

論文審査の結果の要旨

氏名 小澤優哉

大気エアロゾルには、その光学特性によって加熱効果と冷却効果を持つものがあり、前者の代表格として光吸収性のエアロゾルであるブラックカーボン(BC)、後者の代表格として光散乱性の硫酸塩エアロゾルが重要である。しかしながら、これらが作り出す放射強制力の推定には大きな不確実性が伴っている。その主因のひとつは、BC とその他のエアロゾル成分との混合状態に関する知見が著しく欠如しており、BC の光吸収特性や大気からの除去効率の理解が遅れている点にある。本研究はこのような状況に対して、観測的手法によって BC とその他のエアロゾルの混合状態を定量的に明らかにする目的で行われた。

本論文は6章からなる。BC や他のエアロゾルの重要性と先行研究の問題点を整理した上で研究の動機づけを述べた第1章のイントロダクションに続き、第2章では本研究の理論的基礎が包括的にまとめられている。続く第3章・第4章では、本研究で行われた観測装置の開発改良が記述されている。本研究では、

BC 混合状態別にエアロゾルの化学組成を定量するために、レーザー誘起白熱光分析(LII)と質量分析(MS)を組み合わせた分析手法(LII-MS)を実大気観測に使用可能なものとして実用化した。

第3章では、MS部分について従来存在していた熱分解の温度依存性の問題に対応するために行われた改良について述べられている。まず、硫酸塩を含む各種エアロゾル成分の定量に関わる温度依存性を室内実験によって系統的に調べ、その結果に基づいて粒子を加熱するレーザーの光学系や制御系の改良と最適化を行った。その上で、外気観測によってフィルター捕集・化学分析との比較を通じて不確実性評価を行い、硫酸塩の測定における複数の不確実要因の寄与を定量化した。また、ガス・粒子間の平衡状態が常温付近に強い温度依存性を持つ硝酸塩に対しても、装置の冷却効率を改善することで、安定した硝酸塩の捕集と測定が可能となった。第4章では、改良されたMS部と連結されるLII部について行われたレーザー制御方法の変更や解析方法の整備について述べられている。これによって、LII-MSがシステム全体として安定してBCの混合状態を定量できるようになったほか、LII-MSの総合的な不確実性の評価が行われた。

第5章では、改良されたLII-MSを用いて実施された実大気観測について述べ

られている。観測は、韓国の光州科学技術院において、2016年3-4月の2週間にわたって実施され、実大気中における硫酸塩・硝酸塩の質量濃度が初めてBC混合状態別に実時間定量された。本研究では、この観測データを詳細に解析するとともに、エアロゾルの基本的な微物理成長過程を考慮した理論モデルによって解釈を与えた。その結果、観測期間全体で平均した内部・外部混合別の各エアロゾル成分の組成比は、凝集・凝縮成長から予測されるものと整合的であることがわかった。一方、観測された1時間値には、凝集・凝縮成長のみでは説明できない時間変動が認められ、液相反応や湿性除去過程などの雲に関わる湿潤過程が重要であることが示唆された。このことは、これらの空気塊が大気境界層内の高い相対湿度や自由対流圏からの輸送を経験した可能性が後方流跡線解析により示されたことから支持された。

第6章では、研究のまとめと本研究の成果を踏まえた今後の課題および展望について述べられている。特に、本研究で開発改良された実大気での実時間定量手法をさらに多くの地点での観測に適用することの意義、さらには数値モデルにおけるBC混合状態のより精緻な扱いの必要性が提案されている。

本研究は、BC混合状態を定量するための測器の開発改良を独自に行い、測定

の不確実性を系統的に評価した上で、それを実大気観測に実際に適用することで硫酸塩・硝酸塩の BC 混合状態別の組成比を初めて実時間定量した価値の高い研究である。特に、BC の他のエアロゾル成分との混合状態は、数値モデルにおける適切な表現が極めて難しいものであり、本研究で得られた現場観測の結果はモデルを評価・検証する上で極めて有用な情報を与える。本研究で確立された測定手法を今後様々な地点での観測に適用することで、BC の混合状態も含めた広域での動態把握が大きく進展していくものと期待される。

なお、本研究の第 3・4・5 章は、武田直希・宮川拓真・武居正彦・平山紀友・小池真・大泉智隆・竹川暢之・Kwangyul Lee・Hee-Joo Cho・Kihong Park の各氏との複数の共著論文として既に出版済みまたは出版予定であるが、論文提出者が主体となって問題設定、測器の改良、データ解析、数値モデル計算、研究の取りまとめを行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。従って、論文提出者に博士（理学）の学位を授与できると認める。