

論文の内容の要旨

論文題目 Observational studies on wet deposition mechanism of black carbon particles

(ブラックカーボン粒子の湿性除去メカニズムの観測的研究)

氏 名 森 樹 大

1. 背景と目的

化石燃料やバイオマスの燃焼に伴い放出される炭素性エアロゾルの一種であるブラックカーボン（BC）は太陽光を効率的に吸収し、メタンに次ぐ正の放射強制力を持つと推定されている。さらに、水循環や極域雪氷面の融解速度にも影響を及ぼす。現在の数値モデル群では、対流圏中の BC 質量濃度の空間分布の予測値が異なるモデル間で 1 桁以上異なるため、BC による気候影響評価の不確実性は極めて大きい。BC 空間分布のモデル予測における最大の不確実要因の一つは、湿潤対流に伴う BC の湿性除去（と鉛直輸送）過程について、計算資源的な制約から大幅に簡略化した計算手法が用いられていることである。湿性除去過程の再現性能に優れた数値モデルを設計する土台として、実大気の間々の湿潤対流セルにおいて BC 湿性除去効率を決める主な因子が何であるのか、観測から具体的に理解しておくことが必要である。

本研究では、地上大気中と降水中の BC の粒径別数濃度分布の同時観測と雲パーセルモデルを組み合わせた新たなアプローチにより、個々の降水イベントで BC の湿性除去効率とその支配因子の解明を試みる。

2. 手法

本研究では、水中に分散する BC 粒子の粒径別数濃度の測定法を初めて確立した。さらに、BC 粒子の分裂や凝集による粒径変化は、雲粒・降水粒子・捕集した降水試料・分析装置内で起こらないことを実験的・理論的に確かめた。これにより、降水試料中と地上大気中の BC 粒径別数濃度の定量的比較が可能となり、初めて BC の除去効率の粒径依存性を観測できる

ようになった。

降水している雲の中でエアロゾルの除去の効率を決定するのはエアロゾルが水滴（雲粒または雨粒）に取り込まれる段階であり、これは（1）雲粒化、（2）雲粒との衝突、（3）雨粒との衝突の3種のメカニズムのうちいずれかによって起こりうる。BC粒子の水滴取り込み効率の粒径依存性は、これら3種のメカニズムで著しく異なることから、観測されたBCの除去効率の粒径依存性に基づき、実際の降水雲の中で、どの取り込みメカニズムがどの程度寄与しているのかを解析することができる。

2.1. 観測手法

空気中に浮遊するBCの粒径別数濃度と、他のエアロゾル成分によるBC粒子の被覆の厚さは、レーザー誘起白熱法（SP2）を用いて測定した。本研究では、検出光学系の改良によりSP2のBC粒径検出上限を従来の850nmから4000nmまで拡張した。

降水中のBCを空気中に取り出してSP2で測定するために、水試料を噴霧乾燥させてエアロゾルを抽出する装置（粒子抽出装置）を用いる。本研究では、近年製品化された同軸型空気流噴霧方式の粒子抽出装置について、実験・理論的な性能評価を初めて行い、粒径2000nm以下のBCを一様な効率50%で取り出せることを確かめた。

これらの測定法を用いて、地上大気中と降水中のBCの粒径別数濃度の同時測定を行い、BCの湿性除去効率の粒径依存性を観測した。

2.2. データ解析手法

観測された湿性除去効率の粒径依存性に基づき、除去されたBC粒子が経験した水滴取り込みメカニズムとして、（1）雲粒化、（2）雲粒との衝突、（3）雨粒との衝突のうちどれがどの程度寄与したのかを解析するため、雲パーセルモデルを用いたデータ解析手法を開発した。

この解析手法では、直接観測できない上昇流と雲中滞在時間の2変数の値を仮定し、パーセルの中で起こる3種の取り込みメカニズムの寄与を順的に計算する。そして、計算されるBC除去効率の粒径依存性が観測結果の一致するような上昇流と雲中滞在時間の値の組み合わせ、多数の試行計算を繰り返すことで経験的に探る。探索に成功すれば、取り込みメカニズムごとの寄与率を決定できる。上昇流と雲中滞在時間以外を入力パラメータ（エアロゾル濃度や雨粒の粒径別濃度など）の多くは、観測値を与えている。

3. 観測と結果

発生直後のエイジングが進んでいない汚染空気を観測できる東京（本郷キャンパス）と中国起源のエイジングした汚染空気を観測できる沖縄（辺戸岬）において連続観測を行った。東京では湿性除去効率に顕著な粒径依存性が見られるイベントが多く、沖縄では多くのイベントで粒径依存性がほとんど見られなかった。この観測された除去効率の粒径依存性に

に基づき、3 種の水滴取り込みメカニズムのそれぞれの寄与を解析した結果、質量濃度の大部分を占める粒径 100nm 以上の BC では、支配的なメカニズムは雲粒化であることを示した。エイジングに伴い BC の周りの被覆がある程度厚くなると（シェルコア比 $> \sim 1.2$ ）、被覆成分の変動幅や最大過飽和度の変動幅によらず、高い効率で除去されることがわかった。エイジングが進んでいない東京大気中のような裸に近い BC（シェルコア比 < 1.2 ）では、被覆量と被覆成分の変動や最大過飽和度の変動に依存して除去効率が大きく変わることがわかった。

4. 結論

降水性の雲において、雲粒化が主に BC の除去効率を支配するメカニズムであることを明らかにした。除去効率の値は、エイジングが進んだ被覆の厚い BC 粒子（シェルコア比 > 1.2 ）では、被覆成分や最大過飽和度の変動範囲内で、ほぼ 1 である（完全に除去される）ことがわかった。一方、エイジングの進んでいない都市大気などの BC（シェルコア比 < 1.2 ）では、除去効率は被覆成分や最大過飽和度に依存して大きく変動することがわかった。

本研究で解明した、BC 湿性除去効率の支配因子についての定量的知見は、BC 湿性除去過程のモデリング手法の改良するための土台として役に立つと考えられる。