

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 6 月 7 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究（A）

研究期間：2010～2012

課題番号：22241002

研究課題名（和文） 東アジアにおけるエアロゾル数濃度の空間分布とその変動要因の解明

研究課題名（英文） A study on spatial distribution of aerosol number concentration and its variability over East Asia

研究代表者

竹川 暢之（TAKEGAWA NOBUYUKI）

東京大学・先端科学技術研究センター・准教授

研究者番号：00324369

研究成果の概要（和文）：エアロゾルは雲凝結核として作用し、地球の放射収支に大きな影響を与える（間接効果）。間接効果は気候変動予測における主要な不確実要素であり、その理解向上のためにはエアロゾル数濃度分布の支配要因を定量的に明らかにする必要がある。本研究では、航空機に搭載してエアロゾル数濃度を高速測定できるシステムを開発した。東アジアにおいて航空機観測を行い、エアロゾル数濃度の鉛直分布を明らかにした。さらに、3次元モデルを用いた解析から、春季では数濃度を定める上で新粒子生成が重要であることを示した。

研究成果の概要（英文）：Aerosol particles act as cloud condensation nuclei and significantly affect the radiative balance of the atmosphere (indirect effect). Aerosol indirect effect is a major source of uncertainty in the projection of climate change. We need to quantify key factors affecting the distributions of aerosol number concentrations for better understanding of indirect effect. We have developed an airborne system for the fast measurement of aerosol number concentrations. We have conducted aircraft measurements over East Asia and revealed the vertical profiles of aerosol number concentrations. A three-dimensional model analysis has suggested the importance of new particle formation in determining the number concentrations in spring.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	11,600,000	3,480,000	15,080,000
2011年度	20,600,000	6,180,000	26,780,000
2012年度	3,500,000	1,050,000	4,550,000
総計	35,700,000	10,710,000	46,410,000

研究分野：大気化学

科研費の分科・細目：環境学・環境動態解析

キーワード：エアロゾル、数濃度、間接効果、東アジア、航空機観測

1. 研究開始当初の背景

エアロゾルは大気中に浮遊する微粒子である。エアロゾル数濃度に関する理解は極めて不十分であり、高解像度の領域モデルであっても観測された数濃度を 10-100 倍も過小

評価することが報告されている (Ellerman and Covert, JGR, 2009)。

エアロゾルは雲を生成する核 (CCN) として作用するため、エアロゾルの数濃度の大小は雲生成を通じて地球の放射収支に影響を

与える（間接効果）。間接効果は IPCC などによる気候変動予測で CO₂ の加熱効果に匹敵する大きさの冷却効果を持つと推定されているが、その信頼性は非常に乏しい。すなわち、間接効果は気候変動予測において最も大きな不確実要因の一つとなっており、その高精度化が緊急の課題となっている。特に、東アジアは世界最大の人為エアロゾル排出源でありながら、観測データ自体が非常に乏しいため、理解が遅れている。

2. 研究の目的

本研究では、東シナ海を中心として最新の大気観測装置を駆使した航空機・地上観測を行い、広い粒径範囲にわたるエアロゾル数濃度の空間分布を明らかにすることを第一の目的とする。さらに、揮発性による粒子分類と改良型 3 次元化学輸送モデル解析に基づき、数濃度の変動要因（一次粒子と新粒子の寄与率等）を明らかにすることも目指す。研究開始当初の主な目的を以下に列挙する。

- (1) 春季東シナ海における数濃度の高度プロファイルを航空機観測により明らかにする。
- (2) 東シナ海の境界層における数濃度の季節変動を地上観測により明らかにする。
- (3) 新粒子生成イベントの頻度を明らかにするとともに、凝縮シンクとの関係を調べる。
- (4) 上記に基づき 3 次元化学輸送モデルのエアロゾル数濃度再現スキームを改良する。
- (5) 改良型モデルを用いて、エアロゾル数濃度・CCN 数濃度の変動要因（気象場・排出源による差異、一次粒子および新粒子の寄与率等）を明らかにする。

3. 研究の方法

申請者らは、当該目的を達成するために航空機・地上観測用の最新の装置を開発・整備してきた。航空機観測では高速性が要求されるため、10 秒以内の時間分解能を有する凝縮粒子カウンタ（Condensation Particle Counter: CPC; Nano 型と Normal 型）、レーザー誘起白熱粒子検出器（Single Particle Soot Photometer: SP2）、雲-粗大粒子計数装置（Cloud, Aerosol and Precipitation Spectrometer: CAPS）を用いる。

Nano-CPC (3776 型) 0.0025~2.5 μm の総粒子数 → Normal との差から核形成モード
Normal-CPC (3771 型) 0.01~2.5 μm の総粒子数 → SP2 との差からエイトケンモード
SP2 0.17~0.8 μm の数濃度粒径分布 → 累積モード
CAPS 0.6~20 μm の数濃度粒径分布 → 累積-粗大モード

地上では高分解能の粒径分布を得ることを優先し、静電分級法と光散乱法を組み合わせた広範囲粒径分布測定装置（Wide-Range Particle Spectrometer: WPS）を用いる。観測点は、エアロゾル質量分析計（AMS）等が整備されており、かつ東シナ海広域の空間代表性が高い国立環境研の沖縄辺戸岬ステーションを活用する。AMS データにより、CCN 活性の推定に必要な化学組成の情報が得られる。

本研究の柱は、(1) 航空機・地上観測用装置の整備・改良（平成 22 年度）、(2) 航空機・地上観測の実施とその解析（平成 22-24 年度）である。(1) に関して、航空機・地上観測で使用する装置について実験室で詳細な性能評価を実施し、高精度化・安定化のための改良を施す。(2) に関して、2009 年に実施した航空機観測データの解析を行う。さらに、東シナ海を中心として新たに航空機および地上観測を実施する。得られたデータを改良型 3 次元化学輸送モデル等により詳細に解析する。

4. 研究成果

(1) 航空機観測用装置の整備・改良

① 凝縮粒子カウンタ（CPC）の校正

2009 年に実施した航空機観測では、低圧インパクトタ（LPI）と Normal-CPC を組み合わせたシステム（LPI-CPC）を用いている。粒径 10 nm 以上の総粒子数濃度と、粒径 10~130 nm のエイトケンモード粒子数濃度が測定できる。これらの差分を取ることで、累積モード粒子数濃度が導出できる。このシステムの特長は LPI の特性をオンラインで制御することであり、数濃度分布のダイナミックな変化を 1 秒の時間分解能で捉えることができる。

Normal-CPC の基本性能評価は 2009 年の観測前に東大において実施しているが、データの信頼性をより向上させるために、観測後に産総研において詳細な性能評価と校正を実施した。エレクトロスプレー粒子発生器およびプロパン燃焼粒子発生器で粒子を発生させ、電気移動度分級器（DMA）により単分散化して校正用エアロゾル試料空気を生成した。この試料空気をオリフィスにより減圧した後、国家二次標準のエレクトロメータ（AE）と Normal-CPC へ導入した。両者の計数値を比較することで、気圧変化に伴う検出効率の変化を評価した。図 1 にその評価結果を示す。減圧に伴って小粒径側の検出効率が減少していることが分かる。これらの結果に基づいて各高度条件における誤差を推定した。さらに、次の観測へ向けて、気圧変化に対する計数値への影響を低減するための改良を行った。

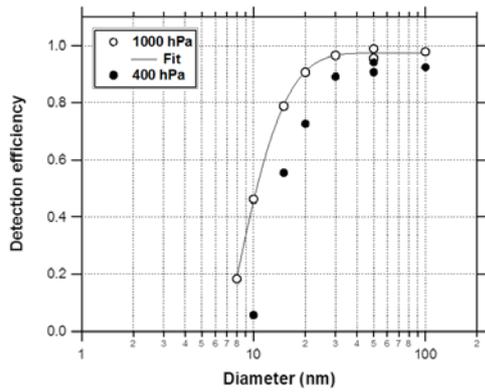


図 1. Normal-CPC (3771 型) の検出効率の粒径依存性。白丸は 1000 hPa、黒丸は 400hPa であり、実線は 1000 hPa のデータにフィットした結果を表す。

当該研究では、新たにナノ粒子の高感度計測が可能な Nano-CPC (TSI 社 3776 型：最小検出粒径 2.5 nm) を導入した。航空機観測で想定される気圧範囲 (1010~350 hPa) でも安定に動作するように流量制御系に改良を施した。Normal-CPC と同様に産総研の校正設備を用いて実験を行った。図 2 にその結果を示す。前記と同様に、減圧に伴って小粒径側の検出効率が減少していることが分かる。なお、大粒径側の検出効率の漸近値は TSI 社のマニュアルに記載されているものより 10%程度低くなっていた。

このような詳細な CPC の校正は世界的に見ても例がなく、航空機観測データを適切に解釈する上で重要である。

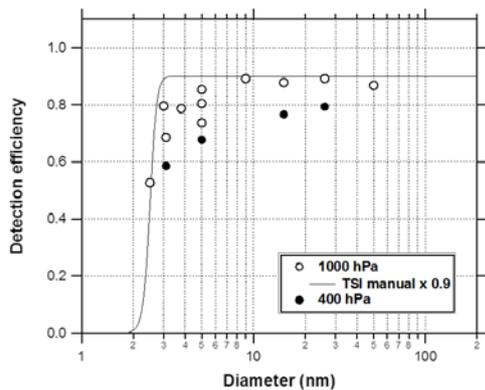


図 2. Nano-CPC (3776 型) の検出効率の粒径依存性。白丸は 1000 hPa、黒丸は 400hPa であり、実線は TSI 社のマニュアルに記載されている 1000 hPa のデータに 0.9 を乗じたものである。

② 航空機搭載型への改良

上記 Nano-CPC を LPI-CPC のラックに組み込んで一体化し、航空機搭載型のシステムと

して完成させた。図 3 にシステム構成図を示す。なお、2012 年および 2013 年の観測では、電力・重量の関係から LPI の系統は使用していないため、観測項目は粒径 10 nm 以上の総粒子数濃度と、粒径 2.5 nm 以上の総粒子数濃度となる。両者の差を取ることで、新粒子生成の兆候となる粒径 2.5~10 nm の核形成モードの粒子数濃度を導出できる。観測前のウォームアップ、ブタノール充填、データ取得などの処理はソフトウェアが全て自動で行うため、観測飛行前後の操作は非常に簡単である。これは、航空機観測を行う上で重要な点である。

レーザー誘起白熱粒子検出器 (SP2) については、航空機観測における振動等への対策を強化するための改造を施した。雲-粗大粒子計数装置 (CAPS) については、数濃度の検出効率を検証するための校正装置を製作し、評価実験を行った。航空機観測用インレットに関しては、数値流体計算に基づいて粒子透過率の評価を行い、粒径 2.5 μm まで高効率でサンプルするための配管構造や流量制御方法を考案した。

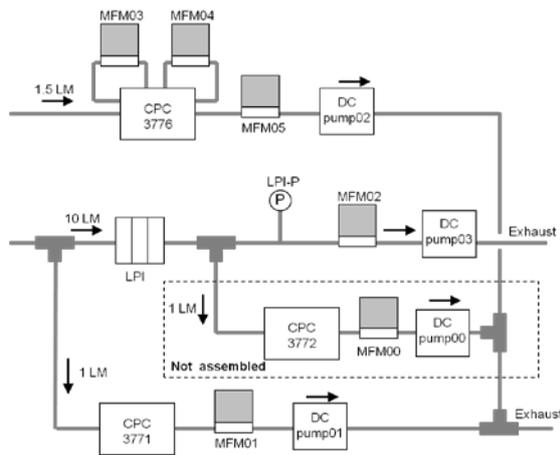


図 3. 航空機搭載型 Nano-CPC/LPI-CPC のシステム構成図。2012 年および 2013 年の観測では、電力・重量の関係から LPI の系統 (破線部) は使用していない。

(2) 航空機・地上観測

① 過去に実施した航空機観測データの解析

2009 年 3~4 月に実施した航空機観測のデータを詳細に解析し、東アジアにおけるエアロゾル分布・輸送・除去過程について調べた。

LPI-CPC データを用いて、粒径 10 nm 以上の総粒子数濃度 (CN_{Total}) および総粒子に占めるエイトケンモード粒子の数濃度割合 (Aitken/Total 比) を調べた (Takegawa et al., in press)。図 4 に黄海で観測された高度プロファイルの一例を示す。総粒子数濃度では鉛直方向に大きな変化は見られないが、

Aitken/Total 比は境界層で小さく、上空に行くに従って大きくなっていることが分かる。すなわち、境界層では累積モード粒子が、上部対流圏ではエイトケンモード粒子が卓越していたことを示している。図5にSP2で観測された境界層と上部対流圏における数濃度粒径分布を示す。これらの粒径分布は定性的には上記の現象と整合的である。

図4で示した傾向をより系統的に調べるために、高度を0~3 km、3~6 km、6~9 kmに区分して総粒子数濃度と Aitken/Total 比のヒストグラムを作成した。図6にその結果を示す。境界層では総粒子数濃度および Aitken/Total 比ともに変動幅が大きい、これは地表発生源の影響を強く受けるためと考えられる。一方、上部対流圏では総粒子数濃度はおよそ 10^3 cm^{-3} 程度で変動幅は小さく、Aitken/Total 比もほぼ 0.7 以上となっていた。後述の「(3) 改良型 3次元化学輸送モデル等による解析」に示す通り、このような分布を決める上で新粒子生成が重要であることが示唆された。

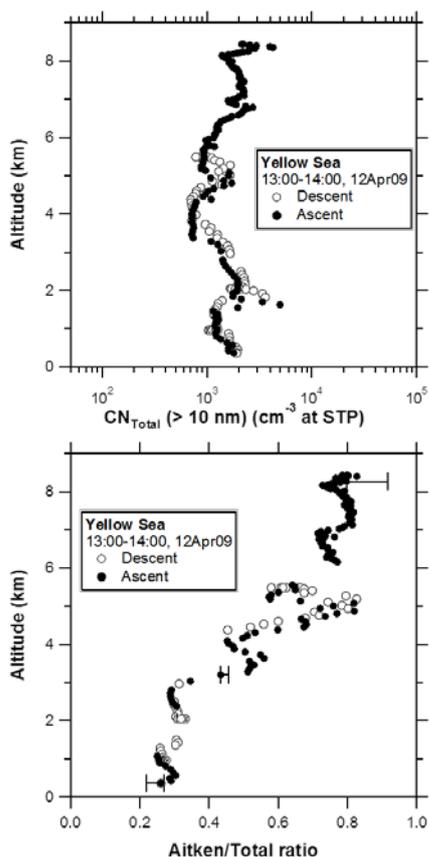


図4. 2009年春季の黄海でCPCにより観測された(上)粒径10 nm以上のエアロゾル数濃度と(下)Aitken/Total粒子数比。データは10秒平均値。黒丸は上昇時、白丸は下降時のデータを表す。

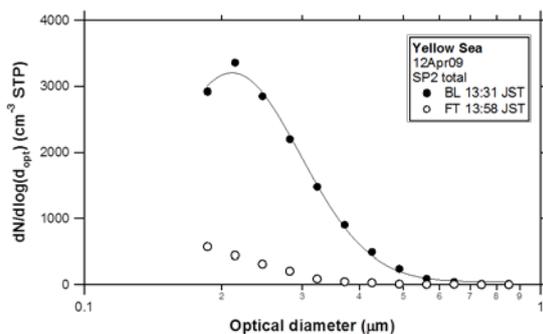


図5. 2009年春季の黄海でSP2により観測された境界層(黒丸)と上部対流圏(白丸)における数濃度粒径分布。

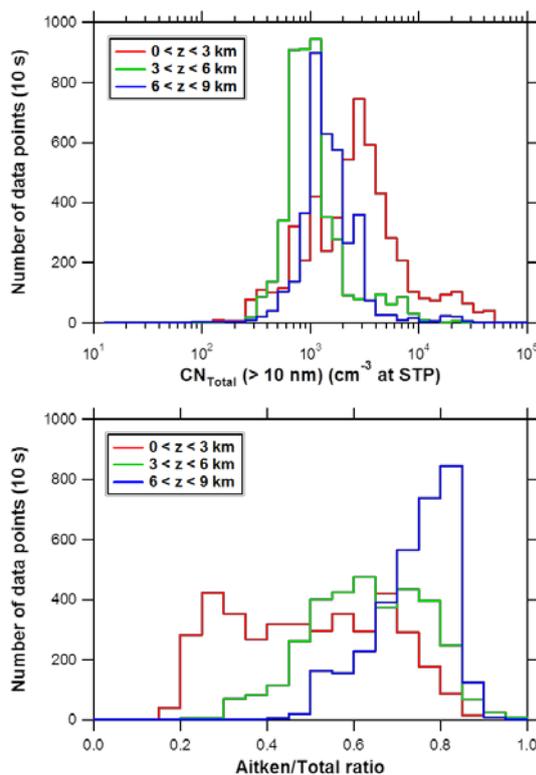


図6. 2009年春季の東シナ海上空における(上)粒径10 nm以上の数濃度と(下)Aitken/Total粒子数比のヒストグラム。高度3 km毎にデータを分類している。

さらに、SP2 データを用いて、ブラックカーボン (BC) 粒子の除去過程について解析を行った (Moteki et al., 2012)。自由対流圏の BC サイズ分布を決める上で、湿性除去が重要であることが示された。

また、LPI-CPC と CAPS のデータを用いて、エアロゾル-雲相互作用の解析を行った (Koike et al., 2012)。LPI-CPC から導出された累積モードのエアロゾル数濃度は、CAPS による雲粒数濃度と良く相関しており、東アジアのエアロゾルが雲生成に大きな影響を

与えていることが示唆された。

② 航空機観測の実施と解析

2012年2月に名古屋を拠点として航空機観測を実施した。新しく構築した Nano-CPC システムを搭載し、時間分解能1秒で粒子数濃度を測定することに成功した。図7に高度プロファイルの例を示す。自由対流圏において粒子数濃度の高度分布にいくつかの層構造が観測されたが、粒径2.5~10 nm のナノ粒子が顕著に増大するケース、すなわち新粒子生成がその場で起こっているケースはほとんど見られなかった。

2012年2月の観測では飛行時間が限られていたため、観測された事象を一般化することは難しい。それを補完するために、2013年2~3月にも Nano-CPC システムを用いて別プロジェクトの枠組みで航空機観測を実施している。この観測においても、自由対流圏でナノ粒子が増大しているケースは少なかったことから、光化学活性の低い冬季は自由対流圏で新粒子生成は起きにくいと推測される。

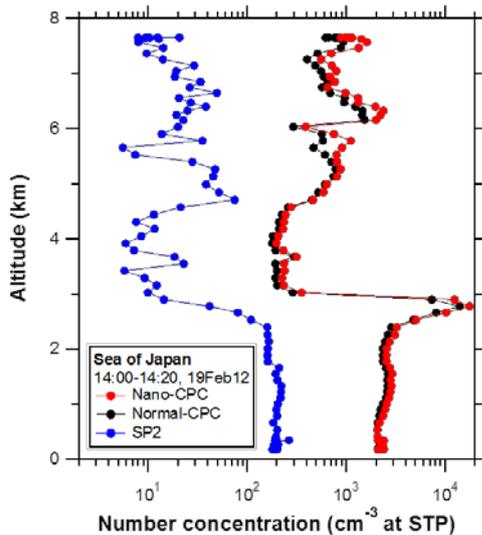


図7. 2012年冬季の日本海上空で観測されたエアロゾル数濃度の高度分布。赤は Nano-CPC (>2.5 nm)、黒は Normal-CPC (>10 nm)、青は SP2 (>170 nm) を表す。データは10秒平均値。

③ 地上観測の実施と解析

沖縄県辺戸岬において広範囲粒径分布測定装置 (WPS) およびエアロゾル質量分析計 (AMS) を用いた地上観測を実施した。数濃度で粒径50 nmと200 nm付近にピークを持つ二山分布が頻繁に観測された。それらのピークを構成する化学組成について考察した。

地上観測における湿度影響を低減するために、拡散ドライヤによりサンプル空気を乾燥させることのできる粒子乾燥インレット

管を導入した。実験室において流量制御系を構築し、基礎評価を行った。なお、自動連続観測に用いるためにはさらなる性能評価が必要と判断し、当該研究期間内に辺戸岬に設置することは見送った。今後なるべく早い段階で実用化し設置したいと考えている。

(3) 改良型3次元化学輸送モデルによる解析

3次元化学輸送モデル (WRF-CMAQ) の準備を進め、航空機データによって得られるエアロゾル数濃度との比較・検証が可能となるように改良を施した。新粒子生成および凝集・凝縮成長を効率的に表現できる最新のパラメタリゼーションを導入し、領域3次元モデル (NPF-explicit WRF-chem) を構築した。

上記モデルを用いて、2009年に実施した航空機観測データの解析を試みた。2009年の観測では核形成モードの粒子を直接測定していないので、モデルで新粒子生成を ON/OFF することで感度実験を行った。その結果を図8に示す。新粒子生成の ON/OFF で大きな差が見られ、さらに ON のケースの方が観測値により近づくことから、新粒子生成がエアロゾル数濃度分布を決める要素として重要であることが示唆された。春季は冬季に比べて光化学活性が急激に増大することから、新粒子生成の重要性が大きかったと推測される。

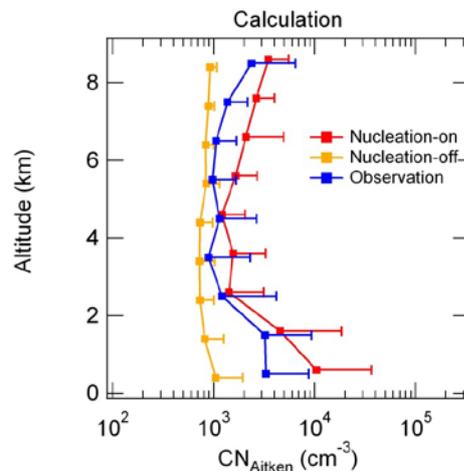


図8. 2009年春季に観測されたエイトケン粒子数濃度についてのモデル再現実験。青は観測値、黄色は新粒子生成 OFF の計算値、赤は新粒子生成 ON の計算値。

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6件) 全て査読有り

- ① Takegawa, N., N. Moteki, M. Koike, N. Oshima, and Y. Kondo, Condensation particle counters combined with a

low-pressure impactor for fast measurement of mode-segregated aerosol number concentration, *Aerosol Sci. Technol.*, in press.

- ② 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.
- ③ 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.
- 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 Takegawa, N. and H. Sakurai (2011), Laboratory evaluation of a TSI condensation particle counter (model 3771) under airborne measurement conditions, *Aerosol Sci. Technol.*, 45, 2, 272-283.

[学会発表] (計 10 件)

- ① Koike, M., N. Takegawa, N. Moteki, Y. Kondo, H. Nakamura, K. Kita, H. Matsui, N. Oshima, M. Kajino, and T. Y. Nakajima, 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, 16th International Conference on Clouds and Precipitation, Leipzig, Germany, August 1, 2012.
- ② Koike, M., N. Takegawa, N. Moteki, Y. Kondo, H. Nakamura, K. Kita, H. Matsui, N. Oshima, M. Kajino, and T. Y. Nakajima Observations of Regional-Scale Impacts on Cloud Microphysics from Anthropogenic

Aerosols and Warm Sea Surface Temperature over the East China Sea 12th IGAC Conference, Beijing, China, September 17-21, 2012.

- ③ 大島 長, 小池 真, 近藤 豊, 茂木 信宏, 中村 尚, 竹川 暢之, 北 和之, 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, 第 17 回大気化学討論会, 京都大学宇治キャンパス, 京都, 2011 年 10 月 19 日.
- ④ 松井 仁志, 小池 真, 近藤 豊, 竹川 暢之, 新粒子生成のエアロゾル数濃度および雲凝結核濃度への影響: 北京域における数値モデル計算, 日本地球惑星科学連合大会 2011 年大会, 幕張メッセ, 千葉, 2011 年 5 月 23 日.
- ⑤ 竹川 暢之, エアロゾルと雲: 分子科学と地球科学の接点, 第 4 回分子科学会シンポジウム, 東京大学, 東京, 2010 年 7 月 10 日 (招待講演).

6. 研究組織

(1) 研究代表者

竹川 暢之 (TAKEGAWA NOBUYUKI)
東京大学・先端科学技術研究センター・
准教授
研究者番号: 00324369

(2) 研究分担者

茂木 信宏 (MOTEGI 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

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

高見 昭憲 (TAKAMI AKINORI)
独立行政法人国立環境研究所・地域環境
研究センター・室長
研究者番号: 00262030

櫻井 博 (SAKURAI HIROMU)
独立行政法人産業技術総合研究所・計測
標準研究部門・研究員
研究者番号: 50392618

(3) 連携研究者

近藤 豊 (KONDO YUTAKA)
東京大学・大学院理学系研究科・教授
研究者番号: 20110752