

エアロゾルの数・粒径・混合状態を予測する

新世代モデルの開発と検証

—2014年度正野賞受賞記念講演—

松井 仁志*

1. はじめに

この度は、日本気象学会正野賞を授与いただき、大変光栄に存じます。これまで共同研究をさせていただいた皆様や様々な形で研究活動を支えてくださった全ての方々に深く感謝申し上げます。今後より一層気を引き締めて研究に取り組んでいく所存です。

今回受賞対象となりました研究は、私が博士課程を卒業した後からこれまでにかけて行ってきたエアロゾルモデルの開発と検証が主な内容です。これまで一般的だったエアロゾルの全量（バルク量）を予測するモデルの考えを発展させて、異なった微物理・化学特性を持つ様々な粒子を表現できる3次元モデルを作ってきました。このような私の研究では、エアロゾルの個別粒子の観測が近年急速に進展し、多くの新たな知見が得られてきていることが強い動機の1つとなっています。エアロゾルの観測・モデルが成熟していく中で、エアロゾルモデルでは様々なプロセスがただ考慮されているだけでなく、どのように考慮されているかという観点が重要になってきていると考えています。

本稿では、2014年度秋季大会での受賞記念講演の内容を基に、受賞対象となりました研究の概要を紹介します。ここではモデルの詳細にはあまり立ち入らず、研究・結果の重要性や意義を主に述べることにしますので、モデルで用いた計算手法や設定の詳細に興味を持ってくださった方は、参考文献を参照ください。

2. 研究の背景

2.1 エアロゾルの重要性

エアロゾルは大気中に浮遊する直径数 nm から100 μm 程度の液体または固体の微粒子の総称で、太陽放射の散乱・吸収（直接効果）、雲・降水過程への影響（間接効果）を通じて、地球の放射収支や気候変動に対して重要な役割を果たしています。IPCC 報告書では、直接・間接効果ともに、負の放射強制力、すなわち地球を冷却する効果を持っていると見積もられています。しかしながらその絶対値の不確定性幅は依然として非常に大きく、人為起源全体の気候影響評価における大きな不確定要因となっています。これらの効果をより深く理解し、不確定性を減らしていくことが必要になります。

第1図には、直接・間接効果がどのような物理・化学パラメータによって決まっているかを示しています。直接効果において重要となるエアロゾルのパラメータは、光吸収量・散乱量やその比率といった光学特性です。その値はエアロゾルの断面積や複素屈折率などによって決まります。一方、間接効果として重要なエアロゾルのパラメータは、雲粒となりうるエアロゾル数である雲凝結核数（CCN 数）です。その濃度はエアロゾルの粒径や吸湿特性によって決まります。そして、これらの断面積・複素屈折率・粒径・吸湿特性といったパラメータは全てエアロゾルの質量濃度・数濃度・粒径分布・混合状態（各粒子の化学組成）によって記述することができます。そのため、直接・間接効果および光学特性・雲凝結核特性を精度良く見積もるには、質量・数・粒径・混合状態といったパラメータを精度良く計算できるエアロゾルモデルが必要となります。

各粒子を構成する化学組成の割合や混ざり方のことを混合状態と呼びます。大気中にはブラックカーボン

* 海洋研究開発機構（現：名古屋大学大学院環境学研究所）。

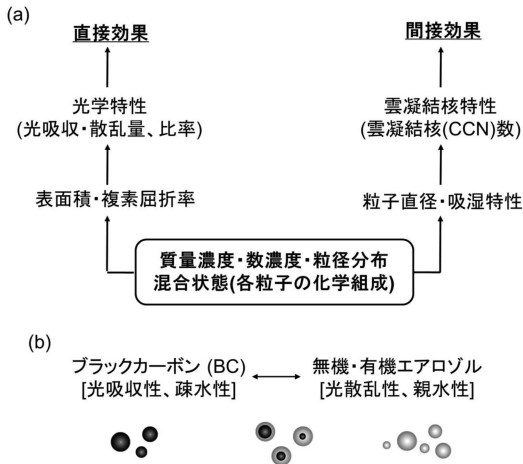
matsui@nagoya-u.jp

—2015年2月4日受領—

—2015年4月30日受理—

(BC) のような光吸収性・疎水性を示すエアロゾル成分から、太陽光をほとんど吸収しない光散乱性・親水性を示すエアロゾル成分(無機・有機成分など)まで、特性の大きく異なるエアロゾル成分が存在します。これらの成分が BC のみとして存在しているの

か、散乱性成分のみで存在しているのか、もしくはそれらが混ざったような形で存在しているのか、また混ざっているとすればその割合はどれくらいか(第1図)、ということがエアロゾル粒子の光吸収・散乱特性や雲凝結核特性(CCN特性)を決める上で非常に重要になってきます。

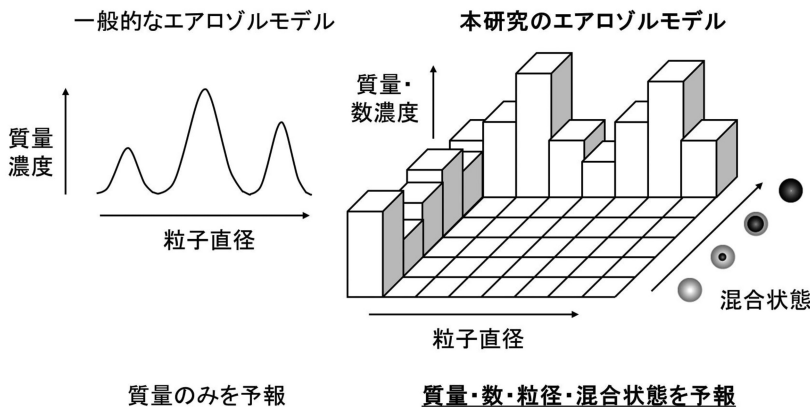


第1図 (a) エアロゾルの直接・間接効果において重要となる物理・化学パラメータの概略図。(b) エアロゾルの化学成分の多様性と混合状態を示す模式図。黒い粒子はブラックカーボン、灰色の粒子は非吸収性成分(無機・有機成分など)を示す。中央はブラックカーボンと非吸収性成分の両方を含む粒子を示している。

2.2 新たなエアロゾルモデル開発の必要性

このように、直接・間接効果を精度良く推定するためには、エアロゾルの質量・数・粒径・混合状態を精度良く計算する必要がありますが、これまでの多くのエアロゾルモデルではこれらのパラメータを十分に表現しているとはいえません。IPCC 報告書をはじめ、気候影響評価で用いられているエアロゾルモデルでは、質量濃度のみを予報するモデル表現が一般的です(第2図)。そのような典型的なエアロゾルモデルでは、粒径分布は対数正規分布などをあらかじめ仮定して、その仮定した粒径分布を用いて数濃度を診断的に求める方法を採用しています。このような表現法は、エアロゾルを表現するのに必要な変数が少なく、計算効率が良いという利点があります。一方、近年急速に進展しているエアロゾルの観測的知見を十分に表現できなくなりつつあります。たとえば、任意の粒径分布を表現できない、そのため数濃度の予測精度が不十分である、また混合状態の多様性を十分に表現していない、などの問題点があります。

そこで私の研究では、質量・数・粒径・混合状態の



第2図 一般的なエアロゾルモデルと本研究で開発したエアロゾルモデルのモデル表現の概略図。本研究のモデルでは、エアロゾルの粒子直径と混合状態の両方を解像する2次元ビン表現を用い、エアロゾルの質量濃度・数濃度・粒径分布・混合状態を予報する。個々のビンを四角で示し、各ビンの質量・数濃度のイメージをあわせて示している(端のビンについて)。

全てのパラメータを直接表現し、素過程に基づいて予測できるエアロゾルモデルの開発を行ってきました。具体的には粒径・混合状態の両方を解像する2次元ビンモデルを開発してきました(第2図)。このモデルでは同程度の粒径・混合状態を持つ粒子をビンと呼ばれるグループで表し、それらの集合体としてエアロゾル全体を表現します。そして、それぞれのビンについて各エアロゾル成分の質量濃度や数濃度を計算することで、質量・数・粒径・混合状態の全てのパラメータ

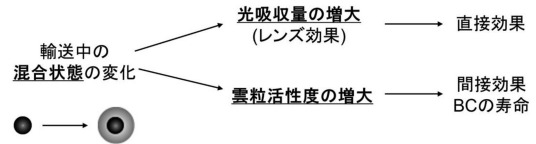
を直接計算します。このモデル表現を用い、BCの混合状態・新粒子生成・有機エアロゾル生成といったエアロゾルモデルにおいて重要と考えられているにも関わらず、従来のモデルにおいて不確定性が非常に大きい表現・過程について、モデル開発を行ってきました。そして、これらのモデルを領域3次元モデルWRF-chemへと導入し、実大気観測との詳細な比較・検証を行ってきました。その上で、各素過程や表現の重要性を明らかにしてきました。第3節ではBCの混合状態モデルについて、第4節では新粒子生成モデルについて、第5節では有機エアロゾルモデルについて、それぞれのモデル開発・検証の概要を述べたいと思います。第6節ではBCの混合状態・新粒子生成・有機エアロゾル生成を同時に計算できる統合モデルの開発と計算結果の概要を述べます。

3. BC混合状態モデルの開発と検証

3.1 BC混合状態の重要性

BCは化石燃料やバイオマスの不完全燃焼で大気中に放出され、太陽光を効率的に吸収します。IPCC第5次報告書では二酸化炭素・メタンに次いで3番目に大きな正の放射強制力を持つと推定されています。しかし、その推定の不確定性幅は非常に大きく、エアロゾル全体の放射強制力や人為起源全体の気候影響という点でも大きな不確定要因となっています。また、サンフォトメータなどを用いて観測されたエアロゾルの鉛直積算光吸収量をモデル計算が大幅に過小推定する(3倍程度)という問題点もあります(Bond *et al.* 2013)。この不確定性・過小推定の大きな要因の1つとして、モデルにおけるBC混合状態の表現が不十分であることが指摘されています(Bond *et al.* 2013)。

BCの混合状態は直接・間接効果の両面で重要になります(第3図)。大気中へ放出直後のBC粒子は、BC単体として存在する割合が相対的に多いですが、輸送中に気体成分の凝縮過程や粒子同士の衝突併合(凝集)過程、粒子表面での化学反応などを経ることで散乱性成分によって徐々に被覆され、混合状態が変化していきます。その過程で被覆成分はBCに太陽光をより集めるレンズのような役割を果たし、BCの単位質量あたりの光吸収量は最大2倍程度も増大すると考えられています(Jacobson 2000; Bond *et al.* 2006; Shiraiwa *et al.* 2010)。この効果はレンズ効果と呼ばれ、BCの直接効果の評価において重要な要素です。また、BC自体は疎水性で雲粒となりにくいですが、



第3図 BCの輸送中の変質過程とその重要性を示した概略図。BCは凝縮・凝集過程などによって散乱性成分を含む粒子へと変化し、光吸収量を増大させる(レンズ効果)とともに雲粒として活性化されやすくなる。

輸送中の混合状態の変化によって親水性のエアロゾル成分に被覆されることで、雲粒として活性化しやすい特性へと変化していきます。このBCを含む粒子のCCN特性の変化は、雲粒数や降水による除去過程の変化を通じて、BCの寿命・空間分布に大きな影響を及ぼします(Stier *et al.* 2006; Oshima *et al.* 2009; Riemer *et al.* 2010; Zaveri *et al.* 2010)。

このような重要性を持つため、BCの混合状態に着目した数値モデル研究は多く行われてきました(Jacobson 2001; Bauer *et al.* 2008; Aquila *et al.* 2011)。しかしながら、多くの3次元モデルでは、計算コストを減らすため、モデル表現を簡略化しています(対数正規分布を仮定したり、混合状態の数が限られているなど)。そのため、エアロゾルの粒径とBCの混合状態の両方を、詳細な微物理・化学過程と十分な混合状態の数を用いて計算できる3次元モデルはほとんどありません。また、3次元モデルで計算されたBCの混合状態を実大気観測によって検証した例もありませんでした。そこで、本研究ではエアロゾルの粒径・混合状態を世界的にも最も詳細に表現できる3次元モデルを開発・計算し、個別粒子の実大気観測によるBC混合状態の検証を初めて行いました。そして、BCの光吸収量や寿命・除去過程に対するBC混合状態の重要性を明らかにしてきました。

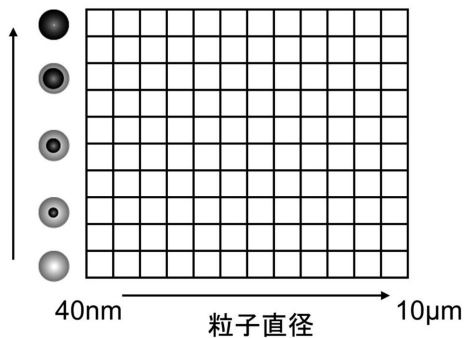
3.2 モデル開発の概要

エアロゾルの光吸収量とCCN特性を精度良く表現するために、粒子直径とBC混合状態の両方を解像する2次元ビンモデルを開発しました(Matsui *et al.* 2013a)。粒径を12個のビン(乾燥直径として40 nmから10 μm まで)、混合状態を10個のビン、合計120個のビンを使ってエアロゾルを表現します(第4図)。これによって、同じ粒径を持つエアロゾルに対し、BCのみを含む粒子、BCを含まない粒子、BCとそ

れ以外の成分の両方を含む比率に応じた8種類の粒子、の合計10種類の粒子を表現することができます。各ビンについて9つの化学成分（硫酸、硝酸、アンモニウム、BC、有機エアロゾル、ダスト、ナトリウム、塩素、水）の質量濃度と数濃度を計算します。そして、エアロゾルと気体成分の放出、気相反応、粒子生成、凝縮・蒸発、凝集、雲粒への活性化、液相反応、乾性・湿性沈着といったエアロゾルが大気中で経る一連の微物理・化学過程を計算します。

このモデルでは気体成分の凝縮による成長と粒子同

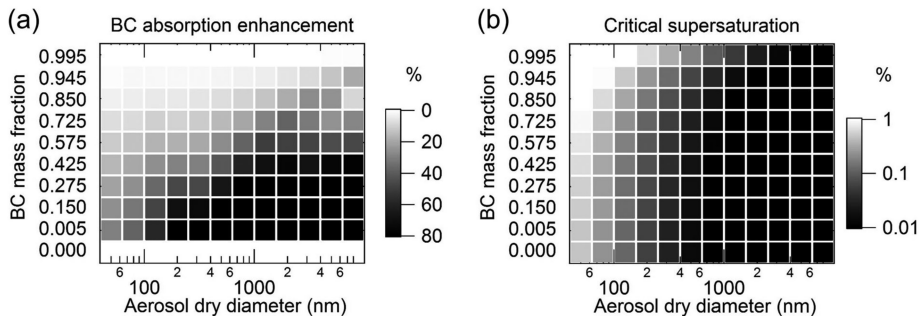
BC質量比 (混合状態)



第4図 BC混合状態解像モデルのモデル表現を示した概略図。12個の粒径ビン、10個のBC混合状態ビンの合計120ビンを用いている。BC混合状態の軸には、モデルで解像できる粒子（BCのみを含む粒子、BCを含まない散乱性成分のみで構成された粒子、BCと散乱性成分の両方を含む粒子）の模式図を示している。

士の衝突・併合過程である凝集過程を各ビンについて理論に基づいて計算するとともに、それらのプロセスによるエアロゾルの粒径・混合状態の変化を陽に計算します。凝縮過程による粒径および混合状態ビンの変化は、質量・数の2変数移流スキーム (Simmel and Wurzler 2006) と moving center 法 (Jacobson 1997) を用いています。凝集過程は Jacobson *et al.* (1994) の準陰解法を基に開発した2次元ビンの凝集計算スキーム (Matsui *et al.* 2013a) を用い、全ての粒径・混合状態ビン間の凝集過程を計算します。これらの一連のスキームによって、発生源付近でのエアロゾルの粒径・混合状態から、輸送中の凝縮・凝集による粒径・混合状態の変化までを全ての3次元グリッドについて計算することができます。

また、2次元ビン表現を用いることで、光吸収量やCCN特性の増大効果をより精度良く計算することができます。第5図には、各2次元ビンについて、レンズ効果による光吸収の増大率とCCN活性度を示しています。光吸収の増大率はBC単体として存在した場合に比べて、他のエアロゾル成分（第5図の計算では硫酸アンモニウムを仮定）が被覆した場合に光吸収がどれくらい増えるかという割合を示しており、シェルコア型の球形粒子（BCを核とし、その周りを他の成分が均一に覆っている粒子）を仮定した光散乱・吸収の計算を行っています (Bohren and Huffman 1998)。図の右下、すなわち粒径が大きくBC以外の成分比が多い粒子ほど光吸収増大率が大きいことがわかります。CCN活性度の指標としては臨界過飽和度を示しています (第5図右)。これは κ ケーラー理論 (Petters and Kreidenweis 2007) によって計算され、



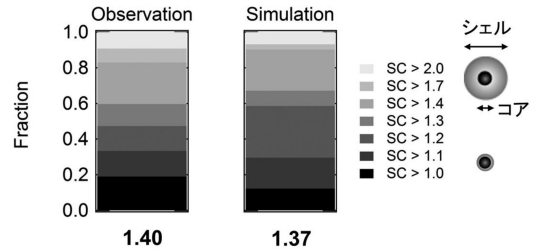
第5図 BC混合状態モデルの各ビンで計算される (a) 光吸収量の増大率と (b) 臨界過飽和度の計算例。散乱性成分は硫酸アンモニウムを仮定し、粒子直径と混合状態 (BC質量比) はビンの中心の値を仮定した。ブラックカーボンと硫酸アンモニウムの複素屈折率は $1.82 + 0.74i$ と $1.50 + 0.0i$ 、吸湿特性パラメータ (κ) は 10^{-6} と 0.5 とした。

雲中の空気塊が経験する最大過飽和度がこの値より大きくなると雲粒として活性化することを示しています。すなわち臨界過飽和度の低い、粒径が大きく BC 以外の成分の比率が大きい粒子（図の右下）が雲粒へと活性化されやすいということを示しています。ここで大事なことは、直接効果で重要となるレンズ効果、間接効果で重要となる CCN 活性度は、どちらも粒径と混合状態の両方に依存するということです。これまでの 3 次元モデルでは粒径と混合状態の両方を十分に解像していませんが、2 次元ビン表現を用いることでその両方を解像することができ、それによって光吸収量・CCN 特性をより精度良く計算することが可能になります。

3.3 モデルの適用・検証

このモデルを東アジア域に適用し、実大気観測との比較・検証を行ってきました。2009年3～4月に黄海・東シナ海で行われた A-FORCE 航空機観測 (Oshima *et al.* 2012) との比較例を示します。この計算では、NCEP の FNL データを初期・境界条件とナッジングに用い、化学成分の排出量データは、Streets *et al.* (2003) の人為・森林火災起源排出量データ、GEIA の自然起源排出量データ (Guenther *et al.* 1995) を用いました。BC に着目するため、粗大粒子の排出は考慮していません。放出される粒子の粒径分布は、観測・モデルの先行研究に基づいて中心直径 50 nm、標準偏差 2.0 を仮定しました (Kondo *et al.* 2011; Reddington *et al.* 2011)。排出時の BC の混合状態は、東京での観測結果を基に、半分が BC のみの粒子、残りの半分が BC と散乱性成分の両方を含む粒子であると仮定しています。

A-FORCE 航空機観測では、単一 BC 粒子測定装置 (Moteki and Kondo 2007) を用いて、BC を含む個々の粒子について混合状態が観測されました。粒子全体 (シェル) と BC (コア) のそれぞれが球形であると仮定した場合の直径比 (シェルコア比) が、全ての BC を含む粒子について見積もられました。第 6 図に全 21 フライトの全てのデータの平均的なシェルコア比の頻度分布を示します。観測の結果を見ると、シェルコア比が 2 以上の粒子 (BC 以外の無機・有機成分を多く含む粒子) からシェルコア比が 1 に近い粒子 (BC 以外の成分をほとんど含まない粒子) まで、様々な混合状態を持つ粒子が大気中に存在していることがわかります。そして、そのような混合状態の多様性をモデル計算が再現しています。また、シェルコア

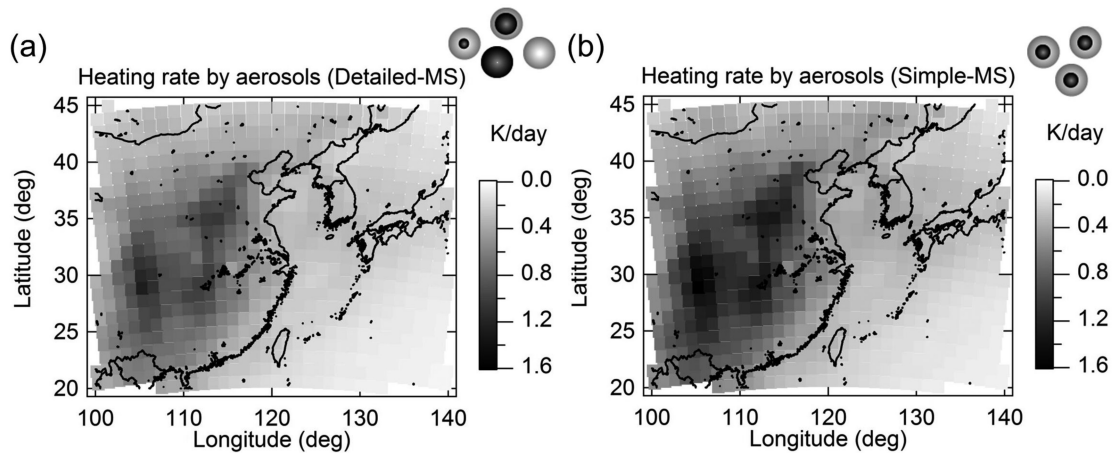


第 6 図 A-FORCE 航空機観測 (全 21 フライト、2009 年 3～4 月) の飛行経路に沿った平均的なシェルコア (SC) 比の頻度分布 (BC の数濃度比率)。(左) 単一 BC 測定装置で測定された観測値と (右) BC 混合状態解像モデルで計算されたモデル計算値を示す。下部の値は観測・モデルの平均シェルコア比を示す。

比の平均値についても、観測が 1.40、モデル計算が 1.37 であり、モデル計算が観測値を概ね再現できています。ちなみに、この混合状態の多様性やシェルコア比の値は、凝縮・凝集過程の両方を考慮することで初めて再現することができ、どちらかを考慮しない計算では再現することができません。このように、これまでの 3 次元モデルでは計算していないエアロゾル粒子の混合状態の多様性を初めて計算し、微物理・化学過程の詳細な計算によって、実大気中の BC 混合状態の特徴を再現できることを示してきました。

3.4 BC 混合状態の光学・放射過程や CCN 特性・除去過程に対する重要性

このモデルを用いて、放射・微物理過程に対する BC 混合状態の重要性を明らかにしてきました。具体的には、混合状態を解像した 2 次元ビンモデルの計算と、混合状態を解像しない (粒径ごとに単一の平均化した混合状態を持つ) 1 次元ビンモデルの計算を比較することで、この重要性を示してきました。第 7 図にはエアロゾルによる大気加熱率の計算例を示しています。混合状態の多様性を考慮した計算としない計算では、東アジア域の平均値として吸収係数・大気加熱率が約 40% も異なるという推定値が得られました。また、BC 混合状態の扱い方によって BC の CCN 特性や除去過程も変わります。混合状態の多様性を考慮した計算としない計算では、大気中の BC 質量濃度が対流圏下部で約 15%、対流圏上部で約 35% 異なることと見積もられました。このように、BC の混合状態が光吸収量や BC 自身の寿命に対して重要な役割を果たすことを示してきました。



第7図 高度約1 kmにおけるエアロゾルによる大気加熱率。計算期間(2009/3/24~4/26)の平均値を示している。(a) BC混合状態を解像した(12×10ピン)計算結果と、(b)光学・放射過程を単一(平均)の混合状態(粒径のみ解像した12×1ピン)を用いて計算した結果を示す。2つの光学・放射計算では混合状態の扱いのみが異なり、各成分の質量濃度と数濃度の全量(全ピンの合計値)は同一のものを用いている。(b)図はオフライン計算。

この研究では、BCの混合状態を解像する2次元ピンモデルを開発し、そのようなモデルを用いることで初めて実大気のBC混合状態の特徴を説明することに成功し、その放射・微物理過程に対する感度を明らかにしてきました。これらの研究を通じて、BCの空間分布やエアロゾルの直接・間接効果の精度の向上のためには、このようなBCの混合状態を表現できるモデルが不可欠であることを示してきました。

4. 新粒子生成モデルの開発と検証

次に新粒子生成モデルの概要について述べます。新粒子生成は硫酸ガスなどの揮発性の低い気体分子から粒径数nm程度の非常に小さな微粒子が生成する過程のことを言います。数濃度という観点で見た場合の大気中のエアロゾルの発生源は、粒子としての1次放出と大気中の気体からの粒子生成(2次生成)の2つになりますが、新粒子生成はこのエアロゾルの放出・生成を担う2つの過程のうちの後者にあたります。新粒子生成はエアロゾルの数濃度という観点でとても重要で、CCN数や雲粒数の増大を通して間接効果に大きな影響を及ぼすと考えられています(Merikanto *et al.* 2009; Spracklen *et al.* 2010; Makkonen *et al.* 2012)。一方、エアロゾルの質量濃度という観点ではほとんど影響を及ぼさないため、従来の質量濃度に着目したモデルではあまり重要視されてこなかった過程

です。

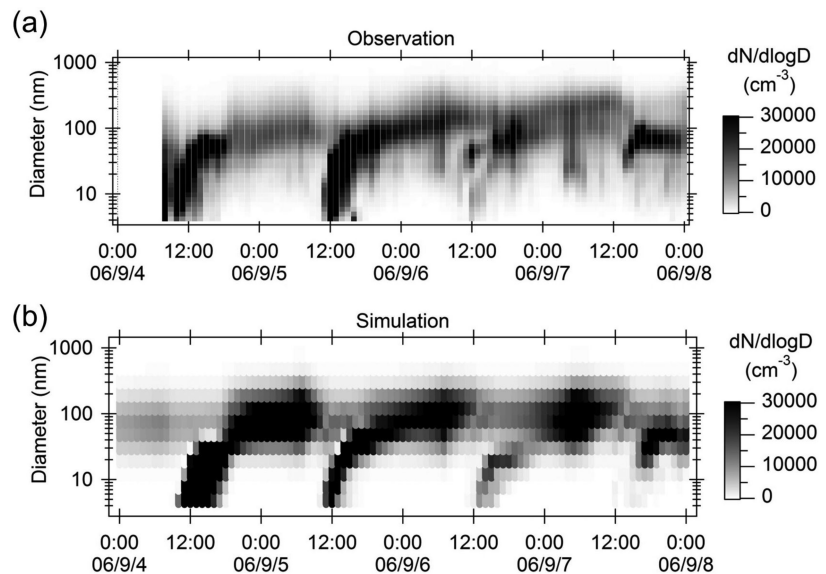
新粒子生成でできる超微小粒子がCCNとして働くある程度大きなエアロゾルになるかどうかは、新粒子の凝縮による成長と、既存粒子との凝集による消失のバランスによって決まります(Kulmala *et al.* 2000, 2007)。そのため、モデルにおいてこれらの過程を精度良く計算する必要があります。しかしながら、これらの過程を直接表現できるモデルはほとんどありません。そこで、粒径1 nm程度の粒子生成からの凝縮成長・凝集過程を直接表現できる粒径20ピンのモデルを開発しました(Matsui *et al.* 2011)。粒径1 nmの粒子の生成率は近年提唱された実大気観測に基づいた粒子生成メカニズム(Kulmala *et al.* 2006)を用い、新粒子の成長・消失過程を微物理過程の理論に基づいて計算します。本研究によって素過程ベースの新粒子生成モデルを初めて都市大気に適用し、実大気観測による検証を行いました。

第8図には2006年の夏季に北京で行われた粒径分布の観測(Wiedensohler *et al.* 2009)との比較例を示します。横軸が時間、縦軸が粒径で、粒径分布の時系列を示しています。黒い部分が数濃度の高い時間・粒径で、昼頃に数nm程度の新粒子が大量に生成し半日程度かけて粒径100 nm程度まで成長している様子が見られます。モデル計算はこのような新粒子生成イベントを再現できていることがわかります。これは、新

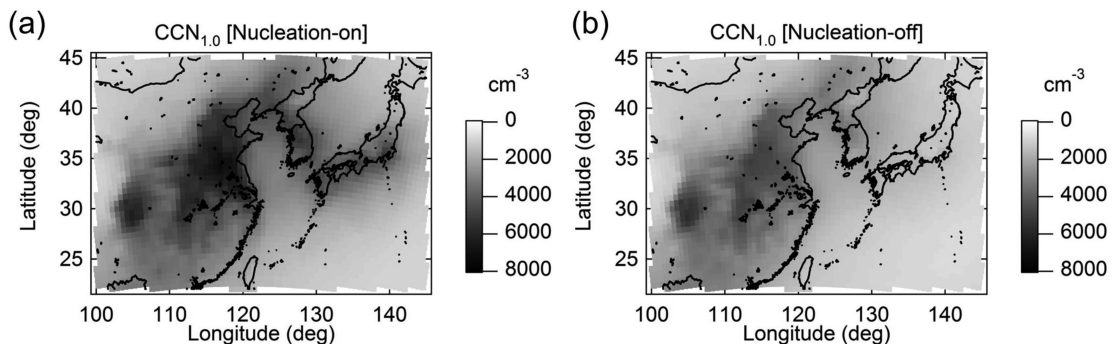
粒子のもととなる硫酸ガスの濃度が光化学反応によって支配され、昼頃に最大濃度となる日変動をすること、その後の新粒子の凝縮成長速度をモデル計算が再現できているためです。また、凝縮成長と凝集消失のバランスを計算することで、新粒子生成が起こる日と起こらない日の差異を再現することもできています。これは、移動性擾乱などによって気体成分やエアロゾル成分の濃度が日々変化し、それによって凝縮成長が支配的になる日（新粒子生成が起こる日）と凝集消失が支配的になる日（新粒子生成が起こらない日）の違いをモデル計算が再現できているためです。このように、凝縮・凝集といった素過程を理論に基づいて計算することによって、新粒子の生成タイミングとその成長過程を表現できることを明らかにしました。

次に東アジア域において、新粒子生成のCCN数に対する重要性を調べました (Matsui *et al.* 2013b)。ここではCCN数として過飽和度1%の条件下で活性化する(臨界過飽和度が1%以下の)エアロゾル数を用いています。主に中国北部や韓国、日本近傍で新粒子生成が起こっており、新粒子生成を考慮することでCCN数が増大している

ことがわかります(第9図)。そして、新粒子生成を考慮しないと、エアロゾル数濃度(粒径10 nm以上)を約45%過小推定するとともに、CCN数を約30%過小推定するという結果が得られました。この結果は、新粒子生成がCCN数に対して大きな寄与を持つことを示しており、人間活動によるCCN数・雲粒数への影響やエアロゾルの間接効果の精度向上のために新粒子生成を考慮することが重要であることを示唆しています。



第8図 新粒子生成イベントの観測・モデル計算の比較例。(a) 2006年8-9月に北京で行われた粒径分布の地上観測値、(b) 新粒子生成を解像した同期間のモデル計算、について粒径分布の時系列図を示す。黒色部がエアロゾル数濃度の高い時間・粒径に対応する。



第9図 高度約1 kmにおけるCCN数(過飽和度1%の条件下で活性化するエアロゾル数)の計算期間の平均値(2009/3/24~4/26)。(a) 新粒子生成を考慮した計算と、(b) 考慮しなかった計算の結果を示す。

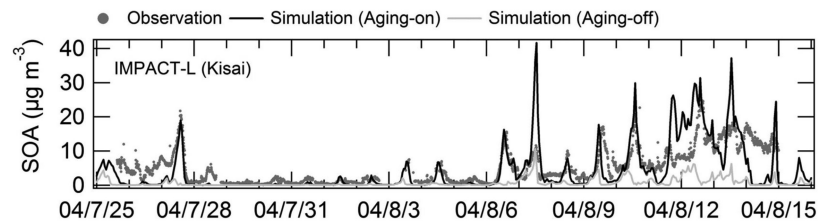
5. 有機エアロゾル生成モデルの開発と検証

次に有機エアロゾルモデルの概要を示します。有機エアロゾルは微小エアロゾルの主成分であり、気候影響・健康影響において重要な要素になると考えられています。しかし、成分が多く、生成過程が非常に複雑であるため、従来のモデル研究では有機エアロゾル濃度やその生成量を大幅

に、場所によっては1桁程度も過小推定してきました (Heald *et al.* 2005; Matsui *et al.* 2009)。

しかし、近年の室内実験・実大気観測によって、新しい概念の有機エアロゾル生成過程が考えられるようになりました。これは、従来から考慮されてきた揮発性有機化合物 VOC よりも揮発性の低い、半揮発性・中間揮発性の有機化合物が実大気によく存在し、それらが大気中での酸化反応を経ることで多くの有機エアロゾルを生成するというものです。この概念に基づいた volatility basis set (VBS) と呼ばれるモデルが近年開発され (Donahue *et al.* 2006; Jimenez *et al.* 2009), 全球・領域モデルで使用され始めています (Lane *et al.* 2008; Tsimpidi *et al.* 2010; Shrivastava *et al.* 2011)。本研究では、この考えに基づいた有機エアロゾルモデルを開発し、WRF-chem モデルに導入し、実大気との比較・検証を行いました (Matsui *et al.* 2014a)。このモデルでは、揮発性有機化合物・半揮発性有機化合物の排出や OH ラジカルなどによる酸化過程を計算し、気相とエアロゾル相の平衡を仮定してその分割を計算します。

第10図にモデル計算結果の一例を示します。埼玉の騎西において有機エアロゾル濃度の観測 (Takegawa *et al.* 2005, 2006) とモデル計算の比較を行いました。モデル計算は期間後半に海陸風循環によって汚染大気がたまり込み、有機エアロゾルが高濃度になる様子をよく再現しています。VBS モデルにはまだ多くの不確定性の大きなパラメータがありますが、半揮発性・中間揮発性の有機化合物とその酸化過程を考慮することでより現実的な有機エアロゾル濃度とその時間変動を再現しています。これらの過程を考慮しない従来型のモデル計算結果を灰色で示していますが、観測



第10図 有機エアロゾルの観測・モデル計算の比較例。2004年の7～8月に埼玉の騎西で行われた観測と同時期のモデル計算について、2次有機エアロゾル (SOA) の時系列図を示している。半揮発性・中間揮発性有機化合物とその酸化過程を考慮したモデル計算 (Aging-on, 黒色) と考慮しなかった従来型のモデル計算 (Aging-off, 灰色) の結果を示している。

された濃度を大幅に過小推定しています。この結果は半揮発性・中間揮発性の有機化合物とその酸化過程が有機エアロゾルの生成において重要な役割を果たしていることを示唆しています。

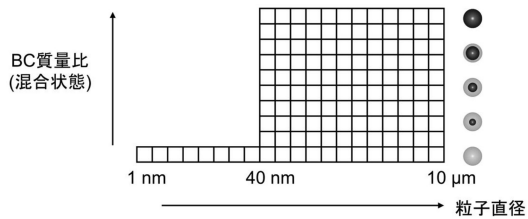
また、この研究では、東アジア全域において自然起源と人為起源の相互作用が重要になることを示し、人為起源物質の排出によって自然起源 VOC からの有機エアロゾルの生成が大幅に増大することを示しました (自然起源の有機エアロゾルの約8割が人為起源の影響を受けて生成していると推定された)。この結果は、人為・自然起源の相互作用が有機エアロゾルの直接・間接効果を正しく推定する上で重要な役割を果たすことを示唆しています。

6. 統合モデルの開発

そして、別々に開発してきた BC 混合状態モデル、新粒子生成モデル、有機エアロゾルモデルを統合し、同時に計算できるエアロゾル統合モデル ATRAS (Aerosol Two-dimensional bin module for formation and Aging Simulation) を開発しました (Matsui *et al.* 2014b)。各素過程を詳細に表現しつつ、計算効率の良いモデルを開発した結果、3次元モデルとしての計算が可能な統合モデルができました。

第11図にモデル表現を示します。粒径 1 nm から表現することで新粒子生成を解像し、粒径 40 nm 以上の粒子については10個の混合状態ビンを用い BC 混合状態を解像します。そして、無機・有機エアロゾルの凝縮過程とビン間の凝集過程をそれぞれのビンについて計算します。

このモデルを用いることで、各プロセスの重要性や相互作用を明らかにしてきました。たとえば、東アジ



第11図 BC混合状態モデル, 新粒子生成モデル, 有機エアロゾル生成モデルを組み合わせたエアロゾル統合モデル ATRAS のモデル表現の概略図。

ア域におけるエアロゾルの粒径分布や CCN 数に対する有機エアロゾル生成・新粒子生成の重要性を調べたところ、有機エアロゾル生成は特に中国南部において粒径の比較的大きなエアロゾル数の増大に対して重要な役割を果たす一方、新粒子生成は中国北部において粒径の比較的小きなエアロゾル数の増大に対して大きな寄与を持つことがわかりました。また、BC のレンズ効果による光吸収の増大率は、有機エアロゾル生成を考慮しないと40%程度（東アジア域の平均値）である一方、有機エアロゾル生成を考慮すると50~60%となり、BC 混合状態と有機エアロゾル生成の相互作用が重要になる可能性を示しました。このような各素過程の重要性や相互作用は、エアロゾルの微物理・化学過程を詳細に考慮したモデルによって初めて評価が可能となります。

7. まとめ

これまでの私の研究では、エアロゾルの微物理・化学過程に着目した世界的にも最も詳細な3次元エアロゾルモデルの開発を行ってきました。2次元ビン表現であるということが特徴的なモデルです。また、3次元モデルで計算負荷の大きい詳細なエアロゾルモデルを計算するために、計算効率化に注意をはらって開発を行ってきました。そして、最先端測定器を用いた観測との比較・モデル検証を通して、このような詳細エアロゾルモデルを用いることによって初めて、実大気中のエアロゾルの重要な特徴を多く再現できることを示しました。特にエアロゾルの直接・間接効果の評価において重要であるものの、モデル表現の不確実性が大きい BC 混合状態、新粒子生成、有機エアロゾル生成に関するモデル開発・検証を行い、これらの過程を同時に計算できる統合モデルの開発を行いました。

このようなエアロゾルの微物理・化学過程を詳細に考慮したモデルによって、エアロゾルの各素過程の重要性・相互作用・不確実性、過去から将来にわたる気象場やエアロゾル排出量の変化に対する各素過程の非線形応答などを評価することが可能になります。また、このモデルをベンチマークモデルとして用いることで、全球エアロゾルモデルにおいて詳細に計算すべき箇所（素過程・パラメータ・表現など）と単純化しても良い箇所を明らかにしていくことも可能です。その上でエアロゾルの複雑な応答を計算でき、かつ全球・長期の計算を行えるエアロゾルモデルを構築していくことが今後の課題です。

今後もエアロゾルとその周辺領域の研究を通して、日本気象学会の発展に微力ながら貢献できればと思っています。

謝辞

これまでの私の研究活動は多くの方々の支えによって成り立ってきたものです。修士・博士課程の指導教員である小池 真准教授（東京大学大学院理学系研究科）には、私を大気物質科学・エアロゾルの分野の研究に導いていただき、研究の基礎部分から多くのご指導・ご助言をいただきました。東京大学においては、近藤 豊教授（現・国立極地研究所）、竹川暢之教授（首都大学東京）に自由に研究ができる環境を作っていただきました。研究内容へのご指導・ご助言だけでなく、研究の心構えや取り組み方についても多く学ばせていただきました。海洋研究開発機構では、滝川雅之博士、金谷有剛博士をはじめ、地球表層物質循環研究分野の皆様に、私が研究に集中できるようご助力をいただきました。また、大島 長博士（気象研究所）、茂木信宏博士（東京大学大学院理学系研究科）、宮川拓真博士（海洋研究開発機構）、梶野瑞王博士（気象研究所）には、日ごろから議論をさせていただくなど、大変お世話になりました。高見昭憲博士（国立環境研究所）には、多くの観測データを提供していただくなど、モデル検証においてご助力をいただきました。米国パシフィック・ノースウェスト国立研究所（PNNL）の J. D. Fast 博士、R. A. Zaveri 博士には、WRF-chem モデルの技術的なご指導、研究内容についてのご助言をいただきました。最後に、日々の研究生活において多くのご支援・ご助力をいただきました。海洋研究開発機構および東京大学の先生方、先輩・後輩の皆様に心より感謝申し上げます。

参考文献

- Aquila, V. *et al.*, 2011: MADE-in: A new aerosol microphysics submodel for global simulation of insoluble particles and their mixing state. *Geosci. Model Dev.*, **4**, 325–355.
- Bauer, S. E., D. L. Wright, D. Koch, E. R. Lewis, R. McGraw, L.-S. Chang, S. E. Schwartz and R. Ruedy, 2008: MATRIX (Multiconfiguration Aerosol TRacker of mIXing state): an aerosol microphysical module for global atmospheric models. *Atmos. Chem. Phys.*, **8**, 6003–6035.
- Bohren, C. F. and D. R. Huffman, 1998: Absorption and Scattering of Light by Small Particles. John Wiley, Hoboken, N. J., 530pp.
- Bond, T. C., G. Habib and R. W. Bergstrom, 2006: Limitations in the enhancement of visible light absorption due to mixing state. *J. Geophys. Res.*, **111**, D20211, doi:10.1029/2006JD007315.
- Bond, T. C. *et al.*, 2013: Bounding the role of black carbon in the climate system: A scientific assessment. *J. Geophys. Res. Atmos.*, **118**, 5380–5552.
- Donahue, N. M., A. L. Robinson, C. O. Stanier and S. N. Pandis, 2006: Coupled partitioning, dilution, and chemical aging of semivolatile organics. *Environ. Sci. Technol.*, **40**, 2635–2643.
- Guenther, A. *et al.*, 1995: A global model of natural volatile organic compound emissions. *J. Geophys. Res.*, **100**, 8873–8892.
- Heald, C. L., D. J. Jacob, R. J. Park, L. M. Russell, B. J. Huebert, J. H. Seinfeld, H. Liao and R. J. Weber, 2005: A large organic aerosol source in the free troposphere missing from current models. *Geophys. Res. Lett.*, **32**, L18809, doi:10.1029/2005GL023831.
- Jacobson, M. Z., 1997: Development and application of a new air pollution modeling system-II. Aerosol module structure and design. *Atmos. Environ.*, **31**, 131–144.
- Jacobson, M. Z., 2000: A physically-based treatment of elemental carbon optics: Implications for global direct forcing of aerosols. *Geophys. Res. Lett.*, **27**, 217–220.
- Jacobson, M. Z., 2001: Strong radiative heating due to the mixing state of black carbon in atmospheric aerosols. *Nature*, **409**, 695–697.
- Jacobson, M. Z., R. P. Turco, E. J. Jensen and O. B. Toon, 1994: Modeling coagulation among particles of different composition and size. *Atmos. Environ.*, **28**, 1327–1338.
- Jimenez, J. L. *et al.*, 2009: Evolution of organic aerosols in the atmosphere. *Science*, **326**, 1525–1529.
- Kondo, Y., L. Sahu, N. Moteki, F. Khan, N. Takegawa, X. Liu, M. Koike and T. Miyakawa, 2011: Consistency and traceability of black carbon measurements made by laser-induced incandescence, thermal-optical transmittance, and filter-based photo-absorption techniques. *Aerosol Sci. Technol.*, **45**, 295–312.
- Kulmala, M., L. Pirjola and J. M. Mäkelä, 2000: Stable sulphate clusters as a source of new atmospheric particles. *Nature*, **404**, 66–69.
- Kulmala, M., K. E. J. Lehtinen and A. Laaksonen, 2006: Cluster activation theory as an explanation of the linear dependence between formation rate of 3 nm particles and sulphuric acid concentration. *Atmos. Chem. Phys.*, **6**, 787–793.
- Kulmala, M. *et al.*, 2007: Toward direct measurement of atmospheric nucleation. *Science*, **318**, 89–92.
- Lane, T. E., N. M. Donahue and S. N. Pandis, 2008: Simulating secondary organic aerosol formation using the volatility basis-set approach in a chemical transport model. *Atmos. Environ.*, **42**, 7439–7451.
- Makkonen, R., A. Asmi, V.-M. Kerminen, M. Boy, A. Arneth, P. Hari and M. Kulmala, 2012: Air pollution control and decreasing new particle formation lead to strong climate warming. *Atmos. Chem. Phys.*, **12**, 1515–1524.
- Matsui, H., M. Koike, N. Takegawa, Y. Kondo, R. J. Griffin, Y. Miyazaki, Y. Yokouchi and T. Ohara, 2009: Secondary organic aerosol formation in urban air: Temporal variations and possible contributions from unidentified hydrocarbons. *J. Geophys. Res.*, **114**, D04201, doi:10.1029/2008JD010164.
- Matsui, H., M. Koike, Y. Kondo, N. Takegawa, A. Wiedensohler, J. D. Fast and R. A. Zaveri, 2011: Impact of new particle formation on the concentrations of aerosols and cloud condensation nuclei around Beijing. *J. Geophys. Res.*, **116**, D19208, doi: 10.1029/2011JD016025.
- Matsui, H., M. Koike, Y. Kondo, N. Moteki, J. D. Fast and R. A. Zaveri, 2013a: Development and validation of a black carbon mixing state resolved three-dimensional model: Aging processes and radiative impact. *J. Geophys. Res. Atmos.*, **118**, 2304–2326.
- Matsui, H., M. Koike, N. Takegawa, Y. Kondo, A. Takami, T. Takamura, S. Yoon, S.-W. Kim, H.-C. Lim and J. D. Fast, 2013b: Spatial and temporal variations of new particle formation in East Asia using an NPF-explicit WRF-chem model: North-south contrast in new particle formation frequency. *J. Geophys. Res. Atmos.*, **118**, 11647–11663.

- Matsui, H., M. Koike, Y. Kondo, A. Takami, J. D. Fast, Y. Kanaya and M. Takigawa, 2014a: Volatility basis-set approach simulation of organic aerosol formation in East Asia: implications for anthropogenic-biogenic interaction and controllable amounts. *Atmos. Chem. Phys.*, **14**, 9513-9535.
- Matsui, H., M. Koike, Y. Kondo, J. D. Fast and M. Takigawa, 2014b: Development of an aerosol microphysical module: Aerosol Two-dimensional bin module for foRmation and Aging Simulation (ATRAS). *Atmos. Chem. Phys.*, **14**, 10315-10331.
- Merikanto, J., D. V. Spracklen, G. W. Mann, S. J. Pickering and K. S. Carslaw, 2009: Impact of nucleation on global CCN. *Atmos. Chem. Phys.*, **9**, 8601-8616.
- Moteki, N. and Y. Kondo, 2007: Effects of mixing state on black carbon measurements by laser-induced incandescence. *Aerosol Sci. Technol.*, **41**, 398-417.
- Oshima, N., M. Koike, Y. Zhang and Y. Kondo, 2009: Aging of black carbon in outflow from anthropogenic sources using a mixing state resolved model: 2. Aerosol optical properties and cloud condensation nuclei activities. *J. Geophys. Res.*, **114**, D18202, doi:10.1029/2008JD011681.
- Oshima, N. *et al.*, 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.
- Reddington, C. L. *et al.*, 2011: Primary versus secondary contributions to particle number concentrations in the European boundary layer. *Atmos. Chem. Phys.*, **11**, 12007-12036.
- Riemer, N., M. West, R. Zaveri and R. Easter, 2010: Estimating black carbon aging time-scales with a particle-resolved aerosol model. *J. Aerosol Sci.*, **41**, 143-158.
- Shiraiwa, M., Y. Kondo, T. Iwamoto and K. Kita, 2010: Amplification of light absorption of black carbon by organic coating. *Aerosol Sci. Technol.*, **44**, 46-54.
- Shrivastava, M., J. Fast, R. Easter, W. I. Gustafson, R. A. Zaveri, J. L. Jimenez, P. Saide and A. Hodzic, 2011: Modeling organic aerosols in a megacity: comparison of simple and complex representations of the volatility basis set approach. *Atmos. Chem. Phys.*, **11**, 6639-6662.
- Simmel, M. and S. Wurzler, 2006: Condensation and activation in sectional cloud microphysical models. *Atmos. Res.*, **80**, 218-236.
- Spracklen, D. V. *et al.*, 2010: Explaining global surface aerosol number concentrations in terms of primary emissions and particle formation. *Atmos. Chem. Phys.*, **10**, 4775-4793.
- Stier, P., J. H. Seinfeld, S. Kinne, J. Feichter and O. Boucher, 2006: Impact of nonabsorbing anthropogenic aerosols on clear-sky atmospheric absorption. *J. Geophys. Res.*, **111**, D18201, doi:10.1029/2006JD007147.
- Streets, D. G. *et al.*, 2003: An inventory of gaseous and primary aerosol emissions in Asia in the year 2000. *J. Geophys. Res.*, **108**, 8809, doi:10.1029/2002JD003093.
- Takegawa, N., Y. Miyazaki, Y. Kondo, Y. Komazaki, T. Miyakawa, J. L. Jimenez, J. T. Jayne, D. R. Worsnop, J. D. Allan and R. J. Weber, 2005: Characterization of an Aerodyne Aerosol Mass Spectrometer (AMS): Intercomparison with other aerosol instruments. *Aerosol Sci. Technol.*, **39**, 760-770.
- Takegawa, N., T. Miyakawa, Y. Kondo, J. L. Jimenez, Q. Zhang, D. R. Worsnop and M. Fukuda, 2006: Seasonal and diurnal variations of submicron organic aerosol in Tokyo observed using the Aerodyne aerosol mass spectrometer. *J. Geophys. Res.*, **111**, D11206, doi:10.1029/2005JD006515.
- Tsimpidi, A. P., V. A. Karydis, M. Zavala, W. Lei, L. Molina, I. M. Ulbrich, J. L. Jimenez and S. N. Pandis, 2010: Evaluation of the volatility basis-set approach for the simulation of organic aerosol formation in the Mexico City metropolitan area. *Atmos. Chem. Phys.*, **10**, 525-546.
- Wiedensohler, A. *et al.*, 2009: Rapid aerosol particle growth and increase of cloud condensation nucleus activity by secondary aerosol formation and condensation: A case study for regional air pollution in northeastern China. *J. Geophys. Res.*, **114**, D00G08, doi:10.1029/2008JD010884.
- Zaveri, R. A., J. C. Barnard, R. C. Easter, N. Riemer and M. West, 2010: Particle-resolved simulation of aerosol size, composition, mixing state, and the associated optical and cloud condensation nuclei activation properties in an evolving urban plume. *J. Geophys. Res.*, **115**, D17210, doi:10.1029/2009JD013616.

Development and Validation of a Next-generation Aerosol Model Resolving Number Concentration, Size Distribution, and Mixing State of Aerosols

Hitoshi MATSUI*

* *Department of Environmental Geochemical Cycle Research, Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology (Present affiliation: Graduate School of Environmental Studies, Nagoya University, Furo-cho, Chikusa-ku, Nagoya, 464-8601, Japan).*

(Received 4 February 2015; Accepted 30 April 2015)
