

A-0803 革新的手法によるエアロゾル物理化学特性の解明と気候変動予測の高精度化に関する研究

(1) エアロゾルの混合状況・光学特性の測定に関する研究

東京大学先端科学技術研究センター

近藤 豊・竹川 暢之

平成20～22年度累計予算額 58,556千円（うち、平成22年度予算額 20,583千円）

上記の予算額は、間接経費を含む

[要旨] アジア大陸から放出されるブラックカーボン（BC）の粒径分布、被覆状態、質量濃度を初めて長崎県福江島観測所で春季、高精度で測定した。この測定データの解析から、BCの被覆による大きな放射効果が示された。また、BCの光吸収係数を計算するために通常用いられている shell/coreモデルの妥当性を室内実験で初めて評価した。一方、BCの質量濃度を長期安定に測定できるCOSMOSシステムを開発した。これを沖縄辺戸ステーション、長崎県福江島観測所、長野県八方観測所の3地点で配備することによりアジア大陸下流の大気境界層中でのBCの輸送過程の理解が飛躍的に進展した。また地上観測で得られるBCのデータを用いてアジア大陸で発生するBC量を推定した。

COSMOSシステムを用いた2008年の春の航空機観測では、華中から300 km程度の広がりをもった高濃度エアロゾルが2 kmの高度に東シナ海上に輸送されることが初めて見出された。この研究を基礎に2009年春に0-8 kmの高度領域で、東シナ海・黄海で10 nmから10 μ mのエアロゾル粒径分布、BC、エアロゾル化学組成、一酸化炭素の高精度観測を実施した。この高度領域での東アジアでのエアロゾル高精度観測は初めてである。この観測と3次元モデル計算との比較により、エアロゾルが発生源から自由対流圏に輸送され、さらには全地球に輸送される過程の理解を深めた。

大気大循環モデルのエアロゾル放射効果スキームを改良するために必要なエアロゾルの化学組成、放射観測を沖縄辺戸ステーションおよび長崎県福江島観測所で行った。また、並行して放射効果を推定する放射伝達計算スキームの改良も行った。この研究は、地球規模気候変動予測の向上に大きく貢献する。ま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。

[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

大気中のエアロゾルは、CO₂による温室効果に匹敵する冷却効果を持ち、現時点で温暖化を一部マスクしていると推定されている[IPCC第4次報告書]。しかしながら、現状の気候モデルにおけるエアロゾルの取り扱いは非常に簡略化されており、この推定には大きな不確実性がある。エアロゾルによる太陽可視光線の散乱・吸収効果（直接効果）の推定においては、気候モデル間の違いが非常に大きく、IPCC第5次報告書に向けての改善が急務である。東アジア域は、エアロゾル量が他地域に比べ極めて多く、直接効果がエアロゾルの雲生成効果（間接効果）を上回ると推定されている。また、光吸収性のあるBCによる大気加熱は、対流活動を抑制するため、雲・降水過程への影響があると推定されているが、未だ検証されていない。アジアにおけるエアロゾルの放

射効果の正確な見積もりとそれに基づく信頼性のある気候変動予測は、この地域の計画的な社会・経済の発展にとって重要となる。

放射強制力により温暖化が駆動されるため、不確定性の大きいエアロゾルの放射強制力の推定の高精度化が地球規模・大陸規模の気候変動の解明と将来予測にとって急務である。エアロゾルの放射強制力の高精度化にはエアロゾルの物理化学特性の解明と、それに基づくエアロゾルの物理化学・光学モデルの構築が必要である。本研究では、東京大学のグループが世界に先駆けて確立した、レーザー誘起白熱法によるBC単一粒子測定方法を用いた。この方法により光吸収性のBCと非吸収性粒子と区別し、それぞれの粒径分布を測定できる。更に、BCを被覆している水溶性成分の厚さも測定可能である。この革新的な測定技術を、高精度のエアロゾル化学組成・大気放射観測および世界最高水準の大気大循環モデルと組み合わせることにより、エアロゾルの直接放射強制力の推定の信頼性を画期的に高めることができる。

2. 研究目的

エアロゾルの放射強制力は、エアロゾルの光学的厚さ(Aerosol Optical Thickness: AOT)と単一散乱アルベド(Single Scattering Albedo: SSA)の2つのパラメータを求めることにより、良い精度で評価できる。従って、本研究では、まず、これらのパラメータの決定精度の向上に焦点を当てる。単一散乱アルベドは光吸収性のBCの粒径分布とそれを被覆している水溶性成分の厚さ(混合状態)により大きく変わる。また、BC以外の非吸収性エアロゾル(硫酸塩や有機化合物)もAOTやSSAに寄与する。AOTとSSAの決定には、これらの物理量と非吸収性エアロゾルの粒径分布・エアロゾル化学組成の同時情報が必要になる。本研究では、大気浮遊状態で個々の粒子の光学特性・化学組成を同時測定することにより、これらの物理量を正確に定量する。またエアロゾルの広域分布は広域のAOTとSSAに大きく影響する。エアロゾルの分布を決めるエアロゾル生成・輸送過程を定量的に理解するためにエアロゾル化学組成(無機・有機・BC)を東アジアで高精度で測定する。

AOTとSSAを放射リモート観測から得られる値と比較し、エアロゾルの光学モデルを検証する。またエアロゾルの物理化学特性(BCの粒径分布・混合状態、非吸収性エアロゾル(硫酸塩や有機化合物)化学組成の粒径分布など)と光学特性を定量的に結び付ける気候モデル用の放射モジュールを根本的に改良する。

これらの理解に基づき、エアロゾルの物理化学特性を入力パラメータとしてAOTとSSAを効率的に計算するスキームを大幅に改良し、気候モデル用のエアロゾル放射モジュールを改造する。また、モデルの濃度再現結果を評価する。

3. 研究方法

(1) エアロゾルの混合状況・光学特性の測定の研究

エアロゾルの粒径分布・混合状態の測定を長崎県福江島で春季に実施しこのデータを詳細に解析した¹⁾。この観測ではレーザー誘起白熱法(Laser Induced Incandescence, LII)に基づくSP2(single particle soot photometer)測定器を用いた。BCの粒径分布と各粒径毎の被覆量と共にBCを含まない光散乱性エアロゾルの粒径分布も測定された。また同時に国立環境研究所のエアロゾル質量分析計・レーザーレーダー観測と千葉大学の放射観測が行われた。

(2) エアロゾルの混合状態とマクロな光学特性の詳細比較

1) 福江島でのBCの光吸収の推定に用いた光学モデルの検証を室内実験で行った。混合状態の変化によるエアロゾル光学特性の変化を測定することを試みた。グラファイト粒子をオレイン酸あるいはグリセリンで被覆し、光吸収量の変化を実験室で測定した。空中に浮遊した状態でのBCの光吸収の測定には、光音響法を用いた。また、グラファイト粒子の被覆の厚さの測定には福江島での観測で使用したSP2測定器を用いた²⁾。

2) SP2から測定されるBCの粒径分布と各粒径毎の被覆量をもとに、BCの光吸収係数、消散係数をMie理論により計算できることを福江島での観測データの解析で示した。しかし、大気中のBCはフラクタル構造をもっており、球形を仮定したShell/coreモデルによる計算の精度は自明ではない。東京において大気中BCの光吸収係数、消散係数の測定を、それぞれ光音響法、cavity ringdown測定器を用いて行った。SP2との同時測定を約一週間行い、SP2から求められるこれらの物理量と、直接測定の比較を行える十分なデータを取得した。

(3) 光吸収を利用したBC測定法の開発

SP2測定器はBCの粒径分布と各粒径毎の被覆量を測定できる点で非常に優れている。しかし長期間の信頼性のある運用は、システムの複雑さから考え極めて困難である。フィルターにBCを捕集し、フィルターの光透過率の変化から光吸収係数を求め、それからBCの質量濃度を求める方法は以前から用いられてきた。すなわち光吸収係数 b_{abs} とBCの質量濃度 M_{BC} を同時に測定し、質量吸収断面積 C_{abc} を $C_{\text{abs}} = b_{\text{abs}}/M_{\text{BC}}$ により求める。 C_{abs} が決めれば b_{abs} の測定から M_{BC} を求めることができる。しかし、 C_{abs} の正確な決定は極めて困難であった。揮発性成分の被覆や光散乱性エアロゾルの混在が質 C_{abs} の変動に大きく寄与していると考えられる。ここでエアロゾル取り込み用の配管の一部を400°Cに加熱し、揮発性成分を除去し、この干渉を最小限にすることができた³⁾。

(4) BCの地上・航空機観測とモデル計算を用いたデータ解析

COSMOS連続測定器を辺戸観測ステーションに設置し、1分の高時間分解能のBC濃度の連続したデータを取得した。2009年春に0-8 kmの高度領域で、東シナ海・黄海で10 nmから10 μm のエアロゾル粒径分布、BC、エアロゾル化学組成、一酸化炭素の高精度観測を実施した。この観測には、本研究で整備・開発した測定器が用いられた。鹿児島空港を基点にして、韓国ソウルに至る航路上の黄海領域を初めて詳細に観測した。さらに3次元の化学輸送モデルによるエアロゾルの計算も実施した。

(5) エアロゾルの物理化学過程と混合状態を詳細に扱うモジュールの開発

第一段階として、エアロゾルの混合状態と被覆過程を詳細に扱うボックスモデルを開発した。具体的には、エアロゾルの各成分量を、粒径と粒子中のBCの質量比率に対して与える新しいエアロゾル表現をエアロゾルモジュールMADRID (Model of Aerosol Dynamics, Reaction, Ionization, and Dissolution) に導入することで、BCの混合状態を陽に表現した新しいボックスモデルMADRID-BCを開発した⁴⁾。また、様々な粒径のBC粒子や、BCを含まない粒子（主に散乱性エアロゾ

ル)が共存した状態での凝縮成分の分配を正確に計算する質量輸送の計算手法を本モデルに導入した。過去に行われた航空機観測のデータを用いて、開発したモデルの検証を行った。また、開発したモデルに、エアロゾル光学特性及び雲凝結核特性を精度良く計算する手法(エアロゾルをコア・シェル型として扱うミー理論、ケーラー理論)を導入することで、混合状態を詳細に表現できたモデル結果に基づき、エアロゾル光学特性及び雲凝結核特性の推定を可能とした。

4. 結果・考察

(1) エアロゾルの混合状況・光学特性の測定の研究

エアロゾルの粒径分布・混合状態・光学特性の地上観測

BCを含む、全ての種類のエアロゾルの粒径分布・混合状態の測定を長崎県福江島で春季に実施しこのデータを詳細に解析した。中国・韓国などアジア大陸から輸送される空気塊中ではBCの濃度は最大になること、また質量粒径分布の中央直径値が200-220 nmであることが示された(図1)。日本起源、自由対流圏性、海洋性空気塊の濃度は発生源の大きさや、そこに輸送されるまでの拡散や沈着などにより、濃度は半分以下となっていた。しかし、BCの粒径分布に大きな違いが無いというのが大きな特徴であり、重要な点の1つである。

アジア大陸起源の空気塊は前駆気体を多く含むため、アジア大陸上および輸送途中でBCを被覆する揮発性エアロゾルがより多く生成されると考えられる。主要な揮発性エアロゾルの化学成分は有機成分と硫酸塩であることがエアロゾル質量分析計の測定から明確になった。揮発性エアロゾル成分からなる被覆部を含めた全エアロゾル直径(D_p)とBCの直径(D_{BC})の比率 D_p/D_{BC} が平均して約1.6にも達していた(図2)。この観測でアジア大陸起源のBCは厚く被覆されていたことが初めて示された。これに対し、日本を起源とする空気塊中では D_p/D_{BC} は平均して約1.3で被覆は相対的に薄い。これは日本では中国に比べ前駆気体の放出が少ないことと対応している。

この観測されたエアロゾルの粒径分布・混合状態から光学特性をMie理論に基づくshell/coreモデルにより計算した。具体的に計算した物理量は光吸収係数・光散乱係数・単一散乱アルベドである²⁾。この計算は同時に測定された相対湿度を用いてエアロゾルの吸湿特性を考慮した場合としない場合の両方で行った。BCの被覆を考慮した場合、光吸収係数は50-60%も増大すると計算された。また単一散乱アルベドはアジア大陸起源の空気塊中では0.97、日本起源空気塊・自由対流圏性空気塊では0.95と比較的低い。単一散乱アルベドは被覆を考慮した場合、0.01-0.02程度低下すると推定された。

アジア大陸起源の空気塊中では光吸収係数は清浄な海洋性空気塊に比べ2-3倍大きく、ここではBCによる大気加熱が重要と考えられる。BCの重要な気候影響が示唆される。

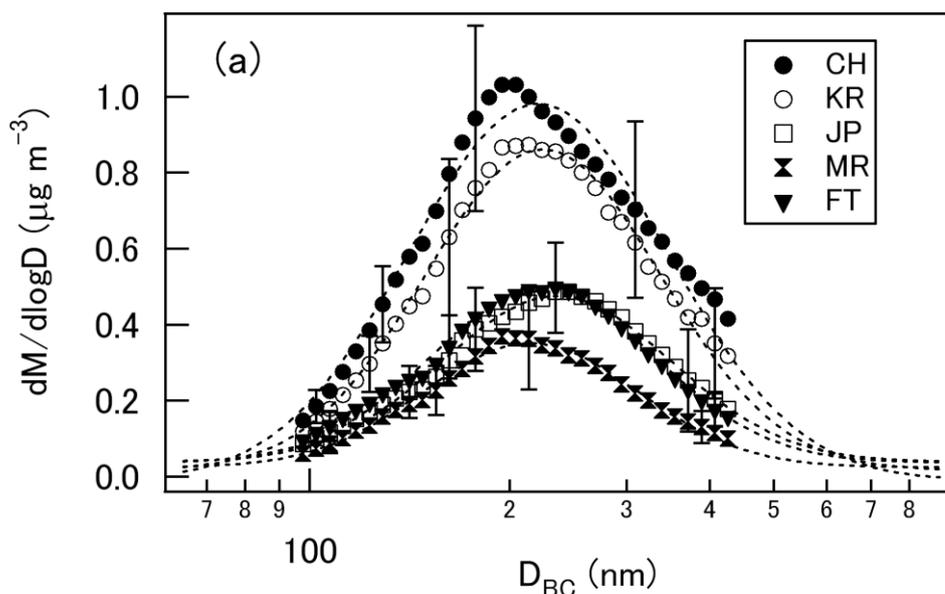


図1 BCの質量粒径分布

濃度の大きい順にCH（中国），KR（韓国），JP（日本），FT（自由対流圏），MR（海洋）起源の空気

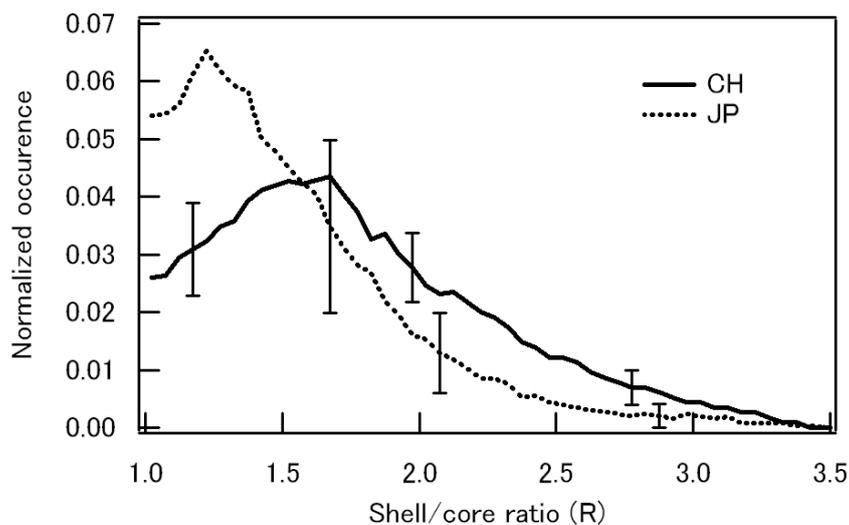


図2 BCの被覆の厚さ

$R = D_p/D_{BC}$ 比、CH（中国），JP（日本）起源の空気

（2）エアロゾルの混合状態とマクロな光学特性の詳細比較

1) グラファイト粒子をオレイン酸あるいはグリセリンで被覆し、光吸収量の変化を実験室で測定した。ここでグラファイトを使用した理由は、被覆により、グラファイトの形状変化が起きないため、被覆による効果のみを抽出できるためである。空中に浮遊した状態でのブラックカーボンの光吸収の測定には、光音響法を用いた。また、グラファイト粒子の被覆の厚さの測定には福江島の観測で使用したSP2測定器を用いた。図3に D_p/D_{BC} 比の関数としてのグラファイトエアロゾルの光吸収の増幅の大きさを示した。 D_p/D_{BC} が1.2程度の被覆により光吸収は30%増大し、 D_p/D_{BC} 比が

2まで厚く被覆されると光吸収は2倍ほどに増大することが初めて測定された。この増幅の様子は、エアロゾル光学モデルで比較的良く再現された。この計算はエアロゾルが球形であり被覆の厚さが一様であることを仮定したshell/coreモデルを用いた。非球形のグラファイトでも被覆すると全体が球形に近くなる。この為shell/coreモデルでも吸収がよく表現できると考えられる。この比較はこのモデルの計算の精度を推定するよい基準となる。

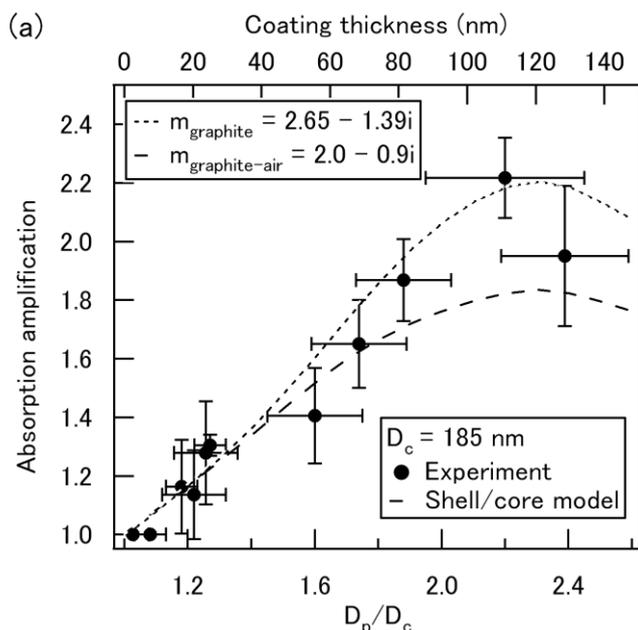


図3 シェル/コア直径比の関数としてのグラファイトエアロゾルの光吸収の増幅の大きさ

2) SP2から測定されるBCの粒径分布と各粒径毎の被覆量をもとに、BCの光吸収係数、消散係数をMie理論により計算することができることを福江島の観測データの解析で示した。しかし、大気中のBCはフラクタル構造をもっており、球形を仮定したShell/coreモデルによる計算法を大気中BCに適用した場合の精度は自明ではない。この点を詳細に解析するために、東京において大気中BCの光吸収係数、消散係数の測定を、それぞれ光音響法、cavity ringdown測定器を用いて行った。SP2との同時測定を約一週間行い、SP2から求められるこれらの物理量と、直接測定の比較を行える十分なデータを取得した。

(3) 光吸収を利用したBC測定法の開発

光吸収係数 b_{abs} とBCの質量濃度 M_{BC} を同時に測定し、質量吸収断面積 C_{abc} を $C_{\text{abs}} = b_{\text{abs}}/M_{\text{BC}}$ により求めた。揮発性成分の被覆や光散乱性エアロゾルの混在が C_{abs} の変動に大きく寄与していると考えられる。ここでエアロゾル取り込み用の配管の一部を400°Cに加熱し、揮発性成分を除去し、この干渉を最小限にした。

東京、埼玉、済州島（韓国）、広州、北京（中国）、バンコク（タイ）で C_{abs} を求めた。インレットの加熱の結果、 $C_{\text{abs}} = 10.5 \pm 0.7 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$ と10%の範囲で安定することが判明した。

その一方、求めた $C_{\text{abs}} = 10.5 \pm 0.7 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$ という値は、Mie理論から計算される（大気中に浮遊する）BCの C_{abs} の値にくらべ8割近くも大きい。この違いの原因として考えられるのは測定された

M_{BC} を過小評価しているか或いは b_{abs} を過大評価しているかのいずれかである。 M_{BC} の測定は熱光学法に基づく分析法を用いており、この方法をSP2と比較すると15%程度で一致することが分かった。つまり、 M_{BC} の測定誤差では、測定された C_{abs} とMie理論の不一致は説明できない。従って、この原因は b_{abs} の誤差に起因すると考えられる。 b_{abs} を求める際、フィルター上に捕集されたBCはファイバーの奥に入り込むため、光吸収を増幅する。この増幅効果は通常⁵⁾の実験室の測定で求められる補正を加えて補償している。この補正が正しいか調べるための実験を行った。

ここでは屈折率の良く分かっているnigrosin粒子を用いて、各直径での粒子濃度と b_{abs} の値から C_{abs} を求めた(図4)。この結果BCが主に分布している200 nm付近では⁵⁾の補正を用いた C_{abs} はMie理論から推定される値に対し8割近く過大評価していることが分かる。⁵⁾の補正はFine modeのnigrosin粒子に対して導出されたもので、ここで測定したようにフィルター上のBCの増幅効果の直径依存性を考慮していない。小さい粒子ほど C_{abs} が大きくなる原因は、粒子直径の減少に伴い、nigrosin粒子がフィルターファイバーの深部で補足されより多くの散乱効果を受けて吸収が増大することによると考えられる。この依存性により、 C_{abs} が過大評価されていたと理解できる。⁵⁾の補正に誤差があったとしても、実際問題としては M_{BC} を b_{abs} から求めるために b_{abs} の導出に⁵⁾の補正した上で、ここで求めた $C_{abs} = 10.5 \pm 0.7 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$ の値を用いれば M_{BC} は正しく求められる。

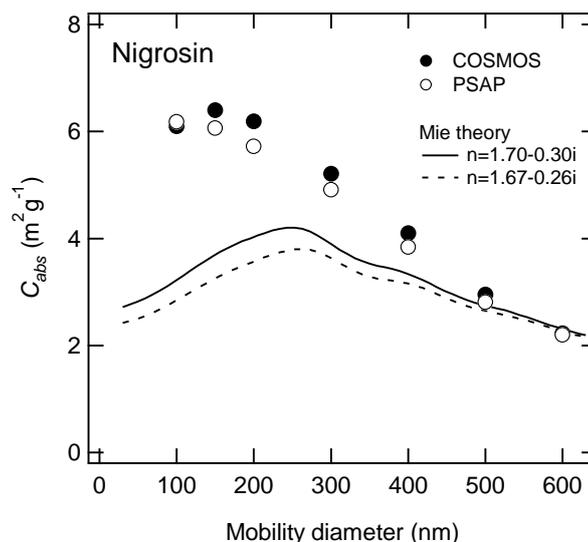


図4 直径の関数として測定されたnigrosinの C_{abs}

ここでは更に、BCが被覆されることによる光吸収の増幅作用が、フィルター捕集されたBCでも測定できるか調べた。そのために、Aqua-Black 162というタイプのBCをオレイン酸で被覆した。図5に D_p/D_{BC} 比の関数としてのAqua-Blackエアロゾルの光吸収の増幅の大きさを示した。光吸収の増幅が全く見られないばかりでなく、むしろ光吸収がわずかに減少する。これは、図3に示した大気中に浮遊する被覆されたBCが光吸収を増幅することと大きな違いとなっている。この増幅効果を打ち消す作用があるはずである。BCが被覆されると粒子全体の直径が大きくなり、フィルターファイバーの深部まで到達しなくなり、BCの光吸収効果が弱まってしまうことが考えられる理由である。これは図4の結果と、定性的に整合性がある。さらに、³⁾によれば外部混合した有機エアロゾルは、フィルター捕集されたBCの光吸収を増幅させる。このことと以上の実験結果は、フィ

ルター捕集されたBCの光吸収係数は大気中のBCの光吸収係数を代表していないことを意味する。この研究で開発した加熱インレットは正確なBC濃度測定を行うために必要不可欠と考えられる。

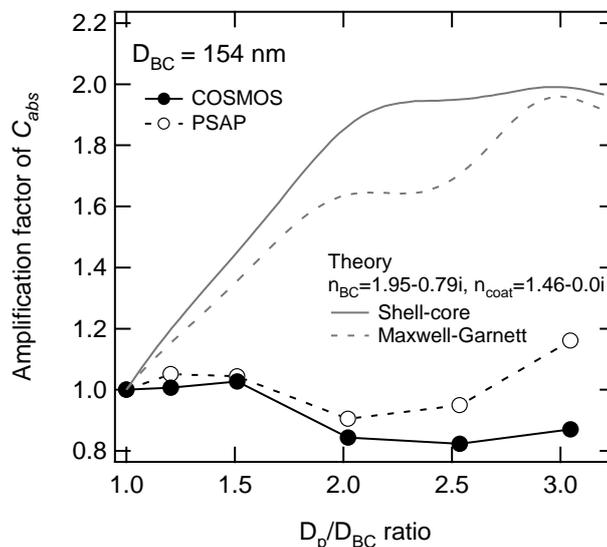


図5 D_p/D_{BC} 比の関数としてのAqua-Blackエアロゾルの光吸収の増幅

(4) BCの地上・航空機観測とモデル計算を用いたデータ解析

2008年2月から2009年5月に辺戸岬で観測されたBC濃度のデータと、領域三次元化学輸送モデルによる計算結果を組み合わせることで、BC排出量インベントリの評価を行った。評価に使用したBC排出量インベントリは、2006年ベースのアジア域の年平均排出源データ⁶⁾水平解像度は(0.5度)である。また、BCのoutflow領域への輸送過程にも着目し、観測されたBC濃度に対する領域別の寄与や湿性沈着の寄与を理解することも目的とした。

1) 地上観測

COSMOS (Continuous Soot Monitoring System)は、ブラックカーボンの光吸収を利用した自動連続測定装置であり、高精度かつ安定してBCを測定できるという利点がある。沖縄本島の最北端に位置する辺戸岬に、国立環境研究所の大気・エアロゾル観測ステーションが設置され、長期間の地上観測が継続して行われている。辺戸岬は海に囲まれたリモートサイトであり、周辺の人為的起源エアロゾルの影響が少なく、中国大陸から輸送されてくるエアロゾルの観測に適している。辺戸岬の位置を図6に示す。

本研究では、辺戸ステーションに設置されている測定装置COSMOSによって測定されたBC質量濃度観測データを用いた。一酸化炭素(CO)については同ステーションにおいて首都大学東京が測定したデータを用いた。いずれも2008年2月1日から2009年5月31日までの1年6か月間のデータであり、1分毎の観測値を1時間平均値に解析したのちに、モデル計算値との比較に使用している。



図6 辺戸岬の位置（国立環境研究所webサイトより）

2) A-FORCE航空機観測

2009年3から4月にかけて東シナ海・黄海上空でA-FORCE (Aerosol Radiative Forcing in East Asia) 航空機観測が実施された。A-FORCE航空機観測では、SP2 (single-particle soot photometer) を用いて、BC濃度の測定が行われた。SP2の詳細については⁷⁾ に述べられている。

航空機観測では、雲粒に取りこまれたBCの測定精度に不確定性が含まれ、雲中での観測でBCが測定されなかった場合でも、実際には雲粒に取り込まれた状態で大気中に存在していた可能性が考えられる。そこで本研究では、同時にCAPS (Cloud Aerosol and Precipitation Spectrometer) で計測された雲水量の観測データを用いて、航空機が雲外に位置するときの観測データのみを使用した。

本研究では、雲外で得られた中国outflow域での三次元的なBCの観測データを用い、領域三次元化学輸送モデルの高度方向の検証を行った。モデルとの比較の際に、SP2が測定した1秒値毎の観測値を1分平均にしている。

3) モデル計算

本研究では、気象場と化学場を別個に計算するオフラインモデルを使用した。オフラインモデルでは、化学場の計算結果が気象場に影響しない。そのため、化学場の計算でのプロセスや入力データの差によって生じる違いを見積もることができるという利点がある。領域三次元気象モデルとしてWRF (Weather Research and Forecasting model)、領域三次元化学輸送モデルとしてCMAQ (Community Multiscale Air Quality Modeling System)を使用した。本研究では、総館規模の気象場の変動に伴う化学場の変動をとらえるために、アジア全域をカバーする計算領域を設定した。気象モデルWRFにおいては水平間隔81km、120×72の水平格子、鉛直21層を設定した。化学輸送モデルCMAQにおいては水平間隔は81km、119×71の水平格子、鉛直21層とした。図7に、CMAQの計算領域のグリッドを示す。

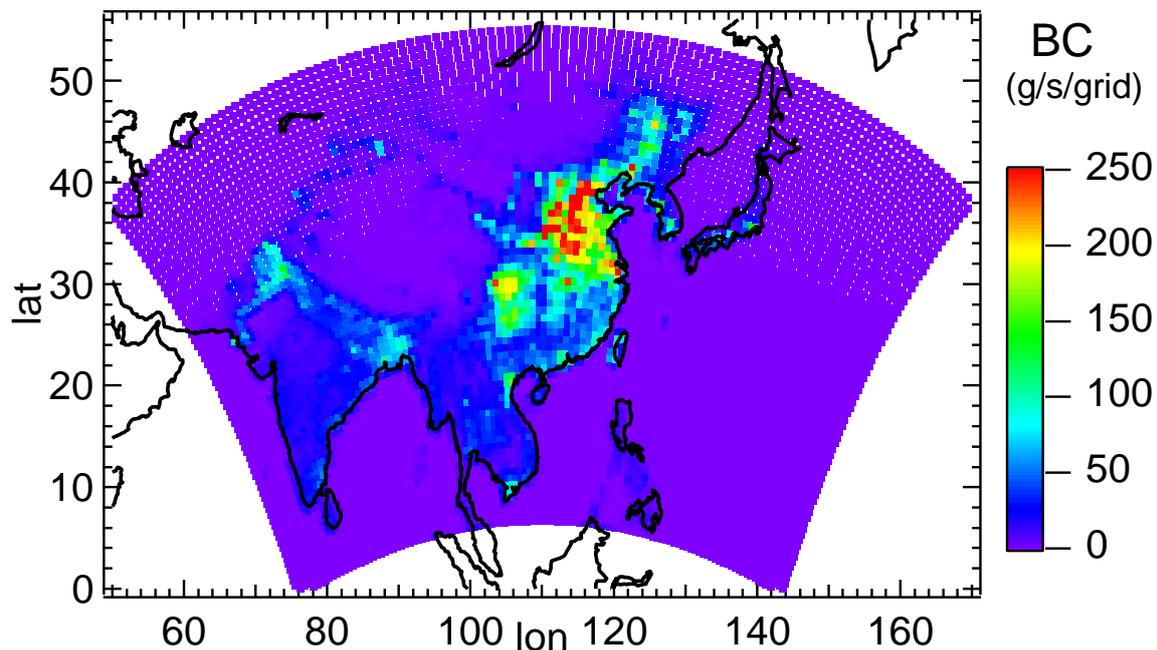


図7 本研究で使用した計算領域とBCエミッションインベントリ

モデル計算では、⁶⁾により作成された2006年基準のアジア域排出量インベントリ（0.5度間隔）を基に作成した排出量データを使用している。また、⁶⁾に含まれていないバイオマスバーニング起源の排出量データについては、⁸⁾による2000年基準のアジアインベントリ（1度間隔）を基に作成した。いずれも年平均の値である。

本研究では、東アジアの中でも特にBC排出量の多い中国領域の寄与を評価するために、中国領域のみに排出量を与え、それ以外の地域の排出量をゼロとした仮想的なインベントリを作成した。また、中国全体のうち、特にBC排出量の多い北中国領域の寄与を評価するために、同様に北中国領域のみに排出量を与えたインベントリを作成した。本研究では、北緯33度を南北中国領域の境界として設定している。

BCは輸送中に湿性沈着過程を経験し、降水に伴って大気中から除去される。沈着過程には乾性沈着による除去もあるが、親水性のBCの地表への沈着量のうち、90%を湿性沈着過程による除去が占めていることが先行研究で示されている。そこで本研究ではBC除去過程における湿性沈着の重要性に着目し、湿性沈着によるBCの除去率を、モデル計算における湿性沈着過程の有無により生じたBC濃度の差から定義し、観測データの解析に使用した。

本研究で行った計算の設定を、表1に示す。CMAQのいずれの計算においても、WRFが出力した同一の気象場と地形・土地利用データを用い、初期条件・境界条件・光解離定数も前述の値を全ての計算に共通に使用している。また、CMAQの乾性沈着過程は、どの計算にも含まれている。

本研究では、湿性沈着過程有りですべての東アジア全体の排出量データを用いたランA(EasiaDep0n)をコントロールランとした。観測値との比較には、このランの計算結果において各観測地点を含むモデル格子点の最下層のBC濃度の時系列データを使用している。

これらのランの計算結果の違いから、湿性沈着過程の寄与や特定の領域の寄与を見積もること

が可能である。

表 1. 本研究で行ったCMAQの計算

ラン	名称	排出量データ	湿性沈着過程
A	EAsiaDepOn	東アジア全体を含む	有り
B	EAsiaDepOff	東アジア全体を含む	無し
C	ChinaDepOn	中国領域のみ	有り
D	ChinaDepOff	中国領域のみ	無し
E	NorthChina	北中国領域のみ	有り

観測地点のある時刻の空気塊のBC濃度における中国領域寄与率(China fraction)を、ランAとランCにおいて計算されたBC濃度から定義した。同様に、北中国領域寄与率(NorthChina fraction)を、ランCとランEにおいて計算されたBC濃度から定義した。それぞれの定義は以下の通りである。[BC_ラン名称]は、各観測地点を含むモデルのグリッドにおいてCMAQが計算したBC濃度（単位 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）である。

$$\text{China fraction} = [\text{BC_ChinaDepOn}] / [\text{BC_EAsiaDepOn}]$$

$$\text{NorthChina fraction} = [\text{BC_NorthChina}] / [\text{BC_ChinaDepOn}]$$

また、各地点で観測されたBC濃度に対する湿性沈着の影響を評価するために、湿性沈着過程を考慮した計算と考慮しない計算の出力から、該当グリッドの該当時刻のBC濃度における湿性沈着除去率を定義した。湿性沈着除去率(WetDep fraction)は、ランBとランAの結果を用いて以下のよう

$$\text{WetDep fraction} = ([\text{BC_EAsiaDepOff}] - [\text{BC_EAsiaDepOn}]) / [\text{BC_EAsiaDepOff}]$$

4) モデルによる観測結果の再現性

地上観測

期間中に観測された辺戸岬のBC濃度の時系列を図 8 に示す。

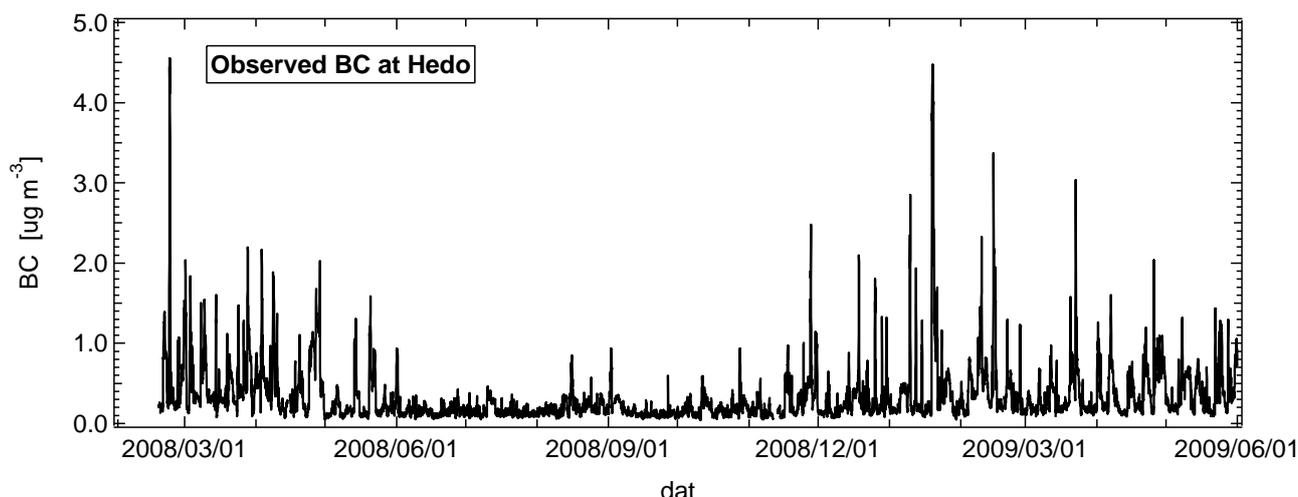


図8 辺戸岬で観測されたBC濃度時系列
(2008年2月1日～2009年5月31日)

辺戸岬の観測全期間（2008年2月-2009年5月）のBC観測値の中間値は $0.21 (0.12-0.52) \mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。中間値の季節変動に着目すると、冬季（ $0.25 (0.14-0.57) \mu\text{g}/\text{m}^3$ ）から春季（ $0.31 (0.13-0.77) \mu\text{g}/\text{m}^3$ および $0.29 (0.16-0.65) \mu\text{g}/\text{m}^3$ ）にかけて大きく増大していた。BC濃度変動の幅の指標である±67パーセンタイルの値の幅も、冬季から春季にかけては他の季節より大きい。これは、図8に見られた、冬季から春季にかけての数日周期の高濃度のピークと整合的である。

一方、冬季・春季と対照的に、夏季（ $0.14 (0.10-0.23) \mu\text{g}/\text{m}^3$ ）と秋季（ $0.14 (0.09-0.32) \mu\text{g}/\text{m}^3$ ）における観測値の中間値は低く、BC濃度変動の幅も狭かった。

次に、観測地点におけるBC濃度の観測値とモデル計算値の比較を行った。

CMAQのコントロールランであるランAに着目すると、モデルは観測されたBC濃度の数日周期の変動を捉えていることが示された。BC濃度の時系列から、特に春季と冬季にピークが高頻度で出現しているが、春季にくらべて冬季はより鋭いスパイク状のピークを示している。このような季節毎の変動の特徴もモデルは再現した。

また、図9にCMAQのコントロールランで計算された2008年12月と2009年4月の地表面BCの月別平均濃度分布を、図10にCMAQコントロールランの2008年7月の地表面BCの月別平均濃度分布をに示す。

図9に示した2008年12月と2009年4月のBC地表面平均濃度分布を、それぞれ冬季と春季の平均的な化学場と考えると、いずれの季節においても中国大陸から海岸線に沿った形状で太平洋側に向かってBC濃度の張り出しが見られる。一方、10に示した2008年7月のBC地表面平均濃度分布からは、夏季において大陸からのBC濃度の張り出しは見られず、outflow域ではBCが低濃度であることがわかる。したがって、辺戸岬において観測されたBC濃度の季節変動は、中国Outflow領域における典型的な傾向であるとモデル結果の空間分布から示唆され、辺戸岬におけるBC濃度の季節変動が、outflow領域の代表性を持つことが示される。

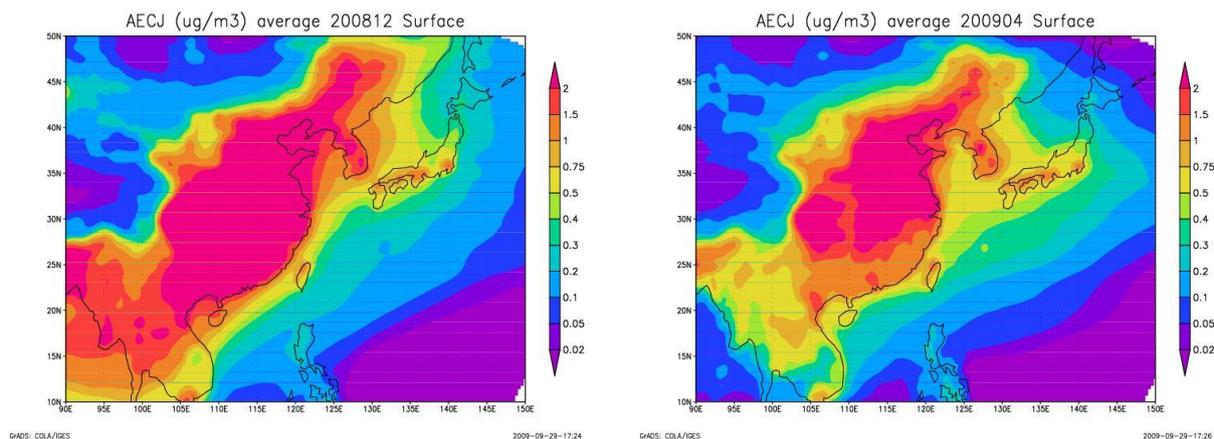


図9. CMAQが計算したBC濃度の月別地表平均場（単位： $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）
（左）2008年12月 （右）2009年4月

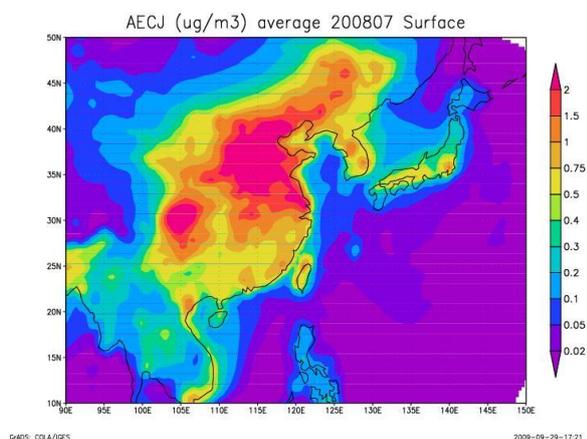


図10 CMAQが計算したBC濃度の月別地表平均場（単位： $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）
2008年7月

また、各期間における中国寄与率の代表値を $[\text{BC_ChinaOnDep}] / [\text{BC_EAsiaOnDep}]$ として定義した。 $[\text{BC_ラン名}]$ は各期間において計算されたBC濃度の中間値である。

CMAQコントロールランにおいて、計算された辺戸岬の全期間におけるBC濃度中間値は $0.25 (0.13-0.58) \mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。また、この期間での中国寄与率は 0.38 であった。

CMAQコントロールランの計算した辺戸岬のBC濃度中間値は、夏季に全期間の中間値を下回り、春季に上回るといった点で、辺戸岬で観測されたBC濃度中間値の季節変動パターンを再現していた。また、モデルは観測値の ± 67 パーセンタイル値の幅の季節変動のパターンを再現していることから、モデルは数日周期のBC濃度変動に加え、BC濃度の季節変動もとらえていたと考えられる。

さらに、モデルが計算した中国領域寄与率は、冬季から春季にかけての値（ $0.52-0.53$ ）に比べて夏季は非常に低い値（ 0.07 ）を示した。したがって、辺戸岬の夏季においてBC濃度の観測値が低いことは、中国起源のBCが寄与が小さいことが原因と示唆される。

本研究のモデル計算では年平均の排出量データを用い、化学場の境界条件も固定しているので、モデルで表現されたこれらのBC濃度の季節変動については、気象場の変動に伴う輸送パターンの

違いが主要な原因であると考えられる。

航空機観測

A-FORCE航空機観測で測定されたBC濃度中間値および±67パーセンタイル値と、対応するモデル計算結果（ランA）の鉛直分布を図11に示す。観測値とモデル値を比較するにあたっては、航空機のフライト記録から該当する時刻・高度・位置のモデル値を選択して比較している。

図11では、観測されたBC濃度の鉛直分布は、高度1.5km付近に500ng/m³以上のBC濃度中間値の極大が見られ、高度2.5kmより上空ではBC濃度中間値が低下していることが示されている。この分布構造は、モデルが計算したBC濃度の鉛直分布でも示されている。

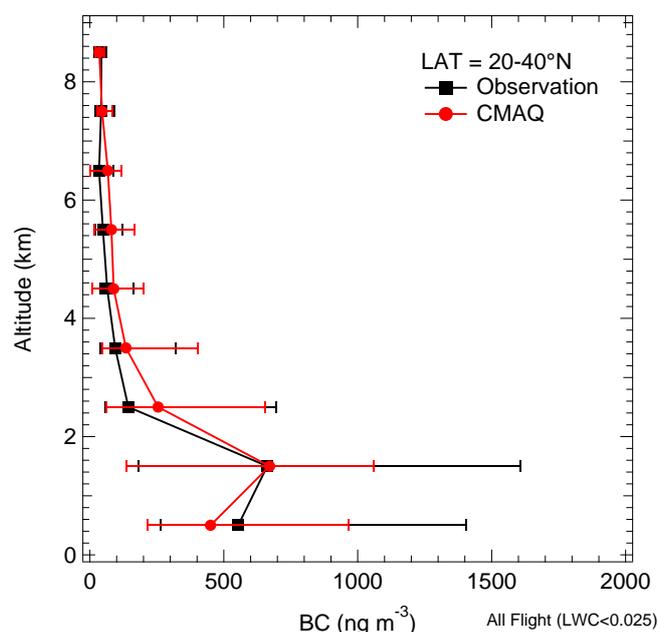


図11 A-FORCE航空機観測で測定されたBC濃度中間値の鉛直構造

また、図12に、BC輸送効率の中間値および±67パーセンタイル値と、対応するモデル計算結果（ランA）の鉛直分布を示す。CMAQのBC輸送効率(BC efficiency)は、ランAとランBから求めた湿性沈着除去率(WetDep Fraction)を用い以下のように定義した。

$$[\text{BC efficiency}] = 1 - [\text{WetDep Fraction}]$$

観測におけるBC輸送効率については、湿性沈着による除去を受けなかったBCC0比を算出し、そのBCC0比と観測されたBCC0比との差から、各観測データにおけるBC輸送効率を定義している。湿性沈着による除去を受けなかったBCC0比は、トラジェクトリ解析と客観解析データを用いて、観測されたBC濃度とCO濃度から選別している。BC輸送効率の詳細については⁹⁾に述べられている。

図12で示したBCの輸送効率の鉛直分布では、観測されたBC輸送効率は、地表から高度2.5kmまでは0.9以上であり、高度3kmから8kmまでは0.3-0.7となっている。一方、モデルで計算されたBCの輸送効率も地表から高度2.5kmまでは0.8以上、高度3kmから8kmまでは0.3-0.7であり、観測された輸送効率の鉛直分布と近い分布を示す。

このことから、モデルは中国outflow域での春季のBC濃度の鉛直分布および輸送効率の鉛直分布を再現していることが示唆される。

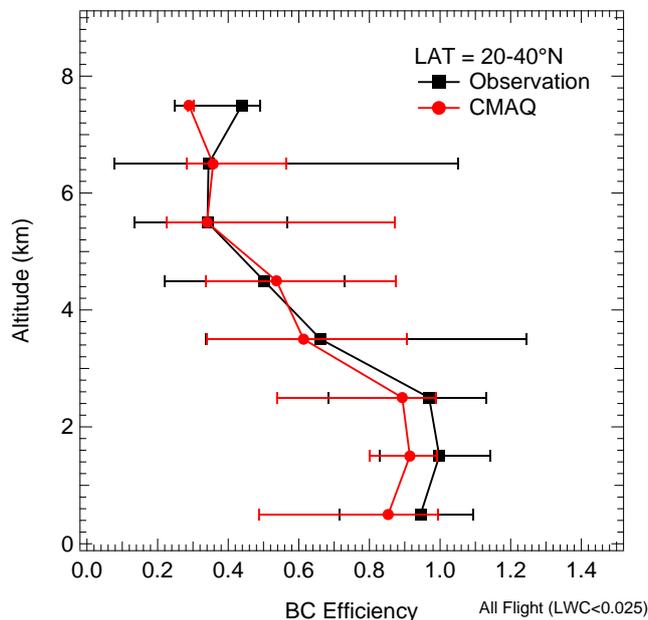


図12 A-FORCE航空機観測で測定されたBC efficiencyの鉛直構造

5) 排出量評価に用いる観測データの選別

中国寄与率によるBC観測データの選別

辺戸岬に着目すると、モデルが判定した中国領域寄与率が高い観測値では、BC濃度が高いという傾向が見られた。このことは、図3で示した東アジアのBC排出源分布において、中国領域のBC排出量が極めて高いことと整合的である。したがって、中国領域の寄与をモデル結果から見積もる手法が有効であることが示唆される。

本研究では、辺戸岬において中国領域寄与率が0.8より高い空気塊を、中国起源の空気塊と判定し、中国領域におけるBC排出量の評価に用いた。BC観測データをスクリーニングすることで、排出量の比較に用いることが可能なデータ数は減少する。しかし、中国領域寄与率のしきい値が0.8ならば、辺戸岬で2000点以上のデータが確保できる

湿性沈着寄与率によるBC観測データの選別

本研究では、辺戸岬において、中国領域寄与率が0.8以上観測データに対し、モデルによって計算された湿性沈着除去率を用いて、湿性沈着の影響が少ない空気塊を選別した。具体的には、湿性沈着除去率が一定のしきい値を超えた観測データは、湿性沈着による影響が大きいとして観測データから取り除いた。

図13に、辺戸岬における湿性沈着除去率のしきい値と、そのしきい値による選別後のBCCO濃度の相関における傾きと相関係数の関係を示す。図13から、辺戸岬において湿性沈着による選別をしなかった場合（湿性沈着除去率のしきい値が1の場合）、BCCO散布図の相関係数は0.7~0.8程度であるが、しきい値を低くすると相関係数が上昇するという傾向が見られる。特に、湿性沈着除

去率のしきい値0.1-0.2としたときに、相関係数の極大がみられ、このときのBC濃度とCO濃度の相関係数は0.9程度である。また、湿性沈着除去率が低い空気塊はBCCO比が高いことが図9で示されている。

図13では、湿性沈着除去率のしきい値が0.0-0.1の場合は、しきい値0.1-0.2のときに比べて相関係数は低下する。湿性沈着除去率のしきい値を小さくするとデータ数が減少することが示されており、しきい値を0.1より小さくした場合は統計的に十分なデータ数が確保できなくなるため相関係数が低下すると考えられる。

これらの結果から、モデル計算結果によって判定したBC濃度の湿性沈着除去率は、観測されたBCCO比と対応していることがわかった。辺戸岬の観測データからは、しきい値0.1-0.2の範囲が、BCとCO相関係数0.9程度、BCCO比0.9以上となり、湿性沈着除去率のしきい値をこの範囲に設定することが、湿性沈着除去の影響の排除に有効であると示された。そこで、辺戸岬における湿性沈着除去率のしきい値は0.2とした。

したがって、本研究では、辺戸岬において、湿性沈着除去率のしきい値を0.2と設定し、それより湿性沈着除去率が低かった観測データは湿性沈着の影響が少ないと考えた。湿性沈着の影響が少ない空気塊を選別することで、モデルの湿性沈着の定量的な不確定性を取り除き、中国領域の排出量をより正確に評価することが可能であると考えられる。

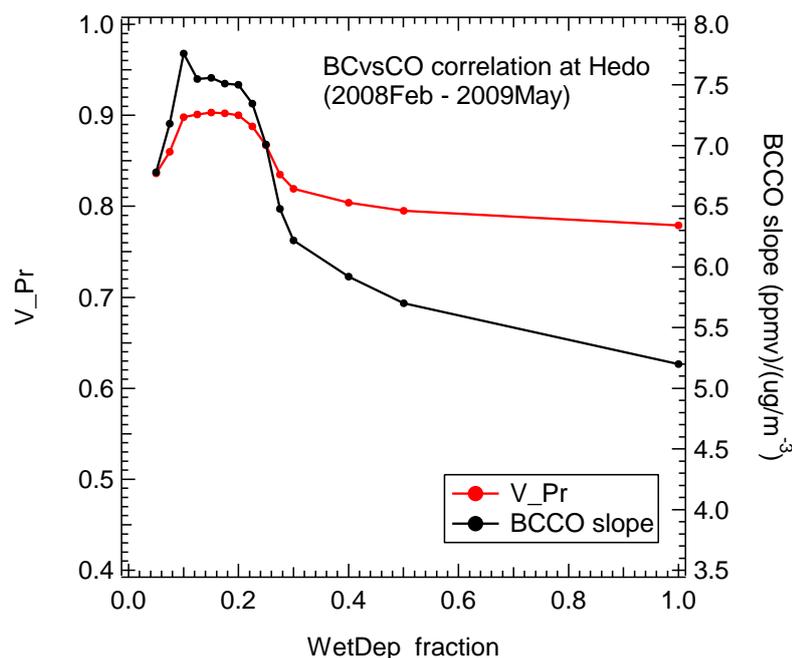


図13 しきい値にとった湿性沈着除去率と、選別後のBCCO比とBCCO濃度相関係数

(赤：相関係数、黒：BCCO比。辺戸岬、中国領域寄与率0.8以上の観測値)

図14に、選別後の辺戸岬のBC濃度観測値と、観測値に対応した時刻のBC濃度計算値の度数分布を示す。また、図15に、選別後の辺戸岬のBC観測値と、観測値に対応した時刻のBC濃度計算値の比較を示す。

辺戸岬のデータでは、度数分布における観測値とモデル計算値の最頻値は $0.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ と共通であった。また、図14に示されたように、相似する度数分布を持っていた。辺戸岬において、選別後

のBC観測値とモデル計算値の相関係数は0.60であった。

図15に示した通り、辺戸岬で観測された中国領域寄与が大きく湿性沈着の影響が少ない空気塊は、度数分布で見た時に極大値を持つ山なりの構造をしていた。これは、これらの空気塊が主にBC濃度ピークの部分に相当していることに対応していると考えられる。

観測値とモデル値の相関を悪化させている要因の可能性として、観測値とモデル計算値のピークのわずかな時間のずれが考えられる。そこで、各季節および全期間のBC濃度の観測とモデルの中間値を用いて比較することで、時間的なずれの影響を排除し、より信頼性の高い評価ができることが考えられる。

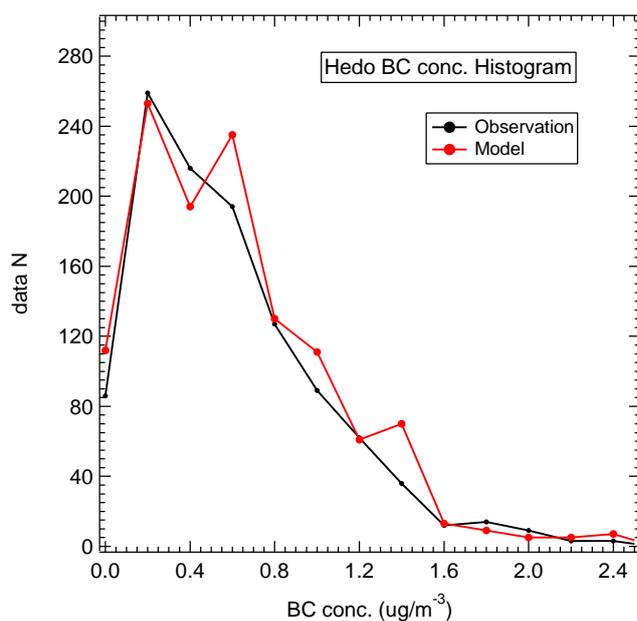


図14. 辺戸岬におけるBC観測値（選別後）とモデル計算値の度数分布
（黒：観測、赤：モデル）

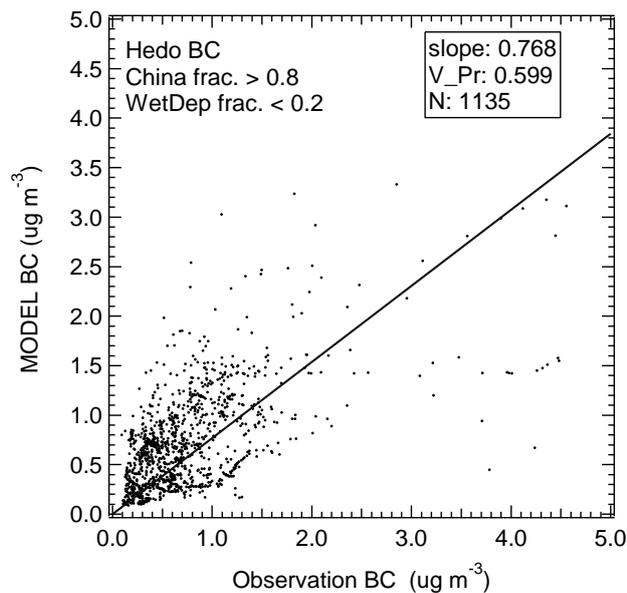


図15. 辺戸岬におけるBC観測値（選別後）とモデル計算値の比較

6) BC排出量の評価

前章では、中国領域寄与率と湿性沈着除去率による選別という手法を用いて観測データを選別した。選別後の空気塊は中国領域の寄与率が大きく、中国の包括的なBCエ排出量を反映していると考えられる。また、湿性沈着の影響が無いケースを選ぶことで、モデル計算における湿性沈着過程の定量的な不確定性を排除できることが、観測結果を用いて示された。

辺戸岬において、選別後の観測値とモデル計算値のBC濃度中間値を観測期間全体・各季節で比較した。その結果を、選別後のモデル計算値における北中国領域寄与率とともに表2に示す。また、図16に、辺戸岬の全観測期間・各季節における選別後の観測とモデルのBC濃度中間値とその±67パーセンタイルを示す。なお、辺戸岬の夏季においては、全てのデータが選別によって除去されたため、比較不可能であった。辺戸岬の秋季については、選別後のBC濃度の観測値の個数が少なく、モデルによるBC濃度観測値の変動の再現性が非常に悪いことから除外した。

辺戸岬の観測全期間において、中国起源かつ湿性沈着の影響が少ない空気塊のBC濃度の中間値は、観測は $0.61 (0.29-1.1) \mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、モデルは $0.64 (0.27-1.2) \mu\text{g}/\text{m}^3$ だった。観測に対するモデル値の比率（モデル/観測値）は1.06だった。また、季節間の比較から、モデル/観測値の季節変動は、0.2程度と見積もられた。

辺戸岬で観測された中国起源のBCのうち、北中国の寄与率は全期間で0.80であった。また、北中国寄与率の季節変動に着目すると、2009年の春季に突出して大きかった（1.0）。

選別後の観測値とモデル計算値との評価から、⁶⁾Zhang et al. [2009]による年平均の排出量は、観測全期間における比較からは中国outflow域のBC濃度とその変動幅を良い精度で再現した。ただし、季節間の変動に着目すると、辺戸の2008年春季と2009年春季の比較では、2009年春季のほうがモデル/観測値が低く、北中国の寄与率が高かった。このことから、北中国のBC排出量は、過小評価されていることが示唆される。

表2. 辺戸岬における中国起源・湿性沈着の影響が少ない空気塊のBC濃度の中間値と北中国領域の寄与率

期間	観測数	観測中間値	モデル中間値	モデル/観測	北中国寄与率
08MAM	427	0.68(0.3-1.2)	0.71(0.42-1.1)	1.04	0.77
08DJF	267	0.57(0.27-1.3)	0.52(0.21-1.4)	0.92	0.75
09MAM	214	0.65(0.40-0.96)	0.53(0.27-0.95)	0.81	0.95
全期間	1135	0.61(0.29-1.1)	0.64(0.27-1.2)	1.06	0.80

(中間値の単位は $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、カッコ内は±67パーセントイル)

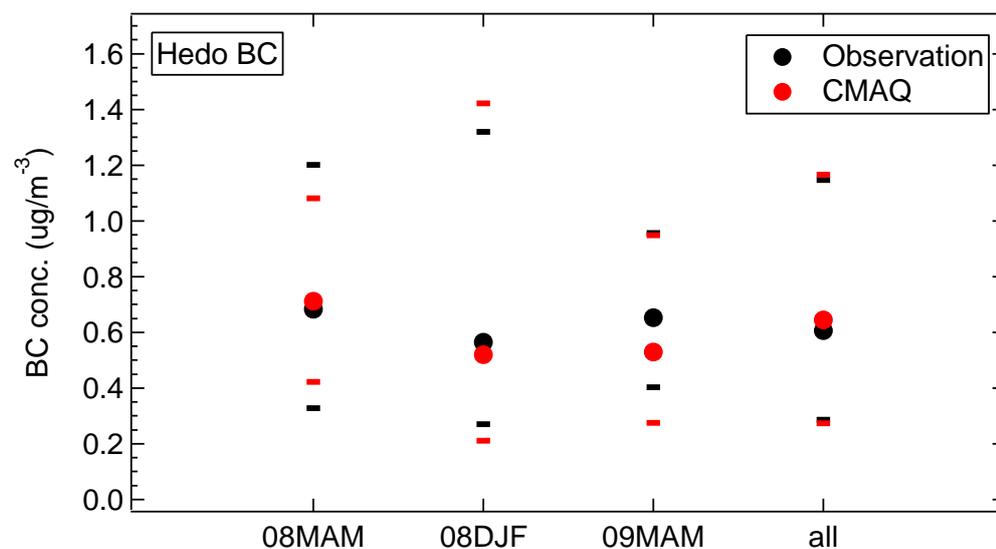


図16 辺戸岬における各季節および全期間の、BC濃度中間値と±観測値と±67パーセントイル値 (黒：観測、赤：CMAQコントロールラン)

本研究では、領域気象モデルWRFと領域三次元化学輸送モデルを用い、2008年2月-2009年5月に辺戸岬で観測されたBC濃度のデータと東アジアoutflow域におけるBC濃度の季節変化を調べ、⁶⁾の2006年ベースの年平均排出量データの検証を行った。特に、東アジアのBCエミッションにおける中国領域の重要性に着目した。

領域三次元化学輸送モデル(WRF-CMAQ)の計算では、総観規模の気象場の変化に伴うエアロゾル濃度変化をとらえるために、東アジア全域を含む計算領域として、水平解像度81km、鉛直解像度21層(CMAQ)のグリッドを設定した。また、計算期間は2008年2月-2009年5月に設定し、CMAQの計算では⁶⁾の排出量データ(水平解像度0.5度)を用いた。

辺戸岬での観測結果からは、BC濃度は冬季から春季にかけて大きく増大し、夏季には非常に低くなるという季節変動が見られた。WRF-CMAQモデルは、この季節変動を再現した。各季節におけるBC濃度の変動に関しても、WRF-CMAQモデルは、総観規模の気象場の変化に伴うBC濃度の数日周期の変動をよく再現していた。したがって、モデルは化学物質の輸送を一定の精度で表現可能であることが示唆された。

年平均の排出量データを入力に用いて行ったモデル計算は、辺戸岬のBC濃度の季節変動をある程度再現した。このことから、モデル計算値に表れたBC濃度の季節変動は、気象場に伴う輸送パターンの季節間の違いがその主要な原因であることが考えられる。

また、モデルが計算したBC濃度の地表平均場の傾向から、辺戸岬は中国outflow域の代表性があることが示唆された。さらに、モデルは地上で観測されたBC濃度の変動を再現しただけでなく、同時期に中国のoutflow域で実施されたA-FORCE航空機観測により得られたBC濃度やBC輸送効率の鉛直分布についてもよく再現した。

これらの結果をふまえ、辺戸岬で得られた長期間の地上観測データをモデルによって解析し、排出量の評価を行った。

東アジアの中でも特にBC排出量の多い中国領域の寄与を評価するために、中国領域のみの排出量データを与えた場合の計算を行った。また、中国全体のうち北中国領域の排出の影響を評価するために、北中国のみの排出量データを与えた場合の計算も行った。これらの計算結果と、東アジア全体の排出量データを使用した計算結果との比較から、中国領域寄与率と北中国領域寄与率を定義した。辺戸岬において、モデルが計算した中国領域寄与率とBC濃度の観測値には正の相関がみられた。このことから、モデルから求めた中国領域寄与率は、中国起源のBCを選別するのに有効であると考えられる。

また、発生源におけるBC排出量をより正確に評価するために、湿性沈着過程を経験していないBCのみを選別した。その手法として、CMAQにおいて湿性沈着過程を含めた場合と含まない場合を計算し、その比較から湿性沈着除去率を定義した。次に、モデルの計算結果から求めた湿性沈着除去率による判定が、現実の湿性沈着過程を反映していることを検証した。辺戸においてBCと同期間に観測されたCOのデータからBCCO比を求めると、モデルによって湿性沈着除去率が高いと判定されたBC観測値においては、BCCO比が低いという傾向が見られた。さらに、湿性沈着除去率が低いBCのみを選別すると、BCとCOの相関係数が上昇し、一定のBCCO比に近づいた。よって、COの観測値との比較から、湿性沈着除去率を用いてBCの湿性沈着の有無を判定する手法が有効であることが示唆された。

これらの選別を行った結果、夏季から秋季にかけて観測されたBC濃度が低い空気塊のデータは、中国領域の影響が少ないことがわかった。選別後に残った空気塊は、冬季から春季にかけて観測された数日周期のBC濃度のピークだった。選別後の辺戸岬BC濃度の観測値とモデル計算値の相関係数は0.60であったが、観測値とモデル計算値の度数分布を比較したところ、最頻値は $0.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ と共通であり、相似する度数分布を持っていた。各季節および全期間のBC濃度の観測とモデルの中間値を用いて比較することで、時間的なずれの影響を排除し、より信頼性の高い評価ができると考えられる。

観測とモデルのBC濃度中間値を比較した結果、辺戸の全観測期間においてはモデル/観測値は1.06であった。同様に各季節の辺戸のモデル/観測値を求めると、2008年春季は1.04、2008年冬季は0.91、2009年春季は0.81であった。したがって、辺戸岬において、中国起源かつ湿性沈着による除去を経っていない空気塊に含まれるBC濃度中間値のモデル/観測値は、季節間で0.2程度の変動があることがわかった。辺戸岬の観測期間全体で評価したときには、⁶⁾による年平均の排出量は、中国outflow域の観測されたBC濃度の中間値と変動幅を再現できることがわかった。

(5) エアロゾルの物理化学的変容過程と混合状態を詳細に扱うモジュールの開発

1) エアロゾルの物理化学的変容過程と混合状態を表現したボックスモデルの開発

2004年3月に日本周辺で実施されたPEACE-C (Pacific Exploration of Asian Continental Emission phase C) 航空機観測では、名古屋都市域から大気境界層内を通過して海上を水平輸送された空気塊中で、厚く被覆されたブラックカーボン粒子の質量割合の増大が観測された。開発したMADRID-BCボックスモデルを用いて、気体濃度やエアロゾル総量が観測値と一致するような束縛条件下で計算を行った結果、モデルは観測された厚く被覆されたBC粒子の質量割合の時間的な変化 ($f_{\text{thick}}(D_{\text{BC}})$) を良い精度で再現した (図17)。このことは、開発したモデルが妥当であったことを示すと同時に、BCの混合状態の変化が主に凝縮過程により説明可能であることを示唆している。モデル計算から個々のBC粒子の被覆量 (被覆の厚さ) の変化を求めることにより、BCの混合状態の変化を定量的に明らかとした (図18)。その結果、BCの質量粒径分布の中心にあたるBCのコア直径が100-200 nmの粒子での被覆物質を含む粒子直径のコア直径に対する平均成長比率は、発生源から輸送された直後の空気塊中ではすでに1.6倍に増大しており、海上を半日程度輸送された空気塊中では1.9倍にまで増大していた。モデル計算では、粒径が小さい粒子ほど凝縮による被覆の成長速度が大きく、BCの被覆成分は主に硫酸塩エアロゾルと有機エアロゾルであった。またモデル計算では、全凝縮量のうち58%がBCを含まない粒子に凝縮しており、BCの混合状態を決定する上で、BCを含まない粒子が重要な役割を果たしていることを明らかとした。

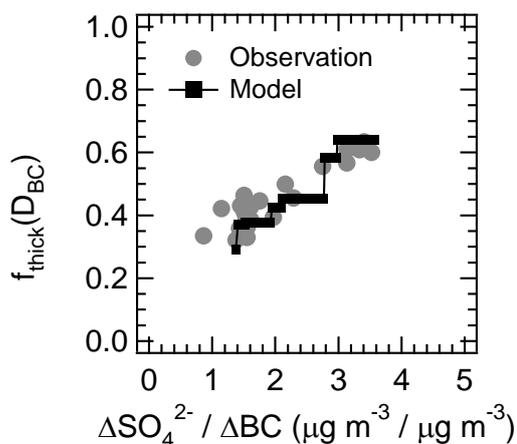


図17 BCの総量に対して硫酸塩エアロゾル(SO_4^{2-})の総量が増大することによる、厚く被覆されたBC粒子の質量割合 ($f_{\text{thick}}(D_{\text{BC}})$) の変化

灰色の点が観測値、黒線がモデル結果。モデルはBCのコア直径が100-200 nmについて示す。

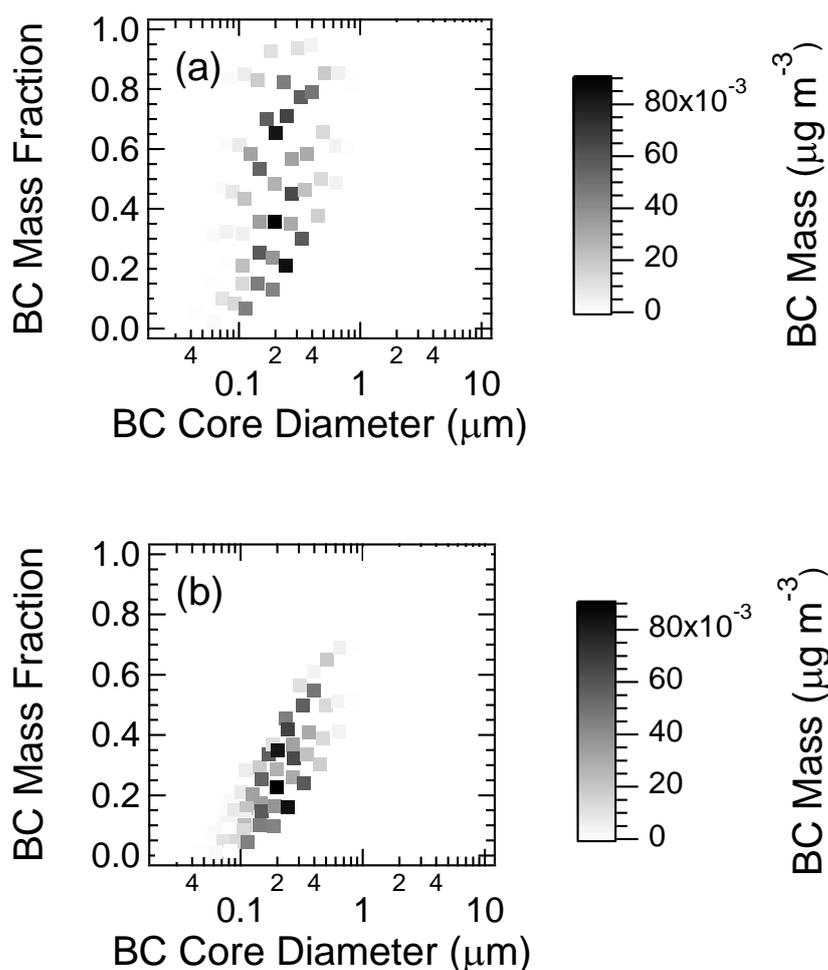


図18 モデルで得られたBCの混合状態の分布(a)が発生源から輸送された直後、(b)が海上を半日程度輸送された空気塊を示す。横軸はBCのコア直径、縦軸はBCの質量割合（BCの被覆量に対応）、白黒の濃淡はBCの質量を示す。

2) エアロゾル光学特性・雲凝結核特性の高精度推定のための効率的なエアロゾル表現の提案

PEACE-C航空機観測とMADRID-BCボックスモデルとの比較を行った事例でのBCの混合状態に基づき、エアロゾルをコア・シェル型として扱うミー理論を用いて、エアロゾルの光学特性の計算を行った。この結果、BCの光吸収率はBCが被覆されることにより被覆がないBCと比較して、発生源から輸送された直後の空気塊中では38%、海上を半日程度輸送された空気塊中では59%とそれぞれ増大していた。また単一散乱アルベドはそれぞれ0.81、0.85であった。さらに、全てのエアロゾル成分がBCを被覆していると仮定した計算を行った結果、吸収係数と単一散乱アルベドをそれぞれ大幅に過大推定（35-44%）、過小推定（7-13%）した。これらの結果は、エアロゾル光学特性を見積もる上で、BCを含むエアロゾルだけでなく、BCを含まないエアロゾルをモデルで考慮することが本質的に重要であることを示している。

また、同じ事例に対して、ケーラー理論を用いて雲凝結核特性の推定を行った。その結果、発生源から輸送された直後と海上を半日程度輸送された空気塊中においては、全BC質量のうちそれぞれ55%および83%が過飽和度0.05%で雲粒化することが明らかとなった。BCが自由対流圏中での速い

水平風により広域輸送されるためにはまず境界層内から上方輸送される必要があるが、本研究で得られた結果は、発生源近傍でのBCの鉛直輸送がBCの長距離輸送にとって重要であることを示している。

モデルでエアロゾル光学特性や雲凝結核特性を推定する上で、BCの混合状態をどの程度詳細に表現すればよいかを調べた。その結果、被覆が薄い疎水性BC粒子、被覆が厚い親水性BC粒子、BCを含まない粒子の3種類のカテゴリーが最低限必要であることを示した。この結果は、気候モデルで最低限3種類のカテゴリーを含むエアロゾル表現を採用することが、気候影響の推定精度を大幅に向上させるために必要であることを示唆している。

3) BCの被覆過程を表現したパラメタリゼーションの開発

最新のグローバルモデルでは、BCを疎水性と親水性の2種類のモードで表現している。しかしながら、疎水性から親水性への変換の被覆過程については、ある一定値（例、24時間の時定数等）の変換速度を用いるなど、非常に簡易的に扱われている。この被覆過程の簡易的表現がBCの気候影響を見積もる際の大きな不確定性の一つとなっている。

被覆過程を詳細に扱うMADRID-BCボックスモデルを用いて、清浄大気から汚染大気までの様々な条件下で、 τ_{BC} （BC粒子が凝縮過程により疎水性から親水性へと変換される時定数）を求めた。これらのモデル計算の結果、被覆速度 v_c （被覆成分の生成速度をBCの総量で規格化した値）という概念を導入することで、 τ_{BC} が v_c の明瞭な関数として表現できることを見出した（図19）。この時定数は、凝縮の物理化学過程に基づいて表現されているので、汚染大気から清浄大気までのあらゆる条件下において、グローバルモデルでの疎水性から親水性へのBCの変換速度として使用することが可能である。

本研究で得られた効率的なエアロゾル表現と、考案されたBCの被覆過程のパラメタリゼーションを気候モデルに組み込むことで、従来よりも格段に精度良く、地球規模気候変動予測の高精度化が可能となる。

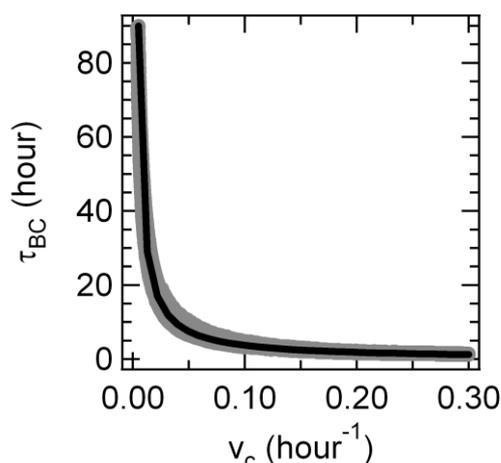


図19 モデル計算により得られた τ_{BC} と v_c の関係（灰色）
全ての計算結果に対してフィッティングした曲線を黒色で示す

(6) 考察のまとめ

アジア大陸下流でのBCが地表面付近で厚く被覆されていることは、福江島での観測により初めて分かった。この被覆により、BCによる光吸収効果が50-60%も増大すると推定される。このことは、今後、数値モデルでアジアにおけるBCの放射効果を計算する場合、この効果を考慮する必要があることを示している。

BCの被覆効果を表現する光学モデルの一つにshell/coreモデルがある。このモデルの精度を評価するために、フラクタル構造を持っていないBCの光吸収係数を浮遊状態で直接測定する一方、BCの粒径分布と各粒径毎の被覆量からこのモデルで計算し、比較した。測定とモデルは、吸収の測定誤差と屈折率の不確定性の範囲で良く一致した。このようにshell/coreモデルでBCの光吸収を表現することの妥当性を示すことが出来たことは今後モデルによりBCの放射効果を計算する際に重要な知見となる。

BCを長期安定に測定できるCOSMOSシステムを開発し、それを沖縄辺戸ステーション、長崎福江島観測所、長野八方観測所の3地点で配備し連続測定を開始した。このCOSMOSの連続測定により、境界層内部でのBCの広域分布の時間変動の理解が大きく進展した。また3次元化学輸送モデルとの比較により、アジア大陸でのBCの発生率の検証および輸送過程の理解が大きく進展した。高精度のBCの連続測定は今後のアジアのエアロゾル研究全体に大きな貢献をなすと考えられる。

2009年春に0-8 kmの高度領域で、東シナ海・黄海で10 nmから10 μ mのエアロゾル粒径分布、BC、エアロゾル化学組成、一酸化炭素の高精度観測を実施した。この観測には、本年度に整備・開発した測定器が用いられた。この高度領域での東アジアでのエアロゾル高精度観測は初めてである。重要な知見は

- エアロゾル濃度のバックグラウンド濃度の高度分布が得られた。
- BCの質量粒径分布の中央直径値が多く的高度、緯度で200nm位で安定していた。
- 高気圧下で、大気境界層内でアジア大陸から高濃度エアロゾルの流出しを見出した。
- 低気圧活動により大気境界層内から自由対流圏にエアロゾルを輸送されることを見出すことができた。
- アジア大陸中部・南部での対流活動によりエアロゾルが7 kmまでの高度に輸送されることを見出した。

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

アジア大陸から放出されるBCの粒径分布、被覆状態、質量濃度の信頼性のある測定値を初めて得ることができ、大きな放射効果があることを示した。また、この情報から、BCの光吸収係数を計算するのに通常用いられているshell/coreモデルの妥当性を室内実験で初めて評価した。

BCの質量濃度を長期安定に測定できるCOSMOSシステムを開発した。これを沖縄辺戸ステーション、長崎福江島観測所、長野八方観測所の3地点で配備することによりアジア大陸下流の大気境界層中でのBCの時間空間変動の理解が飛躍的に進展しつつある。特に、このデータを用いて、BCの最大発生源である中国からの排出量の正確な推定が可能となりつつある。

2009年春に0-8 kmの高度領域で、東シナ海・黄海で10 nmから10 μ mのエアロゾル粒径分布、BC、エアロゾル化学組成、一酸化炭素の高精度観測を実施した。この観測により、初め十分な統計的

な信頼性を持った東アジアのエアロゾル（特にBC）の高精度の高度分布が得られた。また、アジア大陸からの境界層内の輸送、境界層から自由対流圏への輸送過程を定量化するデータが得られた。黄砂粒子が人為起源エアロゾルと混合していること、それぞれがエアロゾルの光散乱・吸収に寄与することを見出した。これらの観測データとモデルを組み合わせることによりエアロゾルが放射収支に及ぼす重要な因子を定量化することができる。またこのことを通して、エアロゾルの気候に及ぼす影響を高精度で評価することが可能となる。

（２）環境政策への貢献

日本の西部、特に九州地方、また韓国において春季に中国から放出されたエアロゾルが高気圧下で蓄積され、高濃度になるという知見は、今後、広域の大気汚染・気候影響を評価し、国政的な提言をする上で極めて重要な貢献となる。高い水準の研究成果を科学誌に公表することは、地球環境政策を立案する上で強い基盤となる。

アジア起源のエアロゾルがアジア地域はもとより、広く地球規模の気候に大きな影響を及ぼす可能性があるという研究結果は、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。

本研究で得られた高精度の大量のエアロゾルデータにより、気候モデルの中でエアロゾルに関係した要素を大きく改良することになる。具体的にはモデルに組み込まれているエアロゾルの生成過程、変質過程、輸送過程、放射過程、雲との相互作用過程などの大きな見直しに有用となる。この結果、気候モデルを用いた地球規模気候変動予測の向上に大きく貢献する。さらには、現在進行している気候変動に関する政府間パネル（IPCC）の第5次報告書の作成過程における国際的な議論においても日本の重要な貢献となっている。

6. 引用文献

- 1) Kondo, Y., L. Sahu, M. Kuwata, Y. Miyazaki, N. Takegawa, J. Imaru, N. Moteki, S. Han, N. T. Kim Oanh, M. Hu, and Y. J. Kim, Stabilization of the mass absorption cross section of black carbon for filter-based absorption photometry by the use of a heated inlet, *Aerol. Sci. Tech.*, 2009, 43, 741-756.
- 2) Shiraiwa, M., Y. Kondo, N. Moteki, N. Takegawa, L. K. Sahu, A. Takami, S. Hatakeyama, S. Yonemura, and D. R. Blake, Radiative impact of mixing state of black carbon aerosol in Asian outflow, *J. Geophys. Res.*, 113, D24210, doi:10.1029/2008JD010546, 2008.
- 3) Lack, D. A., C. D. Cappa, D. S. Covert, T. Baynard, P. Massoli, B. Sierau, T. S. Bates, P. K. Quinn, E. R. Lovejoy, and A. R. Ravishankara, Bias in Filter-Based Aerosol Light Absorption Measurements Due to Organic Aerosol Loading: Evidence from Ambient Measurements, *Aerosol Sci. Technol.* 42:1033-1041, 2008
- 4) Oshima, N. M. Koike, Y. Zhang, Y. Kondo, N. Moteki, N. Takegawa, and Y. Miyazaki, Aging of black carbon in outflow from anthropogenic sources using a mixing state resolved model: 1. Model development and evaluation, *J. Geophys. Res.*, 114, D06210, doi:10.1029/2008JD010680, 2009.
- 5) Bond, T. C., T. L. Anderson, and D. Campbell, Calibration and Inter-comparison of

- Filter-Based Measurements of Visible Light Absorption by Aerosols, *Aerosol Sci. Technol.*, 30:582-600, 1999
- 6) Zhang, Q., D. G. Streets, G. R. Carmichael, K. B. He, H. Huo, A. Kannari, Z. Klimont, I. S. Park, S. Reddy, J. S. Fu, D. Chen, L. Duan, Y. Lei, L. T. Wang, and Z. L. Yao, Asian emissions in 2006 for the NASA INTEX-B mission, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 5131-5153, 2009.
 - 7) Moteki, N., and Y. Kondo, Method to measure time-dependent scattering cross sections of particles evaporating in a laser beam, *J. Aerosol Sci.*, 39, 348-364, 2008.
 - 8) Streets, D. G., et al., An inventory of gaseous and primary aerosol emissions in Asia in the year 2000, *J. Geophys. Res.*, 108 (D21), 8809, doi:10.1029/2002JD003093, 2003.
 - 9) Koike, M., Y. Kondo, K. Kita, N. Takegawa, Y. Masui, Y. Miyazaki, M. W. Ko, A. J. Weinheimer, F. Flocke, R. J. Weber, D. C. Thornton, G. W. Sachse, S. A. Vay, D. R. Blake, D. G. Streets, F. L. Eisele, S. T. Sandholm, H. B. Singh, and R. W. Talbot, Export of anthropogenic reactive nitrogen and sulfur compounds from the East Asia region in spring, *J. Geophys. Res.*, 108(D20), 8789, doi:10.1029/2002JD003284, 2003.

7. 国際共同研究等の状況

2009年春に実施した航空機・地上観測プロジェクトA-FORCE (Aerosol Radiative Forcing in East Asia)は日韓両国における航空機観測・地上観測を共同で実施しデータの解析でも密接に連携している。韓国側はY. J. Kim 教授 (光州科学技術院) 及び韓国環境研究所を中心に、韓国内で地上観測を実施した。A-FORCEは国連環境計画 (UNEP) のABC (Atmospheric Brown Cloud褐色雲計画)、米国環境保護局 (US-EPA) のHTAP (Hemispheric Transport of Air Pollution) のアジア起源の大気汚染物質の半球規模の輸送とその環境影響評価の課題に重要な貢献をする。また、IGAC (International Global Atmospheric Chemistry)-IGBP 国際地球規模大気化学計画の中で、アジアの人為起源エアロゾルの研究課題として位置づけられ (課題代表 近藤豊)、i-LEAPS-IGBPの中でアジアの生物起源・バイオマス燃焼エアロゾルと気候の研究課題と連携して実施している。更には、MAHASRI-WCRP (世界気候研究計画) の中でアジアモンスーンに及ぼすエアロゾルの影響評価を中心とした研究課題の重要な部分を構成している。またA-FORCE航空機観測は、NASA人工衛星センサーCALIOPやMODISなどによるエアロゾル・気体成分の観測を航空機観測で検証することで協力している。

8. 研究成果の発表状況

(1) 誌上发表

<論文 (査読あり)>

1. Kuwata, M., and Y. Kondo, Dependence of size-resolved CCN spectra on the mixing state of non-volatile cores observed in Tokyo, *J. Geophys. Res.*, 113, D19202 doi:10.1029/2007JD009761, 2008.
2. Miyazaki, Y., Y. Kondo, L. K. Sahu, J. Imaru, N. Fukushima, and A. Kanno, Performance of a newly designed continuous soot monitoring system (COSMOS), *J. Env. Monit.*, 10,

- 1195-1201, doi:10.1039/b806957c, 2008.
3. Kondo, Y., Y. Morino, Fukuda, M. Y. Miyazaki, N. Takegawa, Y. Kanaya, H. Tanimoto, R. McKenzie, P. Johnston, D.R. Blake, and T. Murayama, Formation and transport oxidized reactive nitrogen, ozone, and secondary organic aerosol in Tokyo, *J. Geophys. Res.*, *113*, D21310, doi:10.1029/2007JD010134, 2008.
 4. Shiraiwa, M., Y. Kondo, N. Moteki, N. Takegawa, L. K. Sahu, A. Takami, S. Hatakeyama, S. Yonemura, and D. R. Blake, Radiative impact of mixing state of black carbon aerosol in Asian outflow, *J. Geophys. Res.*, *113*, D24210, doi:10.1029/2008JD010546, 2008.
 5. Sahu, L. K., Y. Kondo, Y. Miyazaki, M. Koike, N. Takegawa, H. Tanimoto, H. Matsueda, S.C. Yoon, and Y. J. Kim, Anthropogenic aerosols observed in Asian continental outflow at Jeju Island, Korea, in spring 2005, *J. Geophys. Res.*, *114*, D3301, doi:10.1029/2008JD010306, 2009.
 6. Kuwata, M., and Y. Kondo, Measurements of particle masses of inorganic salt particles for calibration of cloud condensation nuclei counters, *Atmos. Chem. Phys.*, *9*, 1-11, 2009.
 7. Oshima, N. M. Koike, Y. Zhang, Y. Kondo, N. Moteki, N. Takegawa, and Y. Miyazaki, Aging of black carbon in outflow from anthropogenic sources using a mixing state resolved model: 1. Model development and evaluation, *J. Geophys. Res.*, *114*, D06210, doi: 10.1029/2008JD010680, 2009.
 8. Kondo, Y. L. Sahu, M. Kuwata, Y. Miyazaki, N. Takegawa, J. Imaru, N. Moteki, S. Han, N.T. Kim Oanh, M. Hu, and Y. J. Kim, Stabilization of the mass absorption cross section of black carbon for filter-based absorption photometry by the use of a heated inlet, *Aerol. Sci. Tech.*, *43*, 741-756, 2009.
 9. Miyazaki, Y., Y. Kondo, M. Shiraiwa, N. Takegawa, T. Miyakawa, S. Han, K. Kita, M. Hu, Z. Q. Deng, Y. Zhao, N. Sugimoto, D. R. Blake, and R. J. Weber, Chemical characterization of water-soluble organic carbon aerosols at a rural site in the Pearl River Delta, China, in the summer of 2006, *J. Geophys. Res.*, *114*, D14208, doi:10.1029/2009JD011736, 2009.
 10. Matsui, H., M. Koike, Y. Kondo, N. Takegawa, K. Kita, Y. Miyazaki, M. Hu, S-Y Chang, J. D. R. Blake, J. D. Fast, R. A. Zaveri, D. G. Streets, Q. Zhang, and T. Zhu, Spatial and temporal variations of aerosols around Beijing in the summer 2006: 1. Model evaluation and source apportionment, *J. Geophys. Res.*, *114*, D00G13, doi: 10.1029/2008JD010906, 2009.
 11. Moteki, N., Y. Kondo, N. Takegawa, and S. Nakamura, Directional dependence of thermal emission from nonspherical carbon particles, *J. Aerosol Sci.*, *40*, 790-801, 2009.
 12. Oshima, N. M. Koike, Y. Zhang, and Y. Kondo, Aging of black carbon in outflow from anthropogenic sources using a mixing state resolved model: 2. Aerosol optical properties and condensation nuclei activities, *J. Geophys. Res.*, *114*, D18202, doi:10.1029/2008JD011681, 2009.
 13. Kuwata, M., and Y. Kondo, Measurements of particle masses of inorganic salt particles for calibration of cloud condensation nuclei counters, *Atmos. Chem. Phys.*, *9*, 5921-5932, 2009.
 14. Kuwata, M., Y. Kondo, and N. Takegawa, Critical condensed mass for activation of black carbon as cloud condensation nuclei, *J. Geophys. Res.*, *114*, D20202, doi:10.1029/2009JD012086, 2009.

15. Han, S. Y. Kondo, N. Takegawa, Y. Miyazaki, N. Oshima, M. Hu, P. Lin, Z. Deng, Y. Zhao, and N. Sugimoto, Temporal variations of elemental carbon aerosol in Beijing, China, *J. Geophys. Res.*, 114, D23202, doi:10.1029/2009JD012027, 2009.
16. Shiraiwa, M., Y. Kondo, T. Iwamoto, and K. Kita, Amplification of light absorption of black carbon by organic coating, *Aerosol Sci. Tech.*, 44, 46-54, 2010.
17. Nakayama, T., Y. Kondo, N. Moteki, L. K. Sahu, T. Kinase, K. Kita, and Y. Matsumi, Size-dependent correction factors for absorption measurements using filter-based photometers: PSAP and COSMOS, *J. Aerosol Sci.*, 41, 333-343, 2010.
18. Moteki, N., Y. Kondo, T. Nakayama, K. Kita, L. K. Sahu, T. Ishigai, T. Kinase, and Y. Matsumi, Radiative transfer modeling of filter-based measurements of light absorption by particles: Importance of particle size dependent penetration depth, *J. Aerosol Science*, 41, 401-412, 2010.
19. Moteki, N., Y. Kondo, and S. Nakamura, Method to measure refractive indices of small nonspherical particles: Application to black carbon particles, *J. Aerosol Sci.*, 41, 513-521, 2010.
20. Verma, R. L., L. K. Sahu, Y. Kondo, N. Takegawa, Jin Sang Jung, Y. J. Kim, Shaojia Fan, N. Sugimoto, H. Shamma, Y. H. Zhang, and Y. Zhao, Temporal variability of black carbon in Guangzhou, China, in summer 2006, *Atmos. Phys. Chem.*, 10, 6471-6485, 2010.
21. Moteki, N., and Y. Kondo, Dependence of laser-induced incandescence on physical properties of black carbon aerosols: Measurements and theoretical interpretation, *Aerosol Sci. Tech.*, 44, 663-675, 2010.
22. Kondo, Y., N. Takegawa, H. Matsui, T. Miyakawa, M. Koike, Y. Miyazaki, Y. Kanaya, M. Mochida, M. Kuwata, Y. Morino, and M. Shiraiwa, Formation and transport of aerosols in Tokyo in relation to their physical and chemical properties -A review-, *J. Meteorol. Soc. Jpn.*, 88, 597-624, 2010.
23. Matsui, H. M. Koike, Y. Kondo, N. Takegawa, J. D. Fast, U. Pöschl, R. M. Garland, M. O. Andreae, A. Wiedensohler, N. Sugimoto, and T. Zhu, Spatial and temporal variations of aerosols around Beijing in summer 2006: 2. Local and column aerosol optical properties, *J. Geophys. Res.*, 115, D22207, doi:10.1029/2010JD13895, 2010.
24. Kondo, Y., L. Sahu, N. Moteki, F. Khan, N. Takegawa, X. Liu, M. Koike, T. Miyakawa, 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, 2011.
25. Kajino, M., Y. Kondo, 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, 2011.
26. 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, 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:10.1029/2010JD15067, 2011.
27. 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, 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, 2011.

(2) 口頭発表 (学会等)

1. Y. Kondo, Formation, transport, and deposition of oxidized species over the Tokyo Metropolitan Area, IGBP Congress, Cape Town, May, 2008

2. 近藤豊、南極・北極域へのエアロゾルの輸送、日本気象学会 2008 年度春季大会、横浜、2008 年 5 月
3. 大島長、小池真、Yang Zhang, 近藤豊、茂木信宏、宮崎雄三、竹川暢之、駒崎雄一、ブラックカーボンの混合状態の変化とそのエアロゾル光学特性・雲凝結核特性への影響 —エアロゾルの混合状態を表現した新しいモデルの開発—、日本気象学会 2008 年度春季大会、横浜、2008 年 5 月
4. 大島長、小池真、近藤豊、茂木信宏、宮崎雄三、竹川暢之、駒崎雄一、ブラックカーボンの混合状態を表現したモデルによるエアロゾルの光学特性と雲凝結核特性、日本地球惑星科学連合2008年大会、幕張、2008年5月
5. Y. Kondo, SP2 operated by the University of Tokyo up to 2007, SP2 users group meeting, Boulder, US, September 2008.
6. Y. Kondo, N. Takegawa, Y. Miyazaki, L. Sahu, S. Han, N. Moteki, M. Shiraiwa, M. Hu, Y. Zhao, Y. J. Kim, and K. Oanh, Concentrations and size distributions of black carbon aerosol in mega-cities in Asia, IGAC Conference, September, 2008
7. M. Shiraiwa, Y. Kondo, N. Moteki, N. Takegawa, L. K. Sahu, A. Takami, and S. Hatakeyama, MIXING STATE OF BLACK CARBON AEROSOL IN ASIAN OUTFLOW, 10th IGAC Conference, Annecy, France, September, 2008,
8. M. Shiraiwa, Y. Kondo, N. Moteki, N. Takegawa, L. K. Sahu, A. Takami, and S. Hatakeyama, MIXING STATE OF BLACK CARBON AEROSOL IN ASIAN OUTFLOW, 10th IGAC Conference, Annecy, France, September, 2008,
9. Y. Kondo and Makoto Koike, Regional scale Aerosol studies in East Asia, HTAP Meeting, Hanoi, October, 2008.
10. Y. Kondo and Makoto Koike, Regional scale Aerosol studies in East Asia, HTAP Meeting, Hanoi, October, 2008.
11. 近藤豊、L. Sahu、茂木信宏、竹川暢之、桑田幹哲、白岩学、韓盛喜、宮崎雄三、井丸准一、福嶋信彦、加野稔、大気化学討論会、東アジアにおけるブラックカーボン (BC)、大気化学討論会、2008年10月
12. 川名華織、近藤豊、竹川暢之、大島長、梶野瑞王、加藤俊吾、梶井克純、畠山史郎、花岡小百合、高見昭憲、清水厚、航空機および地上観測によるブラックカーボン濃度の測定、大気化学討論会、2008年10月
13. Y. Kondo, Aerosol and Global Warming, Keynote speech at Environmental forum of international students, Tokyo, November, 2008
14. Y. Kondo, Studies of Aerosol in East Asia, Finnish-Japanese Seminar, Helsinki, November, 2008.
15. Y. Kondo, L. Sahu, N. Takegawa, Y. Miyazaki, S. Han, N. Moteki, M. Hu, N.T. Kim Oahn, and Y. J. Kim, Stabilization of Mass Absorption Cross Section of Elemental Carbon for Filter-Based Absorption Photometer by Heated Inlet, AGU Fall Meeting, San Fransisco, December 2008.
16. Y. Kondo, Seasonal and Diurnal Variations of Elemental Carbon in Beijing, Joint

- seminar with Tsinghua University, Tokyo, January, 2009.
17. Y. Kondo, Evolution of physical and chemical properties of black carbon emitted from biomass burning and fossil fuel combustion, NASA ARCTAS workshop, January, 2009.
 18. Y. Kondo, N. Oshima, N. Moteki., N. Takegawa., M. Kajino, M. Koike, K. Kita, Transport of black carbon from the Asian continent, Fourth China-Korea-Japan Joint Conference on Meteorology, Taikuba, November 9, 2009.
 19. Y. Kondo, Advances in aerosol studies in East Asia, ABC Symposium, Seoul, November 23, 2009.
 20. Y. Kondo, L. Sahu, N. Moteki, N. Takegawa, Y. Zhao, S. Vay, G. S. Diskin, A. Wisthaler, L. G. Huey, J. L. Jimenez, and ARCTAS Science Team, Emissions of black carbon particles from biomass burning and their physical and chemical properties, AGU 2009 Fall meeting, San Francisco, USA, December 19, 2009.
 21. Y. Kondo, New era of BC studies based on advanced technologies, International workshop “Frontiers of Black Carbon Studies” , Tokyo on January 25, 2010
 22. Y. Kondo, L. Sahu, N. Moteki, and X. Liu, Using ambient refractory particle mass to calibrate black carbon measurements made by laser-induced incandescence, thermal-optical transmittance, and filter-based photo-absorption techniques, CACGP Conference, Halifax, Canada, July 15, 2010.
 23. Y. Kondo, N. Oshima, M. Kajino, R. Mikami, R. L. Verma, Y. Kajii, S. Kato, A. Takami, N. Takegawa, and K. Kawana, Estimation of the black carbon (BC) emissions from East Asia based on accurate BC measurements in the Asian outflow, AGU 2010 Fall meeting, San Francisco, USA, December 15, 2010.
 24. その他 誌上発表 (査読なし)
近藤豊, 粒子状物質, 大気環境学会誌, 44巻, 6号, 2009年
 25. 近藤豊、エアロゾルと地球環境問題 (巻頭言)、J. Aerosol. Res., 24, 3-3 (エアロゾル研究)、2009。
 26. 近藤豊、真珠母雲はなぜできる?、科学、岩波書店、vol 80, No. 9, 913-915, 2010。

(3) 出願特許

なし

(4) シンポジウム、セミナーの開催 (主催のもの)

1. International workshop “Frontiers of Black Carbon Studies” , Tokyo on January 25, 2010

(5) マスコミ等への公表・報道等

1. 近藤豊、2008年7月23日朝日新聞朝刊日曜版もっとサイエンス「オゾン層はつくれないの？」
2. 近藤豊、2008年12月24日朝日新聞朝刊2面「黄砂・すす 飛行機で探る」
3. 近藤豊、2009年3月20日 韓国の新聞「日韓共同でアジアのダストの航空機観測を黄海上で行う」

4. 近藤豊、2009年5月18日 毎日新聞朝刊「褐色雲が発生 アジアで深刻被害」
5. 近藤豊、2009年4月23日 読売新聞朝刊3面「石原都政 環境 高い評価」
6. 近藤豊、2009年6月3日 NHKサイエンスゼロ

(6) その他

受賞：アメリカ地球物理学連合 (AGU) のFellowに選出される。

IPCC第5次報告書の「雲とエアロゾル」の章のLead Authorとして貢献している。