

エアロゾルの湿性除去メカニズムに関する観測的研究

—2017年度山本賞受賞記念講演—

大 畑 祥*

1. はじめに

この度は名誉ある山本賞を授与頂き、誠にありがとうございます。今後より一層気を引き締めて、研究に取り組んで参る所存です。受賞対象となりました論文 (Ohata *et al.* 2016b) は、大気中のエアロゾルが降水過程で除去を受ける際の除去の効率を決める物理プロセスを、新しい観測手法で解明したものです。私が東京大学大学院の修士課程に入学して最初に取り組んだ研究課題は、エアロゾルの一種であるブラックカーボン (BC) の大気からの除去量を明らかにするため、降水試料中の BC の測定法を確立・評価することでした。この BC に関する研究が、その後の先生方・共同研究者の方々の多くのご指導・ご助力により、BC だけでなく、BC を含むエアロゾル一般の除去に関する知見を与える本研究へと発展しました。本稿では、受賞対象論文の内容を中心に、本研究の背景と成果について解説します。

2. エアロゾルの湿性除去過程

大気中には様々な大きさ・化学組成を持つ微粒子 (エアロゾル) が浮遊しています。エアロゾルの粒径は数 nm から 100 μm 程度の広範囲に及び、エアロゾルの数濃度・質量濃度は時空間的に大きく変動します。これらのエアロゾルは、その化学組成から主に有機エアロゾル・無機エアロゾル (硫酸塩・硝酸塩など)・BC・鉱物ダスト・海塩に分類され、それぞれが別々の粒子として浮遊していることもあれば、複数の

化学組成が混合して 1 粒子を形成している (内部混合している) こともあります。

このように物理的・化学的性質の異なる個々のエアロゾルが、太陽放射の散乱・吸収を通じて地球の放射収支に影響を及ぼします (直接効果)。硫酸塩エアロゾルなどの白っぽい粒子が太陽放射を散乱して大気を冷却する効果を持つ一方で、BC などの黒色のエアロゾルは太陽放射を効率良く吸収して大気を加熱する効果を持ちます。また、これらの直接効果に加え、エアロゾルは雲の性質を変化させることによっても放射収支に影響を及ぼします (間接効果)。エアロゾル表面に過飽和となった水蒸気が凝結することで雲粒の生成が起こるため、核となるエアロゾルの多寡に依存して雲粒の数や大きさが変化し、結果として雲の反射率や寿命が変化しうるためです。雲水量が等しい場合、エアロゾル数が増加すると個々の雲粒が小さくなり、雲の反射率は増大します。

エアロゾルの中でも特に、化石燃料・バイオマスの燃焼や大気化学反応に伴って生成する粒径 0.05–1 μm 程度のエアロゾルは、凝集や重力沈降による消失が遅く大気中のエアロゾルの表面積・質量濃度の大部分を占めるため、accumulation mode (累積モード) エアロゾルと呼ばれます。この粒径範囲のエアロゾルは、太陽放射の散乱・吸収効率が高く、かつ、雲凝結核数への寄与が大きいため、とりわけ気候に大きな影響を及ぼします。本研究の対象はこの「累積モードエアロゾル」であり、本稿では簡単のため単に「エアロゾル」と呼ぶこととします。

エアロゾルの空間的な分布は、「発生・輸送・化学反応・除去 (沈着)」の各過程によって支配されます。この中で、エアロゾルの大気からの除去は、主に湿潤対流に伴う降水を通じて起こることが知られています (湿性除去)。また、地表付近で生成したエアロゾルが

* 東京大学大学院理学系研究科。

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

—2018年6月5日受領—

—2018年7月30日受理—

上空まで輸送される量は、湿潤対流に伴う鉛直輸送に強く支配されています。そのため、湿潤対流でどのようなエアロゾルが優先的に除去あるいは除去を免れて上方に輸送されるのかを理解することは、エアロゾルの気候影響を正しく理解し予測する上で重要です。しかしながら、湿潤対流においてエアロゾルの除去の効率を支配する詳細なメカニズムについての理解は未だに不十分であり、エアロゾル空間分布の数値シミュレーションにおける大きな不確実要因となっています (Textor *et al.* 2006)。

エアロゾルが降水によって除去されるという現象は、具体的にどのような物理プロセスによって起こるのでしょうか。湿潤対流において、エアロゾルの一部は何らかのメカニズムで水滴（雲粒・雨粒）に取り込まれ、雲粒を取り込みながら成長・落下する雨粒とともに地表に到達することにより大気から除去されます。第1図aに、水過程を含まない暖かい雨において、エアロゾルが水滴に取り込まれる3つのメカニズムを示します。一つは、上昇流中で過飽和となった水蒸気がエアロゾル表面に凝結し雲粒を生成する際、エアロゾルが雲粒内部に取り込まれるメカニズム（雲粒活性化）。もう一つは、エアロゾルと雲粒がブラウン拡散により凝集するメカニズム（雲粒との衝突）。そしてもう一つが、エアロゾルが落下中の雨粒と慣性衝突するメカニズム（雨粒との衝突）です。これら3種の物理メカニズムの理論（実験）式は既知であるものの、実際の湿潤対流においてこれらのメカニズムのうちどれがどの程度寄与しているのかについては、多くの仮定を伴う数値シミュレーションによる推察があるのみで (Flossmann *et al.* 1985; Flossmann and Wobrock 2010)、観測からはほとんど何も分かっていませんでした。

観測によるエアロゾル湿性除去の先行研究では、降水試料中に分散した非水溶性粒子を濾過してフィルター上に捕集し、各化学組成の全質量を測定する、あるいは、降水に溶け込んだイオン濃度を測定するという手法が用いられてきました。これらの降水試料中の物質濃度と、大気中の各エアロゾル成分の質量濃度の比 (scavenging ratio) を取ることにより、相対

的にどのような化学組成のエアロゾルが大気から除去されやすいかを明らかにする研究が行われています (Cerqueira *et al.* 2010など)。しかしながら、このように各成分の全質量を測定するバルク分析では、湿性除去を受けた個々のエアロゾルが元々どのような大きさであったのかや、他の組成のエアロゾルとどのように内部混合していたのかといった情報は失われています。さらに、大気中の一部の気体成分（二酸化硫黄など）は水滴に取り込まれて降水試料中の物質濃度に影響するため、大気から除去されたエアロゾルの情報を抽出することが難しいという問題もあります。以上のことから、これまでの降水分析では除去のメカニズムに踏み込むことは困難でした。また、湿潤対流により鉛直輸送されたエアロゾルを航空機に搭載した測器で観測し、エアロゾルの除去メカニズムを調べた先行研究はあるものの (Moteki *et al.* 2012; Taylor *et al.* 2014)、これらは広域的な観測データに基づく解析であり、個々の降水イベントにおける除去の詳細なメカニズムについての理解は得られていませんでした。

そこで本研究では、様々な化学組成のエアロゾルの中から個別粒子単位でBCに着目し、降水イベント時に大気中・降水中のBCを同時に測定することにより、除去のメカニズムを観測的に理解する方法を考案しました。次節でこの手法について説明します。

3. BCトレーサー法

ブラックカーボン (BC) はその名の通り黒色の元素状炭素 (すす粒子) で、化石燃料やバイオマスの不完全燃焼によって生じます (Bond *et al.* 2013; Kondo 2015)。BCは累積モードエアロゾルの粒径範囲に属する典型的なエアロゾルの一種であり、IPCC (2013) 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されています。

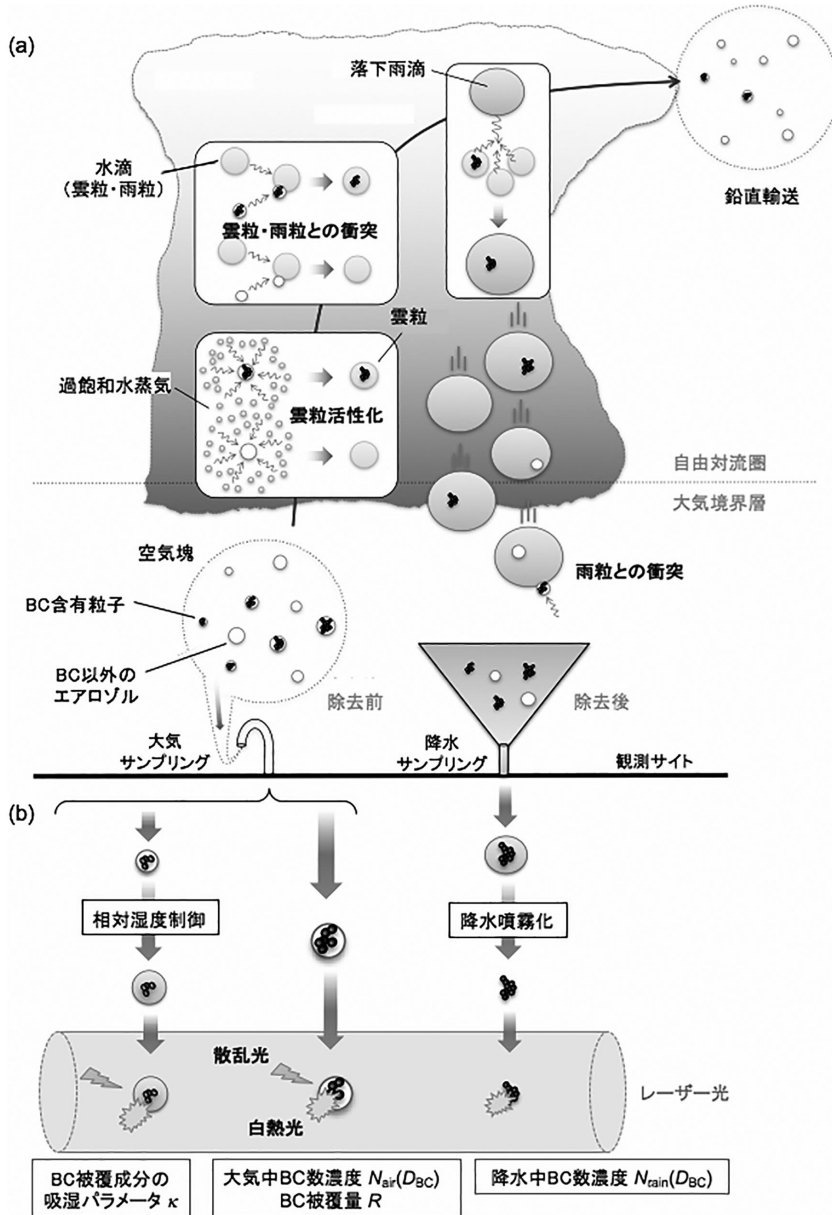
本研究では、このBCを除去されたエアロゾルのトレーサーとして用います (BCトレーサー法と呼ぶ)。BC自体は疎水性ですが、大気中を輸送される中で他の親水性成分に被覆され (BC表面への気体成分の凝縮や、BCと他のエアロゾルの凝集による)、BCも他のエアロゾルと同様に湿性除去を受けます。また、

[†] BCは直径数十nm程度の微小炭素球がブドウの房のように凝集した複雑な形状をしています。一般に、多様な形状を持つエアロゾルの粒径には様々な定義がありますが、本研究では次節で述べるレーザー誘起白熱法により個々のBCの質量が測定されるため、それと

等しい質量を持つ仮想的な球の直径に相当する「質量等価粒径」を一意に決定することができます。本研究で議論するBCの粒径別数濃度は、すべてこの質量等価粒径の測定に基づいています。

BCは化学的に不活性で水に溶けない固体粒子であり、BCの粒径 r は水中でも安定している（水中でのBC同士の凝集やBCの分解は無視できる）ことを実験的に確かめています。これらの性質を利用して、降水が開始する前の大気境界層内のBC（除去前の

BC）の粒径別数濃度 $N_{\text{air}}(D_{\text{BC}})$ と、降水に含まれるBC（除去後のBC）の粒径別数濃度 $N_{\text{rain}}(D_{\text{BC}})$ を比較することにより、相対的にどの粒径のBCが除去されやすかったか（除去効率（removal efficiency: RE ）のBC粒径依存性）を求めることができます：



第1図 (a)暖かい雨によるエアロゾルの除去メカニズムの概略図。湿潤対流において、上昇する空気塊中の一部のエアロゾルは雲粒活性化あるいは雲粒・雨粒との衝突により水滴に取り込まれ、その後降水とともに大気から除去される。(b)本研究における測定システムの概略図。降水イベント時に、大気中・降水中のBCをレーザー誘起白熱法により測定する。詳細は本文を参照のこと。

$$RE(D_{BC}) = \frac{N_{\text{rain}}(D_{BC})}{N_{\text{air}}(D_{BC})} \quad (1)$$

一方で、この $RE(D_{BC})$ のデータとは独立に、降水開始前の大気中の BC の粒径別の吸湿特性や落下雨滴の粒径別数濃度の測定データに基づいて、前節で述べた 3 種の物理メカニズムによる水滴への取り込み効率 F の BC 粒径依存性 ($F(D_{BC})$) を理論的に推定することができます。雲粒活性化・雲粒との衝突・雨粒との衝突のそれぞれで BC 粒径依存性が著しく異なるため、 $RE(D_{BC})$ は BC が降水過程で実際に経験した $F(D_{BC})$ を強く反映したものになります。 $RE(D_{BC})$ と 3 種の $F(D_{BC})$ を比較することにより、どのメカニズムがどの程度水滴への取り込みに寄与しているかを決定することができます。

以上のように、本手法では、湿性除去を受けたエアロゾル一般を BC で代表させ、除去の過程で BC の粒径が保存されることを利用して、除去の BC 粒径依存性の直接観測と理論推定によりエアロゾルの除去メカニズムを解明します。本手法のような、物質輸送研究における「粒子トレーサー（粒子追跡子）」という観測指標の導入については、茂木（2014）に詳しい解説があります。茂木（2014）では、雲・降水過程を経る前後に相当する空気塊を航空機により観測し、BC 質量を粒子トレーサーとして用いることで、より粒径の小さなエアロゾルが湿潤対流により優先的に自由対流圏まで運ばれることを明らかにしています。本研究は、以下で述べるような新しい測定技術に基づき、BC をトレーサーとする観測手法を初めて大気・降水同時観測に適用したものとなっています。

BC トレーサー法の実現にあたっては、新たに 2 つの測定技術を開発する必要がありました。まず、降水中の BC の粒径別数濃度の測定法です。これまで大気中の BC の粒径別数濃度の測定法については開発が進められていましたが (Moteki and Kondo 2007, 2010)、降水中には確立された方法がありませんでした。また、雲粒活性化による BC の雲粒への取り込み効率を理論的に推定するためには、大気中の個々の BC を被覆している成分の被覆量と吸湿特性のデータが必要です。この吸湿特性を測定する方法についても新たに確立する必要がありました。次節でこれらの技術開発について説明します。

4. 測定法の確立

BC トレーサー法を実現するための測定システムと測定物理量の概略を模式的に第 1 図 b に示します。大気中・降水中の BC の測定のいずれにおいても、基礎となる技術はレーザー誘起白熱法 (LII 法) です。LII 法の詳細は Moteki and Kondo (2007, 2010) をご参照頂き、ここでは概要を述べることにします。

LII 法では、波長 1064 nm の強力なレーザー光に、エアロゾルを含んだ大気サンプルを細いジェットにして垂直に送り込みます。すべてのエアロゾルはレーザー光を散乱しながら通過していきますが、BC を内部に含んだ粒子 (BC 含有粒子) の場合、BC がレーザー光を強く吸収して BC の沸点である 4200 K 程度まで加熱され、熱輻射 (白熱光) を発します。この白熱光強度と BC 質量の関係から、個々のエアロゾルに含まれる BC 質量 m が測定されます。この m と BC の密度 $\rho (=1.8 \text{ g cm}^{-3})$ から、BC の体積等価粒径 $D_{BC} = (6m/\pi\rho)^{1/3}$ を求めることができます。さらに、粒子の散乱光強度はその粒子全体の粒径を反映しています。BC 含有粒子の場合、BC がレーザー内で 4200 K 程度まで加熱される過程で BC を被覆している有機・無機成分は蒸発してしまうため、BC 含有粒子がレーザー内に進入した直後の (被覆の蒸発が開始する前の) 散乱光強度を用いることにより、BC 含有粒子全体の粒径を測定することができます。以上のデータから、個々の BC の被覆量の定量が可能です。

この LII 法をもとに、私は「降水中の BC の測定法」と「BC 被覆成分の吸湿特性の測定法」の開発・評価を行いました。

4.1 降水中の BC の測定法

降水中の BC の粒径別数濃度のリアルタイム測定を可能にするため、降水試料を霧粒化し、気流中でその霧粒を蒸発させることにより粒子を大気に取り出す装置 (ネブライザー) を導入しました。降水試料から大気へと取り出された BC を LII 法で測定することにより、BC の粒径別数濃度を求めることができます。

この測定法において検証しなければならない点は、BC を降水試料から大気へ取り出す効率が安定していること (効率の BC 粒径への依存性や再現性) と、降水試料から大気へ取り出す際に BC 粒径が変化しないことです。まず、水中における粒子の粒径と数濃度が既知の標準試料を用いた実験により、効率の安定性の検証を行いました。研究初期に用いていた超音波式ネブライザーでは、効率 10% 程度で粒径 0.5 μm 程度ま

で粒子を大気に取り出せることが分かりました (Ohata *et al.* 2011, 2013). その後, 加圧空気を用いた同軸型ネブライザーを用いることにより, 効率50%程度で粒径 $2 \mu\text{m}$ 程度まで粒子が取り出せるように測定法が改善されています (Mori *et al.* 2016). どちらのネブライザーを用いた場合でも, 降水試料を霧粒に変化させた際に, 1つの霧粒内に複数の BC が含まれていると, その霧粒を気流中で蒸発させたときに BC 同士が凝集し, BC の粒径と粒子数が変化してしまいます. この影響が大きいと, 降水中の BC の粒径別数濃度が正しく測定できないことになり, BC トレーサー法の不確実性の原因となります. Moteki and Mori (2015) はこれを実験的・理論的に検証し, 現実的な降水試料中の BC 数濃度ではこの影響は無視できることを確認しました. 以上の検証により, ネブライザーと LII 法を組み合わせた本手法で確かに降水中の BC の粒径別数濃度を測定できることが示されています.

この測定技術の確立により, 数 mL 以下というわずかな降水試料を用いて BC の粒径別数濃度を測定することが可能になりました. LII 法により個々の粒子を検出するため非常に高い感度を持っており, 現在ではアイスコアや極域の雪試料など, 極低濃度の試料の分析にも用いられています (塚川ほか 2016; Sinha *et al.* 2018).

4.2 BC 被覆成分の吸湿特性の測定法

上昇流中で過飽和となった水蒸気が, 実際に BC 含有粒子の表面に凝結して雲粒を生成するかどうかは, BC の微物理量 (粒径・被覆量・被覆成分の吸湿特性) と大気中の水蒸気過飽和度に依存します. 表面張力効果と溶質効果を考慮したケーラー理論により, 一般に BC 含有粒子の全体粒径・BC 被覆量・被覆成分の吸湿パラメータ κ が大きいほど, 大気中の水蒸気過飽和度が低くても雲粒生成が起こります (粒子が雲粒生成を起こす最小の水蒸気過飽和度を臨界過飽和度と呼びます). 吸湿パラメータ κ は粒子の化学組成のみに依存する量で, 最も吸湿性の高い海塩が1.1, 硫酸アンモニウムが0.5, 典型的な有機エアロゾルで0.1–0.2程度の値をとります (Petters and Kreidenweis 2007).

BC の粒径と被覆量については, 上述の LII 法により測定が可能です. 私は, これらに加えて被覆成分の吸湿パラメータ κ の測定を可能にするため, LII 法による粒子測定の前段で大気サンプルを加湿し, 相対湿

度 (RH) を85%に制御するシステムを導入しました. これにより, 乾燥状態から加湿されて吸湿成長した後のエアロゾルを LII 法で測定します. この手法の技術的詳細や限界については Ohata *et al.* (2016a) にて議論しておりますが, 特定の乾燥質量を持つエアロゾルのみを透過させるエアロゾル分級機と, この加湿 LII 法を組み合わせることにより, BC の被覆成分の吸湿パラメータ κ をリアルタイムで測定することができます.

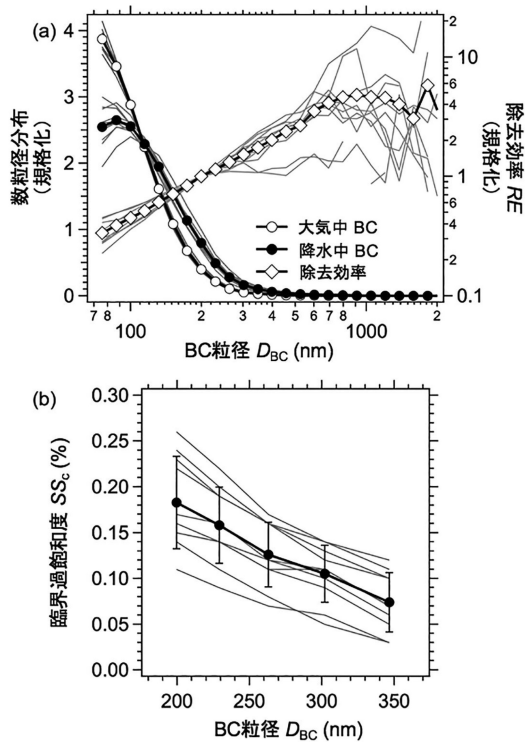
この測定法を用いて東京の都市大気を観測したところ, 「BC の被覆成分の平均的な κ と, BC を内部に含めないエアロゾルの平均的な κ の時間変化が良く一致すること」が明らかになりました. これはすなわち, BC を被覆している物質の化学組成が, そのとき BC の周りを浮遊している (BC と内部混合していない) エアロゾルの化学組成と平均的に同様であることを示しています. 気体成分の凝縮やエアロゾル同士の凝集によりエアロゾルの内部混合が進行する過程で, BC の被覆成分と BC を含めないエアロゾルの化学組成が均一化されていくことが観測により実証されました.

以上の測定法開発により, 個々の BC 含有粒子の雲凝結核能 (臨界過飽和度) の理論的な推定に必要な, BC 粒径・被覆量・吸湿パラメータの測定値を得ることが可能になりました.

5. 観測結果

前節の測定技術に基づいて, BC トレーサー法を2014年の夏季における東京の10回の降水イベントに対して適用しました. 観測場所は東京大学本郷キャンパス理学部1号館の屋上です. 観測期間中のライダーによる観測データから, 大気中のエアロゾル濃度は雲底高度 ($\sim 1 \text{ km}$) 以下で集中的に高くなっていること, また, レーダー観測により個々の降水セルの水平スケールが基本的に10 km 以下であることを理由に, ここでは降水開始までの1時間に地表付近で測定された BC が降水試料中の BC の初期状態を表すと仮定します.

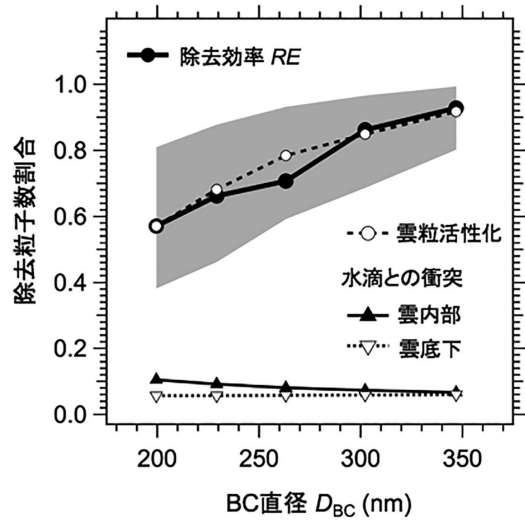
第2図 a に降水開始までの1時間の大気中の BC の粒径別数濃度と, 降水中の BC の粒径別数濃度を示します. 降水中 BC は大気中 BC に比べて粒径の大きい BC の数濃度が相対的に高く, 除去効率 $RE(D_{bc})$ に強い BC 粒径依存性があることが分かります. 第2図 a で示すように $RE(200 \text{ nm}) = 1$ として規格化する



第2図 (a)東京における10回の降水イベント時の大気中(除去前)・降水中(除去後)のBC粒径分布と、それらの比から求めた除去効率(細線)。粒径分布はBC総数濃度で規格化している。また、除去効率はBC粒径200 nmの値で規格化している。太線は10回のイベントの平均を表す。(b)同イベント時の大気中のBCの臨界過飽和度 SS_c のBC粒径依存性(細線)。各粒径のBCの被覆量と被覆成分の吸湿パラメータの測定値の中央値に基づき、ケーラー理論を用いて算出した。太線は10回のイベントの平均、エラーバーは標準偏差を表す。

と、イベント平均で $RE(100 \text{ nm}) \sim 0.5$, $RE(400 \text{ nm}) \sim 2$ であることから、粒径100 nm (400 nm) のBCは粒径200 nmのBCに対して半分(2倍)の効率で大気から除去されています。

BC粒径が100 nm程度変化しただけで除去効率が倍近く変化するという、BC粒径200 nm付近における強いBC粒径依存性は、第2図bに示すように、除去前のBCの雲凝結核能のBC粒径依存性と定性的に整合しています。第2図bは、粒径範囲185–370 nmのBCに対し、被覆量と吸湿パラメータの測定値に基づいて推定したBCの臨界過飽和度 SS_c のBC粒径依



第3図 1つの降水イベント時における、除去効率 RE (観測) と除去粒子数割合 F (理論推定) のBC粒径依存性の比較。水滴との衝突については雲内部と雲底下に分け、現実的な条件における上限の除去粒子数割合を計算した(詳細は Ohata *et al.* (2016b) を参照のこと)。雲粒活性化による除去粒子数割合は、水蒸気過飽和度 SS を0.25%と仮定して求めたものを示す。シェイドは、例として SS を0.18%から0.38%の範囲で仮定した場合の理論推定による除去粒子数割合を表す。

存性を示しています。BC粒径が大きいほど臨界過飽和度が低く、雲粒になりやすかったことが分かります。これは、東京で観測されたBCの多くが、ディーゼル車などの人為的な排出源から放出された直後の比較的被覆量の少ないBCであるため、BCの粒径が大きいほどBC含有粒子全体の粒径も大きい(被覆成分の体積も大きい)ことに依っています。

それぞれの降水イベントに対し、観測された $RE(D_{BC})$ のBC粒径依存性が、雲粒活性化による水滴への取り込み効率 $F_{CCN}(D_{BC})$ のBC粒径依存性のみによって定量的に説明可能かどうか調べました。4.2で述べたように、 $F_{CCN}(D_{BC})$ はBC含有粒子の微物理量と上昇流中で粒子が経験した最大の水蒸気過飽和度 SS に依存します。観測された $RE(D_{BC})$ と、 SS の値を様々に仮定して推定した $F_{CCN}(D_{BC})$ を比較します。第3図に、ある1回の降水イベントにおける比較結果を示します。このイベントでは、 $SS=0.25\%$ と仮定することにより、 $RE(D_{BC})$ と $F_{CCN}(D_{BC})$ の

BC 粒径依存性が良く一致することが分かりました。また、その他の降水イベントについても、 $SS = 0.08 - 0.45\%$ の値を仮定することにより、良い一致を得ることができています。これらの値は、現実的な気象条件（上昇流速度やエアロゾル数濃度）の仮定のもとでは SS が $\sim 1.0\%$ を超えることはないとする理論予測（例えば Mordy (1959) によるパーセルモデルを用いた推定）と比べて、妥当な範囲です。

一方で、雲粒・雨粒との衝突による BC の水滴への取り込み効率を、雲底下と雲内部に分けて理論推定しました。計算の詳細については対象論文 (Ohata *et al.* 2016b) をご参照頂きたいと思いますが、雲粒の粒径分布や雲底下・雲内部での上昇空気塊の滞在時間を現実的な範囲でどのように仮定しても、理論推定される取り込み効率では観測された $RE(D_{BC})$ の強い BC 粒径依存性を説明することができませんでした (第 3 図)。また、雲粒活性化による取り込み効率に比べて、水滴との衝突は著しく効率が低いことも分かります。

以上のように、 $RE(D_{BC})$ と $F_{CCN}(D_{BC})$ の BC 粒径依存性が特定の SS の仮定の下で良く一致すること、また水滴との衝突では $RE(D_{BC})$ の BC 粒径依存性が説明できず、かつ雲粒活性化よりも著しく効率が低いことから、エアロゾルの除去を支配する主要な物理メカニズムは雲粒活性化であることが結論づけられます。これは、BC と同様の粒径を持つエアロゾルに対して一般化できる結論です。

また、 $RE(D_{BC})$ と $F_{CCN}(D_{BC})$ の BC 粒径依存性を良く一致させる SS の値は、各降水イベントにおいて、雲粒活性化によるエアロゾルの除去割合を決定した実効的な SS の値を示していると考えられます。除去を受けて降水試料中に分散している多数の BC は、湿潤対流において異なる上昇流・ SS を経験した各 BC の集合です。実効的な SS の値は、降水試料中に分散する各 BC を含んでいた様々な空気塊が経験した SS を、各空気塊中の BC 数濃度で重み付き平均したものと考えられます。

6. まとめと今後の課題

降水に含まれる BC を「天からの手紙」のようにトレーサーとして用いることで、雲粒活性化がエアロゾルの湿性除去を強く支配するメカニズムであることを観測的に実証し、さらにエアロゾルが湿潤対流で経験した(除去を考える上での実効的な)水蒸気過飽和度の推定を可能にしました。この BC トレーサー法は、個

別の BC 含有粒子をリアルタイムで測定可能な LII 法と、それを応用した新しい測定技術に基づいています。

本研究の結果は、エアロゾルの空間分布ならびに気候影響をシミュレーションする数値モデルにおいて、雲粒活性化を支配する物理パラメータ（エアロゾルの粒径・化学組成・混合状態と空気塊が経験する最大の水蒸気過飽和度）を精緻に表現することが重要であることを強く示唆しています。さらに、BC トレーサー法によって推定される水蒸気過飽和度は、降水性の雲クラスター内部の実効的な水蒸気過飽和度を時空間的に平均したものであり、雲解像モデルで計算される水蒸気過飽和度の検証を可能にします。このような観測的な制約は、エアロゾルの湿性除去と鉛直輸送の数値シミュレーションの妥当性を評価する上で重要であると考えています。

最後に、今後の課題や研究の興味について述べ、解説を終えたいと思います。

本研究における除去効率 $RE(D_{BC})$ と雲粒活性化による取り込み効率 $F_{CCN}(D_{BC})$ の比較は、粒径範囲 185–370 nm の BC に限られています。これは、LII 法により BC の被覆量を測定可能な粒径範囲に制約があるためです。装置改良によりこの粒径範囲を拡張することで、3種の除去メカニズムの寄与をより詳細に明らかにすることができると期待されます。また、本研究では $F_{CCN}(D_{BC})$ を、BC の被覆量・被覆成分の吸湿パラメータの測定値に基づきケラー理論を用いて推定しました。しかし、BC のような複雑な凝集体形状をした粒子に対する被覆量の測定やケラー理論の適用には、定量化の難しい不確実性が含まれています。雲凝結核数の水蒸気過飽和度への依存性を測定可能な測定器と LII 法を組み合わせると $F_{CCN}(D_{BC})$ を直接測定することができれば、より純粋な観測的方法のみに基づいて $RE(D_{BC})$ と $F_{CCN}(D_{BC})$ の比較が行えると考えられます。

本研究の観測は、夏季の中緯度都市大気において、水過程の影響がないか小さいと思われる降水イベントに対して行いました。本研究で得られた「エアロゾルの主要な除去メカニズムは雲粒活性化である」という知見は、水過程を含まない降水であれば、異なる地域や季節であっても成り立つと考えられます。今後、同様の観測を様々な地域や気象条件下で実施することで、除去効率の BC 粒径依存性や水蒸気過飽和度の各地域における特徴・季節性など、より詳細で包括的な理解が得られると期待されます。そのようなデータの

蓄積から得られる知見は、数値モデルにおいてエアロゾルの除去・輸送をできる限り正確性を失わずに簡略にパラメタライズしたい場合において、観測的制約・根拠になるものとして重要です。

氷過程を含む冷たい雨（降雨・降雪）によるエアロゾルの除去過程は、暖かい雨による除去に比べて非常に複雑になります。本研究で議論したエアロゾルの雲凝結核能・水滴との衝突効率に加えて、エアロゾルの氷晶核能・氷晶や雪片との衝突効率、Wegener-Bergeron-Findeisen (WBF) プロセス（過冷却水滴の蒸発）などが除去に影響します。先行研究では、WBF プロセスが強く働くことにより、降水過程を経てもエアロゾルがほとんど除去されないと仮定する数値モデルもあれば、この影響は大きくないと仮定するものもあり、冷たい雨によるエアロゾルの除去は観測的な知見が乏しいのが現状です (Qi *et al.* 2017)。装置開発や新しい観測手法を通じて、氷過程を含んだエアロゾル-雲-降水の相互作用の理解に貢献できるような研究を進めていきたいと考えています。

謝 辞

受賞対象となった論文は、これまで辛抱強くご指導を頂いてきた先生方との共著論文です。私に大気物質科学研究の重要性と面白さを伝えてくださり、自分の好きなことをとことんやるよう鼓舞してくださる近藤豊先生（国立極地研究所）、つねに広い視野で問題の地球科学的な重要性を捉え、研究の方向を適切に軌道修正して下さる小池 真先生（東京大学）に心より感謝いたします。茂木信宏先生（東京大学）には、実験・観測の詳細から論文の執筆に至るまで、学部生の頃から親身なご指導を頂いています。BCを粒子トレーサーとしてエアロゾルの除去メカニズムの普遍的な知見を得るという考え方は、茂木先生のこれまでの研究に端を発しており、日頃のご指導に深く感謝いたします。本研究における観測機器類のセットアップやエアロゾルと水滴の衝突計算では、森 樹大博士（東京理科大学）にご助力頂きました。心より感謝いたします。

また、竹川暢之先生（首都大学東京）、梶野瑞王博士（気象研究所）、大島 長博士（気象研究所）、宮川拓真博士（海洋研究開発機構）、松井仁志博士（名古屋大学）には、大学院で研究を開始してから現在に至るまで、セミナーや日頃の議論を通じて多くのご指導を頂いています。J. P. Schwarz 博士と D. W. Fahey

博士（米国海洋大気庁）には、米国海洋大気庁に短期滞在のため訪れた私を温かく迎え入れて頂き、加湿 LII 法の開発に関して多くの助言を頂きました。また、東京における観測では高見昭憲博士（国立環境研究所）、足立光司博士（気象研究所）、北 和之先生（茨城大学）にご助力頂きました。東京大学の佐藤薫先生、三浦裕亮先生、高麗正史先生、高橋嘉夫先生をはじめとする方々には、研究生活やセミナーにおいてとてもお世話になりました。以上の方々に深く感謝いたします。また、日頃の相談や議論の相手になって頂いている先輩・同輩・後輩諸氏に心より感謝いたします。

本研究では、国立環境研究所のライダーのデータ (<http://www-lidar.nies.go.jp> 2018.7.27閲覧) と気象庁の気象レーダーのデータ (<https://www.jma.go.jp/jp/highresorad/> 2018.7.27閲覧) を活用させて頂きました。

参 考 文 献

- Bond, T. C., S. J. Doherty, D. W. Fahey, P. M. Forster, T. Berntsen, B. J. DeAngelo, M. G. Flanner, S. Ghan, B. Kärcher, D. Koch, S. Kinne, Y. Kondo, P. K. Quinn, M. C. Sarofim, M. G. Schultz, M. Schulz, C. Venkataraman, H. Zhang, S. Zhang, N. Bellouin, S. K. Guttikunda, P. K. Hopke, M. Z. Jacobson, J. W. Kaiser, Z. Klimont, U. Lohmann, J. P. Schwarz, D. Shindell, T. Storelvmo, S. G. Warran and C. S. Zender, 2013: Bounding the role of black carbon in the climate system: A scientific assessment. *J. Geophys. Res. Atmos.*, **118**, 5380-5552.
- Cerqueira, M., C. Pio, M. Legrand, H. Puxbaum, A. Kasper-Giebl, J. Afonso, S. Preunkert, A. Gelencsér and P. Fialho, 2010: Particulate carbon in precipitation at European background sites. *J. Aerosol Sci.*, **41**, 51-61.
- Flossmann, A. I. and W. Wobrock, 2010: A review of our understanding of the aerosol-cloud interaction from the perspective of a bin resolved cloud scale modeling. *Atmos. Res.*, **97**, 478-497.
- 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. 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.
- Kondo, Y., 2015: Effects of black carbon on climate: Advances in measurement and modeling. *Monogr. Environ. Earth Planets*, **3**, 1-85.
- Mordy, W., 1959: Computations of the growth by condensation of a population of cloud droplets. *Tellus*, **11**, 16-44.
- Mori, T., N. Moteki, S. Ohata, M. Koike, K. Goto-Azuma, Y. Miyazaki and Y. Kondo, 2016: Improved technique for measuring the size distribution of black carbon particles in liquid water. *Aerosol Sci. Technol.*, **50**, 242-254.
- 茂木信宏, 2014: 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. *天気*, **61**, 229-237.
- 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, 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. and T. Mori, 2015: Theoretical analysis of a method to measure size distributions of solid particles in water by aerosolization. *J. Aerosol Sci.*, **83**, 25-31.
- 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.
- Ohata, S., N. Moteki and Y. Kondo, 2011: Evaluation of a method for measurement of the concentration and size distribution of black carbon particles suspended in rainwater. *Aerosol Sci. Technol.*, **45**, 1326-1336.
- Ohata, S., N. Moteki, J. Schwarz, D. Fahey and Y. Kondo, 2013: Evaluation of a method to measure black carbon particles suspended in rainwater and snow samples. *Aerosol Sci. Technol.*, **47**, 1073-1082.
- Ohata, S., J. P. Schwarz, N. Moteki, M. Koike, A. Takami and Y. Kondo, 2016a: Hygroscopicity of materials internally mixed with black carbon measured in Tokyo. *J. Geophys. Res. Atmos.*, **121**, 362-381.
- Ohata, S., N. Moteki, T. Mori, M. Koike and Y. Kondo, 2016b: A key process controlling the wet removal of aerosols: new observational evidence. *Sci. Rep.*, **6**, 34113, doi:10.1038/srep34113.
- 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.
- Qi, L., Q. Li, C. He, X. Wang and J. Huang, 2017: Effects of the Wegener-Bergeron-Findeisen process on global black carbon distribution. *Atmos. Chem. Phys.*, **17**, 7459-7479.
- Sinha, P. R., Y. Kondo, K. Goto-Azuma, Y. Tsukagawa, K. Fukuda, M. Koike, S. Ohata, N. Moteki, T. Mori, N. Oshima, E. J. Førland, M. Irwin, J.-C. Gallet and C. A. Pedersen, 2018: Seasonal progression of the deposition of black carbon by snowfall at Ny-Ålesund, Spitsbergen. *J. Geophys. Res. Atmos.*, **123**, 997-1016.
- Taylor, J. W., J. D. Allan, G. Allen, H. Coe, P. I. Williams, M. J. Flynn, M. Le Breton, J. B. A. Muller, C. J. Percival, D. Oram, G. Forster, J. D. Lee, A. R. Rickard, M. Parrington and P. I. Palmer, 2014: Size-dependent wet removal of black carbon in Canadian biomass burning plumes. *Atmos. Chem. Phys.*, **14**, 13755-13771.
- Textor, C., M. Schulz, S. Guibert, S. Kinne, Y. Balkanski, S. Bauer, T. Berntsen, 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.
- 塚川佳美, 東 久美子, 近藤 豊, 杉浦幸之助, 大畑祥, 森 樹大, 茂木信宏, 小池 真, 平林幹哲, R. Dallmayr, 榎本浩之, 2016: アラスカ積雪中のブラックカーボンの緯度分布. *雪氷*, **78**, 459-478.

Observational Study on Wet Removal Mechanisms of Aerosols

Sho OHATA*

* *Graduate School of Science, The University of Tokyo, 7-3-1 Hongo, Bunkyo-ku, Tokyo 113-0033, Japan.*

E-mail: ohata@eps.s.u-tokyo.ac.jp

(Received 5 June 2018; Accepted 30 July 2018)
