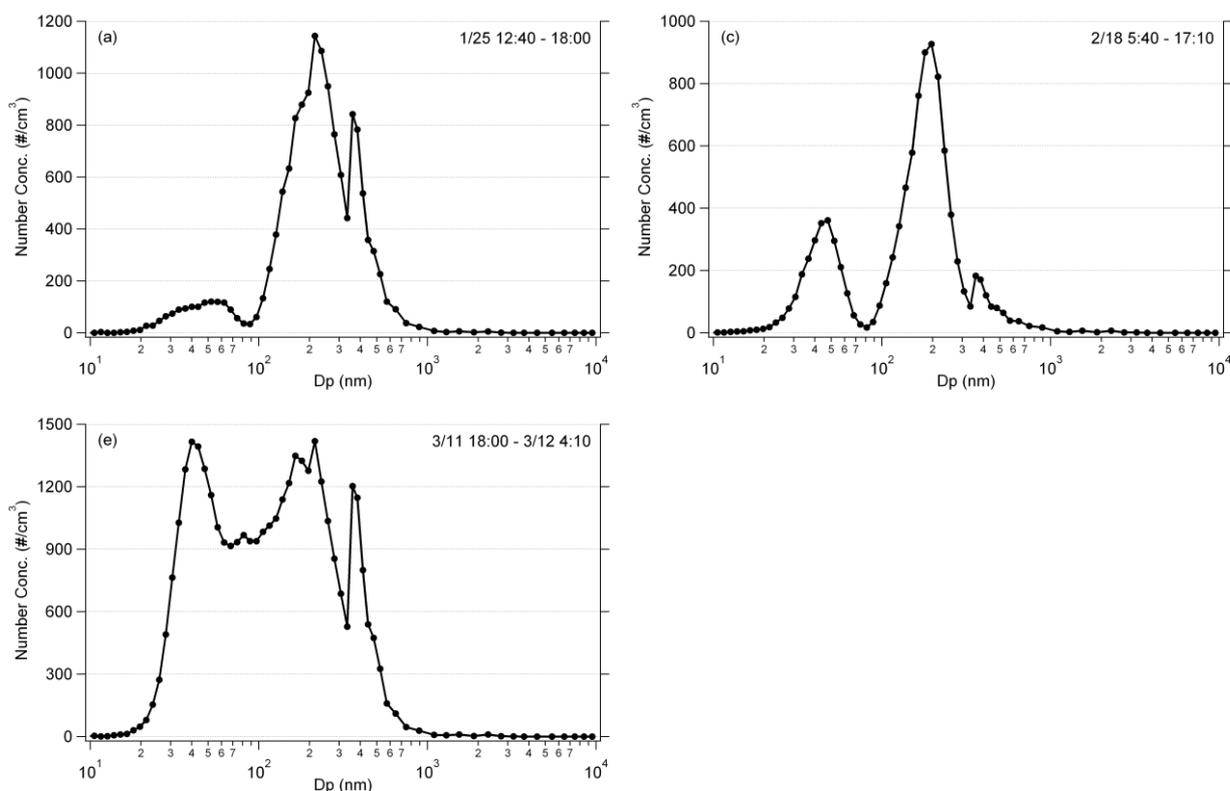
(a) 1月25日 12:40-18:00 ; (b) 2月17日 6:50-23:30

(c) 2月18日 5:40-17:10 ; (d) 2月19日 15:20-20日 1:30

(e) 3月11日 18:00-12日 4:10

を屋外に持ち出し、インレットを通さず、直接外気を観測した場合でも、この50 nmのピークは200 nmのピークとともに観測された。

観測期間の状況が典型的な条件かどうかを検討するために、Q-AMSとWPSによる観測において、硫酸イオン濃度が高くなると同時に、個数濃度でも高濃度が観測された期間を選び、NOAA HYSPLIT MODELによるバックトラジェクトリー解析を行った。選択した期間は次の五つの期間である：(a) 1月25日12:40-18:00、(b) 2月17日6:50-23:30、(c) 2月18日5:40-17:10、(d) 2月19日15:20-20日1:30、(e) 3月11日18:00-12日4:10。図(4)-3は各期間のほぼ中央にあたる時間において計算されたバックトラジェクトリー解析の結果である。五つの期間すべてにおいて、中国山東半島付近から気塊が流れてきていた。辺戸ステーションでの過去の観測においても、前線が通過した後、高気圧が上海付近に存在する場合、山東半島から気塊が輸送され、硫酸イオン濃度が高くなることが観測されている²⁾。今回の観測も同様な条件下で硫酸イオンが高くなっていることから、この一連の観測もアジア大陸からの典型的な大気汚染の輸送イベントを観測したと考えられる。



図(4)-4 WPSによって観測されたエアロゾル個数濃度の平均粒径分布

(a) 1月25日12:40-18:00；(c) 2月18日5:40-17:10

(e) 3月11日18:00-12日4:10

次にQ-AMSの質量濃度の粒径分布とWPSの個数濃度の粒径分布について比較を行った。図(4)-4に、(a)、(c)、(e)のそれぞれの期間におけるエアロゾル個数濃度の平均の粒径分布を示した。いずれの期間でも、相対的な大小関係は異なるが、50 nmと200 nm付近にピークがみられた。期間(e)では100 nm付近の個数濃度も高くなっていた。

以下の式を用いて、WPSの個数濃度の粒径分布を質量濃度に変換することを試みた。

$$WPS_Mass = D_{mass} \times WPS_Number$$

$$D_{mass} = \rho V, \quad V = (4/3)\pi(D_p/2)^3$$

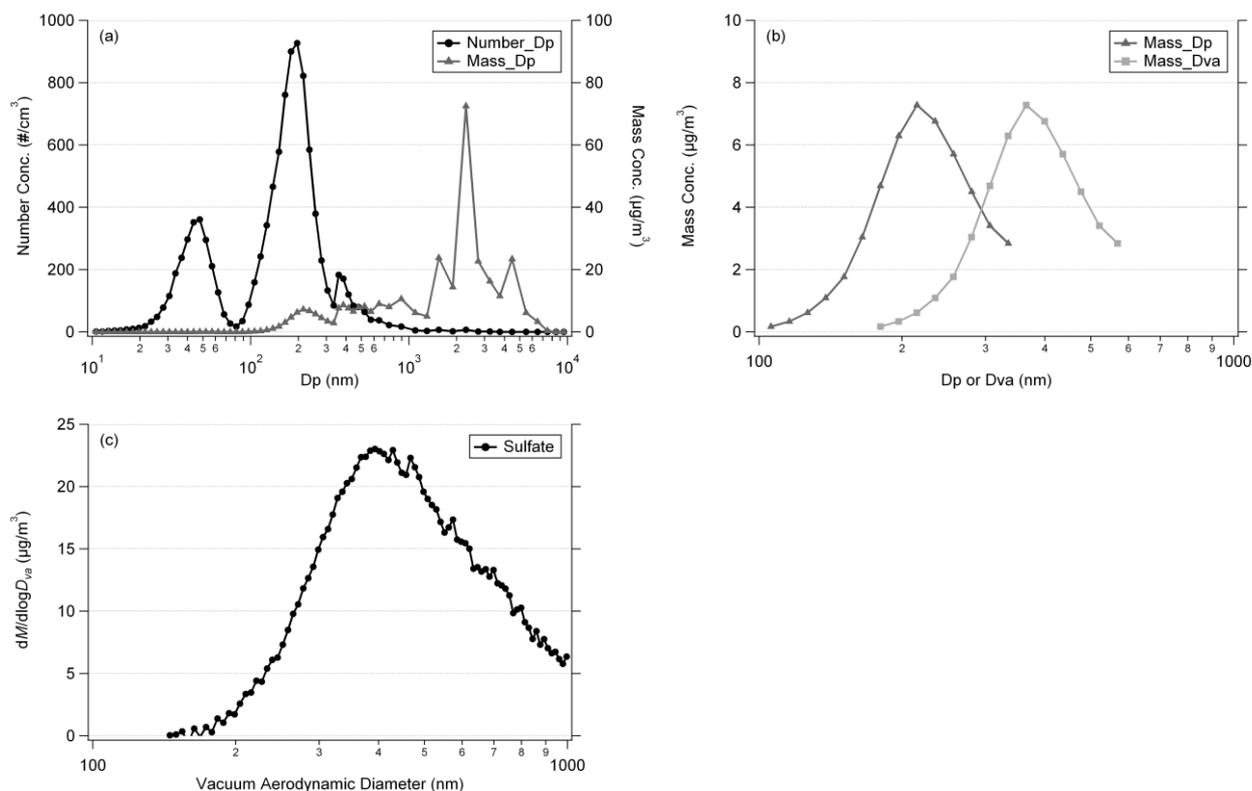
ここで、*WPS_Mass*は、WPSで測定された粒子の個数濃度 (*WPS_Number*) から計算される質量濃度、*D_{mass}*は粒子直径 (*D_p*) の粒子一個の質量、 ρ は密度、*V*は粒子一個の体積である。粒子は球形であるとし、また密度は 1.7 g/cm^3 と仮定した。Q-AMSの観測では、エアロゾルの主要成分は硫酸イオンと有機物であり、硫酸アンモニウムのバルクの密度は 1.77 g/cm^3 である。有機物の密度は不明であるが、辺戸ステーションでの観測ではカルボン酸のフラグメントであり、酸化の指標として用いられる $m/z = 44$ のシグナルが有機物全体に対し 15%程度 (図(4)-1 参照) と高いため、密度は高いであろうと推測した。ちなみに、都市部で観測される $m/z = 44$ のシグナルの有機物全体に対する割合は 8%程度⁶⁾ であり、密度は 1.4 g/cm^3 程度と考えられている。主要成分が硫酸イオンと酸化された有機物であるので、密度は 1.7 g/cm^3 程度が妥当であると考えた。また、WPSで観測される粒径 (*D_p*) と真空中の空力学的粒径 (*D_{va}*) との間に以下の関係がある⁷⁾。

$$D_{va} = (\rho/\rho_0) D_p$$

ここで、 ρ_0 は空力学的粒径に対する密度であり定義として 1 g/cm^3 である。今、密度を 1.7 g/cm^3 と仮定しているので、WPSで測定される $D_p = 200 \text{ nm}$ の粒子は、Q-AMSでは $D_{va} = 340 \text{ nm}$ で観測される。Q-AMSは、真空中において 600°C で蒸発する成分、粒径については空力学的レンズの特性により、ほぼ PM_{10} ($1 \mu\text{m}$ の粒子を 50%カット) の粒子を観測することができる。図(4)-5 (a)に上記の式を用いて計算したWPSの個数濃度分布から求めた質量濃度分布を示す。期間(c)、2月18日 5:40–17:10の結果について示している。計算された質量濃度の粒径に対する分布 (図(4)-5 (a)の灰色のライン) では $2000\text{--}3000 \text{ nm}$ 付近にピークが得られているが、これは粒径が大きく、また、粗大粒子は海塩やダストが主成分と考えられるので、Q-AMSでは観測されないと考えられる。図(4)-5 (b)は、質量濃度の粒径に対する分布における 200 nm 付近のピークを、空力学的粒径に対する分布として示したものである。ピークは 400 nm 付近にある。さらに、図(4)-5 (c)には、同時にQ-AMSで観測した硫酸イオン (質量濃度) の空力学的粒径に対する分布を示した。図(4)-5 (b)と図(4)-5 (c)におけるピークの位置がほぼ一致していることから、WPSで観測された 200 nm 付近のピークがQ-AMSの粒径分布で観測される 400 nm 付近のピークに相当すると推定された。このような比較からWPSの測定とQ-AMSでの測定には整合性があると考えられる。

Q-AMSとWPSの測定結果に基づき、辺戸ステーションにおいて観測されたエアロゾルの雲凝結核 (CCN: Cloud condensation Nuclei) 能について考察する。上で示したように、WPSにより得られる粒径分布では、 200 nm 付近の粒子が観測期間を通じて主要なピークとして観測されている。この 200 nm 付近のピークが、Q-AMSで観測される $400\text{--}600 \text{ nm}$ 付近のピークに相当していると考えられるので、その主成分は硫酸イオン、有機物、アンモニウムイオンであると推定される。2008年春季に辺戸ステーションでエアロゾルを捕集し、水溶性成分を取り除いた後で、電子顕微鏡を用いてBCの形態観察を行った結果によると、 50 nm 以下のBC粒子が凝集し、数百 nm の凝集体になっている様子がみられた⁸⁾。そのような粒子以外にも、単一の粒子からなる球形や棒状の 500 nm 程度の大きさをもつBCも観測された。水透析法を用いることにより、硫酸アンモ

ニウムや有機物が主成分であると判定された粒子では、200–400 nmの球形粒子でしばしばBCが観察された。



図(4)-5 WPSおよびQ-AMSによって観測された平均粒径分布（期間：2月18日5:40–17:10）

- (a) WPSにより観測された個数濃度分布から計算した質量濃度の粒径に対する分布
- (b) 計算された質量濃度分布における200 nm付近のピークを空力学的粒径に対する分布として示したもの
- (c) Q-AMSで観測された硫酸イオン（質量濃度）の空力学的粒径に対する分布

2007年春季には、福江観測施設においてSP2（Single Particle Soot Photometer）を用いたBCとその被覆状態の観測が行われた⁹⁾。それによると、中国起源の気塊の場合、粒径130 nm付近に個数濃度の最頻値があり、BCと被覆している物質との粒径の比（Core/Shell）は1.6程度まで増加することが確認された。被覆物質の主要成分は、辺戸ステーションと同様にQ-AMSによる観測から硫酸イオンや有機物と推定されている。これらの結果は今回のWPSとQ-AMSの観測結果と整合しており、WPSによりピークとして観測された200 nm付近の粒子は、中心にBCの核（Core）を持ち、Q-AMSで観測されたように硫酸イオン、有機物に被覆されており、水溶性（親水性）であると考えられる。

2008年春季には辺戸ステーションにおいて、様々な過飽和度におけるCCNとして作用する粒子の割合を粒子サイズの関数として測定した¹⁰⁾。Q-AMSによる化学組成の観測では、今回の観測同様、主要成分は硫酸イオン、有機物であり、質量濃度にして硫酸イオンが約50–60%、有機

物が約 20–30%であった。また $m/z = 44$ のシグナルの有機物全体に対する割合も、今回の観測同様、15%程度であった。このような化学組成を持つ粒子に対して、過飽和度 0.1%と 0.44%の条件下で N_{CCN}/N_{CN} の割合を測定している。ここで N_{CCN} は CCN の個数濃度、 N_{CN} は凝結核 (CN: Condensation Nuclei) の個数濃度を表す。この報告によると、過飽和度 0.1%では平均粒径 130 nm の粒子で約 50%が CCN として作用し、過飽和度 0.44%では平均粒径 54 nm の粒子で同様に約 50%が CCN として作用していた。この結果は、Dusek らにより報告されている結果とも整合性がある¹¹⁾。これらをもとに、今回の観測結果の解釈を行うと、WPS で観測された 200 nm 付近の硫酸イオンや有機物で被覆されていると考えられる粒子は、過飽和度 0.1%でそのほとんどが CCN として作用すると推定されることになる。しかし、Mochida らが乾燥粒径に基づいて議論をしているのに対し、本研究では大気試料の湿度について考慮していない。Mochida らの結果と直接、比較するためには、湿度の測定結果を含めて、考察をさらに行う必要がある。

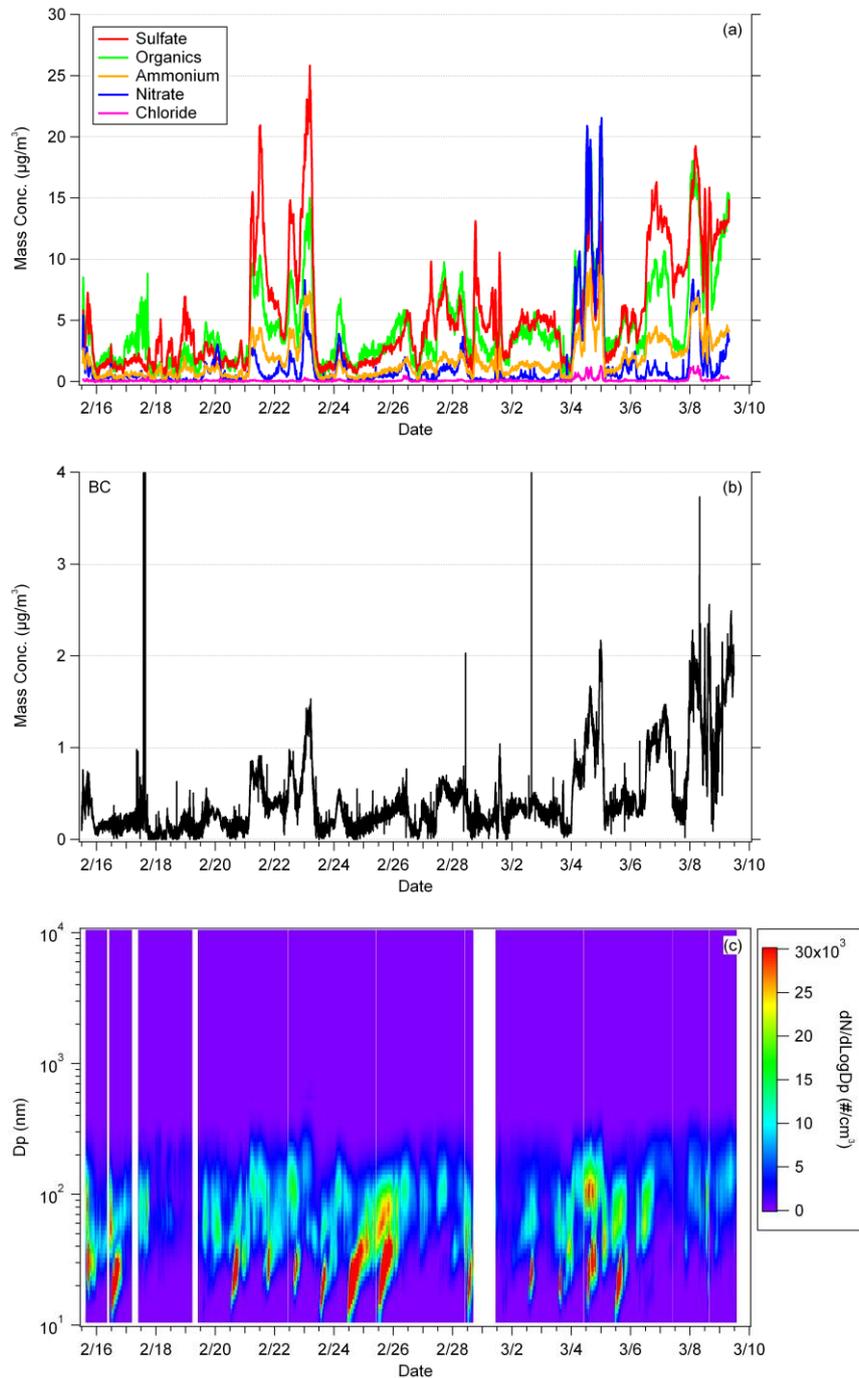
WPS の粒径分布では 50 nm 付近にもピークがみられる。WPS と Q-AMS により得られた粒径分布について、WPS の結果から質量濃度を計算して比較検討したが (図(4)-5)、WPS で測定された 50 nm 付近の粒子は、Q-AMS では質量濃度が小さいため、明確な化学組成は測定できない。200 nm 付近に粒子が存在しているときに、同時に、それより小さな 50 nm 付近にかなりの程度、粒子が存在することについて、現時点では明確な解釈はできていない。一方で、屋外での観測や、凝結粒子計測部の測定範囲を変更した観測でも両者が同時に観測されており、現時点ではデータを棄却できない。この 50 nm 付近の粒子は、濃度は低いながらも定常的に観測されており、今後とも観測を継続し、詳細に調べることにしている。

(2) 新粒子生成について (辺戸ステーションと福江観測施設において得られた結果の比較)

図(4)-6に福江観測施設でのACSM、COSMOS、WPSによる観測結果 (2013年2月15日から3月9日まで) を示す。図(4)-6 (a) はACSMによる観測結果であり、エアロゾル中の各成分 (アンモニウムイオン、硝酸イオン、硫酸イオン、塩化物イオン、有機物) の濃度変動を示している。これによると、福江島におけるPM_{2.5}の主要な成分は硫酸イオンや有機物であった。図(4)-6 (b) はCOSMOSによる観測結果である。2月17日午後、野焼きの影響と思われるピークがみられるが (7.48 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ まで濃度が上昇した)、全体的にはACSMによる観測結果と同様の変動を示している。表(4)-2は、ACSMとCOSMOSによって測定された各成分の平均濃度とそれらの合計に対する割合である (BCについては、野焼きの影響を受けていたと思われる高濃度データを除いた)。2012年2月の辺戸ステーションにおける観測結果と比較したところ、同様に、BCに比べて硫酸イオン、有機物、アンモニウムイオンの濃度がかなり高くなっている。ただし、辺戸ステーションでは硫酸イオンが65.5%を占め、圧倒的に高かったのに対し、福江観測施設では硫酸イオンと有機物の濃度にそこまでの差はなかった。また、辺戸ステーションでは硝酸イオンが塩化物イオンと同様に、非常に低かったが、福江観測施設における観測では硝酸イオン濃度が1.26 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (9.5%) であった。BCについても0.44 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ と、辺戸ステーションにおける観測値0.19 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ に比べて高かった。

図(4)-6 (c) がWPSによる観測結果である。ACSM によって測定される質量濃度が高くなるようなときには、100–200 nm付近で 10^4 個/cm³以上の粒子がWPSで観測されている。また、50 nm以下の微小粒子が高濃度になるときがしばしばあった。2月16日、24日および25日の午後には、

時間の経過とともにピークが10 nm付近から粗大粒子側へとシフトしていく様子がみられた。また、図ではまったく粒子がなかったように見えるが、3月8日から9日にかけて、黄砂の影響と考えられる粒径1300 nm付近の粒子が30個/cm³程度、観測されている。



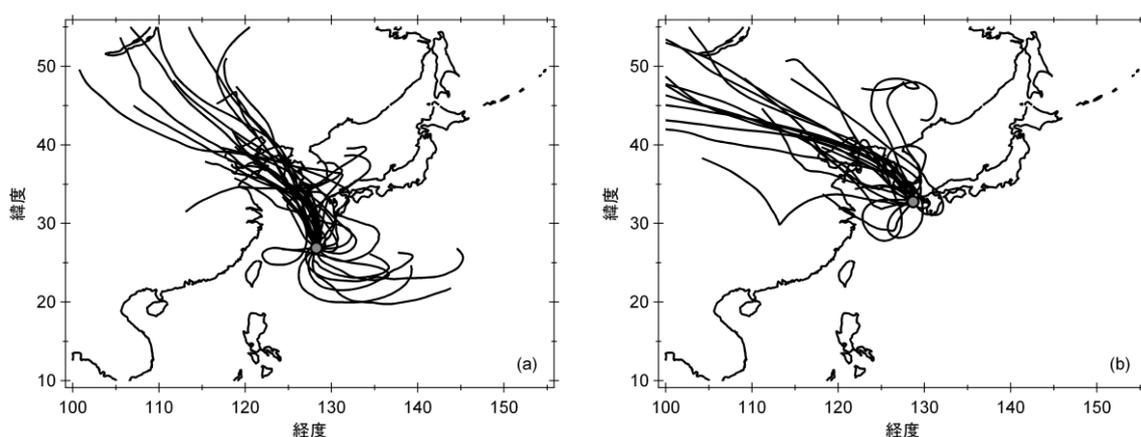
図(4)-6 福江観測施設における観測結果 (2013年2月15日 - 3月9日)
(a) ACSM ; (b) COSMOS ; (c) WPS

表(4)-2 ACSM、COSMOSにより観測されたそれぞれの成分の濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) と割合 (カッコ内が合計に対する割合 (%))

アンモニウムイオン	硝酸イオン	硫酸イオン	塩化物イオン	有機物	BC	合計
1.71	1.26	5.33	0.11	4.48	0.44	13.32
(12.8)	(9.5)	(40.0)	(0.8)	(33.6)	(3.3)	

辺戸ステーションおよび福江観測施設、それぞれの観測地点において WPS により得られた観測結果の比較を行った。辺戸ステーションでの観測は 2012 年、福江観測施設での観測は 2013 年と、観測期間が 1 年異なるため、各年における気塊の輸送経路および大気エアロゾルの化学組成を調べた。まず、図(4)-7 はそれぞれの観測期間中、24 時間間隔でバックトラジェクトリー解析を行った結果である。一部の期間を除いて、いずれも中国北部からの気塊が流れてきていた。また、図(4)-7 (a) の結果は、気塊が辺戸ステーションへ到達する前に、福江島周辺を通過していたことを示している。表(4)-3 には、福江観測施設における 2013 年のエアロゾル化学組成の観測結果に加え、同時期の 2012 年の結果を示した。硝酸イオンと硫酸イオンに多少、違いはみられるものの、全体的には各成分の濃度、割合ともに同様の結果が得られており、観測を行った年が異なることによる差は小さいと考えられる。

図(4)-8 は WPS により測定された各期間の平均の粒径分布である。2012 年 2 月の辺戸ステーションにおける観測結果を図(4)-8 (a) に示す。観測期間を通して、ピークが 50 nm と 200 nm 付近にみられており、粒径分布は二峰型となっていた (図(4)-1 (b))。一方、2013 年の福江観測施設における観測では期間中、粒径分布の様子に変動がみられた。ピーク的位置に関して、2 月 23 日 0 時過ぎの 150 nm 付近というのが最大の粒径をもつピークで、辺戸岬で観測された粒径



図(4)-7 バックトラジェクトリー解析結果

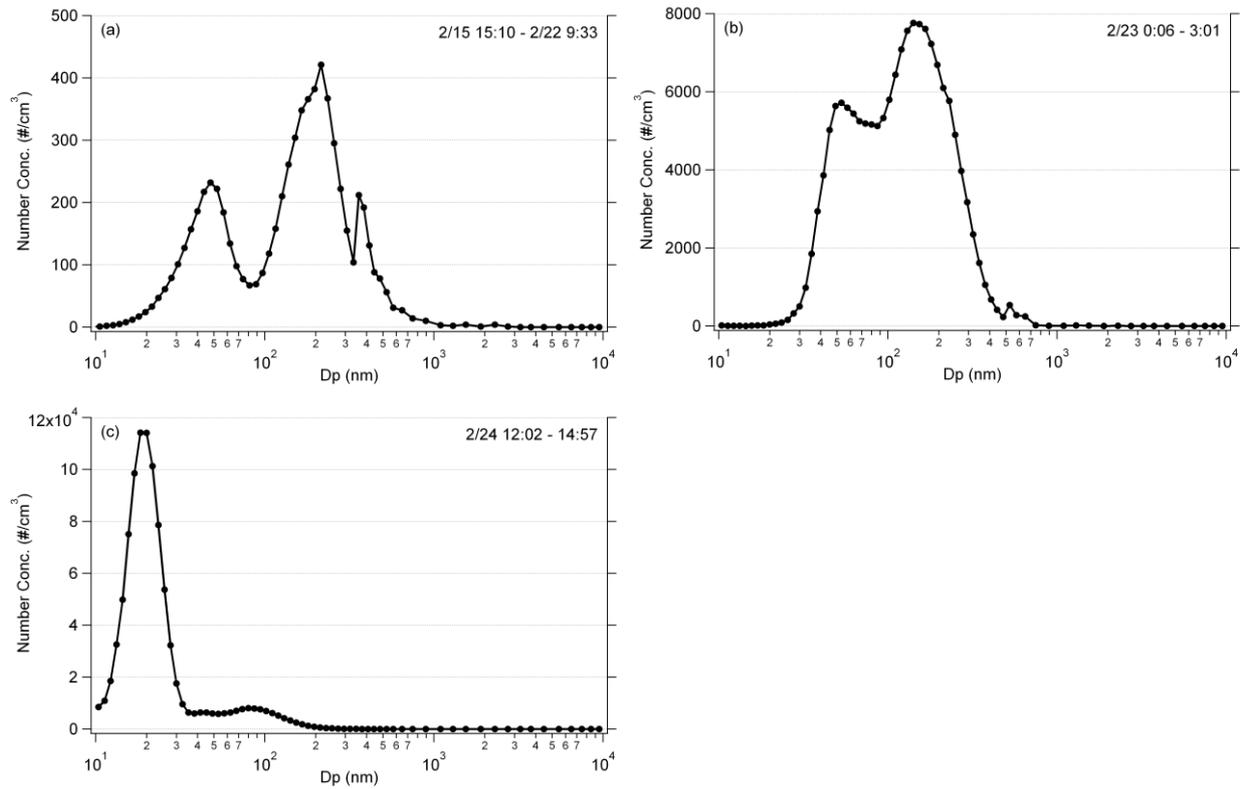
(a) 2012 年、辺戸ステーション； (b) 2013 年、福江観測施設

表(4)-3 福江観測施設において、ACSMにより観測されたそれぞれの成分の濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) と割合 (カッコ内が合計に対する割合 (%))

	アンモニウム イオン	硝酸 イオン	硫酸 イオン	塩化物 イオン	有機物	合計
2012年	1.44 (12.1)	0.55 (4.6)	5.68 (47.6)	0.07 (0.6)	4.19 (35.1)	11.93
2013年	1.71 (13.3)	1.26 (9.8)	5.33 (41.3)	0.11 (0.8)	4.48 (34.8)	12.89

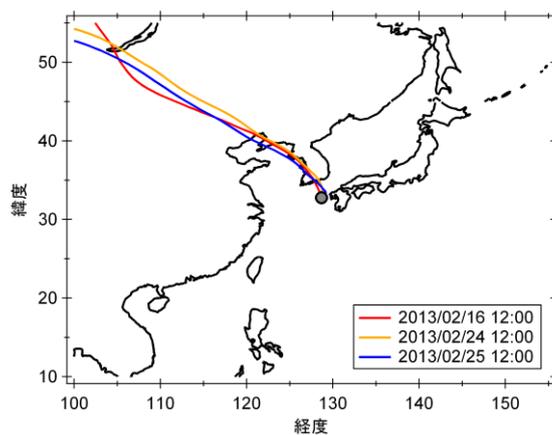
200 nm 付近にピークはみられなかった (図(4)-8 (b))。辺戸ステーションや福江観測施設において観測される蓄積モードの粒子の化学組成は、エアロゾル化学組成の測定によると硫酸イオンが主要な成分である (表(4)-1 および 2)。硫酸イオンは大気中に放出された二酸化硫黄が輸送中に酸化されることによって生成する。二酸化硫黄の主な発生源は中国北部であるが¹²⁾、この時期、日本周辺は大陸からの北西の季節風により、主に中国北部からの気塊が流れてきている (図(4)-7)。したがって、辺戸岬に比べて福江島の方が発生源からの距離が近く、輸送時間が短いため (辺戸岬には1-3日かかっていたのに対し、福江島は1日程度であった)、福江島で観測される粒子については、成長が十分にすすんでいなかったと推定される。

観測される個数濃度は、辺戸ステーションと福江観測施設で大きく異なっていた。辺戸ステーションでは、濃度は高くても2月18日午前粒径200 nm 付近で観測された1500個/cm³であったのに対し、福江観測施設では2月16日、24日、25日の正午過ぎに、粒径15-25 nm において10⁵個/cm³を超えるような高濃度が観測された。図(4)-8 (c) には、24日における粒径分布の様子を示した。さらに、福江島で観測された高濃度の核生成モード粒子がその後、夜にかけて徐々に粒径の大きい粒子へと成長していくという、新粒子生成の際に特徴的なパターンがみられた³⁾。各日、正午におけるバックトラジェクトリー解析の結果を図(4)-9に示す。気塊はいずれも、中国北部、朝鮮半島西岸付近を通過し、福江島へと到達していた。一方、辺戸ステーションにおける観測では、このような現象はみられなかった。新粒子生成は、二酸化硫黄や揮発性有機化合物などのガス成分が光化学反応により酸化され、半揮発性の成分へと変換されることにより起こる³⁾。日照に関して、両者に大きな差はみられなかった。福江観測施設において観測された二酸化硫黄および硫酸イオン濃度、辺戸ステーションにおいて観測された硫酸イオン濃度、さらに辺戸ステーションに隣接する国設辺戸岬酸性雨測定局における二酸化硫黄濃度を用いて¹³⁾、WPSによる観測期間中の各地点の二酸化硫黄濃度と、二酸化硫黄と硫酸イオンの和に対する二酸化硫黄の割合 (= $\text{SO}_2/(\text{SO}_2 + \text{SO}_4)$; モル比) を調べた。図(4)-10にそれらの変動の様子を示す。期間中の平均値は、福江観測施設ではそれぞれ2.3 ppbと55%、辺戸ステーションでは0.3 ppbと12%と、いずれの値についても、観測地点間の差が大きいことがわかった。福江島において、新粒子生成が観測されたとき、比は80%まで上昇していたが、辺戸岬では、中国からの気塊の輸送時間が福

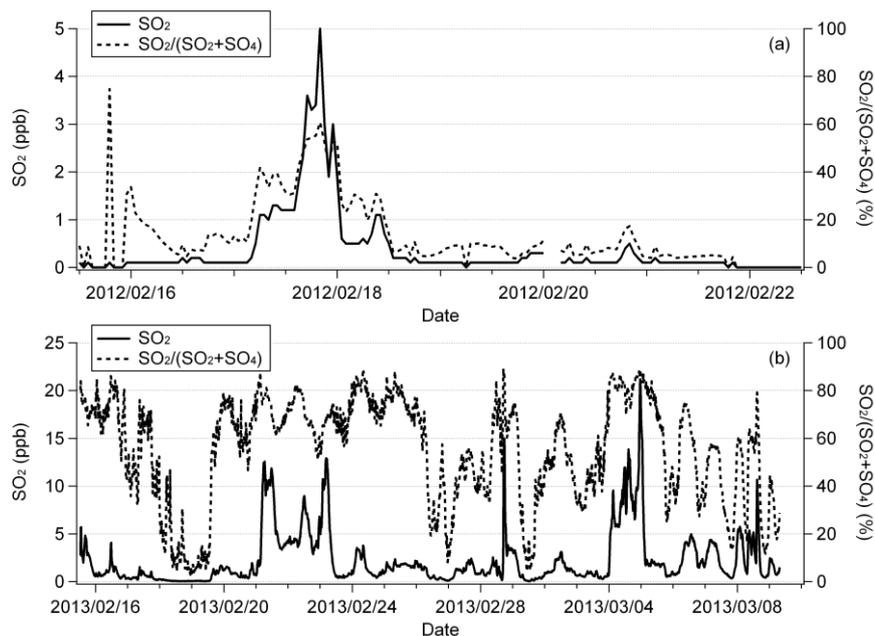


図(4)-8 WPSによって観測されたエアロゾル個数濃度の平均粒径分布

- (a) 2012年2月15日 15:10-22日 9:33、辺戸ステーション
- (b) 2013年2月23日 0:06-3:01、福江観測施設
- (c) 2013年2月24日 12:02-14:57、福江観測施設



図(4)-9 福江観測施設において、新粒子生成が観測されたときのバックトラジェクトリー解析結果 (2013年2月16日、24日、25日正午)



図(4)-10 各観測地点における二酸化硫黄濃度および二酸化硫黄と硫酸イオンの和に対する二酸化硫黄の割合（モル比）

(a) 2012年、辺戸ステーション；(b) 2013年、福江観測施設

江島と同様に1日程度であった2012年2月17日においても60%にしかならなかった。福江島周辺では新粒子生成が起こるのに十分な二酸化硫黄などのガス成分が存在していたのに対し、辺戸岬周辺ではガス成分の濃度が低い上に、すでに高濃度の硫酸イオンなどの粒子が存在していたため（表(4)-1）、新たに半揮発性の成分が生成しても既存の粒子への凝縮が起こったと考えられる。

本研究で得られた結果は、二地点のみではあるが、エアロゾル粒径分布の東アジアでの空間分布に関する知見を与えるものである。特に、福江島周辺では新粒子生成が起きているのに対し、辺戸岬周辺ではほとんどみられず、顕著な違いがあった。

5. 本研究開発により得られた成果

(1) 科学的意義

これまでの観測例が少ない10–10000 nmという広範囲にわたるエアロゾル粒径分布の観測を、ワイドレンジ粒子スペクトロメータ（WPS）により、2012年1月から3月に辺戸岬において、2013年2月から3月に福江島において行った。辺戸岬では200 nm付近における個数濃度がほぼ観測期間を通して高かった。一方、福江島において200 nm付近の個数濃度が高くなるのは、簡易型エアロゾル質量分析計（ACSM）により観測されるエアロゾル中の硫酸イオンや有機物などの濃度が高くなる時であった。福江島では新粒子生成がたびたび、みられたのに対し、辺戸岬ではほとんど観測されず、両地点における観測結果に大きな違いがあるという事実が見出された。

(2) 環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

環境省 大気環境課からの BC の定義についての問い合わせに対し、回答した。また、IGES 主催のコベネフィット国際ワークショップ（平成 24 年 2 月 13 日開催）に出席し、BC に関する議論に参加した。

<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) Verma, R. L., Y. Kondo, N. Oshima, H. Matsui, K. Kita, L. K. Sahu, S. Kato, Y. Kajii, A. Takami and T. Miyakawa: *J. Geophys. Res.*, 116, D21307, doi:10.1029/2011JD015830 (2011).
“Seasonal variations of the transport of black carbon and carbon monoxide from the Asian continent to the western Pacific in the boundary layer”
- 2) Kajino, M., Y. Inomata, K. Sato, H. Ueda, Z. Han, J. An, G. Katata, M. Deushi, T. Maki, N. Oshima, J. Kurokawa, T. Ohara, A. Takami and S. Hatakeyama: *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 11833-11856, doi:10.5194/acp-12-11833-2012 (2012).
“Development of an aerosol chemical transport model RAQM2 and predictions of Northeast Asian aerosol mass, size, chemistry, and mixing type”
- 3) 三好猛雄、高見昭憲、下野彰夫、畠山史郎：大気環境学会誌, 48, 1-11 (2013).
「エアロゾル質量分析計により沖縄県辺戸岬において観測されたエアロゾル化学組成の特徴」
- 4) Takami, A., N. Mayama, T. Sakamoto, K. Ohishi, S. Irei, A. Yoshino, S. Hatakeyama, K. Murano, Y. Sadanaga, H. Bandow, K. Misawa and M. Fujii: *J. Geophys. Res. Atmos.*, 118, 6726-6737, doi:10.1002/jgrd.50477 (2013).
“Structural analysis of aerosol particles by microscopic observation using a Time-of-Flight Secondary Ion Mass Spectrometer”
- 5) Matsui, H., M. Koike, Y. Kondo, N. Oshima, N. Moteki, Y. Kanaya, A. Takami and M. Irwin: *J. Geophys. Res. Atmos.*, 118, 9948-9967, doi:10.1002/jgrd.50702 (2013).
“Seasonal variations of Asian black carbon outflow to the Pacific: Contribution from anthropogenic sources in China and biomass burning sources in Siberia and Southeast Asia”
- 6) Matsui, H., M. Koike, N. Takegawa, Y. Kondo, A. Takami, T. Takamura, S. Yoon, S.-W. Kim, H.-C. Lim and J. D. Fast: *J. Geophys. Res. Atmos.*, 118, 11647-11663,

doi:10.1002/jgrd.50821 (2013).

“Spatial and temporal variations of new particle formation in East Asia using the NPF-explicit WRF-chem model”

- 7) Irei, S., A. Shimono, T. Hikida, K. Kuramoto, Y. Suzuki and A. Takami: *Aerosol Air Qual. Res.*, 14, 406-412, doi:10.4209/aaqr.2013.04.0126 (2014).

“Qualitative evaluation of m/z 85, 87, and 133 signals in organic aerosol mass spectra of fly ash produced by coal combustion”

<その他誌上発表（査読なし）>

- 1) 山下善之監修：計測・モニタリング技術－化学計測・計装の最先端とその応用－、CMC出版、154-164、ISBN978-4-7813-0406-9 C3043 (2011).

「4. 大気エアロゾルのモニタリング（執筆担当：高見昭憲）」

(2) 口頭発表（学会等）

- 1) Irei, S., A. Takami, T. Hikida and A. Shimono: The 7th Asian Aerosol Conference, Xi'an, China (2011).

“Application of PMF to AMS Data Observed at Fukue Island, Japan”

- 2) 三好猛雄、高見昭憲、伊禮聡、下野彰夫、疋田利秀、M. Irwin、大畑祥、近藤豊：第53回大気環境学会年会 (2012).

「沖縄県辺戸岬におけるワイドレンジ粒子スペクトロメータによる大気エアロゾルの観測」

(3) 出願特許

特に記載すべき事項はない。

(4) シンポジウム、セミナー等の開催（主催のもの）

特に記載すべき事項はない。

(5) マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項はない。

(6) その他

特に記載すべき事項はない。

8. 引用文献

- 1) Takami, A., T. Miyoshi, A. Shimono and S. Hatakeyama: *Atmos. Environ.*, 39, 4913-4924 (2005).
“Chemical composition of fine aerosol measured by AMS at Fukue Island, Japan during APEX period”
- 2) Takami, A., T. Miyoshi, A. Shimono, N. Kaneyasu, S. Kato, Y. Kajii and S. Hatakeyama: *J. Geophys. Res.*, 112, D22S31, doi:10.1029/2006JD008120 (2007).
“Transport of anthropogenic aerosols from Asia and subsequent chemical transformation”

- 3) Seto, T., S. Kim, Y. Otani, A. Takami, N. Kaneyasu, T. Fujimoto, K. Okuyama, T. Takamura and S. Hatakeyama: *Atmos. Environ.*, 74, 29-36 (2013).
“New particle formation and growth associated with East-Asian long range transportation observed at Fukue Island, Japan in March 2012”
- 4) Kondo, Y., N. Oshima, M. Kajino, R. Mikami, N. Moteki, N. Takegawa, R. L. Verma, Y. Kajii, S. Kato and A. Takami: *J. Geophys. Res.*, 116, D16201, doi:10.1029/2011JD015637 (2011).
“Emissions of black carbon in East Asia estimated from observations at a remote site in the East China Sea”
- 5) Kanaya, Y., F. Taketani, Y. Komazaki, X. Liu, Y. Kondo, L. K. Sahu, H. Irie and H. Takashima: *Aerosol Sci. Technol.*, 47, 1-10, doi: 10.1080/02786826.2012.716551 (2013).
“Comparison of black carbon mass concentrations observed by multi-angle absorption photometer (MAAP) and continuous soot-monitoring system (COSMOS) on Fukue Island and in Tokyo, Japan”
- 6) Takegawa, N., Y. Miyazaki, Y. Kondo, Y. Komazaki, T. Miyakawa, J. L. Jimenez, J. T. Jayne, D. R. Worsnop, J. D. Allan and R. J. Weber: *Aerosol Sci. Technol.*, 39, 760-770, doi:10.1080/02786820500243404 (2005).
“Characterization of an Aerodyne Aerosol Mass Spectrometer (AMS): Intercomparison with other aerosol instruments”
- 7) DeCarlo, P. F., J. G. Slowik, D. R. Worsnop, P. Davidovits and J. L. Jimenez: *Aerosol Sci. Technol.*, 38, 1185-1205, doi:10.1080/027868290903907 (2004).
“Particle morphology and density characterization by combined mobility and aerodynamic diameter measurements. Part 1: Theory”
- 8) Ueda, S., K. Osada and A. Takami: *J. Geophys. Res.*, 116, D17207, doi:10.1029/2010JD015565 (2011).
“Morphological features of soot-containing particles internally mixed with water-soluble materials in continental outflow observed at Cape Hedo, Okinawa, Japan”
- 9) Shiraiwa, M., Y. Kondo, N. Moteki, N. Takegawa, L. K. Sahu, A. Takami, S. Hatakeyama, S. Yonemura and D. R. Blake: *J. Geophys. Res.*, 113, D24210, doi:10.1029/2008JD010546 (2008).
“Radiative impact of mixing state of black carbon aerosol in Asian outflow”
- 10) Mochida, M., C. Nishita-Hara, Y. Kitamori, S. G. Aggarwal, K. Kawamura, K. Miura and A. Takami: *J. Geophys. Res.*, 115, D21207, doi:10.1029/2009JD013216 (2010).
“Size segregated measurements of cloud condensation nucleus activity and hygroscopic growth for aerosols at Cape Hedo, Japan, in spring 2008”
- 11) Dusek, U., G. P. Frank, L. Hildebrandt, J. Curtius, J. Schneider, S. Walter, D. Chand, F. Drewnick, S. Hings, D. Jung, S. Borrmann and M. O. Andreae: *Science*, 312, 1375-1378 (2006).
“Size matters more than chemistry for cloud-nucleating ability of aerosol particles”
- 12) Ohara, T., H. Akimoto, J. Kurokawa, N. Horii, K. Yamaji, X. Yan and T. Hayasaka: *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 4419-4444 (2007).
“An Asian emission inventory of anthropogenic emission sources for the period 1980-2020”
- 13) “ACAP (Asia Center for Air Pollution Research): EANET (Acid Deposition Monitoring Network in East Asia) Monitoring Data (2013).

(5) BC放射影響の観測

千葉大学環境リモートセンシング研究センター 基盤研究領域 高村民雄

〈研究協力者〉

千葉大学環境リモートセンシング研究センター Pradeep Khatri

平成23～25年度累計予算額：5,304千円（うち、平成25年度予算額：1,352千円）

予算額は、間接経費を含む。

[要旨]

本研究では、SKYNET観測網の主要なサイトである千葉、福江島、辺戸岬及び宮古島におけるスカイラジオメータによる長期観測のデータを解析し、日本上空におけるエアロゾルの光学的特徴と放射効果の月別及び季節別変動を明らかにした。エアロゾルの光学的厚さや単一散乱アルベドなどはサイトごとに変わるが、これまで指摘されているように、春には粗大粒子を含む光学的に厚いエアロゾルが日本上空に存在していることが示された。また、千葉サイトは都市域のエアロゾルを代表する特徴を示し、辺戸岬や宮古島サイトのものは比較的局地汚染の影響の少ない結果を示した。特徴的なことは、福江島におけるエアロゾルは、特に春から夏にかけて千葉のエアロゾルと比肩できるほど強い吸収能を持ち、光学的にも厚いことである。放射影響評価をサイトごとの季節平均の値としてみると、エアロゾルの吸収による地表面冷却と大気加熱効果は春に最も大きく、冬の値のおよそ2倍程度あることが示された。

[キーワード]

エアロゾルの光学的厚さ、単一散乱アルベド、エアロゾルの放射効果

1. はじめに

「気候変動に関する政府間パネル」(IPCC : http://www.climatechange2013.org/images/report/WG1AR5_SPM_FINAL.pdf)の第5次評価報告書に指摘されているように、大気中に浮遊する微粒子であるエアロゾルは、地球大気放射収支に影響を及ぼし気候変動の要因となる。エアロゾルによる気候変動への影響のプロセスは、主に直接効果と間接効果に分けることが出来る。エアロゾルが太陽光を散乱・吸収することによる影響が「直接効果」であり、エアロゾルが凝結核となって雲の生成、発達及び消滅、更に反射率(アルベド)などに関与することで、間接的に気候に影響を与えるものが「間接効果」である。

エアロゾルの光学的特性がわかれば、直接効果の定量的評価をすることは容易である。しかし、実際のエアロゾルは時間的、空間的な変動があり、また多様な物質からなる混合状態であることから、その光学的特性を広範に、しかも的確に知ることはそれほど容易ではない。特に、不確定性の高いエアロゾルの吸収特性を知ることは、地上からの観測によってのみ比較的精度よく推定が可能な状態である。

東アジアの急激な経済発展に伴う大気汚染の激化や乾燥地帯からの砂塵嵐などの越境汚染は大

きな問題になりつつある。人為起源汚染の増大や、人間活動がもたらす環境改変によって発生するさまざまな汚染は全球的に問題となっているが、とりわけ東アジアでは深刻化しつつある。日本周辺では、春季にはメソスケールの気象擾乱によって、黄砂、ブラックカーボン（BC）、ブラウンカーボンなどが含まれる複雑な混合状態のエアロゾルが日本周辺に飛来する¹⁾。これらの気象・気候に与える影響の観点から、この地域のエアロゾルが大変注目を集めている²⁾。

こうしたエアロゾルの気候変動への影響に対して、衛星データ解析やモデル研究が計算機の急速な進化とともに拡大しており、こうした動きに対応した地上観測データの必要性が増してきた。SKYNET観測網(<http://atmos.cr.chiba-u.ac.jp/>)は、こうした必要性に対して、大学・研究機関を中心とした研究者コミュニティで維持されているエアロゾル・雲・放射の観測ネットワークである。この観測網は、東アジアを中心に観測拠点を構築して連続観測を実施している。SKYNETでは、エアロゾルの光学的性質とその放射効果を推定することを目的に、スカイラジオメータを含む様々な機材が導入されている。

本研究では、東アジアにおけるエアロゾルによる気候変動への影響の理解を深める目的の一環として、SKYNETサイトの内の千葉大学（千葉）、福江島（長崎）、辺戸岬（沖縄）、宮古島（沖縄）サイトにおける長期間の観測データを用いてエアロゾルの光学的特性とその放射効果を調べた。

2. 研究開発目的

エアロゾルの光学特性とその放射効果に関する研究を実施する本研究グループでは、次の観点から研究を行う。

（1）地上観測によるエアロゾルの光学パラメータの推定

スカイラジオメータ及び関連機材を用いた連続観測をSKYNETで実施してきた。こうした地上観測により、カラム平均での波長別のエアロゾルの光学的厚さ、単一散乱アルベド(SSA)等の光学パラメータを推定し、必要に応じて他の研究グループにデータを提供し、他グループで求められるエアロゾルパラメータとの整合性を検討する。これらを達成するための、基礎データの蓄積・整備、解析手法の開発、結果の公開などを行う。

（2）エアロゾルによる放射影響評価

スカイラジオメータによるエアロゾルパラメータを用いて、エアロゾルによる放射影響の定量的評価を行う。全波長及び波長別の放射測定を同時に行い、放射効果を検証する。放射フラックスを独立して計測することにより、（1）による結果との整合性を検討する。

3. 研究開発方法

（1）地上観測によるエアロゾルの光学パラメータの推定と長期データの解析

スカイラジオメータは、天空の輝度分布を計測し、その分布の特徴からエアロゾルの性質を推定するものであり、NASAのAERONETで運用しているサンホトメータと類似のものである。観測された天空輝度分布データを解析するには、「Skyrad.pack」³⁾を使用する。「Skyrad.pack」は、計測された天空輝度分布を散乱角度分布（散乱関数又は位相関数）にし、これから逆問題を解くことで、カラム平均エアロゾルの複素屈折率と光学的に等価な粒径分布を推定する数値計算プログラムパッケージである。現在まで様々な修正・改良が加えられ、雲除去プログラムもその一つで

ある。また、前方散乱を用いた装置常数の推定プログラムも同一パッケージに組み込まれており、装置異常を早期に検出することが出来る。

本研究では、2013年6月までにSKYNETに蓄積された千葉、福江島、辺戸岬、宮古島サイトのデータを、Skyrad.pack (version 4.2) を用いて解析を行った。

(2) エアロゾルによる放射影響の見積

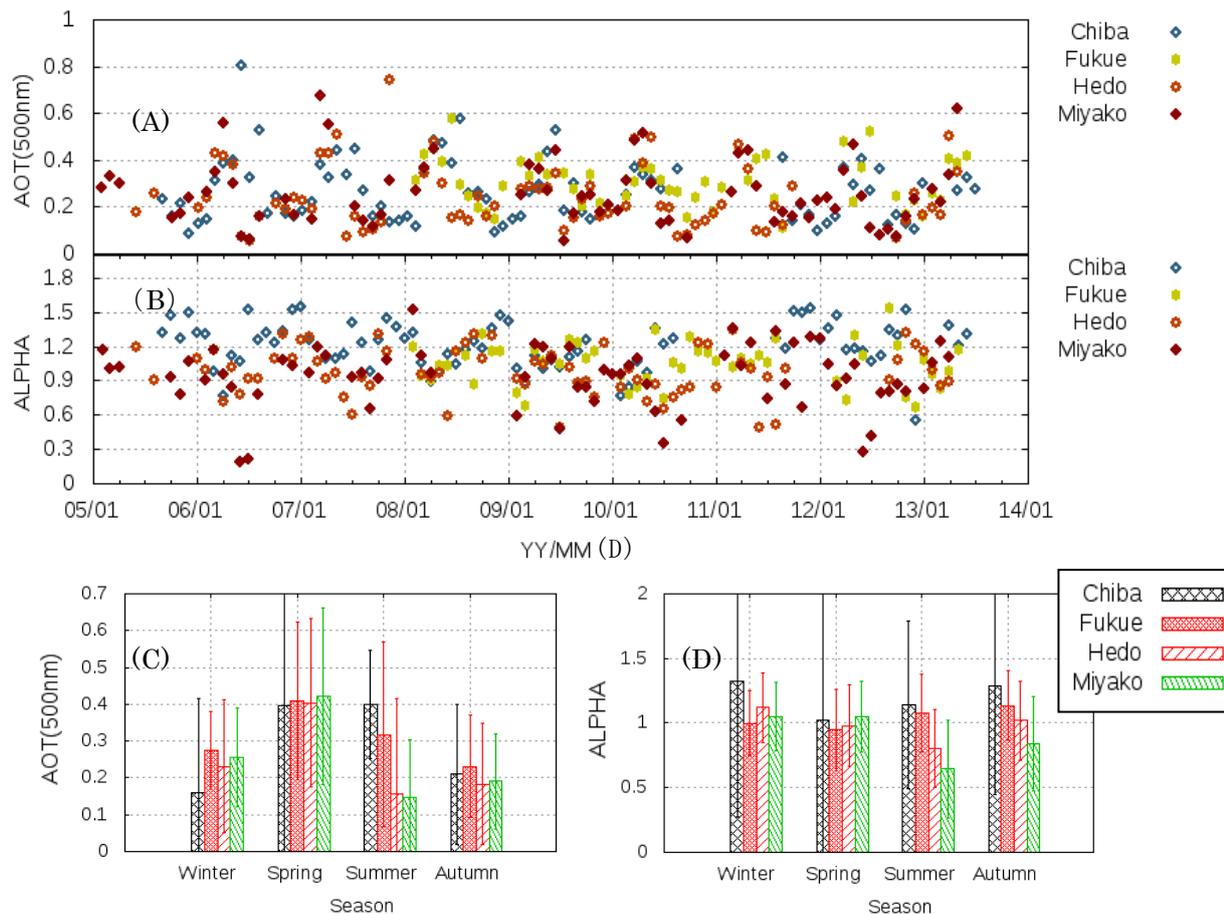
上記エアロゾルの連続観測の結果をもとに、千葉、福江島、辺戸岬、宮古島サイトにおける月平均と季節平均の放射効果を推定する。観測のエアロゾルの光学的パラメータと放射伝達モデル⁴⁾を用いて、大気の上端(TOA)と下端(Surface)での放射力を推定した。大気の吸収力(ATM)は、TOAとSurfaceにおける放射力の差である。これにはスカイラジオメータによる推定値の日平均値を使った。また、地面反射率(全波長一定)及びオゾン量をそれぞれ0.1及び300DUに固定し、中緯度夏大気モデル⁵⁾のパラメータを使い放射伝達の計算を行った。

4. 結果及び考察

(1) 千葉、福江島、辺戸岬及び宮古島サイトにおけるエアロゾルパラメータの変動傾向

SKYNET各サイトのデータは、千葉大学のデータサーバーに転送され、Skyrad.packによる標準解析の後、光学的パラメータのデータを公開されている(<http://atmos.cr.chiba-u.ac.jp>)。公開データの信頼度向上のため、雲除去アルゴリズム⁶⁾を利用している。本報告書では、2013年6月までに蓄積された千葉、福江島、辺戸岬、宮古島サイトのデジタルデータを月別と季節別にまとめて、各地域におけるエアロゾルの特徴とこれらの放射効果を述べる。

a エアロゾルの光学的厚さ (AOT) とオングストローム指数 (ALPHA)



図(5)-1 千葉、福江島、辺戸岬及び宮古島における、AOT(500nm)とALPHAの月別と季節別変動

図(5)-1(A)及び(B)に、各サイトにおけるAOT(500nm)とALPHAの月別と季節別変動をそれぞれ示す。それぞれのサイトによって観測開始時期が異なっており、また機材の不具合や検定等で比較的長期の欠測もあることから、後述の平均におけるサンプル数には違いがある。ALPHAは、エアロゾルの粒径分布を示す指標であり、ここではスカイラジオメータによる観測波長の内940nmを除く、340nmから1020nmの7波長の値から求めたものである。

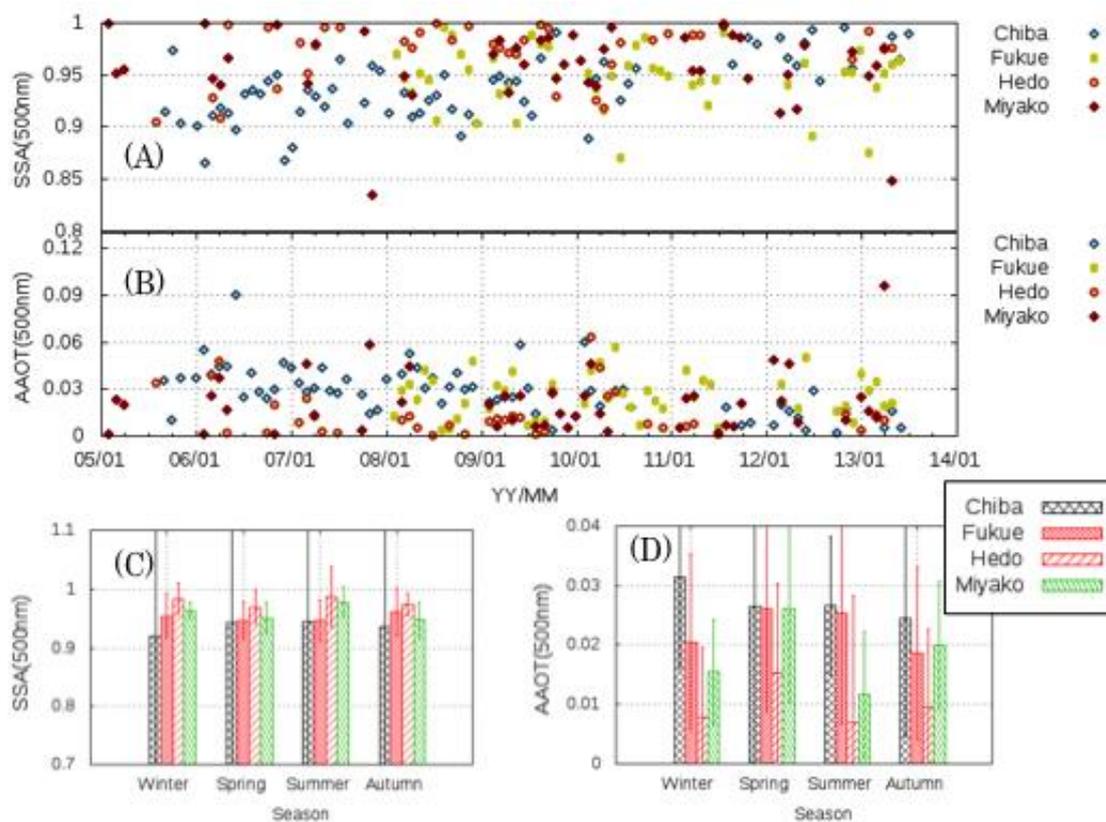
図(5)-1(A)及び(B)を見ると、月別のAOT(500nm)とALPHAの変動に一定の相関があるように見える。これは、季節による風系を主体とする気候要素の違いが異なるエアロゾルの特徴を持つことを示すものである。こうした観点から季節別にまとめたものが、図(5)-1(C) (AOT(500nm)) 及び(D) (ALPHA) である。AOT(500nm)は、冬と秋に小さくなり、春と夏にやや高くなっている。春季の高濃度は、移動性高気圧による晴天とそれに伴う大陸起源の土壌性粒子が想定されるが、ALPHAの相対的な小ささがこのことを支持している。また夏季の高濃度は、一般に太平洋高気圧に覆われて南風の卓越する時季であり、海塩起源や高湿度に伴う粒子成長によるものが中心と予想されている。これをAOTとALPHAの相関で見ると、千葉と辺戸岬、宮古島で対照的な傾向が見える。千葉地域では汚染源の近くでの高湿度化による小粒子の増加が予想され、一方、辺戸岬や宮古島のものは、AOTは小さくALPHAも比較的小さくなって海洋起源の粒子の相対的な増加を示している

と考えられる。福江島が千葉と辺戸岬の中間的な値を示すことが興味深い。冬季に千葉より福江島や辺戸岬のAOTが大きく、夏季には逆の傾向を示すことは、福江島や辺戸岬周辺が汚染源の比較的少ない地域であることを考慮すると、注目に値する。ALPHAで見ると、全般に千葉地域が常に多めに出ており、都市域でのエアロゾル発生源にある千葉での特徴を示していると言える。

福江島、辺戸岬及び宮古島サイトは、前述のように、いずれも局地的な汚染源の比較的少ない場所にあるが、相互にAOTとALPHAを比較するとかなり違いが見られる。特に夏季の違いが顕著で、福江島サイトの方が微小粒子モードの粒子が卓越し、かつ濃度も濃い。これは極めて興味ある結果であり、輸送モデル等による結果を含めて更に検討を要する。一方で、辺戸岬と宮古島は比較的類似の傾向を示している。

b 単一散乱アルベドと吸収の光学的厚さ

千葉、福江島、辺戸岬及び宮古島におけるエアロゾルの単一散乱アルベドSSA(500nm)及び吸収を示す光学的厚さAAOT (AAOT=(1-SSA) x AOT、500nm) の月別と季節別変動を図(5)-2に示す。図(5)-2(A)及び(B)では、全般に辺戸岬におけるエアロゾルの吸収性が弱いという結果を示している。

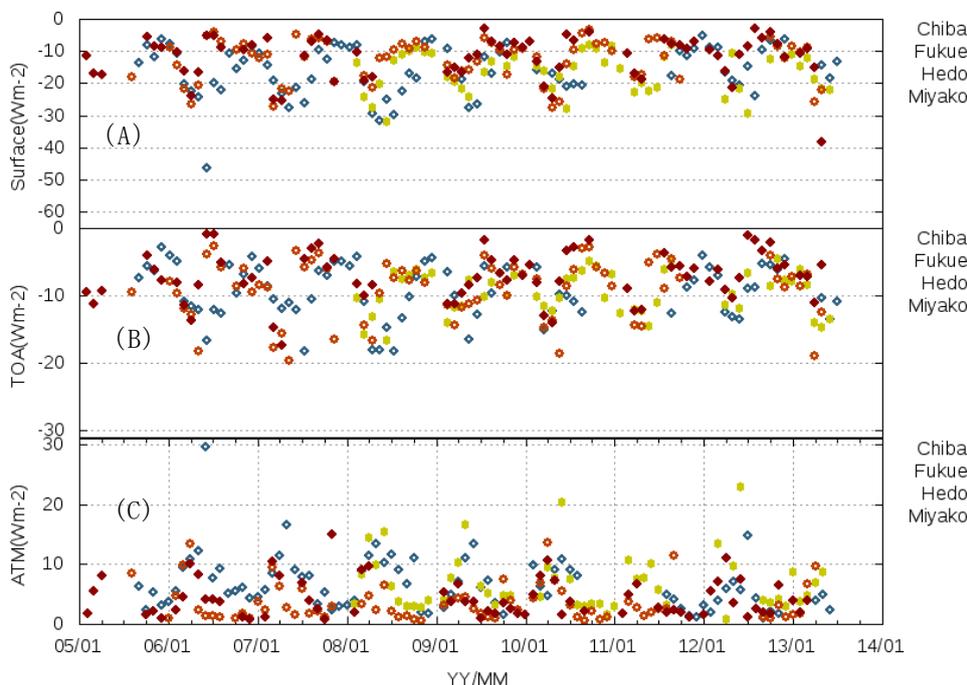


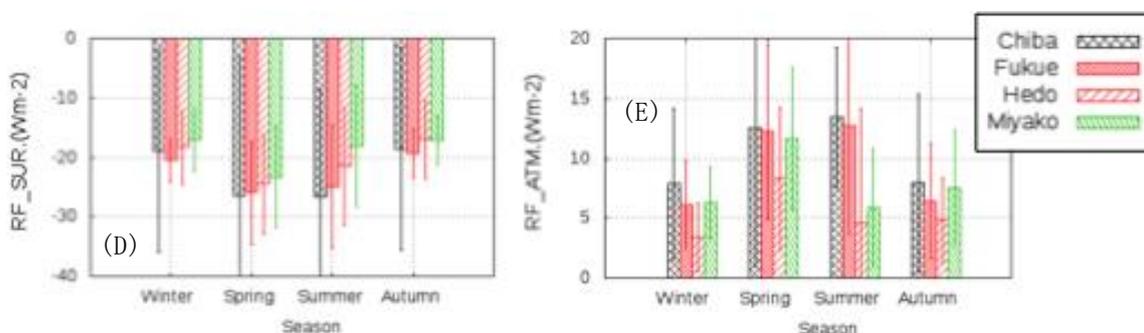
図(5)-2 千葉、福江島、辺戸岬及び宮古島における、SSA(500nm)とAAOT(500nm)の月別と季節別変動

一方、福江島におけるエアロゾルの吸収性は、千葉のような都市サイトの値と比肩できる程度に高いことを示しており、しかも、春季・夏季のAAOT(500nm)は千葉より大きい。これは、図(5)-1の福江島のAOT(500nm)及びALPHAの変化と対応させると一層興味深く、福江島の大気が、冬季・夏季とも大陸の影響を受けている可能性を示唆している。これは、辺戸岬や宮古島のAAOT(500nm)が他のサイトの値よりかなり低いのと対照的である。図(5)-2(C)の季節別のSSA(500nm)を見ると、辺戸岬の季節変動があまり顕著でないのに対して、千葉と福江島の季節変化はやや強い傾向がある。千葉の場合、冬季に低いSSA(吸収性が増える)となる傾向が顕著である。同様に福江島の場合、比較的低いSSA(500nm)が夏季に見られるが、その標準偏差もやや大きく、変動が激しいことを示している。季節ごとのAAOT(500nm)を比較して見ると、春季・夏季のAAOT(500nm)が他の季節に比べて大きいのが、これは元になるAOT(500nm)が大きいことによる。福江島における2008-2011年の春季のデータを用いて行われた研究⁷⁾によると、黄砂の飛来と同時にSSA(500nm)が減る傾向があり、このような現象は春季における比較的大きなAAOT(500nm)に対応するものである。

(2) 千葉、福江島、辺戸岬、宮古島サイトにおけるエアロゾルの放射効果

図(5)-3に放射効果の推定結果を示す。エアロゾルの放射効果は主にAOTとSSAの値で決まる。一般的に言うと、大気上端(TOA)と下端(Surface)における放射効果(エアロゾルのない大気に対する差、ここでは放射強制力と呼ぶ)は、AOTの絶対値に第一義的に依存する。AOTが増えるとTOAとSurfaceにおける強制力が増し、同じAOTの下ではSSAの減少(吸収性の増加)は、大気の吸収が増加する分、Surface及びTOAにおける強制力が下がる。極めて強い吸収の場合には、大気での吸収増加につれてTOAで放射強制力が「正」になる可能性がある。





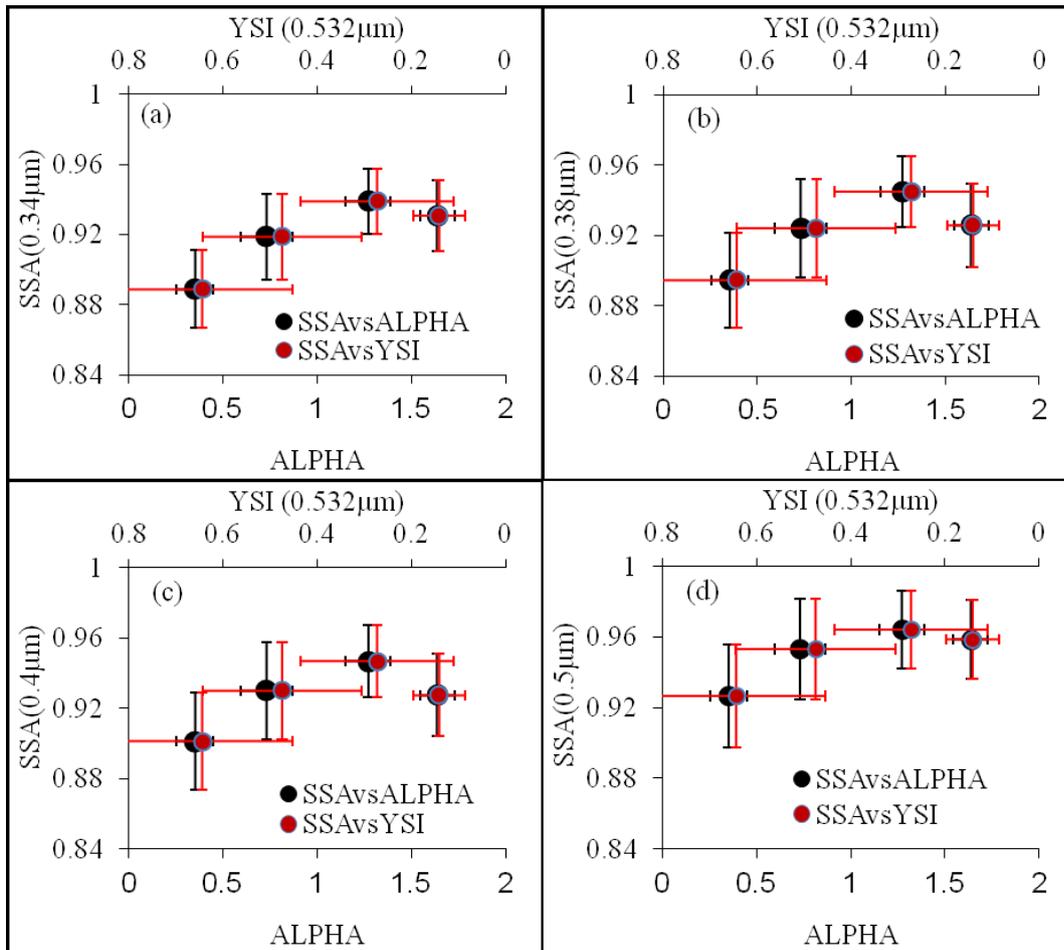
図(5)-3 千葉、福江島、辺戸岬及び宮古島におけるエアロゾル放射効果の月別と季節別変動

図(5)-3(A)と(B)にSurfaceとTOAにおける放射強制力の月ごとの変動を示す。SurfaceとTOAにおける放射強制力の変動のパターンは、AOT(500nm)の変動と良く似ており、前述のようにその絶対値がAOTに強く依存することに依る。光学的に薄い辺戸岬サイトでは、SSA(500nm)も小さいことから大気における吸収量も小さいことが分かる(図(5)-3(C))。図(5)-3(D)及び(E)に、それぞれSurfaceと大気における放射強制効果の季節変動を示す。エアロゾルの光学厚さが高い春季と低い冬季に対応して、地表面におけるエアロゾルによる冷却効果は春に強く、同時に大気の加熱も大きい。反対に、冬季には地表面での冷却効果も大気の加熱効果も低いことがわかる。春季におけるエアロゾルの平均的な冷却効果は冬に比べておよそ2倍になっており、この主な原因は春季の高い光学的厚さによるものである。地面におけるエアロゾルの冷却効果だけでなく、大気での吸収も春季には冬季のおよそ2倍になっている。

(3) 黄砂飛来時に観測された低い単一散乱アルベド

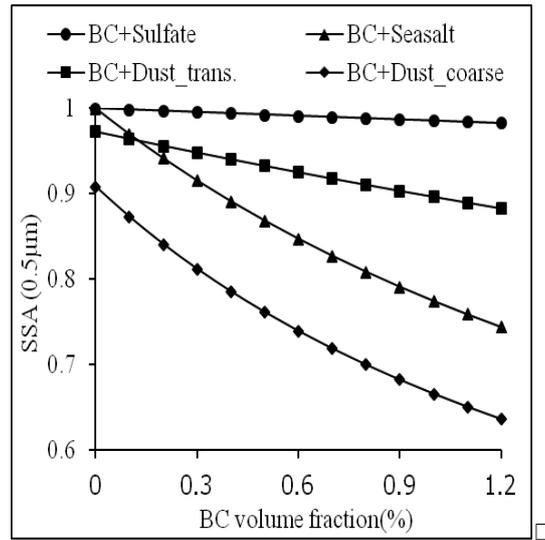
図(5)-4では、2008-2011年の春季に福江島で観測されたエアロゾルのSSAとALPHA、及びSSAとYellow Sand Index(YSI)の関係を示す。YSIは、エアロゾルの全光学的厚さに対する非球形性エアロゾルの光学的厚さの割合である⁸⁾。このYSIは、福江島に併設されているライダーの偏光解消度のデータを用いて求めたものである。図(5)-4では、いずれの波長においても粗大粒子が増えるとSSAが減る傾向を示しており、時期的に土壌性粒子(黄砂粒子)であることが強く示唆される。こうした傾向は、土壌性粒子と同時に飛来する黒色炭素(ブラックカーボン、BC)粒子など吸収性の強いエアロゾルの影響が考えられる。

極めて強い吸収能を持つBCは、ごく微量の存在でSSAの低下を引き起こすことができるが、黄砂のような粗大粒子の相対的な増加によってもSSAの低下がおこる可能性がある。例えば、図(5)-5に示したように、同じBCの体積割合(BC volume fraction)に関わらず、SSAの変化はBCと組み合わせエアロゾルの大きさに強く依存する。同時に、図(5)-6に示したように一定の屈折率と光学的厚さに関わらず、粒径分布の形を変えた(微小粒子モードと粗大粒子モードの割合)だけでもSSAが変わることがわかる。粒径分布がSSAに与える影響は、Khatiri et al. (2014)⁹⁾に詳細を記載した。

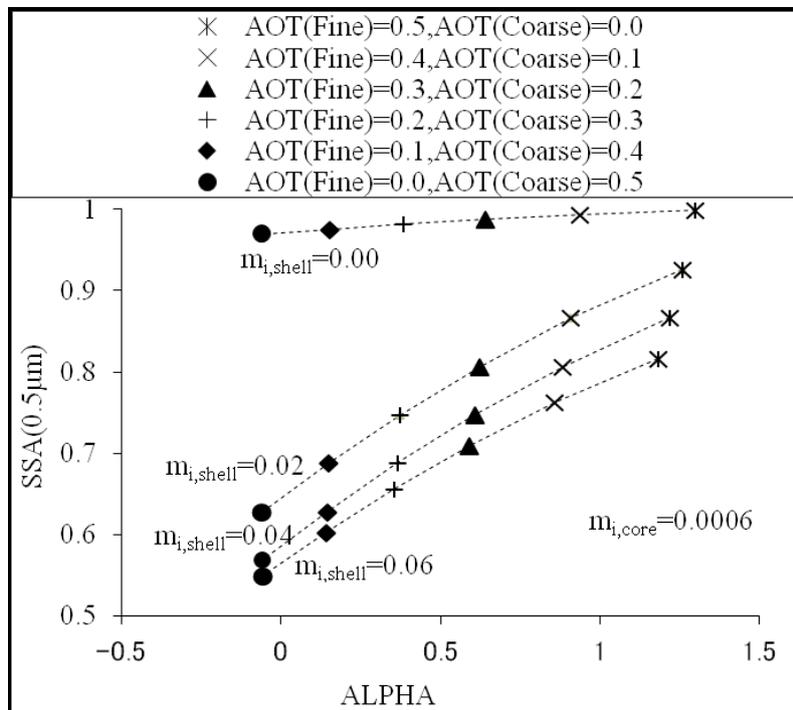


図(5)-4 2008-2011年の春に福江島におけるSSAとALPHAとSSAとYellow Sand Index (YSI)の関係

こうした低いSSAでは、BCのような吸収性の強いエアロゾルが混合していることは明らかであるが、どのような分布形態かによってその効果が大きく異なることがわかる。これは、単にBCを計測するだけではその放射効果を正しく評価できないことを示している。



図(5)-5 外部混合の場合、同じのBCの体積割合(volume fraction)に関わらず、エアロゾルの大きさで変わるSSAの例



図(5)-6 Core-shell 内部混合の場合、一定の屈折率と光学的厚さに関わらず、粒径分布の形を変えた(微小粒子モードと粗大粒子モードの割合)だけで変わるSSAの例

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

光学的に異なる特徴を持つと予想される、SKYNET千葉、福江島、辺戸岬及び宮古島の各サイトにおけるエアロゾルの長期観測データを解析し、研究期間中のエアロゾルの月平均及び季節平均の光学的特徴とそれに基づくエアロゾルの放射強制効果を明らかにすることが出来た。これらは、輸送モデルの検証や衛星データの結果等との比較検討に資することができ、広範なエアロゾル分布に対する研究の基礎資料をとして役立つものである。

放射影響で最も不確定要素の強いエアロゾルの吸収特性は、その粒径分布や混合状態に依存することを数値的に示した。これは、今後の吸収性エアロゾルの計測・評価を行う際に重要な示唆を与えるものである。

(2) 環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>
特に記載すべき事項はない。

<行政が活用することが見込まれる成果>

南西諸島におけるSKYNETサイトでのエアロゾルの定常観測により、エアロゾルの放射影響評価を定量的・継続的に推定することができ、大陸規模の広域輸送の実態把握に貢献することが期待される。

6. 国際共同研究等の状況

SKYNET活動の一環として中国、タイ、モンゴル、韓国、インド、イタリア、ネパール等の大学、研究機関と共同研究を実施している。本研究では直接国際共同研究を実施していない。

7. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<論文（査読あり）>

- 1) Khatri, P., T. Takamura, A. Shimizu, and N. Sugimoto, 2014: Observation of low single scattering albedo of aerosols in the downwind of the East Asian desert and urban areas during the inflow of dust aerosols, *J. Geophys. Res.*, 119, doi:10.1002/2013JD019961.
- 2) Koike, M., N. Moteki, P. Khatri, T. Takamura, N. Takegawa, Y. Kondo, H. Hashioka, H. Matsui, A. Shimizu, and N. Sugimoto, 2014: Case study of absorption aerosol optical depth closure of black carbon over the East China Sea, *J. Geophys. Res.*, 119, doi:10.1002/2013JD020163.
- 3) Khatri, P., T. Takamura, A. Yamazaki, and Y. Kondo, 2012: Reterival of key aerosol optical parameters for spectral direct and diffuse irradiances measured by a horizontal surface detector, *J. Atmos. and Oceanic Techn.*, 29, 683-696.

(2) 口頭発表（学会等）

- 1) Khatri, P., T. Takamura, and T. Y. Nakajima, 2013: Study of aerosol characteristics and aerosol effects on atmospheric radiative balance over the East Asia using observation data of SKYNET network, AGU

- fall meeting, San Francisco, USA, 9-13 December, 2013.
- 2) Khatri, P., T. Takamura, A. Yamazaki, A. Uchiyama, B. Holben, and . Sano, 2013: Comparison of single scattering albedo of aerosols obtained from observation data PREDE sky radiometer and CIMEL sun photometer, 2013 年度日本気象学会秋季大会講演予稿集, 2013 年 11 月 19 日～21 日、仙台国際センター、仙台、590.
 - 3) Khatri, P., T. Takamura, Y. Kondo, A. Shimizu, and A. Sugimoto, 2013: Study of vertical distribution of optical properties and direct radiative forcings of aerosols over the Fukue-jima, Japan using aircraft and surface remote sensing data, *Proc. of international conference on climate change in arid and semi-arid region*, Ulaanbaatar, Mongolia, 84-90.
 - 4) Takamura, T., P. Khatri, B. J. Sohn, N. Tugjsuren, B. Thana, M. Campabelli, and G. Pandithurai, 2013: Aerosol optical properties and aerosol direct effects over typical sites of SKYNET network, *Proc. of international conference on climate change in arid and semi-arid region*, Ulaanbaatar, Mongolia.
 - 5) Khatri, P., T. Takamura, A. Yamazaki, and A. Uchiyama, 2013: Use of 315nm channel of sky radiometer to retrieve columnar ozone amount, International SKYNET workshop 2013, 4-5 July, 2013, Chiba University, Japan.
 - 6) Khatri, P., T. Takamura, Y. Kondo, A. Yamzaki, A. Shimizu, and A. Sugimoto, 2013: A study on vertical profiles of aerosol radiative parameters and aerosol direct effects over the East China Sea region using a combination of aircraft and ground based observation data, International SKYNET workshop 2013, 4-5 July, 2013, Chiba University, Japan.
 - 7) Takamura, T., and P. Khatri, 2013: Aerosols in SKYNET - Operation and development -, International SKYNET workshop 2013, 4-5 July, 2013, Chiba University, Japan.
 - 8) Wang, Z., D. Liu, Y. J. Wang, P. Khatri, T. Takamura, and G. Y. Shi, 2013: Ground-based remote sensing of aerosol seasonal character over Hefei in East China, International SKYNET workshop 2013, 4-5 July, 2013, Chiba University, Japan.
 - 9) Bi, J., J. Huang, T. Takamura, P. Khatri, and SACOL Team, 2013: Investigate the SSA of dust aerosols and their impact on climate in Northwest China, International SKYNET workshop 2013, 4-5 July, 2013, Chiba University, Japan.

(3) 出願特許

特に記載すべき事項はない。

(4) シンポジウム、セミナーの開催（主催のもの）

特に記載すべき事項はない。

(5) マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項はない。

(6) その他

特に記載すべき事項はない。

8. 引用文献

- 1) Khatri, P., T. Takamura, A. Shimizu, and N. Sugimoto, 2010: Spectral dependency of aerosol light-absorption over the East China Sea region. *Sci. Online Lett. Atmos*, 6,1-4.
- 2) Nakajima, T., et al., 2007: Overview of the Atmospheric Brown Cloud East Asian Regional Experiment 2005 and a study of the aerosol direct radiative forcing in east Asia, *J. Geophys. Res.*, 112, D24S91, doi:10.1029/2007JD009009.
- 3) Nakajima, T., G. Tonna, R. Rao, Y. Kaufman, and B. Holben, 1996: Use of sky brightness measurements from ground for remote sensing of particulate polydispersions. *Appl. Opt.*, 35, 2672-2686.
- 4) Ricchiazzi, P., S. Yang, C. Gautier, and D. Sowle, 1998: SBDART: A research and teaching software tool for plane-parallel radiative transfer in the Earth's atmosphere. *Bull. Am. Meteorol. Soc.*, 79, 2101- 2114.
- 5) McClatchey, R.A., R.W. Fenn, J.E.A. Selby, F.E. Volz and J.S. Garing, 1972: Optical properties of the atmosphere (3rd Ed.), *AFCRL Environ. Res. Papers No.*, 411.
- 6) Khatri, P., and Takamura, 2009: An algorithm to screen cloud affected data for sky radiometer data analysis. *J. Meteor. Soc. Japan*, 87, 189-204.
- 7) Khatri, P., T. Takamura, A. Shimizu, and N. Sugimoto, 2014: Observation of low single scattering albedo of aerosols in the downwind of the East Asian desert and urban areas during the inflow of dust aerosols, *J. Geophys. Res.*, 119, doi:10.1002/2013JD019961.
- 8) Takamura, T., N. Sugimoto, A. Shimizu, A. Uchiyama, A. Yamazaki, K. Aoki, T. Nakajima, B. J. Sohn, and H. Takenaka, 2007: Aerosol radiative characteristics at Gosan, Korea, during the Atmospheric Brown Cloud East Asian Regional Experiment 2005, *J. Geophys. Res.*, 112, D22S36, doi:10.1029/2007JD008506.
- 9) Khatri, P., T. Takamura, A. Shimizu, and N. Sugimoto, 2014: Observation of low single scattering albedo of aerosols in the downwind of the East Asian desert and urban areas during the inflow of dust aerosols, *J. Geophys. Res.*, 119(2), doi:10.1002/2013JD019961.

Assessment of the Effects of Reductions of Black Carbon Aerosols as a Measure of Slowing Down Global Warming

Principal Investigator: Yutaka KONDO

Institution: Graduate School of Science, The University of Tokyo

7-3-1 Hongo, Bunkyo-ku, Tokyo 113-0033, JAPAN

Tel: +81-3-5841-4575 / Fax: +81-3-5841-8318

E-mail: kondo@eps.s.u-tokyo.ac.jp

Cooperated by: Meteorological Research Institute, Japan Meteorological Agency,

National Institute for Environmental Studies,

Atmosphere and Ocean Research Institute, The University of Tokyo,

Center for Environmental Remote Sensing, Chiba University

[Abstract]

Key Words: Aerosol, Black carbon, Radiative forcing, General circulation climate model, Prediction of climate change

Black carbon (BC) aerosol strongly absorbs visible solar radiation in the atmosphere and is believed to have substantial positive radiative forcing (one-third of carbon dioxide). The reduction of BC is considered as a potential measure of slowing down the global warming. To estimate the effect of the BC reduction accurately, it is critical to understand microphysical and chemical properties (e.g., size distribution, mixing state, and chemical composition) of BC and the other types of aerosols. In this study, we elucidated these properties by surface and aircraft measurements and three-dimensional modeling.

We made a surface network for long-term BC measurements over East Asia (Hedo, Fukue, and Happo in Japan, and Beijing in China, and Lulin in Taiwan) using high-accuracy BC instruments, COSMOS. This network made it possible to measure BC concentrations from source regions in China to the outflow regions over the western Pacific. Using these measurements, we found seasonal variations and transport processes of BC over the East Asian region. Two aircraft campaigns were also conducted in winter (13 flights) and in summer (15 flights) over the East China Sea, the Yellow Sea, and the western Pacific. In these campaigns, we measured microphysical properties of BC (mass, mixing state, and size distribution), aerosol size distributions and number concentrations, and cloud droplet number concentrations. We studied vertical profiles (0 – 9 km) of these parameters over the East Asian region and elucidated mechanisms of BC and aerosol transport in the boundary layer and the transport from the boundary layer to the free troposphere with removal processes. These data and findings are

important in discussing international strategies for global warming and air pollution in Asia.

We also developed a three-dimensional model that can calculate mixing state, number concentration, and size distribution of aerosols. The model successfully reproduced these aerosol parameters obtained by surface and aircraft measurements. The model includes detailed representations of the formation, transformation, and removal processes of aerosols. The representation of this model was used to reduce the uncertainties in the calculations using climate models. We evaluated the effects of the reduction of the emissions of BC and other anthropogenic species on the climate on the global and Asian scales. Based on improved model predictions, we can provide improved scientific assessment useful for planning effective strategies for BC reduction.