

課題名	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
課題代表者名	近藤豊（東京大学先端科学技術研究センター）
研究実施期間	平成20～22年度
累計予算額	102,886千円（うち22年度 36,508千円） 予算額は、間接経費を含む。
研究体制	<p>研究体制</p> <p>(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</p> <p>(2) エアロゾルの化学組成の測定に関する研究 独立行政法人国立環境研究所</p> <p>(3) 放射観測に関する研究 千葉大学・環境リモートセンシング研究センター</p> <p>(4) 大気大循環モデルによる直接放射強制力の推定に関する研究 東京大学大気海洋研究所気候システム研究系</p>
研究概要	<p>研究概要</p> <p>1. はじめに</p> <p>大気中のエアロゾルは、CO<sub>2</sub>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、光吸収性のあるブラックカーボンによる大気加熱は、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。</p> <p>放射強制力により温暖化が駆動されるため、不確実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ブラックカーボン単一粒子測定方法（SP2）を用いる。この方法により光吸収性のブラックカーボン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、ブラックカーボン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。</p> <p>サブテーマ(1),(2)によって推定されるエアロゾルの光学的性質は、従来の手法によるものに比べ格段に精度が高い。サブテーマ(1),(2)で推定されるエアロゾルの高度分布や化学的性質から推定される光学特性に対して、地上観測でその整合性が成り立っているかどうかを検証するのがサブテーマ(3)の主目的である。そのため、SKYNET（東アジアに展開するエアロゾル、雲、放射の観測網）によるエアロゾル及び放射の観測データを利用して検証を行う。</p>

## 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ブラックカーボン (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。この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 (ブラックカーボンの粒径分布・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。この改良されたモジュールを大気大循環モデルに組み込み、放射強制力を計算する。また、大気大循環モデルのエアロゾル分布を本研究で測定されるエアロゾル化学組成 (無機・有機・ブラックカーボン) と比較し、モデルの濃度再現結果を評価する。改良されたモデルを用いて、地球規模・アジア規模での放射強制力の推定・予測精度を格段に向上させる。

エアロゾルの放射に対する効果は、日射に対する散乱・吸収が主であり、その詳細評価のために本研究では地上観測によりスカイラジオメータによる大気カラムでの光学的厚さ及び単一散乱アルベドの観測を行う。また今回従来のエアロゾル観測器材に加えて、全天分光日射計を導入し、波長別の全天日射量及び散乱日射量の計測を行い、推定の整合性を検討し評価する。

## 3. 研究の方法

### (1) エアロゾルの混合状況・光学特性の測定に関する研究

#### 1) エアロゾルの混合状態とマクロな光学特性の詳細比較

a) ブラックカーボンの光吸収の推定に用いる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レーザー誘起白熱法によるブラックカーボン単一粒子測定方法 (SP2) 測定器を用いた。 $D_p/D_{BC}$  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良い基準となる。

b) SP2から測定されるブラックカーボンの粒径分布と各粒径毎の被覆量をもとに、ブラックカーボンの光吸収係数、消散係数をMie理論により計算することができる。しかし、大気中のブラックカーボン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。この点を更に詳細に解析するために東京の大気中のブラックカーボンの光吸収係数、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。

また、粒子個数濃度は凝縮粒子カウンターによって測定した。吸収、消散断面積の測定値は、単位個数濃度あたりの吸収係数、消散係数として導出した。まず測定の妥当性を検証するために、屈折率が既知で球形であるニグロシン粒子について測定を行った。吸収、消散断面積の測定結果はMie理論計算と12%以内で一致し、この測定の妥当性が示された。

#### 2) 長期連続BC測定器の開発と辺戸観測ステーション・福江島での観測

新たに開発した高性能の光吸収光度計 (COSMOS) とこの手法を組み合わせたシステムを製作した。これを沖縄の辺戸観測ステーション、長崎の福江島観測所、長野の八方観測所に設置し、1分の高時間分解能のブラックカーボン濃度の連続したデータを取得した。特に、辺戸観測ステーションで得られたデータを3次元モデル計算と組み合わせて詳細に解析した。以下、重要な点のまとめを記す。

2年間にわたり辺戸岬において観測されたBC濃度からは、冬季(0.25 ug/m<sup>3</sup>)から(春季0.31 ug/m<sup>3</sup>)にかけて大きく増大し、夏季は極小になる。また各季節内の変化に着目すると、総観規模の気象場の変化に伴う数日周期のBC濃度変動が高頻度で観測された。モデル計算はBC濃度の季節変動や、総観規模の気象場の変化に伴う数日周期のBC濃度変動をとらえていた。このことから、モデルは化学物質の輸送を一定の精度で表現できていると考えられる。計算されたBC濃度の平均場の空間分布から、辺戸岬は中国outflow域の代表性があることが示唆されており、これらの地点の観測データから、モデルを介してエミッションの評価をすることが可能であることが示唆された。大気中のBC濃度に影響を及ぼす過程は、排出量分布および輸送中の除去過程である。BCの排出量の評価のために、モデル結果を用いて、中国起源かつ湿性沈着過程を経験していない空気塊を選別した。これらの選別を辺戸の観測データに対して行った結果、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。

辺戸のデータから観測とモデルのBC濃度中間値を評価した結果、全観測期間において観測値に対するモデル値の比率(モデル/観測値)は1.0だった。したがって、辺戸岬の観測期間全体で評価したときに、Zhang et al. [2009]による年平均のエミッションは、概ね妥当であることが示唆された。

### 3) 航空機観測

大気境界層から自由対流圏へのBCの上方輸送過程はBCの高度分布・広域の空間分布を決定する。しかし、自由対流圏中でのBCの観測例は極めて少なく、この輸送過程の理解は非常に不十分である。これらの点を解明するために、2009年3-4月に航空機観測を東シナ海・黄海上において実施した。エアロゾル粒径分布、BC、エアロゾル化学組成の高精度データが得られた。BCの大発生源である華北において弱い降水を伴う低気圧活動により高度3-6 kmに上昇した汚染空気塊中では、BCの除去率は10%以下であることを発見した。一方華中で、強い降水を伴う積雲対流により5-6 kmに上昇した汚染空気塊中では、70-90%のBCが除去を受けていたことを観測した。降水による除去過程を正確に考慮した新たな領域3次元モデルによる計算は、これらの観測値を高精度で再現した。全ての観測データと観測期間中のモデル計算から、華北で上昇した空気塊は湿度が低く降水量も少なくBCの除去率も小さい一方、華中・華南では高湿度のため降水量も多く、上方輸送に伴うBCの除去率も大きいことが示された。このように春季の東アジア域では、下層での水蒸気の供給量と低気圧や積雲対流活動に伴う上昇過程が、降水活動の強度、及び湿性沈着に伴うBCの除去率を支配し、BCの広域の空間分布を決定する上で重要な役割を果たすことを明らかにした。

#### (2) エアロゾルの化学組成の測定に関する研究

エアロゾルの化学組成を高い時間分解能で測定するためエアロゾル質量分析計(Q-AMS エアロダイン社製)を長崎県福江観測ステーションおよび沖縄辺戸観測ステーションに設置し観測を行った。同時にフィルターサンプリングを行い粗大粒子に含まれる金属イオン成分、ECの定量測定を行った。これらの観測により、大気中のエアロゾルに含まれる化学組成の主成分(NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、Ca<sup>2+</sup>、OC、EC)の化学組成分析が可能となった。(フィルターサンプリングは名古屋大学長田博士、産総研兼保博士、国環研長谷川博士との共同研究である。)観測結果を分析しECの重量濃度割合を定量的に明らかにした。それに加えて、ECの混合状態を明らかにするため、長崎県福江観測ステーションにおいて粒子を捕集し、電子顕微鏡による観察を行った。(電子顕微鏡観察は東京大鶴田治雄博士、中島映至教授との共同研究)

#### (3) 放射観測に関する研究

日本南西海域におけるエアロゾルの放射効果を、2008~2010年の期間、SKYNET地上観測を通じて明らかにした。エアロゾルの光学パラメータ(光学的厚さAOT、単一散乱アルベド、SSAほか)の推定には、従来からある波長別の天空散乱輝度分布を計測(スカイラジオメータ)する手法と、今回導入した波長別の放射束密度を計測(太陽遮蔽装置付き全天分光日射計)する手法があり、広帯域全天及び直達日射計データを加味しながら、双方を利用して検討した。このため今回導入された全天分光日射計からAOTとSSAを精度よく推定する新たな手法を開発し、エアロゾル吸収性の放射影響評価に関する精度向上を図った。また得られたデータが、従来の広帯域全天日射計、直達日射計の結果と整合性を持つようアルゴリズムを検討し、最終目標であるエアロゾルの放射影響を評価した。また、2009~2010年3月~5月の集中観測期間における同様のデータ解析を行った。

#### (4) 大気大循環モデルによる直接放射強制力の推定に関する研究

MIROCモデルに組み込まれている標準版SPRINTARSエアロゾル放射輸送モデルに関して、すでに組み込まれているエアロゾルの硫酸塩過程を改良するとともに、あらたに、エアロゾルの硝酸塩過程( $\text{SO}_4\text{-NH}_4\text{-NO}_3$ 系の熱平衡モデル)を組み込んで、改良版モデルを作成した。その改良版モデルを用いて数値実験を行い、エアロゾルによる直接放射強制力の全球分布を求めた。また、この改良版モデルを用いて、地上のAERONET観測網で得られた光学的厚さ(AOT)と単一散乱アルベド(SSA)などの光学パラメータの検証を行った。さらに、改良版モデルを用いて、地表面太陽放射の全球観測ネットワークBSRNの観測値(全天日射量と直達日射量)と放射収支の比較を行った。つぎに、疎水性と親水性の二種類のブラックカーボン(BC)を仮定して、BCのエージング効果を改良版SPRINTARSモデルに取り入れる手法を開発した。そのBCのエージング効果を組み込んだ改良版モデルを用いて、タイのピマイで通年観測された化学特性と光学特性との比較検討を行った。一方、不確定性を少なくして精度のよいエアロゾル推定を行うために、エアロゾル観測データを随時取り込んだエアロゾル同化手法を開発した。

#### 4. 結果及び考察

##### (1) エアロゾルの混合状況・光学特性の測定に関する研究

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。この結果をAST誌に発表した。

一方、BC粒子の吸収特性、消散特性における凝集体形状の効果についても調べた。凝集体BC粒子であるAquaBlackについて測定を行い、測定結果の再現を理論計算によって試みたが、Mie理論でも、RDG近似でも表現できなかった。しかし、BC粒子をフラクタル構造で表現し、DDA計算を行ったところ12%以内で一致し、良く傾向を表現できた。さらに、DDA計算でフラクタル次元を変化させて行った結果から、凝集体BC粒子の光学特性において、粒径が大きくなるにつれてフラクタル次元依存性が大きくなること、また、一次粒子の直径25-50nmでの変化による光学特性の変化は、最大10%程度の変化で小さいことがわかった。現在のモデル計算における、形状の仮定による吸収効果の見積もりの不確定性を定量評価するために、大気中のBC粒子のサイズ分布について、吸収係数の粒子形状への依存性を評価した。単位体積当たりの吸収断面積としては、様々な形状を仮定して求めた計算値を使用した。東京のサイズ分布では7-18%程度の増大が予想された。また、北極圏のサイズ分布では14-47%程度、凝集体構造によって増大することが予想された。これによって、BC粒子の単一球形仮定を用いるモデル計算では、その光吸収特性を過小評価している可能性があり、BC粒子が気候システムに与える影響をより精度良く定量化するためには、形状の考慮が必要だと示唆された。

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つつある。特に、辺戸のデータから観測とモデルのBC濃度中間値を比較した。全観測期間において観測値に対するモデル値の比率(モデル/観測値)は1.06だったことから、Zhang et al. [2009]による年平均の中国における排出推定は、概ね妥当であることが示唆された。この結果をとりまとめ2編の論文としてJGR誌に投稿した。

2009年春に0-8 kmの高度領域で、東シナ海・黄海でエアロゾル粒径分布、BC、エアロゾル化学組成の高精度観測を実施した。BCの大発生源である華北において弱い降水を伴う低気圧活動により高度3-6 kmに上昇した汚染空気塊中では、BCの除去率は10%以下であることを発見した。一方華中で、強い降水を伴う積雲対流により5-6 kmに上昇した汚染空気塊中では、70-90%のBCが除去を受けていたことを観測した。降水による除去過程を正確に考慮した新たな領域3次元モデルによる計算は、これらの観測値を高精度で再現した。春季の東アジア域では、下層での水蒸気の供給量と低気圧や積雲対流活動に伴う上昇過程が、降水活動の強度、及び湿性沈着に伴うBCの除去率を支配し、BCの広域の空間分布を決定する上で重要な役割を果たすことを明らかにした点は、今後のエアロゾル研究にとって極めて重要な知見である。この結果の一部をとりまとめJGR誌に投稿した。

##### (2) エアロゾルの化学組成の測定に関する研究

航空機観測と同期した2009年春の観測の特徴は、微小粒子濃度が3月22日夜半に $80\mu\text{g m}^{-3}$ を超えるなど周期的ピークが観測され、主要成分としてはサルフェートが多いことがわかった。後方流跡線や天気図によれば、中国大陸から東進してきた前線が沖縄本島を通過した直後にピークを観測しており、中国大陸から飛来した空気塊がもたらしたものであるという結果を得た。このような事例の解析か

ら、今回の観測が、春季に東シナ海域に見られる典型的な総観規模の気象場の下で行われたことを示している。

BCは主に元素状の炭素 (Elemental Carbon: EC) が凝集したものと考えられ、ECは自動車排気ガスや石炭燃焼、あるいは、バイオマス燃焼によって生成すると考えられている。ECは黒色であるため太陽光を吸収し気候変動への影響が指摘されている。化学組成分析から沖縄辺戸岬における微小粒子、粗大粒子中のECの存在割合を推定した。微小粒子中のECはマイナーな成分であり、観測期間中の平均を取ると、PM<sub>2.5</sub>中には重量濃度基準で約3%存在していた。粗大粒子中でもECは比較的マイナーな成分であり、多くて6%程度含まれていることもあるが、平均すると2%程度であった。後方流跡線解析によると大陸方面から気塊が輸送される場合にECが多く含まれる傾向があった。長崎福江での粗大粒子中のECの割合は、多いときで8%、平均で5%程度であり、沖縄辺戸と比較して少し多かった。

2010年春季にエアロゾル質量分析計による化学組成分析と同期して、ECの混合状態の形態観察を行うため試料を捕集した。ECの重量濃度割合だけから計算すると、仮にECの重量濃度割合が1%であるとすると、ECは直径10 $\mu$ mの粒子上の約40%程度を均一に被覆することになる。電子顕微鏡の形態観察からは、ECは凝集態で存在しており、粗大粒子の上に均一に分布していることはなく、EC凝集態と土壌粒子などの粗大粒子が凝集し、より大きな凝集態を形成していることが分かった。このことは、放射モデル計算において、ECと粗大粒子の混合状態をモデル化するときの知見を与える。

### (3) 放射観測に関する研究

SKYNET福江島及び辺戸岬観測サイトにおいて、スカイラジオメータ、全天分光日射計、広帯域全天・直達日射計等を用いてエアロゾルの光学的パラメータの観測とこれに対応する放射影響評価を行った。集中観測期間である2009～2010年3～4月の平均のAOT及びSSAは、いずれの方法でも福江島のエアロゾルの吸収性が強く出ており、辺戸岬サイトとのエアロゾルソースの違いを示唆している。

一方、これに対応した放射効果(強制)量を推定した。スカイラジオメータと全天分光日射計によるSSAの推定結果に違いがあることから、推定計算ではスカイラジオメータによるSSA推定値を基準に、これより吸収性が各波長で0.05及び0.1小さくなった場合の影響を考察した。SSAの0.05の違いが、この光学的厚さ(AOT. 500=0.363)に対して大気中の吸収量でおよそ8-9W/m<sup>2</sup>程度の違いを示すことが分かる。SSAの推定精度が、放射収支推定精度に大きな影響を与えることから、AOTだけでなく高精度のSSA推定が必須であることが分かる。

本課題では、これまでエアロゾルのAOT及びSSAの高精度推定にほとんど用いられてこなかった太陽遮蔽装置付き全天分光日射計を導入し、フィルター型よりさらに細かい波長分布の特性を明らかにすべく、推定手法の開発を行ってきた。航空機観測に同期した地上観測日である2009年3月30日及び4月5日の典型例の解析結果では、AOT及びSSAのスペクトルにデータ処理上のものと予想される振動が見られるものの、その波長分布ではこれまでのスカイラジオメータの結果を支持しながら、さらに詳細な波長分布を得ることができた。これにより、これまでではっきりしなかったエアロゾルの分光特性をさらに明確にすることで、化学分析などの他の手法によるエアロゾルパラメータ推定との整合性を図ることが可能となった。

### (4) 大気大循環モデルによる直接放射強制力の推定に関する研究

エアロゾルによる直接効果の放射強制力評価の改善のために、標準版エアロゾル放射輸送モデルSPRINTARSに、これまで取り入れてなかった硝酸塩過程(SO<sub>4</sub>-NH<sub>4</sub>-NO<sub>3</sub>系の熱平衡モデル)を新たに組み込み、これに関連して従来の硫酸塩(SO<sub>4</sub>)過程を、モデルの時間積分ステップの間に起こる非線形反応の取り込み、液相反応に関係する過酸化水素の予報変数化、前駆物質の二酸化硫黄(SO<sub>2</sub>)の乾性沈着過程の植生・地面依存性の考慮、などの改良を行った。この結果、地表面付近でSO<sub>2</sub>から生成されすぎていたSO<sub>4</sub>が減少すると共に、比較的濃度の低いSO<sub>2</sub>におけるSO<sub>4</sub>生成速度が増加することによって、SO<sub>4</sub>が遠方・上層にも輸送されるようになった。これらにより、人為起源SO<sub>4</sub>の直接効果の放射強制力は、標準版モデルによる-0.2W m<sup>-2</sup>から-0.3W m<sup>-2</sup>になり、さらに硝酸塩の考慮も合わせると改良版SPRINTARSモデルによる人為起源エアロゾルの直接効果の放射強制力は、大気上端で-0.5W m<sup>-2</sup>となり、標準版モデルよりもIPCC第4次報告書など他のモデルによる評価に近い値が得られた。つぎに、この改良版モデルの評価を地上の放射観測結果を用いて、エアロゾルの光学的厚さ(AOT)、単一散乱アルベド(SSA)などのエアロゾル光学パラメータを検証した。地上放射観測網AERONETの全地点に対応する年平均値では、AOT(440nm)は、標準版モデルでは0.15だったが、改良版ではエアロゾル成分が増加したことでAOTが0.22となり、地上観測結果(0.26)により近づいた。一方、改良前は光吸収成分が多かったため、SSAの年平均値が0.87だったが、改良による散乱成分の増加に伴ってSSAは増加して0.91となり、地上観測結果(値は0.92)により近づいたことがわかった。また、改良版モデルによる地表面太陽放射収支とBSRNによる観測値とを比較して、全天日

射量は、世界全地点、北アメリカ、およびヨーロッパともに、改良版モデルは観測値とよく対応していることがわかった。しかし、直達日射量は、全地点および北アメリカともに、データのばらつきおよびバイアスが大きく、平均値の比（モデル値/観測値）も、0.81および0.88で両者の差が大きかったが、ヨーロッパでは、これらの地域と比較すると、モデル値と観測値はよく対応した。さらに、標準版モデルには取り入れてなかった、ブラックカーボン（BC）のエイジング効果を取り扱ったパラメタリゼーションを、改良版 SPRINTARS に組み込むことで、BCの発生源から離れるにつれて、親水性のBCの割合が増加し、観測値との対応が良くなった。タイのピマイにおける年間を通じた大気エアロゾルの地上観測により、乾期の前半は東アジアとくに中国からの化石燃料の燃焼の影響が、また後半はバイオマス燃焼の影響が大きいことが、初めて明らかになった。また、これらの化学特性とスカイラジオメータで得られたAOTなどの光学特性の観測結果は、改良版モデルでほぼ再現された。また、アンサンブルカルマンフィルタを用いたエアロゾルのSPRINTARS同化システムを開発し、逐次観測データを取り込むことにより、全球規模での海上でのAOTが、同化しないモデルにくらべて大きく改良されたことがわかった。

## 5. 本研究により得られた成果

### (1) 科学的意義

1) 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3次元的な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。

2009年春に0-8 kmの高度領域で、東シナ海・黄海で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り、エアロゾルの気候影響を詳細に研究する上で貴重なデータが得られた。特にエアロゾルの湿性除去が降水過程と密接に結びついていることを実証した意義は大きい。

2) これまであまり観測例の無かった粗大粒子中のECの存在割合を推定した。沖縄辺戸では多くて6%程度含まれていることもあったが、平均すると2%程度であった。長崎福江でも多いときで8%、平均で5%程度であった。この観測は同時期に行われた航空機観測、地上での放射観測と同期しており、エアロゾルの物理化学的特性の解明が可能となる。

またECの存在形態を電子顕微鏡で観察した。その結果、ECの凝集態と土壌粒子などがより大きな凝集態を形成していることが明らかとなった。粗大粒子の混合状態のモデル化に寄与する。

3) 月平均のエアロゾルの光学的特徴を、SKYNET辺戸岬及び福江島サイトで明らかにすることができた。これによる放射効果を推定した結果、両サイトでは明らかに異なる特徴を示唆するデータを得ることが出来、輸送モデル検証や衛星データ解析結果との比較に有効なデータを提示することが可能となった。

4) 標準版SPRINTARSモデルでは取り入れてなかった硝酸塩過程を組み込み、また硫酸塩過程を改善した改良版SPRINTARSモデルでは、SO<sub>2</sub>やSO<sub>4</sub>が上層にも輸送されるようになり、標準版モデルよりも観測結果に近づいた。改良版モデルの検証を、MODIS衛星や地上AERONETサンホトメータネットワーク、またBSRN地上日射量ネットワークなどから得られるエアロゾルの光学的厚さや日射量を用いて、地上検証班とともにに行い、改良版モデルが妥当であることが示された。

5) BCのエイジング効果のパラメタリゼーションのSPRINTARSモデルへの取り込みを、BC測定班と共におこなった。その結果、BCの発生源から離れるにつれて、親水性のBCの割合が増加し、観測値との対応が良くなり、被覆されたBCエアロゾルの割合が東アジア域全域でほぼ一定になる結果が得られた。これは、エアロゾルが引き起こす放射強制力の評価に取って重要な知見である。

6) 硫酸塩、硝酸塩、黒色炭素に関する改良を行ったモデルによって、最終的な放射強制力の評価をおこなった。それによると本研究による改良型モデルによる大気上端での放射強制力は、IPCC-AR4による評価やAEROCOMグループによる評価に近い値を得た。

7) 東アジアにおける厚い人為起源エアロゾル層による地表面日射量の減少が地表面を冷やし、モンスーン循環などの大気大循環を変化させる新しいメカニズムの可能性を示した。シミュレーション結果によると中国南部、中東部、北部における近年観測されている雲量と降水量の長年変化は、エアロゾルの直接効果、間接効果、および前述した大循環の変化を通じた複雑な効果によることを示した。

8) タイのピマイにおける年間を通じた大気エアロゾルの地上観測により、乾期の前半は東アジアとくに中国からの化石燃料の燃焼の影響が、また後半はバイオマス燃焼の影響が大きいことが、初めて明らかになった。また、これらの観測結果は改良版モデルでほぼ再現された。

9) アンサンブルカルマンフィルターを用いたエアロゾルのSPRINTARS同化システムを開発し、逐次観測データを取り込むことにより、全球規模の海上でのAOTが、同化しないモデルに比べて大きく改良された。

## (2) 環境政策への貢献

1) IPCC-AR5の雲とエアロゾル(近藤)、放射強制力(中島)のLead Author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、その評価報告書において役立てている。

2) 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高精度観測データの取得を行いつつある。また、並行して放射効果スキームの改良も行いつつある。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ことになる。

観測で得られたBCの分布はアジア大陸で発生するBC量やその気候影響を高精度で推定するための重要なデータとなる。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。

3) SPRINTARSモデルは、文部科学省の予測革新プロジェクトや環境省推進費のS-5等における温暖化現象評価にも使われているが、これらの研究チームと密接な連絡を取りながら、本研究結果を標準版の改良に反映させる努力も行っている。

4) 環境省のGOSAT衛星のデータからの温室効果ガス気柱量を正確に求めるためには、エアロゾルによる大気放射の寄与を補正しなければならない。そのための解析補助のためにCAIイメージャーからによるエアロゾル光学的厚さの導出、およびMIROC+SPRINTARS気候モデルにモデル計算値を、国立環境研究所のGOSATチームに提供している。

5) 日本学術会議の地球温暖化問題に関わる知見と施策に関する分析委員会(主査:中島映至)の対外報告書における「地球温暖化問題解決のために一知見と施策の分析、我々の取るべき行動の選択肢」の図を作る際には本研究を参照した。

6) Joint IPCC-WCRP-IGBP Workshop: New Science Directions and Activities Relevant to the IPCC AR5 (3-6 March 2009, Hawaii)において本成果を発表し、IPCCの第5次報告書(AR5)において検討すべき研究テーマとして指摘した。

7) 本研究によって確立したエアロゾルモデルとSPRINTARSエアロゾル気候モデル、同化システムは、平成22年度から始まった文部科学省の気候変動適応研究推進プログラムの中での、適応政策の研究にも使われる。

8) 研究期間中に14件のマスメディアの取材に応じ、エアロゾルの気候影響、太陽出力変化の影響、大気汚染と気候の関係などについて、わかりやすく正しい知識の発信に努めた。

## 6. 研究者略歴

課題代表者：近藤 豊

1949年生まれ、東京大学大学院理学系研究科卒業、理学博士、  
現在東京大学先端科学技術研究センター・教授

研究参画者

(1) : 近藤 豊 (同上)

(2) : 高見 昭憲

1964生まれ、英国オックスフォード大学大学院自然科学研究科卒業、理学博士、  
現在国立環境研究所・アジア自然共生グループ室長

(3) : 高村 民雄

1948生まれ、東北大学大学院理学研究科地球物理学卒業、理学博士、  
現在千葉大学・環境リモートセンシング研究センター・教授

(4) : 中島 映至

1950年生まれ、東北大学大学院理学研究科地球物理学卒業、理学博士、  
現在東京大学大気海洋研究所気候システム研究系・教授

## 7. 成果発表状況 (本研究課題に係る論文発表状況。)

(1) 査読付き論文

- 1) Y. Kondo, L. Sahu, M. Kuwata, Y. Miyazaki, N. Takegawa, J. Imaru, N. Moteki, S. Han, N.T. Kim Oanh, M. Hu, and Y. J. Kim: *Aerosol Science.*, 43, 741-756 Tech. (2009)  
“Stabilization of the mass absorption cross section of black carbon for filter-based absorption photometry by the use of a heated inlet”
- 2) H. Matsui, 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: *J. Geophys. Res.*, 114, D00G13, doi:10.1029/2008JD010906 (2009)  
“Spatial and temporal variations of aerosols around Beijing in the summer 2006: 1. Model evaluation and source apportionment”
- 3) M. Kuwata, Y. Kondo, and N. Takegawa: *J. Geophys. Res.*, 114, D20202, doi:10.1029/2009JD012086 (2009)  
“Critical condensed mass for activation of black carbon as cloud condensation nuclei”
- 4) M. Shiraiwa, Y. Kondo, T. Iwamoto, and K. Kita: *Aerosol Sci. Tech.*, 44, 46-54 (2010)  
“Amplification of light absorption of black carbon by organic coating”
- 5) N. Moteki, Y. Kondo, T. Nakayama, K. Kita, L. K. Sahu, T. Ishigai, T. Kinase, and Y. Matsumi: *J. Aerosol Science*, 41, 401-412 (2010)  
“Radiative transfer modeling of filter-based measurements of light absorption by particles: Importance of particle size dependent penetration depth”
- 6) N. Moteki, N. Y. Kondo, and S. Nakamura: *J. Aerosol Science*, 41, 513-521 (2010)  
“Method to measure refractive indices of small nonspherical particles: Application to black carbon particles”
- 7) N. Moteki and Y. Kondo: *Aerosol Sci. Tech.*, 44, 663-675 (2010)  
“Dependence of laser-induced incandescence on physical properties of black carbon Aerosols: Measurements and theoretical interpretation”
- 8) H. Matsui, M. Koike, Y. Kondo, N. Takegawa, J. D. Fast, U. Pöschl, R. M. Garland, M. O. Andreae, A. Wiedensohler, N. Sugimoto, and T. Zhu: *J. Geophys. Res.*, 115, D22207 doi:10.1029/2010JD13895 (2010)  
“Spatial and temporal variations of aerosols around Beijing in summer 2006: 2. Local and column aerosol optical properties”
- 9) Y. Kondo, L. Sahu, N. Moteki, F. Khan, N. Takegawa, X. Liu, M. Koike, and T. Miyakawa: *Aerosol Sci. Tech.*, 45, 295-312 (2011)  
“Consistency and traceability of black carbon measurements made by laser-induced incandescence, thermal-optical transmittance, and filter-based photo-absorption techniques”
- 10) D. Goto, T. Takemura, and T. Nakajima: *J. Geophys. Res.*, 113, D07205 doi:10.1029/2007JD009019 (2008)  
“Importance of global aerosol modeling including secondary organic aerosol formed from Monoterpene”



11) S. Katagiri, N. Kikuchi, T.Y. Nakajima, A. Higurashi, A. Shimizu, I. Matsui, T. Hayasaka, N. Sugimoto, T. Takamura, and T. Nakajima: SOLA, 6, 025-028, doi: 10.2151/sola.2010-007, 2010.

“Cirrus cloud radiative forcing derived from synergetic use of MODIS analysis and ground-based observations”

12) NAJ Schutgens, T. Miyoshi, T. Takemura, and T. Nakajima: Atmos. Chem. Phys., 10, 2561-2576, (2010)

“Applying an ensemble Kalman filter to the assimilation of AERONET observations in a global aerosol transport model”

13) NAJ Schutgens, T. Miyoshi, T. Takemura and T. Nakajima: Atmos. Chem. Phys., 10, 6583-6600(2010)

“Sensitivity test for an ensemble Kalman filter aerosol assimilation”

(2) 査読付論文に準ずる成果発表

該当なし