

機関番号：12601

研究種目：基盤研究（A）

研究期間：2008～2010

課題番号：20241004

研究課題名（和文）東アジアにおける炭素性エアロゾルの動態と直接放射効果

研究課題名（英文）Behaviors and Direct Radiative Effects of Anthropogenic Carbonaceous Aerosols in East Asia

研究代表者

小池 真 (KOIKE MAKOTO)

東京大学・大学院理学系研究科・准教授

研究者番号：00225343

研究成果の概要（和文）：本研究では、観測およびボックスモデル・三次元化学輸送領域モデルを用いて、放射収支の鍵となる炭素性エアロゾル（ブラックカーボン、BC と有機エアロゾル）の動態とその放射効果について調べた。本研究で開発・改良された数値モデルは、観測されたBCの混合状態の時間変化や輸送効率の高度分布など、重要なパラメータを良く再現できることが確認された。またその放射効果（光学的厚みや単一散乱アルベド）の特徴も観測と整合的な結果が得られ、直接放射効果の推定精度を高めることができた。

研究成果の概要（英文）：In this study, behaviors and direct radiative effects of carbonaceous aerosols (black carbon, BC, and organic aerosol, OA) have been studied by making observations and box/3D model calculations. The models developed in this study successfully reproduced observed features of BC mixing state and vertical profile of transport efficiency. Model calculated radiative effects of aerosols, such as aerosol optical depth and single scattering albedo were also consistent with observations resulting in improvement in estimations of direct radiative effects.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	9,700,000	2,910,000	12,610,000
2009年度	10,400,000	3,120,000	13,520,000
2010年度	6,200,000	1,860,000	8,060,000
年度			
年度			
総計	26,300,000	7,890,000	34,190,000

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：環境学・環境動態解析

キーワード：環境変動、エアロゾル、ブラックカーボン、炭素性エアロゾル、東アジア、三次元化学輸送モデル

1. 研究開始当初の背景

東アジアにおける人為的なエアロゾル（大気中に浮遊する微粒子）の増大による、気候影響が強く懸念されている。エアロゾルは、太陽放射を直接吸収・散乱することにより大気や地表面を加熱・冷却する（直接効果）。

エアロゾルの気候影響評価においては、炭素性エアロゾルの動態の理解が鍵となる。このうち不完全燃焼などにより大気中に放出される黒色炭素エアロゾル（ブラックカーボン、BC）は、各種エアロゾルのうち例外的に太陽放射を効率的に吸収する最も重要なエアロ

ゾルである。ブラックカーボンの影響を評価する上で特に重要な点は、その大気中の濃度（空間分布）と、単位濃度あたりの太陽放射の吸収効率が、ブラックカーボンの混合状態に強く依存することである。しかしながら、ブラックカーボンの複数の混合状態などを表現したモデルはまだ世界的にも少なく、またその放射効果には大きな不確定性がある。

2. 研究の目的

本研究の目的は、ボックスモデルおよび三次元化学輸送領域モデルに放射収支の鍵となる炭素性エアロゾル（BC と有機エアロゾル）に関する新たなエアロゾル・放射特性表現を導入し、東アジアにおける各種エアロゾルの濃度とその放射効果（光学的厚みと単一散乱アルベド）の時空間変動を統合的に明らかとすることである。また検証のための観測を実施し、数値モデルによるエアロゾルの放射強制力の推定精度を高めることである。

3. 研究の方法

本研究は新しい数値モデルの研究と、モデル検証のための鍵となる観測研究より成り立つ。観測では、沖縄の辺戸岬観測所や八尾根観測所において BC 濃度の連続観測を実施した。また H21 年 4 月には、BC を含むエアロゾルの航空機観測を実施した。

数値モデル計算では、複数の BC の混合状態を表現する新しい数値モデルを開発した。また本研究で実施された観測や他の既存の観測（地上、航空機、衛星観測）と数値モデル計算との比較検証を実施した。これらによりエアロゾルの直接放射効果に関わる問題を明確にし、改良を実施した。

4. 研究成果

本研究では第一に、複数の混合状態の BC を表現し、その大気環境中での時間発展を正確に計算できる新しいエアロゾル・ビン・モデルを開発した。このモデルでは、エアロゾル（数濃度および各化学成分の質量）を直径と BC の占める質量比率の 2 つのパラメータごとに与えた（エアロゾルの 2 次元表現）。そしてこの 2 次元表現されたエアロゾル群に対して、その凝縮成長などを詳細に計算できるようにした。この結果、航空機で観測された BC の混合状態の時間変化の特徴を定量的に再現することに成功した。またこの計算により、観測からではわからない BC の全粒径での混合状態の時間発展の全貌を示すことができた。この結果、BC の混合状態の変化により BC の光吸収係数は、発生源付近では 38%、約 12 時間の輸送後には 59%、それぞれ増大していたことが推定できた。また BC の上方輸送効率を決める雲凝結核特性も明らかとした。さらに、過去の世界各地の観測 (ACE-Asia,

INDOEX) で得られたエアロゾルの放射特性も統合的に説明できることを示した。

本研究では第二に、数値モデル計算結果と東シナ海での航空機観測と比較検証により、境界層内の大気が自由対流圏に輸送される際の降水過程により BC などのエアロゾルが湿性除去を受けたケースについて、数値モデルにより半定量的に説明可能であることを示した。また BC の輸送効率（大気中に排出されたもののうち、除去されずに大気中に残存している質量割合）は、上方輸送過程にともなう降水によって説明でき、この結果、観測が実施された春季においては、華北からと華南からとで BC の輸送プロセスや輸送効率が異なっていたことなどが明らかとなった。このように気象場との関係から、東アジアにおける BC の輸送効率や輸送される高度、輸送量などを初めて体系的に示すことができた。

本研究では第三に、詳細な生成過程を表現した数値モデルを用いて有機エアロゾルの数値計算を実施した。この結果、従来広く使用されている室内実験での生成率を使ったモデルよりも、詳細な生成過程を含んだモデルは多くの量の有機エアロゾルを生成するものの、大気中の観測量の 20%程度しか生成できないことが分かった。またその過小評価の原因として、現在の数値モデルで広く使用されている揮発性有機化合物の発生源データにおいて、分子量が大きく揮発性が低い前駆気体が過小評価されている可能性を指摘した。

本研究では第四に、エアロゾルの質量濃度とともに、その放射特性（地表、高度分布、鉛直積算量）を統合的かつ総合的に計算し、観測との検証を実施した。この結果、地表でのエアロゾル質量濃度の変動を数値モデルは（エアロゾルやその前駆気体の排出量を考慮すると）定量的に再現できることが分かった。また地表でのエアロゾルの光散乱係数や吸収係数も BC 濃度などの質量と対応して、半定量的に再現できることが明らかとなった。またエアロゾルの光消散係数の高度分布の日変化の特徴や、鉛直積算の光学的厚さの時空間変動の特徴（総観規模気象場との関係）を良く再現でき、これらの数値モデル計算による放射強制力の推定の妥当性を示すことができた。またエアロゾルの直接放射影響の推定に関わる不確定要因として、エアロゾル自身の要因（混合状態や質量密度）および気象学的要因（エアロゾルの散乱・吸収断面積を増長・減少させる相対湿度や、エアロゾルの輸送効率を決める降水量）を明らかとした。また産業革命以前のエアロゾルの排出量など、過去の大気状態におけるエアロゾルの放射効果についても評価を行った。

これらの研究の成果として、放射収支の鍵

となる炭素性エアロゾル (BC と有機エアロゾル) の、東アジアにおける動態とその放射効果の時空間変動を体系的に示すことができた。またこれらの観測との実証に基づく数値モデル研究により、エアロゾルの放射強制力の推定精度を高めることができた。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 13 件)

- ① H. Matsui, 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:10.1029/2010JD015067, 2011.
- ② Kondo, Y., L. Sahu, N. Moteki, F. Khan, N. Takegawa, X. Liu, M. Koike, and 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. Technol.*, 45, 295-312, 2011.
- ③ 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. Meteor. Soc. Japan*, 88, 597 - 624, 2010.
- ④ Matsui, H., M. Koike, Y. Kondo, N. Takegawa, J. D. Fast, U. Poschl, R. M. Garland, M. O. Andreae, A. Wiedensohler, N. Sugimoto, and T. Zhu, Spatial and Temporal Variations of Aerosols Around Beijing in the Summer 2006: 2. Local and column aerosol optical properties, *J. Geophys. Res.*, 115, doi:10.1029/2010JD013895, 2010.
- ⑤ Parrish, D. D., W. C. Kuster, Min Shao, Y. Yokouchi, Y. Kondo, P. D. Goldan, J. A. de Gouw, M. Koike, and Tomoko Shirai, Comparison of Air Pollutant Emissions among Mega-Cities, *Atmos. Environ.*, 43, 6435-6441, 2009.
- ⑥ 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 and cloud condensation nuclei properties, *J. Geophys. Res.*, 114, doi:10.1029/2008JD011681, 2009.
- ⑦ Matsui, H., M. Koike, Y. Kondo, N. Takegawa, K. Kita, Y. Miyazaki, M. Hu, S-Y Chang, 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, doi:10.1029/2009JD010906, 2009.
- ⑧ 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, doi:10.1029/2008JD010680, 2009.
- ⑨ Matsui, H., M. Koike, N. Takegawa, Y. Kondo, R. J. Griffin, Y. Miyazaki, Y. Yokouchi, and T. Ohara, Secondary Organic Aerosol Formation in Urban Air: Temporal Variations and Possible Contributions from Unidentified Hydrocarbons, *J. Geophys. Res.*, 114, doi:10.1029/2008JD010164, 2009.
- ⑩ Sahu, L. K., Y. Kondo, Y. Miyazaki, M. Kuwata, 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, doi:10.1029/2008JD010306, 2009.
- ⑪ Kondo, Y., Y. Morino, M. Fukuda, Y. Kanaya, Y. Miyazaki, N. Takegawa, H.

- Tanimoto, R. McKenzie, P. Johnston, D. R. Blake, T. Murayama, and M. Koike, Formation and transport of oxidized reactive nitrogen, ozone, and secondary organic aerosol in Tokyo, *J. Geophys. Res.*, 113, doi:10.1029/2008JD010134, 2008.
- ⑫ Kondo, Y., R. C. Hudman, K. Nakamura, G. Chen, Y. Miyazaki, N. Takegawa, M. Koike, M. Ko, K. Kita, D. R. Blake, T. Shirai, and S. Kawakami, Mechanisms that influence the formation of high-ozone regions in the boundary layer downwind of the Asian continent in winter and spring, *J. Geophys. Res.*, 113, D15304, doi:10.1029/2007JD008978, 2008.
- ⑬ Kanaya, Y., M. Fukuda, H. Akimoto, N. Takegawa, Y. Komazaki, Y. Yokouchi, M. Koike, and Y. Kondo, Urban photochemistry in central Tokyo: 2. Rates and regimes of oxidant ($O_3 + NO_2$) production, *J. Geophys. Res.*, 113, D06301, doi:10.1029/2007JD008671, 2008.

[学会発表] (計 13 件)

- ①アジア大陸から北極域へのブラックカーボンの輸送過程とその季節変動、松井仁志、近藤豊、茂木信宏、竹川暢之、小池真、大気化学討論会 2010 年 11 月 19 日 首都大学東京
- ②東シナ海における人為エアロゾルの雲微物理特性への影響、小池真、宇井麻衣子 (東大・理)、竹川暢之、茂木信宏、近藤豊、松井仁志、梶野瑞王 (東大・先端研)、大島長 (気象研)、北和之 (茨城大)、大気化学討論会 2010 年 11 月 19 日 首都大学東京
- ③春季東アジア域で航空機により観測されたブラックカーボンの上方輸送過程、大島長、近藤豊、茂木信宏、竹川暢之、小池真、北和之、大気化学討論会 2010 年 11 月 19 日 首都大学東京
- ④ Wet Removal of Black Carbon in Asian Outflow During Vertical Transport: A-FORCE Aircraft Campaign Over East Asia in Spring 2009, N. Oshima, Y.

- Kondo, N. Moteki, N. Takegawa, M. Koike, and K. Kita, AGU Fall Meeting, December 13, San Francisco
- ⑤東シナ海・黄海上の自由対流圏中で観測されたブラックカーボンの上方輸送過程、大島長、近藤豊、茂木信宏、竹川暢之、小池真、北和之、日本気象学会 2010 年 5 月 25 日 代々木オリンピックセンター
- ⑥春季東アジア上空で観測されたブラックカーボンの上方輸送過程: A-FORCE 航空機観測、大島長、近藤豊、茂木信宏、竹川暢之、小池真、北和之、地球惑星連合大会 2010 年 5 月 28 日 幕張メッセ
- ⑦A-FORCE 航空機観測により得られた春季東シナ海の層雲・層積雲の雲微物理特性、宇井麻衣子、小池真、竹川暢之、近藤豊、大島長、松井仁志、梶野瑞王、北和之、地球惑星連合大会 2010 年 5 月 28 日 幕張メッセ
- ⑧ M. Koike, H. Matsui, Y. Kondo, N. Takegawa, J. D. Fast, and R. A. Zaveri, Synoptic-scale Variations of Aerosols and Their Optical Properties around Beijing in the Summer 2006, IAMA (International Aerosol Modeling Algorithms) conference (Davis, California, 2009. 12) (招待講演)
- ⑨小池真、二次有機エアロゾル数値モデルの現状と問題点、地球惑星科学連合大会、2009 年 5 月、幕張メッセ
- ⑩小池真 他 航空機観測により得られた東シナ海・黄海の層雲・層積雲の雲微物理特性、大気化学討論会 2009 年 10 月 14 日 エポカルつくば
- ⑪ M. Koike, H. Matsui, Y. Kondo, N. Takegawa, and T. Zhu, Synoptic-scale variations of aerosols around Beijing in the summer 2006、第 4 回 日中韓国際気象学会 (招待講演) 2009 年 11 月 8 日 エポカルつくば
- ⑫ M. Koike, H. Matsui, Y. Kondo, N. Takegawa, and T. Zhu,

Synoptic-scale variations of aerosols around Beijing in the summer 2006, Fourth Japan-China-Korea Joint Conference on Meteorology (Invited), November 8, 2009, Epochal Tsukuba International Congress Center, Tsukuba Japan

- ⑬飯田、小池真 他 東シナ海・黄海における層雲・層積雲の雲微物理特性、日本気象学会 2009年11月26日 アクロス福岡

6. 研究組織

(1) 研究代表者

小池 真 (KOIKE MAKOTO)
東京大学・大学院理学系研究科・准教授
研究者番号：00225343

(2) 研究分担者

北 和之 (KITA KAZUYUKI)
茨城大学・理学部・准教授
研究者番号：30221914

茂木 信宏 (MOTEKI NOBUHIRO)
東京大学・先端科学技術研究センター・助教
研究者番号：20507818

(3) 連携研究者

中村 尚 (NAKAMURA HISASHI)
東京大学・大学院理学系研究科・准教授
研究者番号：10251406

大原 利真 (OOHARA TOSHIMASA)
国立環境研究所・アジア自然共生グループ・室長
研究者番号：80313930