

## 二次有機エアロゾルモデルの現状

小池 真、松井仁志(東大・理)、竹川暢之、近藤 豊(東大・先端研)

### 1. はじめに

ACE-Asia 等での東アジア・西太平洋域での観測から、有機エアロゾルは硫酸エアロゾルとともに微小粒子の主要成分であることが報告されている。有機エアロゾルは、エアロゾルの形で直接大気中に放出される一次エアロゾルと、大気中で前駆気体から生成する二次エアロゾルとに大別される。二次有機エアロゾルはその質量の大きさ、水溶性、水の表面張力を下げる効果によって、領域規模での直接・間接放射効果や降水過程への影響があると考えられる。しかしながら有機エアロゾルは化学組成が非常に多様であり、その生成過程の解明が大きく遅れている。二次有機エアロゾルの生成過程の解明は現在のエアロゾル研究の最大の課題のひとつであり、今後の東アジア域における人為的な気候影響評価の信頼性向上において鍵となるといえる。

### 2. 関東域の二次有機エアロゾルのモデル計算

二次有機エアロゾル(SOA)のモデル計算については、これまでボックスモデルからグローバルモデルまで多くの試みがなされている。SOA のモデル計算では一般に、前駆気体である揮発性有機化合物(VOC)の酸化による低蒸気圧成分の生成過程と、この低蒸気圧成分の気体とエアロゾルの間の分配過程、という二段階で表現される。また前者の VOC の酸化過程では、従来、室内実験の結果に基づき、VOC の酸化から直接、低蒸気圧成分を生成させる経験式モデル(empirical model)が使われてきた。これに対し近年、最初の酸化過程以降の酸化過程も陽に表現した詳細反応過程モデル(mechanistic model)が開発されてきている。後者は、最初の酸化を引き起こすラジカル以外のパラメータの効果(気温や NO<sub>x</sub> 濃度の変化など)をある程度表現しているため、将来の大気環境の変化等を予測する上ではより信頼性が高いと考えられる。

我々の研究グループでも、SOA の詳細反応過程モデルである CMAQ-MADRID2 と領域気象モデル MM5 を用いて、関東地方の SOA 濃度の計算を行った。この結果を東大駒場でのエアロゾル質量分析計(AMS)観測から得られた含酸素有機エアロゾル(OOA)と比較した。OOA の少なからぬ量は SOA よりなっていると考えられている。この結果、モデルの SOA は OOA の日変動、日々変動、季節変動の特徴をある程度再現していることが確認された。しかし

ながら量的には、1/3-1/6程度しか再現できないことが分かった。

本研究のような高精度・高時間分解能の観測と SOA モデルとの比較は世界的にもまだ例が少ない。また関東地方は比較的良く気象場の検証が可能であり、また前駆 VOC の発生源データも整備されていると考えられる。このような条件での比較により SOA のモデル計算が過小評価したことは、現在の SOA 詳細反応過程モデルにまだ大きな不備があることが確認されたことになる。

### 3. 今後のモデル研究の発展

SOA の過小評価の原因としては、前駆 VOC の過小推定と、現在のモデルで考慮されていない SOA 生成過程があげられる。前者に関しては、高分子アルカンの過小評価などが考えられる。炭素数10以上くらいのアルカンは測定が困難であり発生源データに大きな不確定性がある一方で、SOA の生成効率が極めて高い。

後者のひとつには、エアロゾル相での不均一反応によるポリマー(SOA)の生成過程と、その SOA 生成効率の酸化触媒(硫酸エアロゾル等)による増大の重要性が室内実験から指摘されている。VOC の酸化により生成するカルボニルなどの官能基をもった蒸気圧の比較的低い物質からのポリマーの生成により、この気体成分をより多くエアロゾル相に取り込み、結果的に SOA 量が増大すると考えられる。また SOA 生成のもうひとつの重要なメカニズムとして、雲粒中での液相反応による SOA の生成過程についても、近年の室内実験からその重要性が指摘されている。これらの反応は人為起源 VOC の他、最大の植物起源 VOC であるイソプレンからの SOA 生成においても重要な役割を果たしている可能性がある。

### 4. まとめ

近年、信頼性が高く、時間分解能も高い有機エアロゾルの測定法が確立されつつあり、有機エアロゾルモデルの検証も新たな段階に入りつつある。今後、東アジアの硫酸エアロゾルの量は減少することも予想されるため、有機エアロゾルの相対的な重要性はより大きくなると考えられる。東アジアにおける人為的な気候影響において、より信頼性の高い SOA モデルの構築が必要である。