

平成30年6月14日現在

機関番号：13901

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2014～2017

課題番号：26740014

研究課題名（和文）次世代型エアロゾル統合モデルの開発による直接・間接効果の高精度評価

研究課題名（英文）Development of a next-generation aerosol model and evaluation of aerosol impacts on climate

研究代表者

松井 仁志 (Matsui, Hitoshi)

名古屋大学・環境学研究科・助教

研究者番号：50549508

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,000,000円

研究成果の概要（和文）：大気中の微粒子（エアロゾル）の放射・雲を介した気候影響は、気候変動予測における最大の不確定要因の一つである。エアロゾルの気候影響を精度良く評価するため、エアロゾルの数濃度・粒径分布・各粒子の化学組成を十分に表現できる次世代型のエアロゾルモデルを開発した。様々な大気観測によってモデルを検証した後、ブラックカーボン（すす）の大気加熱効果とその不確定性要因や、エアロゾルの過去から将来の排出量変化に対する応答などを、関連する微物理・化学過程の観点から明らかにした。

研究成果の概要（英文）：The interaction of atmospheric aerosol particles with radiation and cloud processes is one of the largest uncertainties in predicting climate change. In this study, I developed a next-generation aerosol model, which can represent number concentration, size distribution, and chemical composition of each particle sufficiently, and validated the aerosol model through comparisons with various aerosol observations in the atmosphere. Then, I evaluated the impact of aerosol particles on climate, such as the heating effect of black carbon (soot) aerosols and its uncertainty and the response of aerosols to changes in emissions from the past to the future, by focusing on related microphysical and chemical processes of aerosols.

研究分野：大気環境科学

キーワード：エアロゾル エアロゾルモデル開発 気候変動 ブラックカーボン 新粒子生成 有機エアロゾル 大気環境 領域3次元モデル

### 1. 研究開始当初の背景

大気中に浮遊する微粒子(エアロゾル)は、太陽放射の散乱・吸収(直接効果)、雲微物理・降水過程の変化(間接効果)を通じて、地球の放射収支や気候変動に対して重要な役割を果たしている。しかしながら、その推定の不確定性幅は非常に大きく、気候変動予測における最大の不確定性要因の一つになっている。直接・間接効果を精度良く推定するためには、エアロゾルによる光吸収・散乱量および雲粒数を決めているエアロゾル数(雲凝結核数(CCN数))を精度良く表現することが不可欠である。そして、そのためには、エアロゾルの数濃度・粒径分布と個々の粒子に含まれる光吸収性成分(ブラックカーボン(BC)など)の含有量(混合状態)の推定精度が鍵を握る。しかしながら、「数・粒径・混合状態」は直接・間接効果の最も本質的な物理量であるにもかかわらず、これら全てを十分に表現できるエアロゾルモデルは世界的にも存在しない。

### 2. 研究の目的

本研究では、直接・間接効果を決定する上で最も本質的な物理量となるエアロゾルの「数・粒径・混合状態」を微物理・化学過程の理論に基づいて表現できる、従来のモデルとは一線を画した次世代型のエアロゾルモデルを開発する。このモデルを様々な実大気観測によって検証し、アジア域におけるエアロゾルの空間分布や発生源寄与などを明らかにする。そして、「数・粒径・混合状態」を十分に表現できるエアロゾルモデルを用い、直接・間接効果の推定精度を飛躍的に向上させる。また、エアロゾルの各微物理・化学過程の直接・間接効果に対する重要性・不確定性、将来の気象場やエアロゾル排出量に対する各微物理・化学過程の非線形応答を明らかにする。

### 3. 研究の方法

(1) 「数・粒径・混合状態」を軸としたエアロゾル統合モデルを開発した。まず、近年提唱された新しいメカニズムに基づいた有機エアロゾルモジュールの開発・検証を行った。次に、これまで開発してきた新粒子生成モジュール・BC混合状態モジュールと有機エアロゾルモジュールを統合し、各素過程を同時に計算できるエアロゾルモデルの開発・検証を行った。

(2) モデルをアジア域に適用し、各エアロゾル成分の空間分布や発生源寄与などを解析した。そして、アジア域における直接・間接効果を推定し、直接・間接効果とそれに対する各微物理・化学過程の重要性・不確定性を評価した。

### 4. 研究成果

(1) 近年提唱されている有機化合物の揮発

性とその酸化過程に着目した有機エアロゾルモデルを開発し、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)と半揮発性の有機化合物(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、有機エアロゾルの生成に対するVOCとS/IVOCの酸化過程の重要性や、人為起源VOC・S/IVOCと自然起源VOC・S/IVOCの相互作用を調べた。また、人為的な排出源の影響を受けて生成した有機エアロゾルの寄与を推定した。

まず、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有機エアロゾルの観測結果との比較を行った。VOCとS/IVOCの酸化過程を考慮した新たなモデルの計算は、観測された有機エアロゾルの質量濃度や時間変動を概ね再現することに成功した。一方、S/IVOCおよびそれらの酸化過程を考慮しない計算(従来型のモデル)では、観測された有機エアロゾルの質量濃度を80~90%も過小推定する結果が得られた。アジア全域では、この酸化過程を考慮することによって、有機エアロゾルの質量濃度が約5倍増大した。これらの結果は、これまで考慮されてこなかった有機エアロゾルの前駆気体や酸化機構が、アジア域の現実的な有機エアロゾル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、有機エアロゾルの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からの有機エアロゾルの生成だけでなく、自然起源VOC・S/IVOCからの有機エアロゾルの生成も大幅に(約50%)増大することがわかった。この結果は、地球全体で主要な割合を占めると考えられている自然起源の有機エアロゾルの濃度を精度よく計算するためには、人為起源VOC・S/IVOCからの現実的な有機エアロゾル生成量を(自然起源有機エアロゾルの増大効果を含めて)表現できるモデルを用いることが重要となることを示唆している。

春季アジア域において、人為的な排出源の影響を受けて生成した有機エアロゾルの寄与は、全有機エアロゾルの87%と見積もられ、ほとんどの有機エアロゾルが人為的な排出源の影響を受けて(人為起源のVOC、窒素酸化物、有機エアロゾルの排出・酸化反応への影響を通して)生成したことを示唆している。自然起源有機エアロゾルについても、その大部分(78%)が人為的な排出源の影響を受けた有機エアロゾルであると見積もられた。これらの結果は、VOC・S/IVOCの酸化過程やその人為・自然起源相互作用が、有機エアロゾルの気候影響を精度良く推定する上で大きな役割を果たす可能性を示している。

(2) これまで開発してきた大気中での超微小粒子の生成過程に着目した新粒子生成モデル、各粒子の粒径・混合状態とその変化を解像する混合状態解像モデルと、(1)で開発した有機エアロゾルモデルを統合し、各素過程を同時に計算できるエアロゾルモデル ATRAS(Aerosol Two-dimensional bin module for foRmation and Aging Simulation)の開発を行った。このモデルを領域3次元モデル WRF-chem に導入した。これにより、「数・粒径・混合状態」という観点でエアロゾルの主要な物理・化学過程を理論に基づいて計算することができるエアロゾルモデルが完成した。

(3) 開発したエアロゾルモデルの検証を行った後、春季東アジア領域の BC 濃度とその光学特性・放射強制力を推定した。特に、これらのパラメータの、排出時の粒径分布・混合状態の不確定性に対する感度・不確定性に着目した評価を行った。化石燃料の燃焼とバイオマス燃焼のそれぞれについて、観測結果に基づくパラメータ(排出時粒径分布について中心直径と標準偏差、混合状態について外部混合 BC の比率と内部混合 BC が含む散乱性成分)とその不確定性幅を設定した。そして、これらの排出時の粒径分布・混合状態の不確定性に対する、BC の質量濃度、光吸収量、放射強制力の変動幅を見積もった。

BC の光学・放射パラメータの変動幅は、39~59%と見積もられた。これは、春季東アジア域において BC の放射強制力が地上で  $-5.0 \sim -2.6 \text{ W m}^{-2}$ 、大気上端で  $1.8 \sim 2.7 \text{ W m}^{-2}$  の範囲で変化することに対応しており、排出時の粒径分布・混合状態の扱いの重要性を示している。一方、BC 濃度の変動幅は小さく(17%)、光学・放射パラメータの変動幅との違いが顕著であった。すなわち、排出時の粒径分布・混合状態の変化に対して、BC 濃度の感度は相対的に小さく、光学・放射パラメータの感度は相対的に大きい。この BC 濃度と光学・放射パラメータの感度の違いの要因を解析した結果、凝集過程とレンズ効果(BC の混合状態の変化に伴う光吸収量の増大効果)が大きな役割を果たしていることがわかった。

これらの結果は、BC の放射強制力の推定において、排出源におけるエアロゾルの粒径分布と混合状態の不確定性を減らすこと、また、モデルにおいてレンズ効果を十分に表現することの重要性を示している。これまでの多くのエアロゾルモデルでは、BC の混合状態の変化とそれに伴う光吸収量の増大を十分に扱っておらず、本研究の結果はその部分の改善の必要性を示している。

また、BC の雲凝結核特性に関する評価を行った。BC の雲凝結核特性の粒径・混合状態依存性を解像することで、春季東アジア域の BC の全質量濃度が 10%程度、雲凝結核として不活性な BC 質量濃度が 40-60%程度変わることを示し、エアロゾルモデルにおいて BC の雲

凝結核特性の粒径・混合状態依存性を解像することの重要性を示した。

(4) 過去(1850年)から将来(2100年)にかけての化学成分の排出量の変化に対して、エアロゾルの各素過程がどのように応答し、放射強制力の推定がどのように変わるかを明らかにした。特に、窒素酸化物の排出量の変化が、過去から現在までの東アジア域のエアロゾル濃度の増大において極めて重要な寄与を占める可能性を示した(質量濃度の70%、放射強制力の40%)。また、BC の混合状態・変質過程や有機エアロゾルの生成過程をモデルで詳細に扱うことによって、エアロゾルの排出量変化に対する応答が 50-100%程度増大することを明らかにした。これらの結果は、排出量変化に対するエアロゾルの応答を精度良く推定するためには、詳細なエアロゾル過程の表現や気相反応・エアロゾル過程の相互作用の扱いが重要になることを示している。

(5) 新粒子生成過程がエアロゾル 雲相互作用(雲粒数や間接放射強制力)に及ぼす影響を評価した。一般的に、新粒子生成は、雲凝結核数濃度の増大を通して雲の反射率と寿命を増大させ、負の放射強制力(大気冷却効果)をもたらすと考えられている。しかし、新粒子生成を考慮することで、雲粒数が減り、従来への考えとは反対の効果を持ち得ることを明らかにした。これは、エアロゾルの成長に不可欠な微量気体成分の一部が新粒子の成長に使用されるため、既存粒子の成長が抑制され、既存粒子が雲粒として機能する大きさまで十分に成長しないことが要因と考えられる。

## 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14件)

Sullivan R. C., P. Crippa, H. Matsui, L. R. Leung, C. Zhao, A. Thota, and S. C. Pryor, New particle formation leads to cloud dimming, Nature Partner Journals: Climate and Atmospheric Science, 査読有, in press

Kanaya, Y., H. Matsui, F. Taketani, X. Pan, Y. Komazaki, Z. Wang, L. Chang, D. Kang, M. Choi, S.-Y. Kim, C.-H. Kang, A. Takami, H. Tanimoto, K. Ikeda, and K. Yamaji, Observed and modeled mass concentrations of organic aerosols and PM<sub>2.5</sub> at three remote sites around the East China Sea: Roles of chemical aging, Aerosol and Air Quality Research, 査読有, 17, 3091-3105 (2017)

DOI:10.4209/aaqr.2016.12.0573

Matsui, H. and N. Mahowald,

Development of a global aerosol model using a two-dimensional sectional method: 2. Evaluation and sensitivity simulations, *Journal of Advances in Modeling Earth Systems*, 査読有, 9, 1887-1920 (2017)  
DOI:10.1002/2017MS000937  
Matsui, H., Development of a global aerosol model using a two-dimensional sectional method: 1. Model design, *Journal of Advances in Modeling Earth Systems*, 査読有, 9, 1921-1947 (2017)  
DOI:10.1002/2017MS000936  
Matsui, H. and M. Koike, Enhancement of aerosol responses to changes in emissions over East Asia by gas-oxidant-aerosol coupling and detailed aerosol processes, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 査読有, 121, 7161-7171 (2016)  
DOI:10.1002/2015JD024671  
Matsui, H., Black carbon simulations using a size and mixing-state-resolved three-dimensional model: 2. Aging timescale and its impact over East Asia, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 査読有, 121, 1808-1821 (2016)  
DOI:10.1002/2015JD023999  
Matsui, H., Black carbon simulations using a size and mixing-state-resolved three-dimensional model: 1. Radiative effects and their uncertainties, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 査読有, 121, 1793-1807 (2016)  
DOI:10.1002/2015JD023998  
松井仁志、エアロゾルの数・粒径・混合状態を予測する新世代モデルの開発と検証、査読有、天気、62、569-580 (2015)  
[http://www.metsoc.jp/tenki/pdf/2015/2015\\_07\\_0015.pdf](http://www.metsoc.jp/tenki/pdf/2015/2015_07_0015.pdf)  
Goto, D., T. Nakajima, T. Dai, T. Takemura, M. Kajino, H. Matsui, A. Takami, S. Hatakeyama, N. Sugimoto, A. Shimizu, and T. Ohara, An evaluation of simulated particulate sulfate over East Asia through global model intercomparison, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 査読有, 120, 6247-6270 (2015)  
DOI:10.1002/2014JD021693  
Lupascu, A. R. Easter, R. Zaveri, M. Shrivastava, M. Pekour, J. Tomlinson, Q. Yang, H. Matsui, A. Hodzic, Q. Zhang, and J. D. Fast, Modeling particle nucleation and growth over northern California during the 2010 CARES campaign, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 査読有, 15, 12283-12313

(2015)  
DOI:10.5194/acp-15-12283-2015  
Matsui, H., M. Koike, Y. Kondo, A. Takami, J. D. Fast, Y. Kanaya, and M. Takigawa, Volatility basis-set approach simulation of organic aerosol formation in East Asia: Implications for anthropogenic-biogenic interaction and controllable amounts, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 査読有, 14, 9513-9535 (2014)  
DOI:10.5194/acp-14-9513-2014  
Matsui, H., M. Koike, Y. Kondo, J. D. Fast, and M. Takigawa, Development of an aerosol microphysical module: Aerosol Two-dimensional bin module for formation and Aging Simulation (ATRAS), *Atmospheric Chemistry and Physics*, 査読有, 14, 10315-10331 (2014)  
DOI:10.5194/acp-14-10315-2014  
Mori, T, Y. Kondo, S. Ohata, N. Moteki, H. Matsui, N. Oshima, and A. Iwasaki, Wet deposition of black carbon at a remote site in the East China Sea, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 査読有, 119, 10485-10498 (2014)  
DOI:10.1002/2014JD022103  
Cui, Y. Y., A. Hodzic, J. N. Smith, J. Ortega, J. Brioude, H. Matsui, E. J. T. Levin, A. Turnipseed, P. Winkler, and B. de Foy, Modeling ultrafine particle growth at a pine forest site influenced by anthropogenic pollution during BEACHON-RoMBAS 2011, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 査読有, 14, 11011-11029 (2014)  
DOI:10.5194/acp-14-11011-2014

[学会発表](計19件)

Matsui, H., Development of a global aerosol model using a two-dimensional sectional method, *Frontiers of Atmospheric Aerosol Studies: Toward the Understanding of the Health and Climatic Effects*, 2018  
Sullivan, R. C., P. Crippa, H. Matsui, R. Leung, C. Zhao, A. Thota, and S. C. Pryor, Modeling the impact of new particle formation on regional cloud radiative forcing, *American Meteorological Society 98th Annual Meeting*, 2018  
松井仁志、粒径分布と混合状態を解像した二次元ビン法を用いた全球エアロゾルモデルの開発、日本気象学会2017年度春季大会、2017  
Matsui, H. and N. Mahowald, Development of a global aerosol model using a two-dimensional sectional

method, 22nd Annual CESM workshop, 2017  
Dong, C., H. Matsui, S. N. Spak, and C. Stanier, Impacts of new particle formation on short-term Midwestern meteorology and air quality as determined by the NPF-explicit WRF-chem, 36th AAAR annual conference, 2017  
松井仁志、大島長、二次元ピン法を用いた全球エアロゾルモデルの開発、日本地球惑星科学連合 2016 年大会、2016  
Matsui, H., Black carbon simulations using a size and mixing-state-resolved three-dimensional model: Radiative effects and their uncertainties, AGU Fall Meeting 2016, 2016  
松井仁志、ブラックカーボンとその放射強制力の不確定性: 混合状態解像モデルを用いた感度実験、日本気象学会 2015 年度春季大会、2015  
松井仁志、混合状態解像モデルを用いたブラックカーボンとその放射強制力の不確定性の評価、日本地球惑星科学連合 2015 年大会、2015  
松井仁志、小池真、近藤豊、高見昭憲、金谷有剛、滝川雅之、VBS 法を用いた有機エアロゾルモデルの開発と検証: アジア域における人為・自然起源の相互作用、日本地球惑星科学連合 2014 年大会、2014  
松井仁志、小池真、近藤豊、高見昭憲、金谷有剛、滝川雅之、アジア域の有機エアロゾル生成の人為・自然起源相互作用: VBS モデルの開発と検証、日本気象学会 2014 年度春季大会、2014  
松井仁志、エアロゾルの数・粒径・混合状態を予測する新世代モデルの開発と検証、日本気象学会 2014 年度秋季大会、2014  
松井仁志、数値モデル開発に基づくエアロゾルの化学・微物理過程の研究、第 20 回大気化学討論会、2014  
森樹大、大畑祥、近藤豊、茂木信宏、松井仁志、岩崎綾、友寄喜貴、嘉手納恒、夏季の沖縄県辺戸岬における降水中のブラックカーボン粒子濃度の支配要因、日本地球惑星科学連合 2014 年大会、2014  
Kanaya, Y., H. Matsui, F. Taketani, X. Pan, Y. Komazaki, K. Ikeda, K. Yamaji, Z. Wang, L. Chang, D. Kang, A. Takami, H. Tanimoto, and Y. Kondo, Mass concentrations of organic aerosol and PM2.5 in East Asia reproduced by using volatility basis-set approach in the WRF-chem model, 13th Quadrennial ICACGP Symposium & 13th IGAC Science Conference on Atmospheric Chemistry, 2014  
Mori, T., Y. Kondo, N. Moteki, S. Ohata, H. Matsui, N. Oshima, and A. Iwasaki,

Wet deposition of black carbon at a remote site in the East China Sea, AGU Fall Meeting 2014, 2014

金谷有剛、松井仁志、竹谷文一、駒崎雄一、X. Pan、山地一代、池田恒平、高見昭憲、谷本浩志、近藤豊、Z. Wang、D. Kang、L. Chang、日中韓広域大気汚染集中観測における有機エアロゾル・PM2.5 濃度のモデル再現性評価: VBS アプローチによる改善、第 20 回大気化学討論会、2014  
橋岡秀彬、芝野佑樹、茂木信宏、北和之、松井仁志、小池真、近藤豊、航空機観測による東アジアにおけるエアロゾル粒径分布の支配要因の解明、日本地球惑星科学連合 2014 年大会、2014  
浅野匠彦、小池真、松井仁志、黒潮暖水域の下層雲への影響: 平滑化海面水温を用いた数値実験、日本地球惑星科学連合 2014 年大会、2014

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

<http://has.env.nagoya-u.ac.jp/~matsui/>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

松井 仁志 (MATSUI, Hitoshi)

名古屋大学・大学院環境学研究科・助教

研究者番号: 50549508