

ブラックカーボン含有粒子の測定を利用した エアロゾルの湿性除去効率の粒径依存性の観測的実証

—2013年度山本・正野論文賞受賞記念講演—

茂 木 信 宏*

1. はじめに

この度は名誉ある山本・正野論文賞を授与頂き誠に光栄に存じます。少しばかり恐縮も感じておりますが、今後より一層気を引き締めて研究に取り組んで行く所存です。観測研究は、大勢の研究者・技術者が分業協力することで初めて可能なものであり、私が貢献しましたのは成果が出るまでに必須だった仕事のうちの少しばかりです。このたびの受賞は、研究に関わった多くの方々のうち、たまたま私が代表して拝受したものと考えています。

受賞対象となりました論文 (Moteki *et al.* 2012) の学術成果は、「大気境界層内の汚染空気塊が湿潤対流を経験するとき、その空気塊が含むエアロゾルのうち、より大きな粒子が優先的に湿性除去され、より小さな粒子が優先的に自由対流圏まで運ばれる」という現象を、モデルを介さない純粋な観測的方法で発見したというものです。研究成果はこの一文で要約できる単純なものです。

以下本文では、この発見の意義とそれを可能にした手法について、あまり技術的詳細には立ち入らずに解説させていただきます。

2. 研究の背景

2.1 エアロゾルの気候影響

二酸化炭素をはじめとする人為起源温室効果ガスの

放出に起因する温暖化の影響は、すでに海面水位の上昇や北極域の海水面積の減少として顕著に現れ始めていますが、全球域の気温上昇としては今世紀後半から顕著に現れると推定されています。より適切な政策判断のためにも、過去から現在までの気候変動の要因別評価の精度を可能な限り上げ、気候変動予測の科学的根拠と定量性を保証することが求められています。1750年に対する2011年までの人為・自然の外要因による放射強制力の推定では、人為起源エアロゾル（雲との相互作用を含む）による放射強制力は -0.9 [$-1.9 \sim -0.1$] Wm^{-2} と依然として大きな不確定幅があり、全放射強制力 $+2.29$ [$+1.13 \sim +3.33$] Wm^{-2} の不確定幅に主要な寄与をしています (IPCC 2013)。この放射強制力の不確定幅に示されるように、人為起源エアロゾル（雲との相互作用を含む）の科学的理解の不確実性は、気候予測の高精度化における大きな障壁になっていると言えます。エアロゾルの放射効果と雲との相互作用についての定量的理解が難しい理由について、以下2.2節で考察してみます。

2.2 微粒子領域の空白

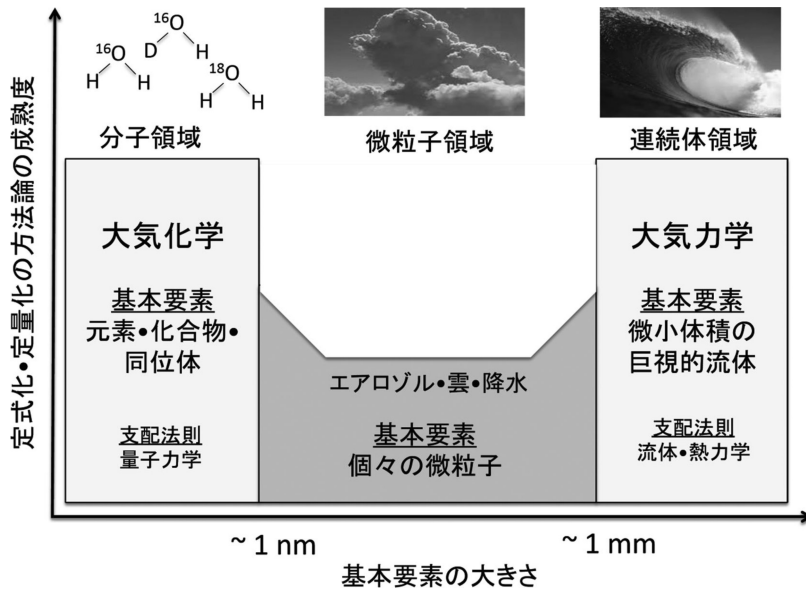
第1図は、気象学を基本要素が本質的に異なる3つの学術領域：分子領域、微粒子領域、連続体領域に分類した模式図です。ここにおける基本要素とは、理論的取り扱いと観測の観点からそれ以上細かく分割することは不可能あるいは無意味である「もの」の事を指します。元素・化合物・同位体（おおよそ1 nm以下の大きさ）が基本要素である分子領域では、それらの基本要素を質量分析や分光法で定量的に測定し、量子力学の法則や室内実験に基づいて実大気の現象を予測することが可能です。一方で、無数の気体分子を含みかつ内部が一様とみなせるほどに小さな流体の体積要

* 東京大学大学院理学系研究科地球惑星科学専攻。

moteki@eps.s.u-tokyo.ac.jp

—2014年1月8日受領—

—2014年1月24日受理—



第1図 気象学を理論的取り扱いや観測における基本要素が質的に異なる3つの学術領域：分子領域、微粒子領域、連続体領域に分類した模式図。横軸は基本要素の典型的な大きさを示し、縦軸は定量化や定式化のための方法論の成熟度を表す。

素（おおよそ1 mm以上の大きさ）が基本要素である連続体領域では、温度・圧力・運動量などの巨視的物理量が定義され、流体力学と熱力学の法則とその数値シミュレーションによって実大気の状態を予測することが可能です。ここでは、分子領域、連続体領域の気象学をそれぞれ大気化学、大気力学と呼ぶことにします。大気化学・大気力学では、基本的な研究手法は20世紀後半までにはほぼ成熟し、それを応用して現在までに多くの複雑な現象が解明されてきました。とりわけ、人為起源物質による気候変動の定量的議論は大気化学・大気力学それぞれの成熟と統合によって初めて可能になったと言えます。

大気中に浮遊する微粒子であるエアロゾルや雲は、分子領域と連続体領域のいずれとも基本要素が質的に異なる微粒子領域の研究対象であり、そこでは個々の粒子（おおよそ1 nmから1 mmまでの大きさ）が基本要素です。微粒子領域ではそれぞれの基本要素が異なる粒径・組成・混合状態・形状をもち、それらが時々刻々と変化してゆくために、基本要素それ自体がとても複雑なものです。また、個々の粒子や粒子集団の振る舞いを支配する法則は、量子力学（化学）・熱力学・電磁気学・流体力学が組合わさったものとなり煩

雑です。エアロゾルや雲の研究を第一原理に忠実に実行しようとすると、上記のように観測と理論のいずれにおいても超多自由度という原理的な困難に直面します。観測や理論における自由度がほぼ自然に決められている分子領域・連続体領域とは対照的に、微粒子領域では、実際に観測や理論を適用するとき、人間が取り扱える程度にまで能動的に自由度を低減する必要があります。しかしそれは出来るとしても簡単とは限らず、原理的に可能かどうか議論されるべきことです。成功事例としては、エアロゾルの放射特性や雲凝結核能を推定するために、複雑な化学組成の情報を、

複素屈折率と吸湿パラメータ (κ : Petters and Kreidenweis 2007) という少ない自由度に低減する方法が挙げられます。重要性は高いけれども可能かどうか分からない事例として、エアロゾルの氷晶核能を少ない自由度で定量的に記述することが挙げられます。今後、定量性を出来るだけ損なわないような微粒子領域における自由度低減の方法論を能動的に研究・開発し、その研究成果を気候モデルへ反映させていくことが、エアロゾル・雲とその気候影響の理解を本質的に向上させることになると考えられます。

次の第3節から受賞対象となった研究の解説に入ります。エアロゾルの気候影響の予測において大きな不確定要素となっているエアロゾルの輸送と除去過程の理解を向上させるための研究です。第3節では導入、問題提起、研究手法を述べ、第4節では観測とその結果について解説します。

3. エアロゾルの輸送・除去過程

3.1 湿潤対流

大気汚染物質の時空間分布は放出・二次生成・輸送・除去の組み合わせで決まります。ここで二次生成とは、前駆体物質の大気中での化学反応により新たに生

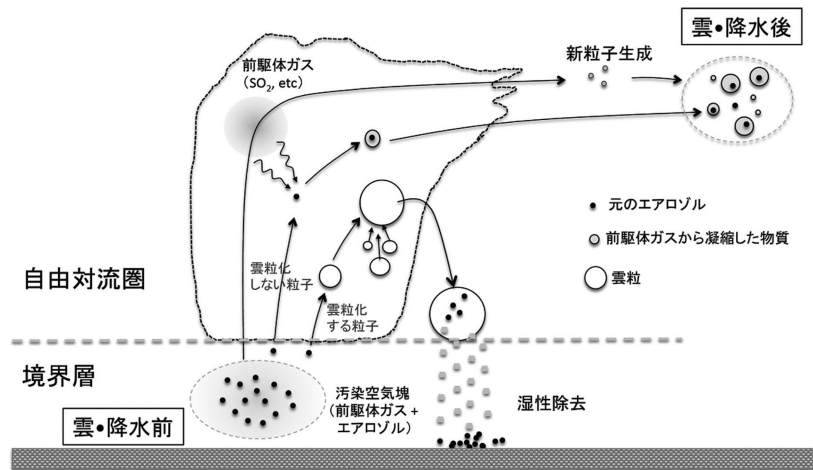
成することを指します。エアロゾルの二次生成においては、二次生成成分が既存の粒子の表面に凝縮することに加え、気相中で核形成を起こし新粒子が生成することもあります。エアロゾルの場合、二次生成・輸送・除去において湿潤対流が重要な役割を担っています(第2図)。

エアロゾルを含んだ汚染空気塊が湿潤対流を経験するとき、一部のエアロゾルは雲凝結核として雲水に取り込まれ(nucleation scavenging)、氷晶核となる非水溶性の固体エアロゾルを含む水雲の一部は氷点

下で凍結して氷晶となり、それらの水雲や水雲の粒子が衝突併合により成長して降水粒子(雨・雪)となります。また、重力落下する雲・降水粒子は下方のエアロゾルを衝突併合によって取り込み(impaction scavenging) 地表面へ沈着させます。これら湿潤対流に伴うエアロゾルの除去を湿性除去といい、地球大気のエアロゾルの主要な消失過程です。エアロゾル・雲・降水微物理モデルを用いた過去の研究によれば、湿潤対流におけるエアロゾルの湿性除去の効率は主に nucleation scavenging の効率で決まると推察されています(Flossmann *et al.* 1985; Alheit *et al.* 1990)。

境界層内の汚染空気を含むエアロゾルのうち、湿潤対流において湿性除去を免れたエアロゾルは自由対流圏まで運ばれます。自由対流圏におけるエアロゾル濃度は、境界層から自由対流圏への粒子と前駆体ガスの鉛直輸送量で決まります。

上記のように、湿潤対流に伴うエアロゾルの湿性除去・鉛直輸送に関して理論的枠組みは存在するものの、観測に基づいた定量的理解は現在のところ不十分です。そのため、エアロゾルの空間分布を数値モデルでシミュレーションする試みにおいて、湿性除去・鉛直輸送過程は大きな不確実要因となっています(Textor *et al.* 2006)。「湿潤対流において、どのような粒子が湿性除去されやすく、どのような粒子が自由対流圏へ輸送されやすいのか」についての観測的証拠



第2図 湿潤対流におけるエアロゾルの鉛直輸送・湿性除去過程の模式図。氷晶が関わる過程や、雲粒が蒸発してエアロゾルが再生成する過程も実際の湿潤対流では起こるが、ここでは図の煩雑さを避けるために省略している。

は、近年開発が進んでいる、粒径分布などの微物理特性まで考慮した数値モデルの検証材料として必要です。しかし、以下に説明するように、実際に観測的証拠を得ることは非常に困難で、これまでに成功した前例がないのです。

第2図に示すように、境界層内の雲・降水前の汚染空気塊と自由対流圏に輸送された雲・降水後の汚染空気塊を観測し、両者を比較するとします。一般に、雲・降水後の汚染空気塊には、雲・降水前の汚染空気塊が含んでいた粒子のうち湿性除去を免れたものに加え、二次生成成分に被覆され太った粒子や新生粒子が含まれています。従って、雲・降水前後の汚染空気塊が含むエアロゾルについて、質量濃度・粒径分布・化学組成などの観測量を比較しても、雲・降水前に存在した粒子のうち、どの粒子が除去され、どの粒子が生き残ったのかを判断することは一般にできないのです。この判断を可能にするためには、雲・降水前から雲・降水後の状態まで、何らかの手段で粒子を追跡する必要があります。粒子を追跡する方法の可能性について、以下の3.2節で検討します。

3.2 追跡子：物質輸送研究の鍵

物質輸送を観測するための鍵となるものが追跡子です。追跡子は tracer (トレーサー) とも呼ばれます。追跡子は、空気塊や特定の物質を追跡するために使われる、保存的かつ観測可能な量として定義されます。

一般の空気塊の移流や対流の解析に広く利用される追跡子としては、摩擦のない断熱過程で保存される温位や渦位が挙げられます。これらは力学的な量であるため力学追跡子と呼ぶことにします。また、汚染空気塊の移流・拡散を追跡するには、その汚染空気塊に特徴的な分子種や元素の濃度が追跡子として用いられます。燃烧起源の汚染空気では一酸化炭素や低分子量の炭化水素が追跡子に用いられる代表的な化学種です。これらを化学追跡子と呼ぶことにします。

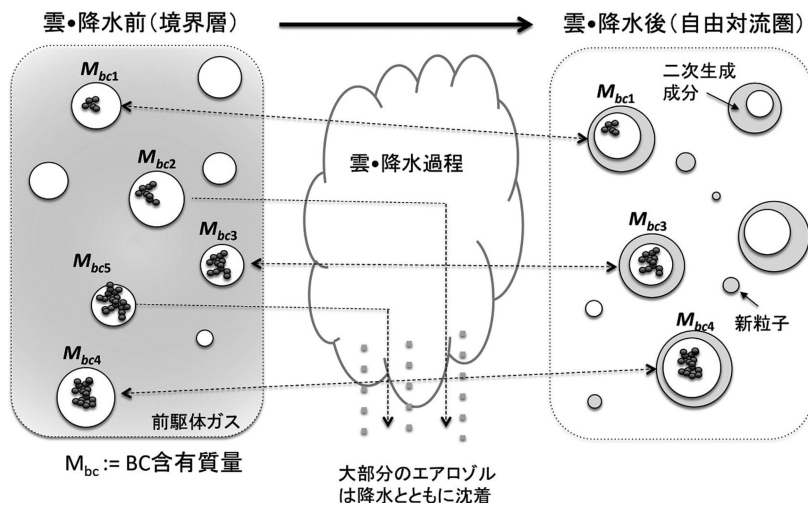
物質輸送の研究は、力学追跡子や化学追跡子を適切に定義した上でそれを観測し、追跡子の観測結果を検証データとして輸送現象の理論的記述を行うことと言えます。ただし、ある初期状態で定義した力学追跡子や化学追跡子はいずれも時間経過とともに散逸してしまうため、追跡子の有効範囲については状況に応じた診断をする必要があります。

それでは、前3.1節の最後に必要性を述べた、粒子を追跡する方法は可能なのでしょうか？ 従来の力学・化学追跡子に加え、「粒子追跡子」の可能性を検討することになります。しかし、第1図が暗示するように、微粒子領域で追跡子を定義するのは、分子領域の化学追跡子や連続体領域の力学追跡子に比べてずっと難しくそうです。粒子追跡子の必要条件は、粒子ごとに保存性があり、それが観測可能であることです。さらに、全ての粒子を追跡するのは超多自由度となり現実

的に不可能なので、何らかの方法で自由度を低減する方法が必要です。自由度を低減させる方法の1つは、追跡子と粒子を一対一に対応させるのではなく、各々の追跡子をそれぞれ多数の粒子を含む排他的な部分集合に対応させ、追跡子で標識をつけた部分集合(粒子群)ごとに追跡を行うことです。これは、粒子法によるエアロゾルや雲の微物理過程のシミュレーションの計算省力化に使われている、重み付き粒子の方法(例えば Shima *et al.* 2009; DeVille *et al.* 2011)と似た概念です。

3.3 粒子追跡子の具現化

含炭素物質の燃烧により放出されるエアロゾルの主要成分の1つであるブラックカーボン(Black Carbon: 以下 BC)は、直径数十 nm 以下の微小炭素球の凝集体で、水に溶けず化学的に安定です。大気中のエアロゾルは一般に粒子同士の凝集や二次生成成分の凝縮により複数の成分の内部混合が進むため、放出直後を除き BC は他の成分(硫酸塩や有機物等)に被覆された状態で存在しています。BC を含む任意の粒子を BC 含有粒子と呼ぶことにします。水溶性成分を含む BC 含有粒子は水溶性成分からなる粒子と同様、効率的な雲凝結核となります。私は、個々の BC 含有粒子の全体粒径と BC 含有質量 M_{bc} を同時にかつ高速($\sim 10^3$ 粒子/秒)に測定する方法を開発しました(付録 A1)。



第3図 雲・降水前後の空気塊の比較により湿性除去の粒子依存性を調べる観測法の模式図。粒子追跡子 M_{bc} を導入することで、雲・降水前に観測された粒子のうち、どの粒子が雲・降水後に残存しているかを判定することが可能。

BC 含有質量 M_{bc} は、BC 含有粒子同士の凝集が無視できるような条件下で、粒子追跡子の必要条件である粒子ごとの保存性と観測可能性を満たします(これら定義上の必要条件に加え、高速かつ自動で分析可能という実用上の必要条件も満たす大気エアロゾル成分は、現在のところ BC 以外には存在しません)。凝集が無視できるためには、BC 含有粒子の数濃度がそれほど高くないか、追跡する時間が短いという条件が十分です。測定分解能の範囲内で等しいとみなされる M_{bc} をもつ粒子

は空気塊内に多数存在します。従って、 M_{bc} を粒子追跡子として用いることは、各々の追跡子をそれぞれ多数の粒子を含む粒子群に対応させ、各々の粒子群ごとに追跡をすることになります。これは3.2節で述べた自由度低減の方法を自然に実現したものとなっています。

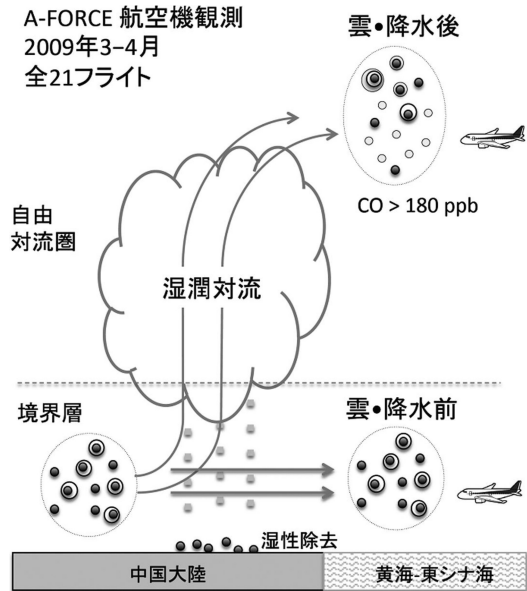
第3図に模式的に示したように、 M_{bc} を粒子追跡子として雲・降水前後の空気塊の比較観測を行うことで、どのようなBC含有粒子が湿性除去されやすいかを調べることが可能です。次の第4節では、この方法を実大気観測に適用した最初の事例、すなわち受賞対象論文 Moteki *et al.* (2012) の観測について紹介します。

4. 湿性除去の粒子依存性の実証

4.1 観測の概要

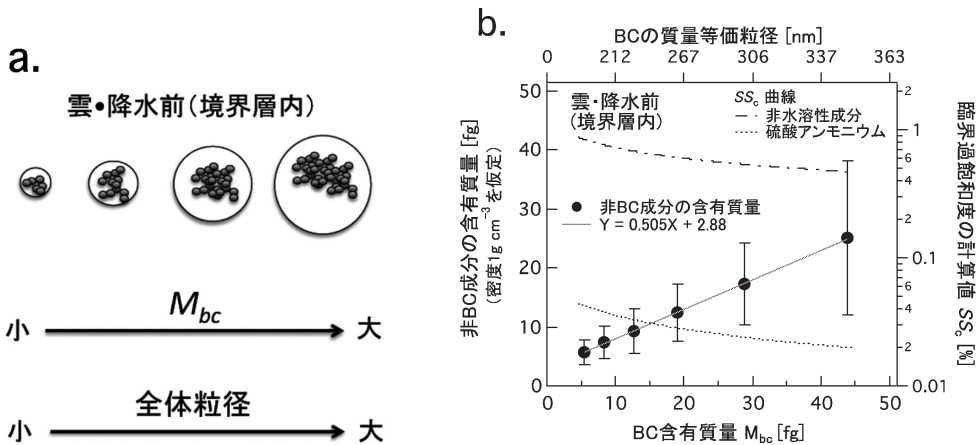
第4図に模式的に示したように、2009年3-4月の期間、黄海・東シナ海上空において、中国大陸起源の汚染空気の航空機観測を行い、汚染空気塊の輸送経路や湿潤過程の履歴を後方流跡線解析によって推定しました(詳細は Oshima *et al.* (2012), Moteki *et al.* (2012) を参照)。放出後、湿潤対流を経験せずに境界層内を黄海・東シナ海上まで移流した汚染空気塊を「雲・降水前の汚染空気塊」と定義し、中国大陸上の湿潤対流によって境界層から自由対流圏へ鉛直輸送された後、偏西風で黄海・東シナ海上空まで移流した汚染空気塊(CO>180 ppbv)を「雲・降水後の汚染空気塊」と定義しました。「雲・降水後の汚染空気塊」が湿潤対流において受けたBC含有粒子の湿性除去の度合いを表す指標として、BC質量残存率を用います。BC質量残存率は、BCとCOの清浄大気のバックグラウンドを差し引いた後の観測濃度比($\Delta BC / \Delta CO$)について、「雲・降水後の汚染空気塊」の観測値を「雲・降水前の汚染空気塊」の観測値で割った値として定義しました。BC質量残存率が1に近い場合は湿性除去をほとんど受けなかったことを意味し、0に近い場合はほぼ全て湿性除去されたことを意味します。BC質量残存率は、後方流跡線上で空気塊が経験した降水量の積算値(数値気象モデルで推定)と負の相関を持つことが示されています(Oshima *et al.* 2012)。

ここで定義した「雲・降水前の汚染空気塊」は、エアロゾルの微物理特性について「雲・降水後の汚染空気塊」の湿潤対流前の初期状態を表すものと仮定しま



第4図 湿性除去の粒子依存性を調べるために行った航空機観測の模式図。図中の矢印線は後方流跡線解析により推定された観測空気塊の輸送経路を模式的に表したものである。中国大陸起源の汚染空気について、湿潤対流を経て自由対流圏に輸送された空気塊のうちCO>180 ppbvのものを「雲・降水後の汚染空気塊」として定義した。「雲・降水後の汚染空気塊」の、湿潤対流前の初期状態を代表すると考えられる空気塊として、放出後、湿潤過程を経ずに境界層内を観測地点まで移流してきたものを「雲・降水前の汚染空気塊」として定義した。

す。この仮定の現実性は、経験した積算降水量が非常に少ない「雲・降水後の汚染空気塊」ではBC質量残存率が1に近く、かつBCの粒径分布が「雲・降水前の汚染空気塊」のそれと良く一致するという2つの観測的証拠から支持されます(Oshima *et al.* 2012; Moteki *et al.* 2012)。凝集過程の理論計算により、観測された「雲・降水後の汚染空気塊」のBC含有粒子数濃度と経過時間(<~2 days)の範囲内において、BC含有粒子同士の凝集は無視できるほど小さいことが示されました(計算は松井仁志博士による)。これらの観測的・理論的根拠のもと、第3図のように M_{bc} を粒子追跡子として雲・降水前後の汚染空気塊の観測結果を比較し、どの粒子が雲・降水過程で残存したのか(除去されたのか)を解析しました。



第5図 「雲・降水前の汚染空気塊」で観測されたBC含有粒子の微物理特性。(a) BC含有質量 M_{bc} と全体粒径の相関関係の観測結果の模式図。(b) 観測された全体粒径から算出した非BC成分の含有質量と M_{bc} の関係。マーカーとエラーバーは観測値の平均と標準偏差。非BC成分の組成として非水溶性成分または硫酸アンモニウムを仮定したときのBC含有粒子の臨界過飽和度の計算値を右軸に示した。

4.2 観測の結果

第5図に示すように、「雲・降水前の汚染空気塊」では、BC含有粒子のうち M_{bc} が大きな粒子ほど全体粒径（あるいは非BC成分の含有質量）が大きいうちという相関関係が観測されました。BC含有粒子内の非BC成分の化学組成が M_{bc} に強く依存しないと仮定すると、 M_{bc} の大きなBC含有粒子ほど臨界過飽和度が低い（雲凝結核能が高い）ことになります。

第6図aは、「雲・降水後の汚染空気塊」の60秒積算データ227個についての、BC含有粒子の M_{bc} の平均値とBC質量残存率の散布図です。この図は、「雲・降水後の汚染空気塊」のうち、BC含有粒子の湿性除去をより多く受けた空気塊ほど、 M_{bc} の平均値が小さくなることを統計的に示しています。第6図bは、第6図aに示した60秒積算データ227個をBC質量残存率で3階級に分けた後、階級ごとに、BC含有粒子の数残存率の中央値を粒子追跡子 M_{bc} の関数としてプロットしたものです（数残存率は質量残存率の定義においてBC質量をBC含有粒子数に置き換えたものとして定義しました）。この図は、 M_{bc} の大きなBC含有粒子（即ち全体粒径の大きなBC含有粒子）ほど、雲・降水後の数濃度残存率が低い、すなわち効率的に湿性除去を受けたことを示しています。

4.3 観測から導かれる結論

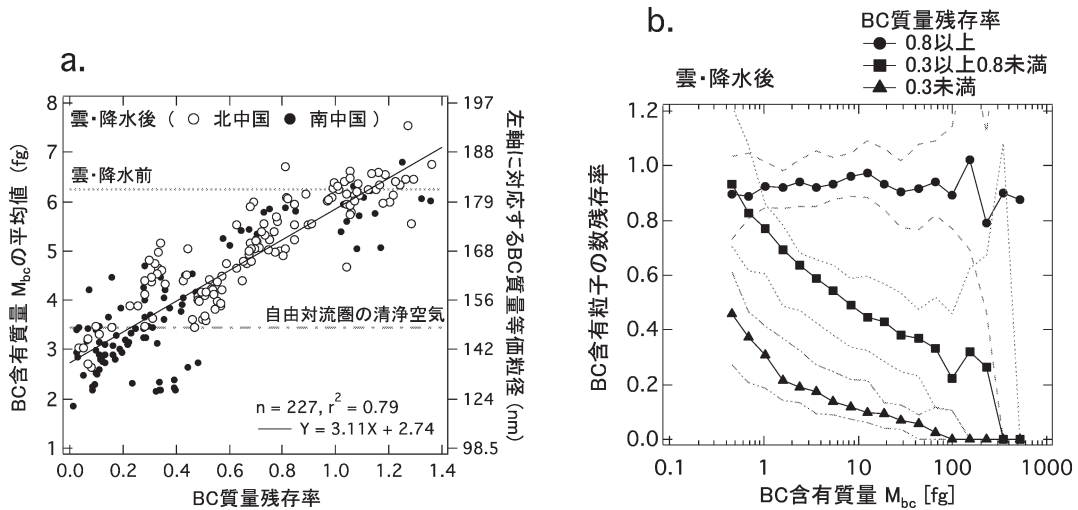
M_{bc} という粒子追跡子を導入することで、BC含有粒子のうち、全体粒径のより大きな粒子が優先的に湿

性除去を受けることが観測的に実証されました。これは、BCと内部混合している非BC成分の親水性が M_{bc} に強く依存しないという現実的な仮定のもと、より雲凝結核能の高い粒子が優先的に湿性除去を受けたことを意味します。これは、湿潤対流において湿性除去の効率を支配する機構が nucleation scavenging であるという理論的仮説（例えば Flossmann *et al.* 1985; Alheit *et al.* 1990）と整合的な結果です。

5. 本研究の課題と発展可能性

本研究では、航空機観測の実施の制約上、雲・降水後の汚染空気塊とその汚染空気塊の初期状態を代表すると考えられる別の汚染空気塊の比較観測を行いました。今後、より進んだ定量的研究を行う場合は、同じ汚染空気塊についてラグランジュ的な観測を行うべきです。

近年、数十万個を超える数の粒子の集団について、粒子ごとの物理化学的状態とその時間発展をシミュレーションできる粒子法の数値モデルが開発されています (Riemer *et al.* 2009; DeVille *et al.* 2011)。このような粒子法モデルを利用することで、本研究で概念提起・試用した M_{bc} を粒子追跡子とする方法の適用可能条件や誤差を理論的に調べるのが可能です。粒子追跡子という方法論は、従来の質量濃度や粒径分布などのバルク量よりも基本的な、粒子レベルにおける観測と数値モデルの相互比較の可能性を開くものです。



第6図 BC含有粒子の湿性除去の粒子依存性を示す観測結果。(a)「雲・降水後の汚染空気塊」の M_{bc} の平均値とBC質量残存率の散布図。個々のマーカーは60秒積算の観測データを示す。北中国, 南中国はそれぞれ33°N以北, 33°N以南の中国大陸上において湿潤対流を経験した空気塊を示す。「雲・降水前の汚染空気塊」と自由対流圏の清浄空気における M_{bc} の平均値も横線として図示した。(b) a図に示した「雲・降水後の汚染空気塊」について, BC質量残存率を3階級に分けた後, 各々の階級内のデータについてBC含有粒子の数残存率を M_{bc} の関数としてプロットしたもの。マーカーとそれを上下で囲む細線は, 中央値と25-75パーセントイルの範囲を示す。

今後BC含有粒子について, 粒子追跡子 M_{bc} と同時に, 全体粒径だけでなく吸湿パラメータも測定する手法を開発できれば, 大気中における雲凝結核特性や光学特性の粒子ごとの時間発展や, 湿潤対流における湿性除去・鉛直輸送の粒子選択性についてより定量的な観測研究ができるようになるはずで

6. 研究としての観測

観測研究を今後より一層好奇心を掻き立てるような方向へ発展させて行きたいという抱負として, 「研究としての観測」の目的と価値について私見を述べたいと思います。研究としての観測の目的は, 数学者の格言“Don't give us numbers: give us insight!”と同様の意味で, データ (numbers) の提示そのものではなく, 新たな insight を提示することです。限られた観測事実から提唱される仮説は, 理論やモデルとは異なり, 論理的欠陥のない形式で主張できるものではありません。しかし, 既成理論の範疇外の, 意外性を伴う新概念は, 新しい観測手法とそれによって得られる新しいデータから萌芽するものです。新しい観測手法を創案・開発するためには気象学とは直接関係ない分野の勉強や研究をする必要がありますし, いざ観測で

は面白いデータがとれるか分かりません。しかし, このように遠回りの方法でしか得られない新しい観測事実にもとづいた新しい insight の提示は, 気象学を含め科学の進展の原動力であると思います。

謝辞

私を大気物質科学の研究に導いて下さり, ご指導や助力を頂きました近藤 豊教授 (東京大学理学系研究科), 小池 真准教授 (同), 竹川暢之准教授 (同先端科学技術研究センター) には心より感謝いたします。航空機で観測された空気塊の発生源・輸送過程の解析は, 共著者である大島 長博士 (気象研究所) によるもので, その成果を利用して頂きましたことに深く感謝いたします。北 和之教授 (茨城大学理学部) には, 航空機観測において汚染空気塊の化学追跡子として必要な一酸化炭素の高精度な測定をして頂き, 深く感謝いたします。航空機観測における気象場の診断では, 中村 尚教授 (東京大学先端科学技術研究センター) にご助力頂きました。また, 観測前日までに飛行経路を決めるために必須である汚染空気場の数値予報では, 梶野瑞王博士 (気象研究所), 大島 長博士 (同), 松井仁志博士 (海洋研究開発機構) に大変お世

話になりました。米国海洋大気局 (NOAA) の J. P. Schwarz 博士, R.-S. Gao 博士, D. Fahey 博士には、ブラックカーボン含有粒子の測定法の開発過程において、相互に知見を交換し合い、切磋琢磨させて頂きましたことにお大変感謝いたします。ダイヤモンドエアサービス (株) の皆様には、航空機観測の計画・実行において大変お世話になりました。また、日々の相談相手やご助力をして頂きました、先輩・同輩・後輩諸氏に深く感謝いたします。本原稿の査読をして頂き有用なコメントを頂きました匿名の査読者と、編集を担当して頂きました茂木耕作博士 (海洋研究開発機構) に感謝いたします。

参 考 文 献

- Alheit, R. R., A. I. Flossmann and H. R. Pruppacher, 1990; A theoretical study of the wet removal of atmospheric pollutants. Part IV: The uptake and redistribution of aerosol particles through nucleation and impaction scavenging by growing cloud drops and ice particles. *J. Atmos. Sci.*, **47**, 870-887.
- DeVilje, R. E. L., N. Riemer and M. West, 2011: Weighted Flow Algorithms (WFA) for stochastic particle coagulation. *J. Comput. Phys.*, **230**, 8427-8451.
- Flossmann, A. I., W. D. Hall and H. R. Pruppacher, 1985: A theoretical study of the wet removal of atmospheric pollutants. Part I: The redistribution of aerosol particles captured through nucleation and impaction scavenging by growing cloud drops. *J. Atmos. Sci.*, **42**, 583-606.
- Gao, R. S., J. P. Schwarz, K. K. Kelly, D. W. Fahey, L. A. Watts, T. L. Thompson, J. R. Spackman, J. G. Slowik, E. S. Cross, J.-H. Han, P. Davidovits, T. B. Onasch and D. R. Worsnop, 2007: A novel method for estimating light-scattering properties of soot aerosols using a modified single-particle soot photometer. *Aerosol Sci. Technol.*, **41**, 125-135.
- IPCC, 2013: Summary for Policymakers. In: *Climate Change 2013: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, Stocker, T.F., D. Qin, G.-K. Plattner, M. Tignor, S. K. Allen, J. Boschung, A. Nauels, Y. Xia, V. Bex and P. M. Midgley (eds.), Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA.
- Moteki, N. and Y. Kondo, 2007: Effects of mixing state on black carbon measurements by laser-induced incandescence. *Aerosol Sci. Technol.*, **41**, 398-417.
- Moteki, N. and Y. Kondo, 2008: Method to measure time-dependent scattering cross sections of particles evaporating in a laser beam. *J. Aerosol Sci.*, **39**, 348-364.
- Moteki, N. and Y. Kondo, 2010: Dependence of laser-induced incandescence on physical properties of black carbon aerosols: Measurements and theoretical interpretation. *Aerosol Sci. Technol.*, **44**, 663-675.
- Moteki, N., N. Takegawa, K. Koizumi, T. Nakamura and Y. Kondo, 2011: Multiangle polarimetry of thermal emission and light scattering by individual particles in airflow. *Aerosol Sci. Technol.*, **45**, 1184-1198.
- 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.
- 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.
- Petters, M. D. and S. M. Kreidenweis, 2007: A single parameter representation of hygroscopic growth and cloud condensation nucleus activity. *Atmos. Chem. Phys.*, **7**, 1961-1971.
- Riemer, N., M. West, R. A. Zaveri and R. C. Easter, 2009: Simulating the evolution of soot mixing state with a particle-resolved aerosol model. *J. Geophys. Res.*, **114**, D09202, doi:10.1029/2008JD011073.
- Rytov, S., 1953: *The Theory of Electrical Fluctuations and Thermal Radiation*. U.S.S.R. Academy of Science, Moscow. English transl. by U.S. Air Force Cambridge Research Center, Bedford, Massachusetts, Rep. AFCRC-TR-59-162.
- Schwarz, J. P., R. S. Gao, D. W. Fahey, D. S. Thomson, L. A. Watts, J. C. Wilson, J. M. Reeves, M. Darbeheshti, D. G. Baumgardner, G. L. Kok, S. H. Chung, M. Schulz, J. Hendricks, A. Lauer, B. Kärcher, J. G. Slowik, K. H. Rosenlof, T. L. Thompson, A. O. Langford, M. Loewenstein and K. C. Aikin, 2006: Single-particle measurements of midlatitude black carbon and light-scattering aerosols from the boundary layer to the lower stratosphere. *J. Geophys. Res.*, **111**, D16207, doi:10.1029/2006JD007076.
- Shima, S., K. Kusano, A. Kawano, T. Sugiyama and S.

Kawahara, 2009: The super-droplet method for the numerical simulation of clouds and precipitation: A particle-based and probabilistic microphysics model coupled with a non-hydrostatic model. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, **135**, 1307-1320.

Textor, C., M. Schulz, S. Guibert, S. Kinne, Y. Balkanski, S. Bauer, T. Bernsten, T. Berglen, O. Boucher, M. Chin, F. Dentener, T. Diehl, R. Easter, H. Feichter, D. Fillmore, S. Ghan, P. Ginoux, S. Gong, A. Grini, J. Hendricks, L. Horowitz, P. Huang, I. Isaksen, I. Iversen, S. Kloster, D. Koch, A. Kirkevåg, J. E. Kristjansson, M. Krol, A. Lauer, J. F. Lamarque, X. Liu, V. Montanaro, G. Myhre, J. Penner, G. Pitari, S. Reddy, Ø. Seland, P. Stier, T. Takemura and X. Tie, 2006: Analysis and quantification of the diversities of aerosol life cycles within AeroCom. *Atmos. Chem. Phys.*, **6**, 1777-1813.

付 録

A1. BC 含有粒子の測定法の開発

私は、個々の BC 含有粒子について全体粒径と BC 含有質量を同時にかつ高速に測定するために、レー

ザー誘起白熱法 (Laser-Induced Incandescence: LII 法) の原理の基礎研究とハードウェア・ソフトウェアの技術的な開発を行ってきました。LII 法では、個々の粒子を高強度の共振器内レーザービームを横断させ、ビーム中で粒子から放出される散乱光と熱輻射光を同時に測定し、その測光量から BC 含有粒子の微物理特性を導出します (Schwarz *et al.* 2006; Moteki and Kondo 2007)。熱輻射光強度に基づいた BC 含有質量の定量可能性を証明するために、波長に対して微小な任意形状の物体から放出される熱輻射光の特徴を記述する一般化キルヒホッフ理論 (Rytov 1953) を実験的に検証しました (Moteki *et al.* 2011)。その一般化キルヒホッフ理論を基盤として、LII 法により測定される熱輻射光信号強度に基づいた BC 含有質量の測定理論を構築し、実験と整合的であることを検証しました (Moteki and Kondo 2010)。さらに、レーザー中で蒸発する BC 含有粒子の散乱光の信号波形の解析から蒸発前の散乱断面積の測定を可能にし、全体粒径を導出する方法を開発しました (Gao *et al.* 2007; Moteki and Kondo 2008)。

Particle Size-dependence of Wet Removal of Aerosols Demonstrated by the Observations of Black Carbon-containing Particles

Nobuhiro MOTEKI*

* *Department of Earth and Planetary Science, Graduate School of Science, University of Tokyo, 7-3-1 Hongo, Bunkyo-ku, Tokyo 113-0033, Japan.*
moteki@eps.s.u-tokyo.ac.jp

(Received 8 January 2014; Accepted 24 January 2014)
