

学位論文題名

多成分系大気エアロゾルの光学的特性に関する研究

学位論文内容の要旨

二酸化炭素等の温室効果気体の増加による地球温暖化が重要な問題となっており、将来の地表気温の正確な予測が対策のために不可欠な課題となっている。しかし、近年この地表気温の予測には温室効果気体による昇温効果に加え、大気エアロゾルによる太陽放射の散乱・吸収効果を考慮する必要があることが指摘されている。大気エアロゾルが太陽放射を散乱・吸収することにより気候に影響を与える効果（大気エアロゾルの直接効果）を評価するためには、大気エアロゾルの光学的厚さ（大気中のエアロゾル総量に比例する量）と光学的特性（粒径分布、複素屈折率、存在形態）を把握する必要がある。しかし、大気エアロゾルは滞留時間が短いため、これらの値は地域的および季節的に大きく変動している。一方、人工衛星の輝度データから大気エアロゾルの光学的厚さが求められつつあるが、その解析において、現状ではある仮定された光学的特性値が用いられていることから、光学的厚さを正確に求めるためには測定に基づいた適切な光学的特性値を与える必要がある。以上のような背景から、本研究では、大気エアロゾルの光学的特性を明らかにすることを目的とし、次の研究をおこなった。(1)大気エアロゾルの散乱係数・吸収係数の測定値と、分析された化学組成を基に算出した値とを各々比較することによって、大気エアロゾルの粒径分布と混合状態のモデルを選定した。(2)大気エアロゾルの太陽放射吸収特性に最も大きく寄与しているすす成分の混合状態を、これまでほとんど明らかにされていない非都市域において電子顕微鏡観察と水透析法によって明らかにした。(3)以上の結果を基に、各地の大気エアロゾルの長期間サンプリングによって得られた化学組成を用いて、大気エアロゾルの光学的特性を表す値である単一散乱アルベドを算出した。(4)東シナ海域を例として、長崎県福江島において人工衛星と同期した地上観測をおこなって単一散乱アルベドと海面反射率を決定し、衛星輝度データを用いて光学的厚さの分布を求めた。以下に本論文の要旨を述べる。

第1章では、大気エアロゾルの直接効果に関するこれまでの研究をまとめ、研究の目的を述べた。

第2章では、散乱係数・吸収係数の測定値と計算値の比較によって、両者が最もよく一致する大気エアロゾルの粒径分布と混合状態のモデルを選定した。積分型散乱光度計と吸収光度計を用いて散乱係数と吸収係数をそれぞれ測定した。一方、その測定と並行して捕集した大気エアロゾルを化学分析し、黒色純炭素、有機物、 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 、 NH_4NO_3 、海塩、土壌の6成分の組成を得た。この化学組成に基づき、様々な粒径分布と混合状態を用いて Mie 散乱理論により散乱係数と吸収係数を算出した。粒径分布については、個数幾何平均半径 r_{gN} が $0.035\sim 0.100\ \mu\text{m}$ 、幾何標準偏差 σ_g が $1.7\sim 2.3$

の範囲で 16 種類の分布を用いて計算した。混合状態については、単一成分からなる粒子（均質粒子）が多種類浮遊している外部混合状態と、均質粒子の他に、1 個に複数の成分が含まれた粒子（混合粒子）が浮遊している内部混合状態を仮定した。混合粒子は、黒色純炭素を核としてその周囲を有機物と $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ が殻状に覆っているものとした。福江島における観測では、混合状態は内部混合より外部混合を仮定した場合の方が、散乱係数・吸収係数共に測定値と計算値が良い対応を示した。また、粒径分布については r_{gN} が $0.035\sim 0.055\ \mu\text{m}$ 、 σ_g が $1.7\sim 1.9$ の範囲において良い対応が得られ、 r_{gN} が $0.046\ \mu\text{m}$ 、 σ_g が 1.7 のときに最もよく一致した。札幌における観測では、混合状態はやはり内部混合に比べて外部混合の場合の方が測定値と計算値の対応がよかった。また、粒径分布は、黒色純炭素について r_{gN} が $0.035\ \mu\text{m}$ 、 σ_g が 1.7 、黒色純炭素以外の成分について r_{gN} が $0.055\ \mu\text{m}$ 、 σ_g が 1.7 のときに最もよく一致した。

第 3 章では、すすを含む粒子、すなわち、すすからなる粒子（すす粒子）とすすが水溶性物質と混合している粒子（混合粒子）の個数について、電子顕微鏡観察と水透析法によって解析した。全粒子に占めるすすを含む粒子の個数割合について見ると、札幌では $41\sim 49\%$ を占めるのに対して、福江島では $3\sim 11\%$ 、アラスカでは 6% に過ぎなかった。また、すすを含む粒子のうち混合粒子は札幌では 5% に過ぎなかったが、福江島では $19\sim 72\%$ 、アラスカでは 56% を占めた。このように、福江島においてはすすを含む粒子のうち半数程度が混合粒子であった。しかし、第 2 章では外部混合を仮定して計算した場合の方が実測結果をよく説明していた。これは、混合粒子として、実際には非球形であるすす粒子を球形の核と仮定し、その周囲を等体積の非吸収性物質が殻状に覆っているものとしたモデル設定が十分でなかったためと考えられる。しかし、非球形粒子に対する Mie 散乱理論の取り扱いが難しいことや、核と殻の体積比の実測値がないことなどから、本研究では、第 2 章で選定されたモデルを、等価で実用的なモデルとして採用することとした。

第 4 章では、選定された光学モデルを用いて、化学組成に基づき各地の大気エアロゾルの単一散乱アルベドを算出した。各地の単一散乱アルベドは、札幌では $0.70\sim 0.75$ 、ニセコでは 0.90 前後、沖縄では $0.80\sim 0.90$ 、アラスカでは 0.90 前後、北極圏でアークティックヘイズの影響を受けている場合は $0.90\sim 0.95$ 、アリゾナ・レモン山（標高 2791m ）では $0.85\sim 0.90$ であった。他の地域でも化学組成の分析値が得られれば、この方法を用いて単一散乱アルベドを算出することができる。

第 5 章では、東シナ海域を例として、長崎県福江島において地上観測を行い、それに基づいて正確な単一散乱アルベドと海面反射率を決定し、Terra-MODIS データを用いて大気混濁度 β （波長 $1\ \mu\text{m}$ での光学的厚さ）の分布を求めた。2000 年 5 月 3 日の東シナ海域の β は $0.06\sim 0.12$ の範囲が大部分を占めた。当日の直達日射観測から得られた β は福岡で 0.18 であり、福岡の沿岸で求められた β の値は $0.16\sim 0.20$ であったことから、本研究において求められた分布は妥当なものと考えられる。また、朝鮮半島沿岸では $0.12\sim 0.30$ 、中国大陸沖合では $0.12\sim 0.20$ と高い値を示した。

第 6 章では、本研究全体を総括した。

以上のように、本研究では、化学分析、光学測定、ならびに電子顕微鏡解析を行うことにより、実際の散乱・吸収効果を最もよく再現する大気エアロゾルの光学モデル（粒径分布および混合状態）を選定した。この結果、化学組成に基づいて大気エアロゾルの光学的特性を求めることが可能とな

った。また、衛星リモートセンシングによって光学的厚さの地域分布をより正確に求める手法を確立した。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 太 田 幸 雄
副 査 教 授 清 水 達 雄
副 査 教 授 朝 倉 國 臣
副 査 助 教 授 村 尾 直 人

学 位 論 文 題 名

多成分系大気エアロゾルの光学的特性に関する研究

二酸化炭素等の温室効果気体の増加に伴う地球の温暖化が大きな問題となっており、将来の気温上昇量の予測が対策のための重要な課題となっているが、最近この気温の予測において大気エアロゾル（大気浮遊微粒子）の太陽放射（日射）散乱・吸収による冷却効果（大気エアロゾルの直接効果）を考慮する必要があることが指摘されてきている。この直接効果を評価するためには大気エアロゾルの光学的厚さ（大気中のエアロゾル総量に比例する量）と光学的特性（粒径分布と複素屈折率、あるいは単一散乱アルベドと散乱光の角度分布関数、および存在形態）の地球規模分布を把握する必要がある。しかし、大気エアロゾルは多様な発生源から排出された多成分多分散粒子の集合体であり、かつ滞留時間が短いため、これらの値は地域のおよび季節的に大きく変動しており、今後、地域別・季節別の分布測定が必要である。一方、最近人工衛星の輝度データから大気エアロゾルの光学的厚さの分布が求められつつあるが、その解析においてもこれまでは全球一様と仮定された光学的特性が用いられており、光学的厚さの分布をより正確に求めるためには、測定に基づいた地域毎季節別の光学的特性が与えられなければならない。著者は、この大気エアロゾルの光学的特性を求めることを目的として研究を実施し、以下の成果を得た。

（１）大気エアロゾルの散乱係数および吸収係数の測定値と、分析された化学組成値を基に算出した値とを各々比較することにより、測定値を最もよく説明できる大気エアロゾルの粒径分布と混合状態のモデルを選定した。すなわちまず大気エアロゾルの化学分析により黒色純炭素、有機物、硫酸アンモニウム、硝酸アンモニウム、海塩および土壌粒子の6成分の組成割合を決定し、この化学組成に基づき様々な粒径分布と混合状態を仮定して単一散乱理論により散乱係数と吸収係数を算出し、観測値と比較した。混合状態については、多種類の均質粒子（単一成分から成る粒子）が浮遊している外部混合状態と、均質粒子の他に混合粒子（球形のすす粒子を核としてその周囲を有機物と硫酸アンモニウムが殻状に覆っている粒子）も浮遊している内部混合状態とを仮定したが、札幌および福江島における観測において、いずれの場合も外部混合状態を仮定した場合の計算値の方が、観測値と

の良い一致が見られた。さらに外部混合状態において、微小粒子である黒色純炭素、有機物、硫酸アンモニウムおよび硝酸アンモニウム粒子について、最も良く一致する対数正規型の粒径分布として、福江島においては個数幾何平均半径 r_{gN} が $0.046 \mu\text{m}$ 、幾何標準偏差 σ_g が 1.7 、一方札幌においては、黒色純炭素粒子については r_{gN} が $0.035 \mu\text{m}$ 、 σ_g が 1.7 、黒色純炭素以外の微小粒子については r_{gN} が $0.055 \mu\text{m}$ 、 σ_g が 1.7 の分布を選定した。

(2) 大気エアロゾルの太陽放射吸収特性に最も大きく寄与しているすす成分の混合状態について透過型電子顕微鏡観察と水透析法を用いて解析した。すすを含む粒子、すなわちすすから成る粒子と混合粒子について解析した結果、全粒子に占めるすすを含む粒子の割合は札幌では $41\sim 49\%$ を占めるが、福江島では $3\sim 11\%$ 、アラスカでは 6% に過ぎなかった。また、すすを含む粒子に占める混合粒子の割合は、札幌では 5% に過ぎなかったが、福江島では $19\sim 72\%$ 、アラスカでは 56% を占めた。このように福江島ではすすを含む粒子のうち半数程度が混合粒子であった。しかし前述の計算モデルでは混合粒子を含まない外部混合モデルの方が実測値との良い一致が見られた。これは混合粒子として実際には非球形であるすす粒子を球形の核と仮定し、その周囲を等体積の非吸収性物質が覆っているとしたモデル設定が十分ではなかったためである。しかし、非球形粒子に対するミー散乱計算は非常に複雑であること、および核と殻との体積比の実測値が欠けていることなどから、筆者は上記の外部混合状態モデルを、等価で実用的なモデルとして採用している。

(3) 上記の光学モデルを用いて、著者は、これまで全く測定例のない地域における大気エアロゾルの単一散乱アルベドを、化学成分測定結果から算出した。その結果、各地の単一散乱アルベドは、北海道ニセコ山麓では 0.90 前後、沖縄本島では $0.80\sim 0.90$ 、アラスカ大陸内部では 0.90 程度、アリゾナ・レモン山山頂(標高 2791m)では $0.85\sim 0.90$ であった。このように地球上いずれの地域においても、エアロゾルの化学成分測定結果が得られれば、本手法を用いることにより単一散乱アルベドを評価することが可能となった。

(4) 東シナ海域を例として、長崎県福江島において人工衛星と同期した地上観測を行い、それに基づいて正確な大気エアロゾルの単一散乱アルベドと海面反射率を決定し、衛星輝度データを用いて、大気混濁係数 β (波長 $1 \mu\text{m}$ での光学的厚さ) の分布を求めた。2000年5月3日の東シナ海域の沖合の β は $0.04\sim 0.12$ であり、一方朝鮮半島沿岸では $0.12\sim 0.30$ 、中国大陸沿岸では $0.12\sim 0.20$ と高い値を示した。このように本手法を用いれば、世界各地の海域の季節別の大気エアロゾルの光学的厚さの分布を決定することができる。

以上を要するに、本研究はこれまで不確定性の大きかった大気エアロゾルによる地球温暖化抑制効果の評価において不可欠な大気エアロゾルの光学的特性を、化学成分測定値から算出・評価する手法を確立したものであり、大気環境保全工学の発展に対して大きく貢献するものである。

よって著者は、北海道大学博士(工学)の学位を授与される資格あるものと認める。