

# 論文審査の結果の要旨

氏名 大畑 祥

本論文は、ブラックカーボンエアロゾル(BC)の吸湿特性と降水中の BC を測定する装置・手法をそれぞれ開発し、それらの装置を使った大気と降水の BC 粒径分布の世界初の同時観測により、強い地球温暖化効果をもつ BC の大気からの除去過程の吸湿特性依存性を明らかとしたものである。化石燃料やバイオマスの不完全燃焼によって生じる BC は、太陽光を強く吸収するために強い正の放射強制力をもつが、その推定には大きな不確実性がある。その最大不確定要因は、BC の大気からの湿性除去過程である。BC は疎水性であるが、大気中を輸送される過程で気体成分の凝縮や他のエアロゾルとの凝集(エイジング過程)により、親水性の被覆を持つようになる。BC とその被覆成分から成る内部混合粒子(BC 含有粒子)は吸湿成長して雲粒となり、降水過程を経て大気から除去される。この除去効率には BC 含有粒子の吸湿特性に依存し、大気中の BC 濃度や空間分布を強く支配する。

本研究では、BC 含有粒子の湿性除去を解明するために、第一に、エアロゾルの吸湿特性を BC と BC 以外に分離して測定する新しい測定システムの開発を行った。既存の BC 分析装置 Single Particle Soot Photometer (SP2)を改造し、測定空気の相対湿度制御機能を追加した humidified-SP2(h-SP2)を開発した。h-SP2 は、レーザー内に導入された個々の BC 含有粒子の発する白熱光と散乱光を検出し、任意の相対湿度における BC 質量と被覆量をオンラインで測定する装置である。既存のエアロゾル質量分級装置と h-SP2 を組み合わせることにより、各エアロゾルの吸湿特性を BC 含有量毎に測定することが可能となった。新たに開発した h-SP2 により実験室で発生させた硫酸アンモニウム粒子ならびに BC-硫酸アンモニウム混合粒子の吸湿成長率を測定し、 $\kappa$ -Köhler 理論と比較することにより検証を行った。

本研究では第二に、雨水・雪サンプル中の BC の質量濃度・数粒径分布を測定する新しい手法を開発しその評価を行った。本手法では、ネブライザーにより水サンプルを霧状の液滴に変換し、気流中で蒸発させることで大気中に取り出した BC を SP2 で分析する手法を採用した。ネブライザーによる水サンプルから大気への粒子の抽出効率やその粒径依存性を実験的に決定し、また本測定手法の精度の見積を行った。

第三に、開発したこれらの吸湿特性・降水中 BC の測定法を用い、BC 発生源の近傍である東京において 2014 年の夏に世界初の大气・降水の同時観測を行った。そして h-SP2 により、BC 含有粒子・BC 非含有粒子(BC-free 粒子)の吸湿特性の詳細な時間変化を分離測定することに初めて成功した。被覆の厚い BC ほど吸湿成長率が高く、また観測サイトが BC 発生源近傍であるため観測期間を通じて吸湿成長率の低い BC 含有粒子の数が 7 割以上を占めた。さらに BC の被覆成分と BC-free 粒子の組成は基本的に同一と見なせることがわかった。これらの結果から、降水により粒径が大きい BC が選択的に除去される可能性が明らかとなった。

第四に、これらの BC 含有粒子の吸湿特性測定とは独立に、降水中の BC 粒径分布測定を同時に行った。この結果、BC 含有粒子の吸湿特性と整合的に、粒径が大きい BC が選択的に除去されていることが明らかとなった。降水開始前の大気中の BC 含有粒子の臨界過飽和度の推定値から、BC 含有粒子が大気中で経験した最大過飽和度の中央値が 0.1% 程度であったとすれば、相対的な除去効率の BC 粒径依存性を説明可能であることが分かった。過飽和度 0.1% で雲凝結核として作用する BC 含有粒子の数割合は、BC 粒径 200–350 nm の粒子の内 27–45% にとどまると推定され、BC 発生源である東京近傍では粒径が小さい BC が降水イベント時に効率良く鉛直輸送されることを示唆している。

以上のように本研究では、新しい測定器と測定手法の開発により世界で始めて大気中 BC の吸湿特性と降水中 BC の粒径分布を同時観測することに成功した。そして両観測から粒径の大きな BC が降水により選択的に除去されるという整合的な結果を示した。この結果は、BC の放射強制力推定の不確定性を大きく改善する重要なものと位置づけられる。本研究はこれまで確証がなかった BC のエイジング、雲粒への活性化、そして降水除去過程の数値モデル計算に実証的な根拠を与えたものであり、高く評価できる。

なお、本論文の内容に関連した内容の一部は、学術論文誌 *Aerosol Science Technology* の 2 本の論文として発表済みであるが、この論文は論文提出者が第一著者であり、主体となって解析・解釈を行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

従って、博士(理学)の学位を授与できると認める。