

# 論文審査の結果の要旨

氏名 大島 長

本論文では、大気中に存在するブラックカーボン (BC) エアロゾルが他の水溶性エアロゾル成分によって被覆される混合状態を陽に表現する新たなボックスモデルを開発した。このモデルを用いた計算と観測結果との比較から、都市域で発生する BC の混合状態の時間変化の機構を解明し、それに伴う BC の光学特性、雲凝結核特性の変化を解明した。

BC エアロゾルは太陽放射を効率的に吸収することから、気候影響を評価する際に極めて重要なエアロゾルであり、硫酸塩アンモニウムなどの水溶性エアロゾル成分によって被覆されることにより、光吸収率と湿性沈着に伴う除去率が増大する。本研究では、エアロゾルの各成分量を、粒径と粒子中の BC の質量比率に対して与える新しいボックスモデル MADRID-BC を開発した。また、様々な粒径の BC 粒子が共存した状態での凝縮成分の分配を正確に計算する質量輸送の計算手法を本モデルに導入した。

開発した MADRID-BC ボックスモデルを用いて、日本の都市域で生成し、海上に輸送される全 BC 粒子に対する厚く被覆された BC 粒子の割合の時間的な変化を計算した。この計算結果は、航空機による観測値を良い精度で再現できることを示した。このことから、BC の混合状態の変化が主に凝縮過程により説明可能であることが示された。このモデルにより、BC コア直径が 100-200 nm の粒子では、被覆物質を含む粒子直径のコア直径に対する比率は、発生源から輸送された直後の空気塊中ではすでに 1.6 倍に増大しており、海上を半日程度輸送された空気塊中では 1.9 倍にまで増大していたと予測された。また、粒径が小さい BC 粒子ほど凝縮による被覆の成長比率が大きいことも示された。

次に、エアロゾルをコア・シェル型として扱うミー理論を用いて、エアロゾルの光学特性の計算を行った。この結果、BC の光吸収率は BC が被覆されることにより被覆がない BC と比較して、発生源から輸送された直後の空気塊中では 38%、海上を半日程度輸送された空気塊中では 59%とそれぞれ増大していた。また、全てのエアロゾル成分が BC を被覆していると仮定して計算を行った結果、単一散乱アルベドを大幅に過小評価した。これらの結果から、BC を含むエアロゾル以外に、BC を含まないエアロゾルを BC の混合状態やエアロゾル光学特性の見積もりにおいて考慮することが本質的に重要であることが示された。

さらに、ケーラー理論を用いて雲凝結核特性の推定を行った結果、発生源から海上を半日程度輸送された空気塊中においては、全 BC 質量のうち約 80% が過飽和度 0.05% で雲粒化することが明らかとなった。BC が自由対流圏中での速い水平風により広域輸送されるためにはまず境界層内から上方輸送される必要があるが、本研究で得られた結果は、発生源近傍での BC の鉛直輸送が BC の長距離輸送にとって重要であることを示している。

雲中、及び雲底下での降水に伴う BC の除去過程 (湿性沈着) を扱う計算手法を開発し、MADRID-BC ボックス (トラジェクトリー) モデルに導入した。都市域から大気境界層内を通過して海上を輸送中に湿性沈着の影響を受けたと考えられる空気塊に対する計算結果を観測値と比較し、湿性沈着による BC 濃度の減少をモデル計算は再現できることを確認した。このことから、モデルでの正確な BC の混合状態の表現と適切な湿性沈着過程の取り扱いの両方が、BC の空間分布を推定する上で本質的に重要であることが示された。

本研究では、領域モデルや全球モデルで使用可能な、大気中に排出された疎水性 BC 粒子が凝縮過程により雲凝結核特性を持つまでの時定数を推定する新しいパラメタリゼーションを開発した。この時定数は、被覆成分の生成速度を BC の総量で規格化することで表現されており、汚染大気から清浄な大気までのあらゆる条件下において、疎水性から親水性への BC の変換速度として使用することを可能にする、極めて有用なパラメータであることが示された。

したがって、博士 (理学) の学位を授与できると認める。