

2. エアロゾルを通して見る気候変動 ～大気化学の視点から～

北海道大学 低温科学研究所 宮崎 雄三

1. 大気エアロゾルとは？

エアロゾルとは、空気中に浮遊している非常に小さい液体粒子や固体粒子が分散している「系」あるいは粒子そのもののことをいいます。具体的には、ディーゼル自動車などから出る黒鉛粒子（すす）や酸性雨の原因物質となる硫酸塩粒子、黄砂粒子や花粉、たばこの煙などはすべて私たちの身近にみられるエアロゾルです。視程や色の違いなどから、気象学的にはスモッグ、煙霧などもエアロゾルに含まれます。大気中でのエアロゾルの濃度は空気の体積 1m^3 当たりナノグラム ($1\text{ ng} = 10^{-9}\text{ g}$) からマイクログラム ($1\text{ }\mu\text{g} = 10^{-6}\text{ g}$) の桁で、ごく微量にしか存在しませんが、後に述べるように気候への影響や人間の健康影響などが極めて大きいことが知られています。

エアロゾルの大きさは粒子の直径（粒径）で表わされることが多く、粒径の範囲は分子に近い1ナノメートル ($1\text{ nm} = 10^{-9}\text{ m}$) から1ミリメートルまで大変広い幅を持ちます。人間への健康影響に関しては、エアロゾルが肺や気管等に沈着し呼吸器に悪影響を及ぼしたり、発がん性や変異原性をもつものもあることから我が国では環境基準を設け、オキシダント（光化学スモッグの原因物質）とともに汚染レベルの評価を行ってきました。世界規模でのエアロゾルの顕著な気候影響が認識されるようになったのは1980年代になってからです。特に1990年代以降は、気候変動に関する政府間パネル（Intergovernmental Panel on Climate Change; IPCC）等により、地球の温暖化現象の定量的理解のために「放射強制力」という概念が用いられるようになりました。ここでの放射強制力とは、「地球への出入りによってもたらされる大気上端での平均的な正味の放射の変化」のことを言います。この概念を通してエアロゾルが引き起こす気候影響が広く認識されるようになりました。しかしながら、エアロゾルの形は球状のものだけでなく様々で、その化学組成も多岐にわたり測定も難しいことから、大気中でのエアロゾルの動態や気候影響に対する理解は不十分なのが現状です。

2. エアロゾルの生成とそのゆくえ

エアロゾルが生成される過程として、破碎や飛散、噴霧など外的な力を受けて生成する過程と、大気中での冷却や化学反応などにより蒸気が凝縮して粒子化する過程とに大きく分けられます。生成過程の違いからエアロゾルは発生源において、もともと粒子として放出される「一次粒子」と、ガス状物質として放出されたものが大気中での酸化反応等により粒子化してできる「二次粒子」とに分けることができます(図1)。具体的には砂漠などで風により巻き上げられる黄砂粒子や海上での水しぶきにより発生する海塩粒子、車のディーゼルエンジンなどから排出される「すす」は典型的な一次粒子です。また、酸性雨の原因物質である窒素酸化物や硫黄酸化物が酸化することにより生成される硝酸塩、硫酸塩は二次粒子に分類されます。発生源

の違いからは、自動車や工場など、人間の活動に伴って排出される人為起源と、森林などの樹木や土壌、海水面などが自然界から放出される自然起源とに大きく分類することができます。

では発生したエアロゾルはどのようにして大気中からなくなるのでしょうか。粒径1マイクロメートル ($1 \mu\text{m} = 10^{-6} \text{m}$) 以下の微小粒子はその名の通り非常に小さいため、重力により速く沈降することができません。したがって主に雲粒に取り込まれた後、雲粒が雨として落下することにより大気中から除去されます。ここで雲粒とは、雲を構成する数 μm から数十 μm の粒径をもつ微小な水滴のことです。また、エアロゾルが降下する雨滴に直接取り込まれることによっても除去されます。一方、粗大粒子と呼ばれる粒径 $1 \mu\text{m}$ 以上のエアロゾルも同様に降水によって除去されますが、同時にそれ自身かなり早く沈降するため、重力沈降も重要な除去プロセスとなります。また降水によって取り除かれるか否かはエアロゾルの化学組成が「どの程度、水に溶けやすいか」にも依ります。このようにエアロゾルが発生してから大気中から消えるまでの時間は粒径やその化学組成に大きく依存し、数時間と短いものから1週間程度まで様々です。

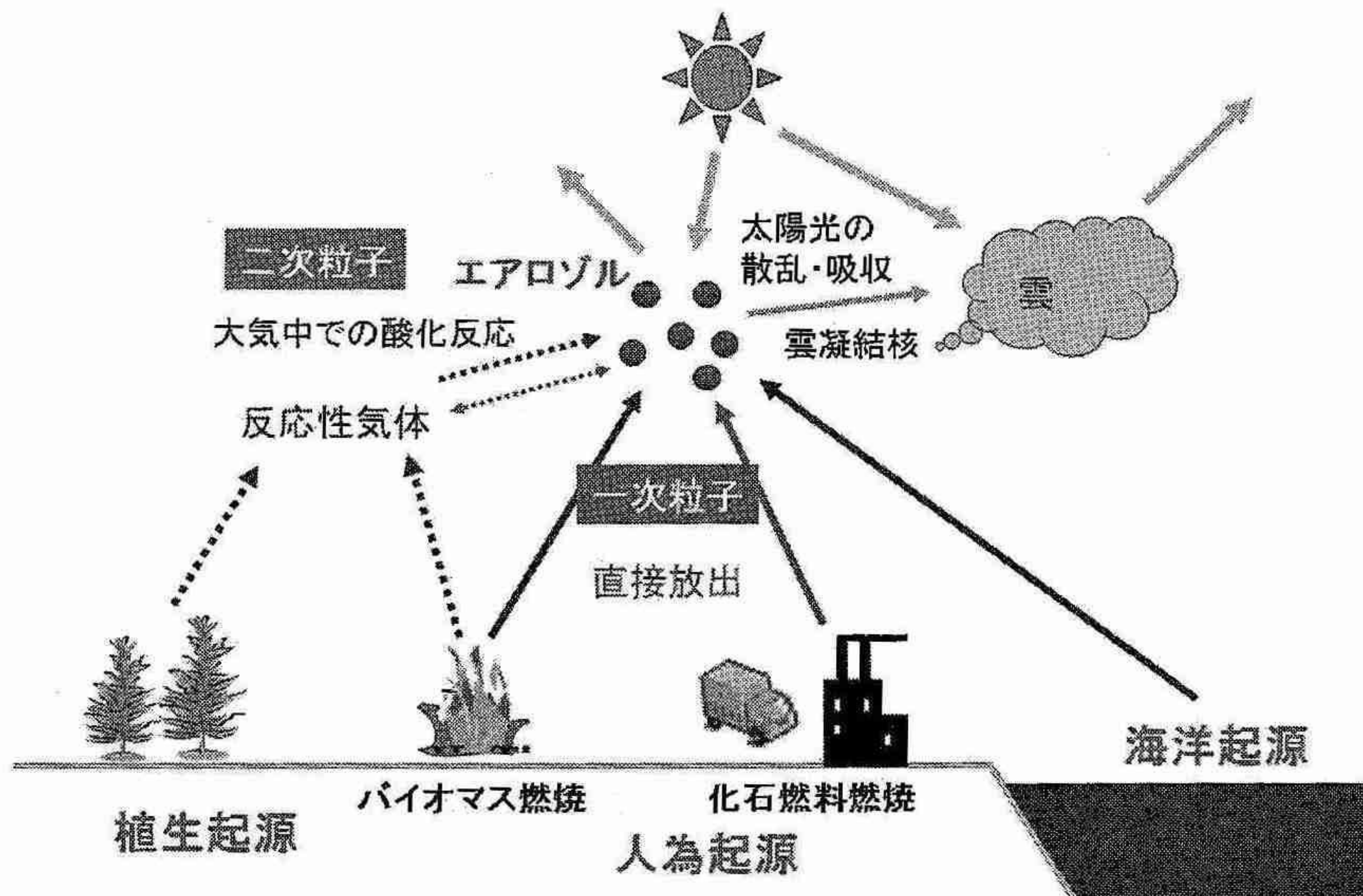


図1 大気エアロゾルの排出源と生成、放射への影響を示した模式図

3. エアロゾルと雲、その気候影響

エアロゾルが気候へ与える影響は多岐にわたっています。大気中でエアロゾルは太陽光を直接散乱・吸収することで地球の放射収支を変える効果があり、これを「直接効果」といいます。特に産業革命以降の大気上端での放射収支の変化は、平均すると地球系としてエネルギーを失う傾向にあることが知られています。これはエアロゾルがちょうど日傘のような役割をすることにより地表面付近の大気は冷やされ（日傘効果）、温暖化を相殺するような効果を引き起こすとされています。この効果についての具体例は次節4.1で述べます。現時点では、エアロゾルによる大気の冷却効果は二酸化炭素 (CO_2) による温室効果に匹敵する、すなわち温暖化を一部相殺していると推定されています（図2）。しかしながら現状の気候モデルにおけるエアロゾル

の取り扱いは非常に簡略化されており、不確かさが大きいのが現状です。

また、エアロゾルから雲粒が形成されることで、放射や降水の生成過程、雲の寿命に与える影響を「間接効果」と呼びます。エアロゾルの中で、雲粒の生成に関するものは雲凝結核と呼ばれています。空気塊が上昇すると、周囲の気温が下がるため相対湿度が増加します。その結果、水蒸気が冷やされ、過飽和状態になります。ここでエアロゾルは凝結に必要な過飽和度を低下させます。やがて空気中に含まれる比較的水をたくさん吸うエアロゾルが凝結成長を開始します。この過程において液体の粒子として凝結したものが雲粒子となります(図3)。具体的な化学組成としては、酸性雨の代表的な成分である硫酸塩など水溶性のエアロゾルが雲凝結核として作用します。

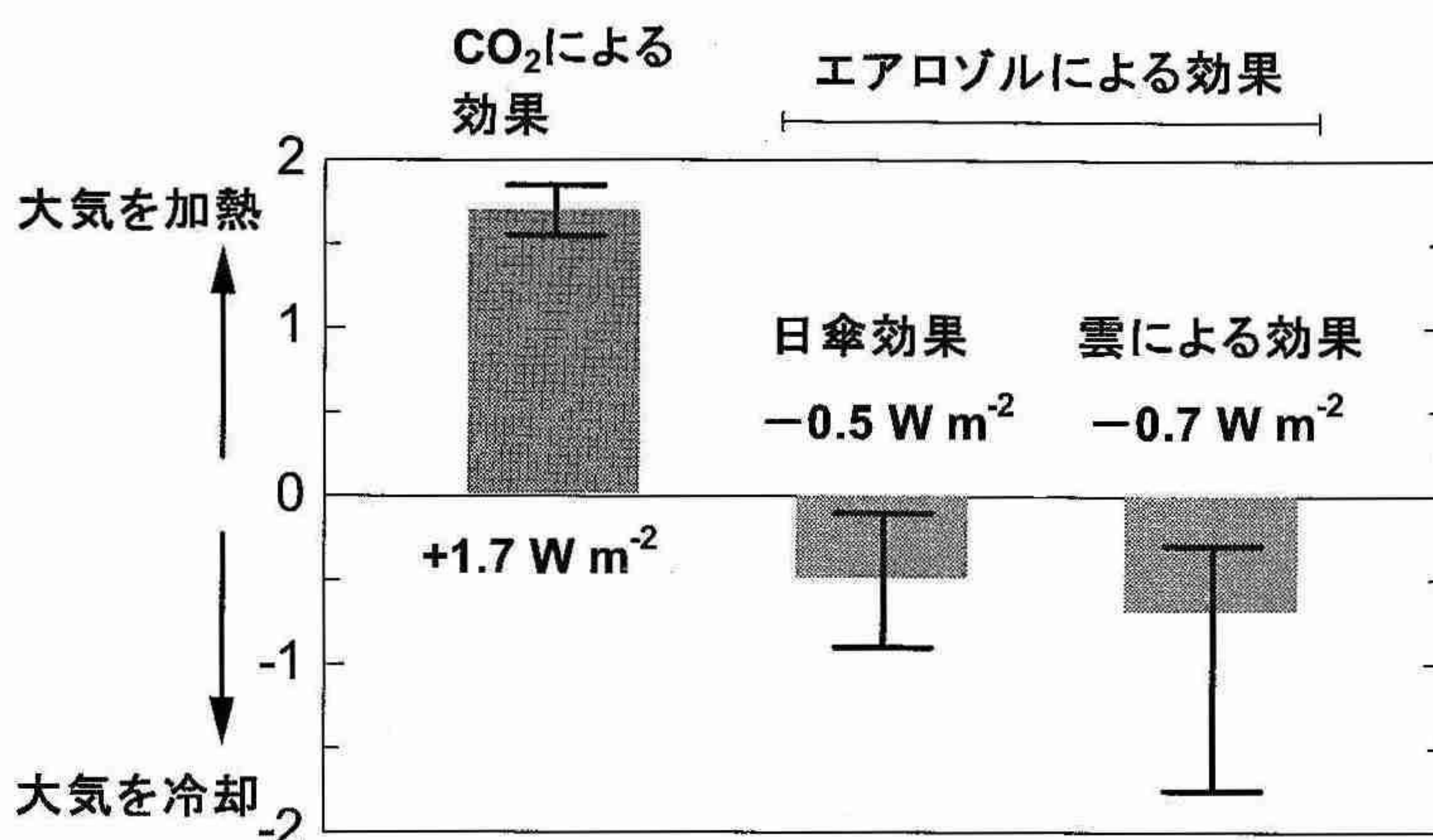


図2 IPCC 第4次報告書による産業革命前と比較した現在の放射強制力
縦軸の1単位は1m²当たり1W(ワット)の加熱(正の値)もしくは冷却(負の値)を示す

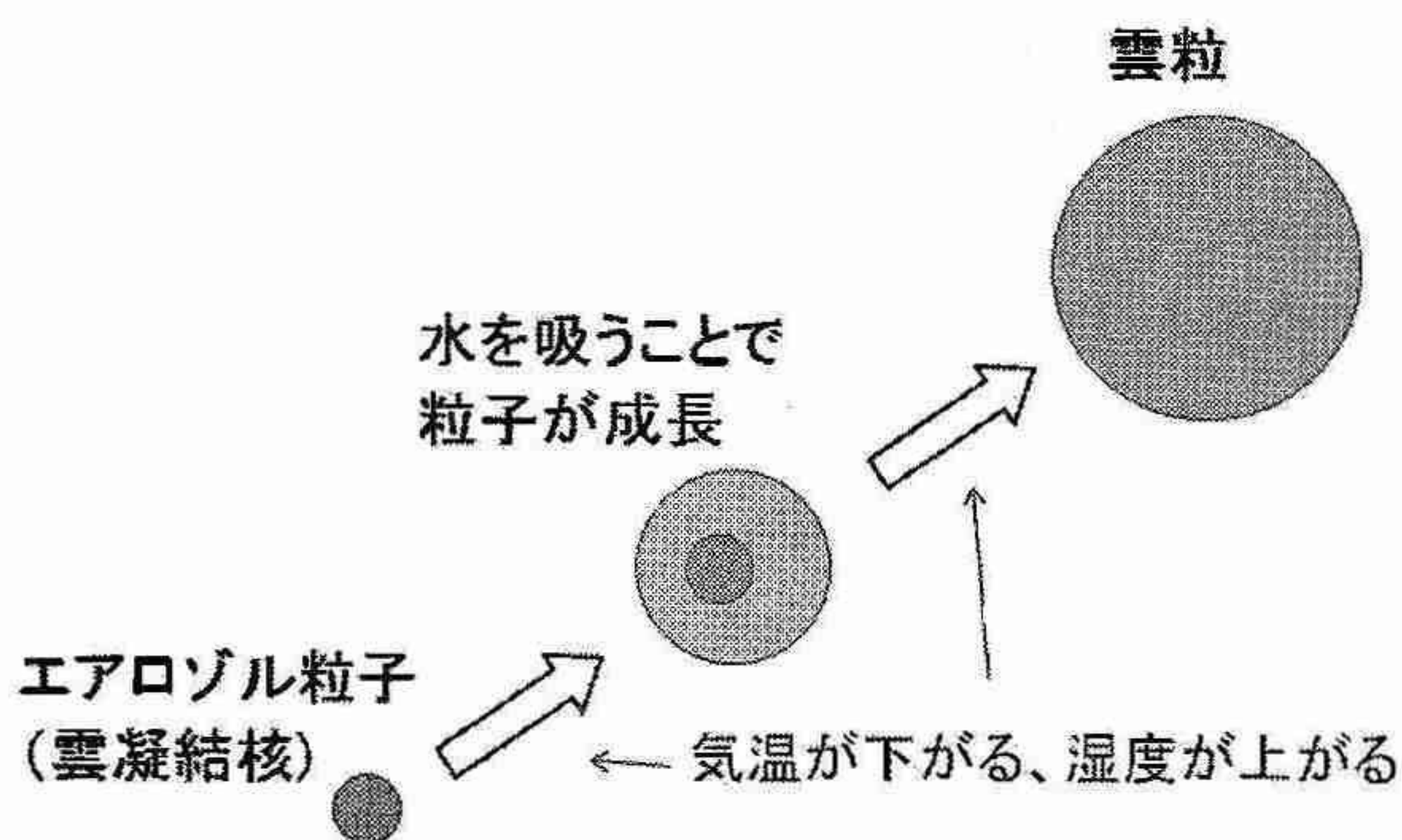


図3 エアロゾルから雲粒への成長を示した模式図

エアロゾルは地球大気の大気温度や降水パターンの変化を引き起こすとともに、大気の視程も変化させます。近年、エアロゾルが高密度に集まり形成され、全体的に褐色に見える「褐色雲」の発生が、気候影響や大気汚染の観点で問題となっています。最近では地域ごとの長期的な日射量の減少傾向を表す”Global dimming”という言葉がよく使われるようになってきました。日本語に直訳すると「世界の薄暮化」となります。最近の研究でWangら(文献[1])が世界3250

ヶ所の地点で1973-2007年に観測されたエアロゾル濃度や大気の透明度などを分析した結果、約半数の地点で大気の透明度が悪化しており、地表に届く太陽光が減っていることがわかりました(図4)。中でも空が暗くなった地域として中国やインドなど、東アジア、南アジアなどが目立ちます。この理由として近年、経済発展の著しいこれらの地域での大気汚染が挙げられています。一方でヨーロッパや北アメリカ、日本では大気の透明度が高まる結果となり、空が明るくなったことが示されました。これは各国での環境規制の効果であると考えられています。このようにエアロゾルが気候へ与える影響は広範囲にわたりますが、エアロゾル化学組成のなかでも最近特にその重要性が認識されている「炭素性エアロゾル」について、次に述べます。

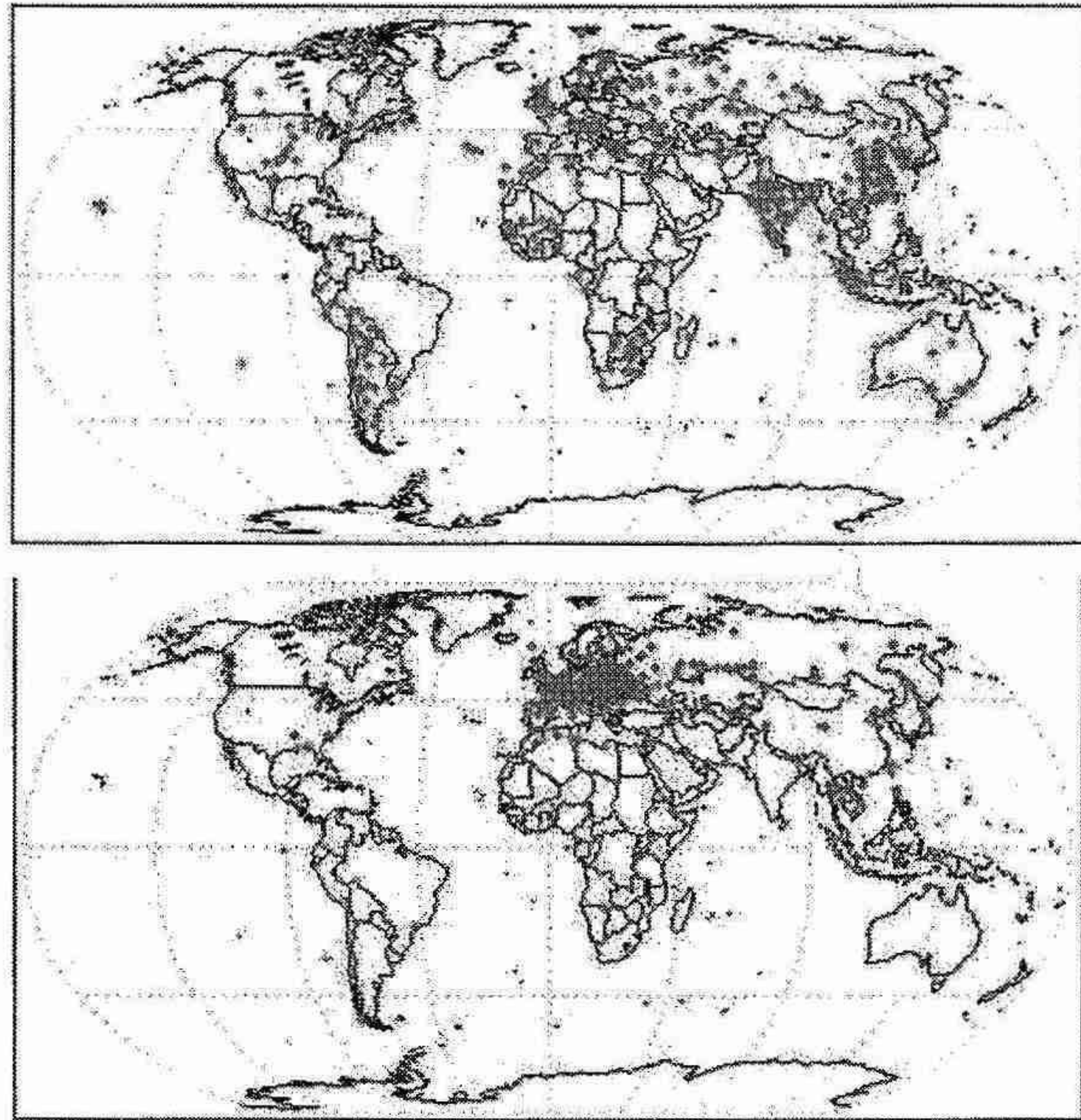


図4 1973年から2007年までの期間、エアロゾルによって視程が悪化した地点(上図)と改善した地点(下図)。図は文献[1]より引用

4. 炭素性エアロゾルの役割と重要性

様々な大気環境において、炭素を含むエアロゾルは大気エアロゾル質量の主要な成分であることが分かっています。近年、気候影響の観点から炭素性エアロゾルの重要性が認識されるようになってきました。炭素を含むエアロゾルは大きく分けて黒色炭素(ブラックカーボン)エアロゾルと有機エアロゾルとに分類されます。特にブラックカーボンは化学組成から明確に定義することは難しいですが、ここでは気候への影響という観点からこの2つに分けて説明します。

4.1. ブラックカーボン

ブラックカーボン(すす)は石炭や石油(主にディーゼルエンジンなどによる燃焼)などの不完全燃焼で大気中に放出されます。ブラックカーボンはその名の通り色が黒いために光を強く吸収し、その周囲の大気を暖めます。実際、人為起源ブラックカーボンによる直接効果に伴う放射強制力は、最新のIPCCによるレポートではばらつきが大きいものの $+0.20 \pm 0.15 \text{ W m}^{-2}$ (文

献[2])という値になっています。この正の値から、ブラックカーボンが大気・地表系に入射する太陽放射エネルギーの吸収の増加に寄与していることがわかります。一方、太陽光が地表に到達するまでに大気に吸収されるということはその分、地表面に放射エネルギーが到達せず、地表面が冷却されるということを意味します。これにより大気の下部(地表付近)が冷やされ大気上部が暖められることにより、大気の安定度が増すこととなります。これはすなわち雲が発達する現象を抑制することになります。その結果、大陸規模での雲のでき方や降水のパターンに大きな影響を与えるのです。先に述べた地表面における日傘効果が顕著な降水量変化を引き起こすことが指摘されるようになり、ブラックカーボンの効果を入れた3次元シミュレーションの計算によると、中国北部の干ばつ・中国南部の洪水の増加傾向を再現しています(文献[3])。ブラックカーボンは大気を暖めるほか、氷河などの表面に付着すれば雪を溶かし、氷河全体を縮小させます。その影響によりヒマラヤの氷河は2050年までに現状より約75%も縮小するという予測もあります。

また、大気中に排出されて間もないブラックカーボンは水に溶けにくいですが、時間経過とともにブラックカーボンの周りを水溶性成分が覆うようになり、エアロゾルとしては水溶性の度合いが増していきます。これにより雲粒の生成にも寄与するなど、その役割が最近の研究で注目されています。

4.2. 有機エアロゾル

大気エアロゾル中の有機化合物(炭素原子を構造の基本骨格に持つ化合物)は何百種類にも達するといわれており、これらすべてを網羅する化学分析は困難なのが現状です。同じ炭素性エアロゾルでも、ブラックカーボンとの大きな違いは、有機エアロゾルは(1)直接排出されるもの以外に(2)排出されたガスから大気中で二次的に生成されるものがあり、これら二次生成される有機物の寄与が非常に大きいということです。(1)は自動車や工場などからの化石燃料の燃焼、森林火災などのバイオマス燃焼、森林などの植生、海洋表面など様々な排出源から大気中へ直接放出されます。(2)は大気中に放出された揮発性の有機化合物などの気体が光化学反応により不揮発性の物質へと変化し、既存の粒子に凝結するなどのプロセスを通して二次的に生成されるものがあります。有機エアロゾルの二次的な生成は、半日から1日程度の時間スケールで起きることが明らかになってきています。

二次生成される有機エアロゾルは水に溶けやすい性質をもつものが多く、最近の研究から無機塩(主に硫酸塩)と同じくらい雲凝結核としての働きが大きいことが示唆されています。しかしながら有機エアロゾルの観測値と3次元化学輸送モデルによるシミュレーションとの比較によれば(文献[4])、シミュレーションが観測値を大幅に過小評価しています(図5)。これは、有機エアロゾル(特に二次生成されるもの)の発生源、組成、反応メカニズムの理解が不十分であるため、シミュレーションで現実の濃度分布を正しく表現できていないことが原因であると考えられます。それゆえ、放射モデル等での有機エアロゾルの物理化学特性(例えば雲凝結核能、光を吸収・散乱する性質など)の表現に正確性を欠き、気候変動予測に大きな不確かさを伴うのです。

これまでの実際の大气における観測研究から、エアロゾルの人為発生源として重要な都市域において、二次有機エアロゾル総量は水溶性有機エアロゾル総量とほぼ等しいことが明らかになってきました(文献[5])。さらにこれら二次的に生成される有機エアロゾルでは、比較的

分子量の大きい高分子有機化合物が質量の多くを占めることが室内実験や実際の大気観測による研究から明らかになってきています(文献[6])。実際、ヨーロッパの都市部において高分子有機化合物が質量比で全有機エアロゾルの20%以上を占めるとの報告もあります。質量比の重要性に加えて、有機化合物は液滴の表面張力を変化させることで(文献[7])、雲粒生成に重要な役割を果たすと考えられています。また化学組成によってはエアロゾルの色が褐色を示し、ブラックカーボンと比べると弱いながらも太陽光を吸収していることが示唆されており、直接効果への影響も少なからずあると予測されています。しかしながらこれら高分子成分を含む有機化合物の正体は何なのか?どこでどのように生成されて、どのような化学組成をもつのか?雲の生成や太陽光の散乱・吸収にどのような影響があるのか?などについては、まだまだ未知の部分が多く、今後の重要な研究課題といえます。

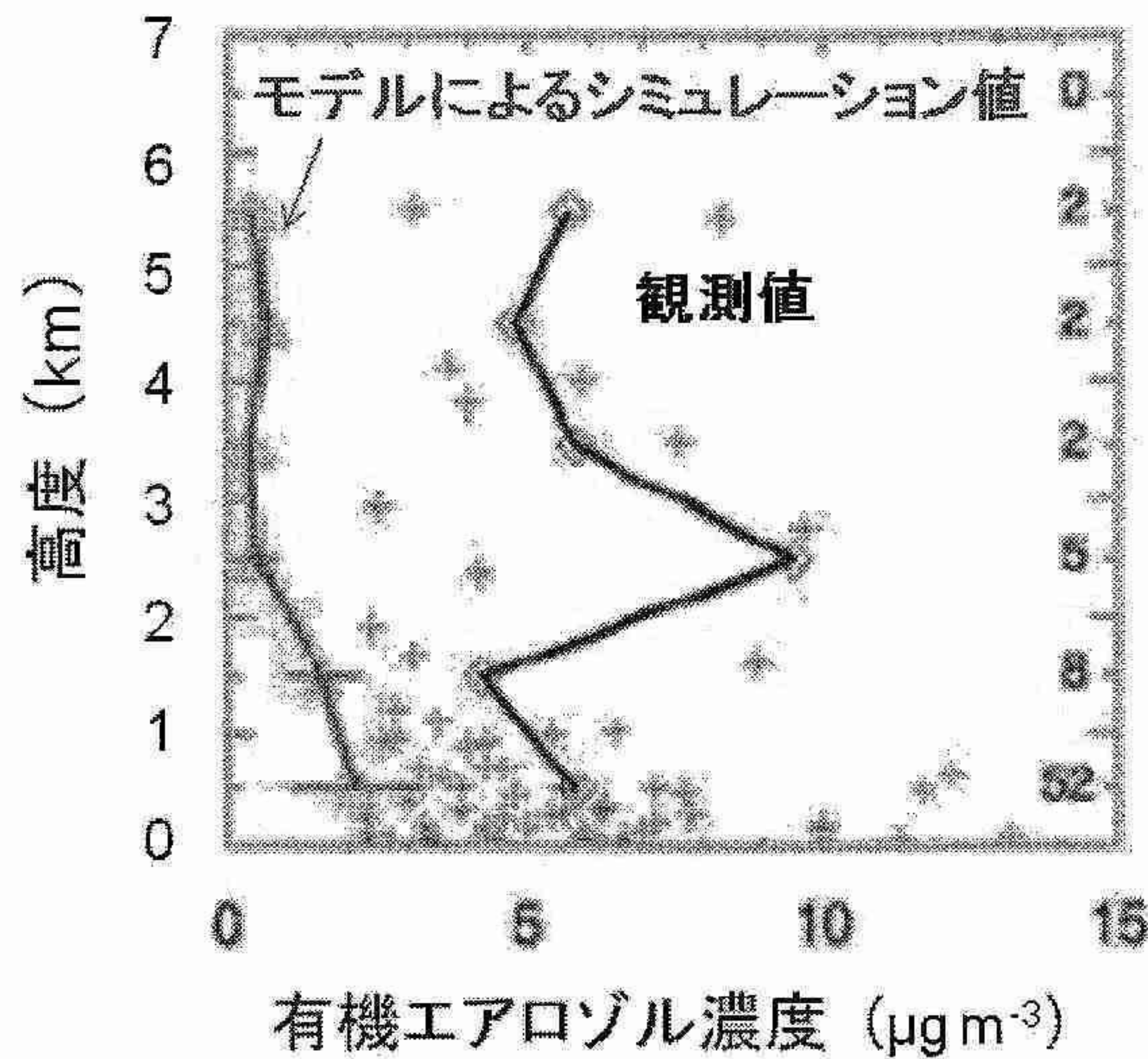


図5 西太平洋上での航空機観測によって得られた有機エアロゾル濃度の高度分布と3次元化学輸送モデルによるシミュレーション値との比較
右側縦軸の数字は各高度での観測データ数を表す。
3次元化学輸送モデルによる有機エアロゾル濃度のシミュレーション値は実際の観測値を大幅に過小評価している。図は文献[4]より引用。

5. おわりに

私たちは大気エアロゾル中の有機物がどのようにして生成され、気候へどのような影響を与えるのかを知るために主に化学的な観点から研究を行っています。人間活動に伴う人為起源エアロゾル以外にも、特に地球の表面積の多くを占める植生、海洋からの有機エアロゾルの生成プロセスやそれらの気候影響への寄与についてはまだまだわからないことが多いのが現状です。化学や物理、気象学や生物学など様々な知識を融合させることでこれらエアロゾルの動態を明らかにしていくことは、「新しい気象」学を展開していく上で大変チャレンジングな研究テーマといえ、現在、世界中の研究者が取り組んでいます。

参考文献

- [1] Wang, K., R. E. Dickinson, S. Liang, 2009: Clear sky visibility has decreased over land globally from 1973 to 2007, *Science*, 323, 1468-1470.
- [2] Forster et al., 2007: Changes in atmospheric constituents and in radiative forcing. In: *Climate Change 2007: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA.
- [3] Menon, S., J. Hansen, L. Nazarenko, Y. Luo, 2002: Climate effects of black carbon aerosols in China and India. *Science*, 297, 2250-2253.
- [4] Heald, C. L., D. J. Jacob, R. J. Park, L. M. Russell, B. J. Huebert, J. H. Seinfeld, H. Liao, 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.
- [5] Miyazaki, Y., Y. Kondo, N. Takegawa, Y. Komazaki, M. Fukuda, K. Kawamura, M. Mochida, K. Okuzawa, R. J. Weber, 2006: Time-resolved measurements of water-soluble organic carbon in Tokyo. *J. Geophys. Res.*, 111, D23206, doi:10.1029/2006JD007125.
- [6] Kalberer et al., 2004: Identification of polymers as major components of atmospheric organic aerosols. *Science*, 303, 1659-1662.
- [7] Facchini, M. C., M. Mircea, S. Fuzzi, R. J. Charlson, 1999: Cloud albedo enhancement by surface-active organic solutes in growing droplets. *Nature*, 401, 257-259.