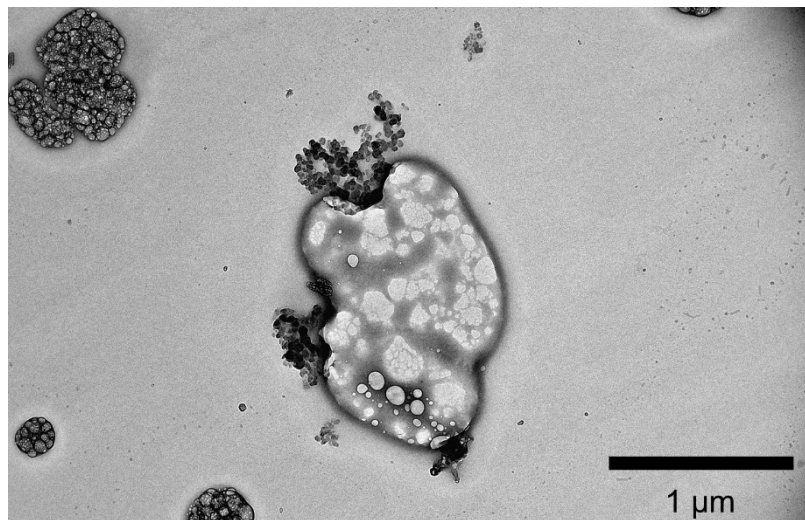


## 大気中の黒色炭素（すす）の光学的物性を解明

### 発表のポイント

- ◆主要な気候強制因子の一つである黒色炭素の光学的物性値の現実的な範囲を解明しました。
- ◆微粒子の散乱波の位相・振幅の測定に基づく新しい観測手法によりこれを実現しました。
- ◆本成果により、リモートセンシングや気候モデリングで用いられる黒色炭素の複素屈折率の仮定値がより確かなものに更新され、気候の分析・予測の精度向上につながることを期待されます。



西部北太平洋上の大気から採取された粒子（エアロゾル）の電子顕微鏡写真の例

### 発表概要

国立大学法人東海国立大学機構 名古屋大学宇宙地球環境研究所の大畑 祥 助教らは、東京大学大学院理学系研究科の茂木信宏助教らの研究グループと共に、太陽放射の吸収を通じた気候強制因子である黒色炭素（注 1）について、大気放射計算に必要な光学的物性を初めて定量的に評価しました。

燃焼に伴い発生する黒色炭素は、大気中のエアロゾル質量のうち数%以下の過ぎないものの、大気や雪氷面において太陽放射を効率的に吸収することで、大気エネルギー収支と降水量に影響を及ぼします。現在の大気では、産業革命前に対して全球平均で二酸化炭素・メタンに次いで3番目に大きな正の有効放射強制力（注 2）を持つとされています。

本研究では、大気中の黒色炭素について、太陽放射の散乱・吸収の効率を決めている基礎物性値である複素屈折率  $m_r + im_i$  (注3) の実部  $m_r$  と虚部  $m_i$  の範囲を解明しました。実部は物質内での光の速度を決め、虚部は物質内での光の吸収を決める物性値です。

大気から捕集して水に分散させたエアロゾル粒子に複素散乱振幅センシング法 (注4) を適用することで、系統誤差要因を排除した複素屈折率の評価を初めて実現しました。

本論文は、米国エアロゾル学会の *Aerosol Science & Technology* 誌の *Headline Infographic* (注5) に選出されました。

## 発表内容

### 〈研究の背景〉

リモートセンシングや気候モデリングにおいて大気の放射伝達を計算する際、気体分子による散乱・吸収に加え、エアロゾルや雲などの微粒子による光の散乱・吸収を推算する必要があります。粒子の光散乱・吸収を電磁波の散乱理論 (注6) で推算するためには、粒子を構成する化学種・波長ごとの複素屈折率の値が必要です。

液体であるか、表面の凹凸が波長よりも十分小さな一様平板試料を作成できる固体の化学種については、反射率または透過率の測定に基づく従来の実験技術で複素屈折率を高精度に決定できます。そのため、大気微粒子の主な構成成分のうち、水・氷、硫酸塩、水溶性の有機物、海塩、透明な鉱物についての複素屈折率は厳密に分かっています。一方、黒色炭素のような複雑形状の固体化学種については、可視波長帯での幾何光学近似が適用可能な一様平板試料を作成できないことや、大気中で共存する他のエアロゾル化学種が測定に及ぼす影響を除外することが困難であることにより、太陽放射の伝達計算に必要な複素屈折率の測定を実施できていませんでした。大気エアロゾルの電子顕微鏡写真の例を図1に示します。ナノ粒子の凝集体である黒色炭素粒子が、一部、硫酸塩粒子に付着した状態で存在しています。このような物質の複素屈折率の測定可能性が自明でないことが想像されます。これまで、黒色炭素の複素屈折率としては、Bond and Bergstrom (2006) (注7) による推奨値 (図2) が採用されてきました。しかし、この推奨値は人工合成試料かつ粒子形状の影響を無視した実験法を用いた先行研究の結果に基づき推定されたものであり、この値が大気中の黒色炭素の複素屈折率としてどの程度妥当な値なのか、また大気中の黒色炭素の複素屈折率が実際にどの程度の変動幅をもちうるのかは分かっていませんでした。

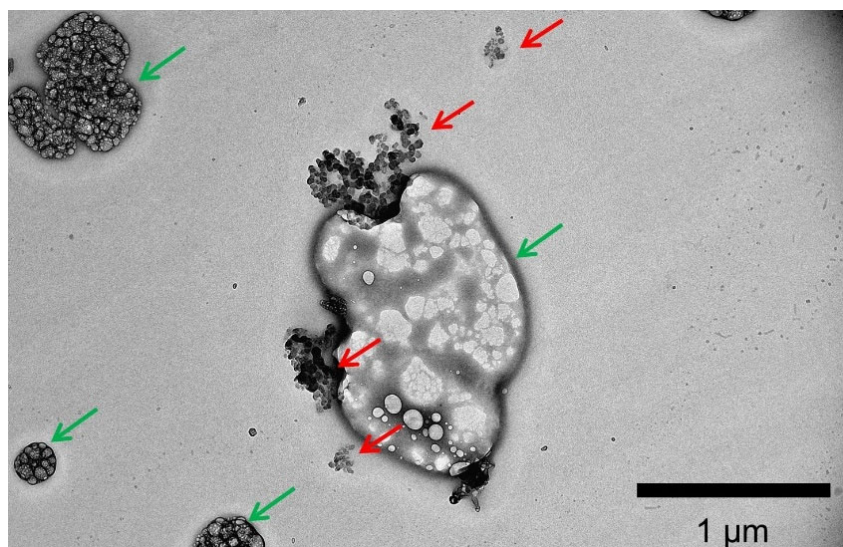


図1：西部北太平洋上の大気から採取された粒子（エアロゾル）の電子顕微鏡写真の例  
硫酸塩粒子（緑矢印）に付着している黒色炭素（すす）粒子（赤矢印）

### 〈研究の内容〉

本研究では、大気中の黒色炭素粒子の複素屈折率の評価を実現するため、大気エアロゾルを水に取り込み、硫酸塩等の水溶性化学種から分離した状態の黒色炭素粒子の光学特性を測る方法を考案しました。光学特性の測定では、構成成分の複素屈折率に大きな感度をもつ散乱波の位相・振幅を高精度に測れる複素散乱振幅センシング法を採用しました。複素散乱振幅の測定データ点群を、未知である粒子形状の不確実性を包括的に考慮して（注 8）解析することで、複素屈折率の実部・虚部の範囲をベイズ事後確率（注 9）として導出する方法を開発しました。

本研究の観測実施領域である西部北太平洋上の大気中の黒色炭素について、複素屈折率の実部・虚部が 90%以上の事後確率で含まれる領域を図 2 の黒色破線で示しました。この領域と、近年報告された燃焼煤（すす）の単位質量当たりの光吸収断面積の測定値と理論的に矛盾しない複素屈折率の範囲（図 2 の赤色領域）の共通部分として、大気中の黒色炭素の複素屈折率の範囲（図 2 のハッチ領域）を制約しました。この領域の中で、事後確率の密度が比較的大きくかつ黒色炭素の吸収を過大評価する危険性が少ない推奨値として、 $1.95+0.96i$  を提案しました。

本研究による新たな推奨値  $1.95+0.96i$  を用いると、従来推奨値  $1.95+0.79i$ （図 2）を用いた場合に比べて、黒色炭素の単位質量当たりの光吸収が 16%程度大きくなると推算されます。

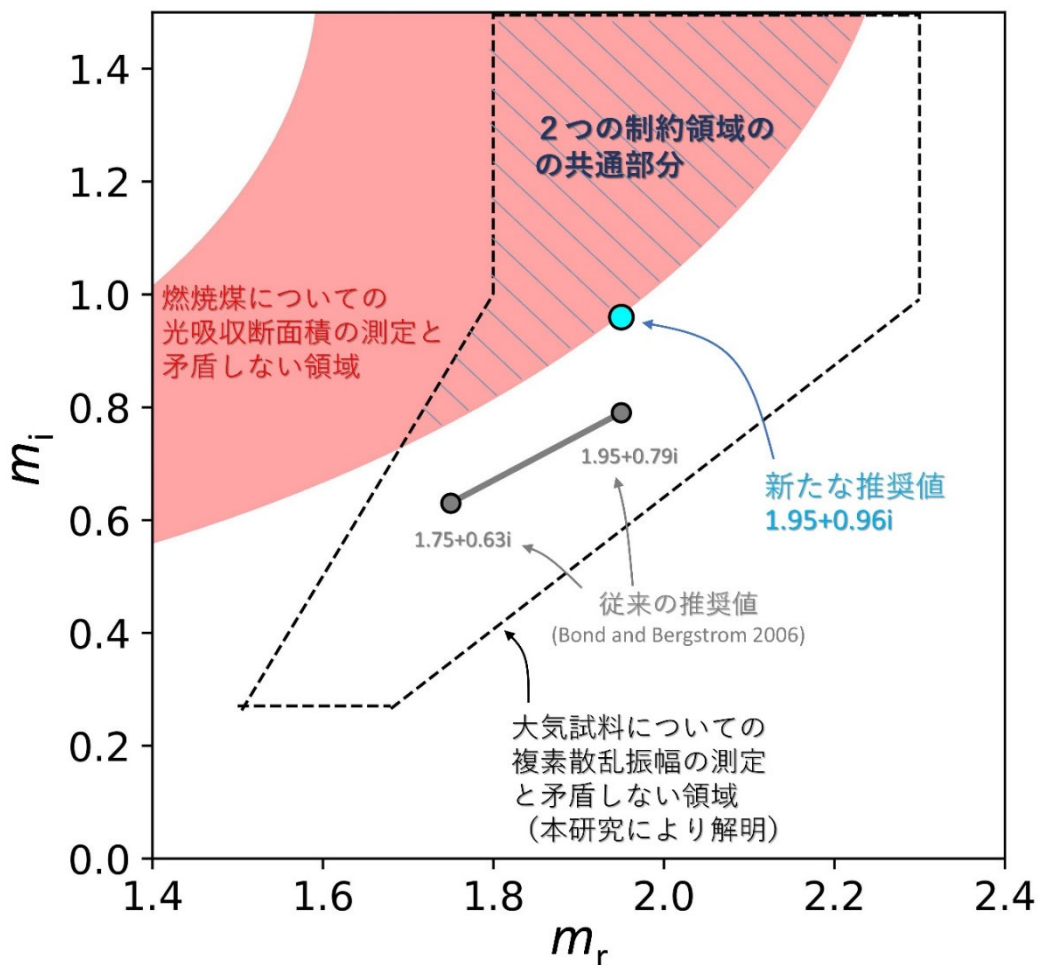


図 2：波長 633nm における黒色炭素の複素屈折率  $m_r+im_i$  の制約領域



### 〈今後の展望〉

本研究の結果は、従来の推奨値を用いている現行の気候モデル群は黒色炭素による太陽放射の吸収量を 16%程度過小評価していることを示唆しています。新たな推奨値を用いることで、気候モデリングにおける大気中や雪氷中のエネルギー収支の計算や、リモートセンシングにおけるエアロゾル組成別濃度の導出の際の一つの系統誤差が修正されます。そのため、本研究の成果は、気候変化の要因分析・予測や全球スケールでのエアロゾル観測の精度向上に貢献します。

本研究で開発した粒子の複素屈折率の制約方法は黒色炭素以外の物質にも適用できるため、大気・海洋・アイスコア中の未知粒子の光学的同定、粉体材料の光学特性評価など、粒子計測全般への応用が期待されます。

### 発表者

東京大学大学院理学系研究科 地球惑星科学専攻  
茂木 信宏（助教）

東海国立大学機構 名古屋大学宇宙地球環境研究所  
大畑 祥（助教）

国立極地研究所  
吉田 淳（日本学術振興会特別研究員・論文執筆当時：国立極地研究所特任研究員）

気象庁気象研究所  
足立 光司（主任研究官）

### 論文情報

〈雑誌〉 Aerosol Science and Technology

〈題名〉 Constraining the complex refractive index of black carbon particles using the complex forward-scattering amplitude

〈著者〉 N. Moteki, S. Ohata, A. Yoshida, K. Adachi

〈DOI〉 10.1080/02786826.2023.2202243

〈URL〉 <https://doi.org/10.1080/02786826.2023.2202243>

### 研究助成

本研究は、JSPS 科研費 (JP19H04236、JP19KK0289、JP19H04259、JP19H05699、22H0372、22H01294)、環境再生保全機構の環境研究総合推進費 (JPMEERF20202003)、北極域研究加速プロジェクト (ArCS II) (JPMXD1420318865) の支援により実施されました。

## 用語解説

- (注1) 黒色炭素：化石燃料やバイオマス燃料の燃焼や森林火災に伴い発生する、ほぼ炭素だけからなる黒色の固体物質。個々の黒色炭素粒子はナノ粒子の凝集体として存在している。全球的に分布する地球大気エアロゾルの普遍的な化学種の一つ。英名 Black Carbon (BC)。一般に煤(すす)とも呼ばれているものと同義。
- (注2) 有効放射強制力：ある因子が気候系に加えられた直後に宇宙空間と地球との放射エネルギー収支がどの程度変化するかを、大気・温度・湿度・雲の応答まで考慮して見積もった数値。正の場合は温暖化、負の場合は寒冷化の作用を意味する。気候モデルを用いて算出される。
- (注3) 複素屈折率  $m_r + im_i$ ：物質中の電磁波の伝搬・吸収を支配する基礎物性。実部  $m_r$  は位相速度を決め、虚部  $m_i$  は吸収に伴う減衰率を決める。非磁性体では複素屈折率は複素誘電率の平方根に等しい。凝縮体の場合、構成元素・分子だけでなく結晶構造などにも依存する。通常、反射率や透過率の測定値に幾何光学の理論式をフィットすることで決定される。反射率や透過率が定義できない波長スケールの粒子状物質については、電磁波散乱の厳密解を何らかの観測量(散乱や吸収など)の測定値とフィットすることで決定される。
- (注4) 複素散乱振幅センシング：近年開発された、流体中の個々の粒子の散乱波の位相・振幅を同時に測定する技術 (<https://doi.org/10.1364/OE.423175>)。
- (注5) Headline Infographic：特にインパクトが大きいと考えられる研究論文を Aerosol Science & Technology 編集部が年間4報ほど選出し、その成果の広報資料として編集部が製作するイラスト入り記事。
- (注6) 電磁波の散乱理論：複素屈折率の空間分布と入射波を与えた Maxwell 方程式の境界値問題を解くことで、粒子や粒子群による電磁波の散乱・吸収を予測する理論。球形粒子の場合は Mie 理論、球形粒子の凝集体の場合は Superposition T-Matrix 法、任意形状粒子の場合は Discrete Dipole Approximation 法などが用いられる。複素屈折率が大きい物質を含んだ非球形粒子の場合、高精度な結果を得るのに必要な計算量が極めて大きい。
- (注7) Bond and Bergstrom (2006)：2005年までの黒色炭素の光学特性(複素屈折率など)の研究のレビュー論文 (<https://doi.org/10.1080/02786820500421521>)。現在のリモートセンシング・気候モデルにおける黒色炭素の放射特性の扱いの基礎になっている論文であり、現在までの被引用回数は2500を超える。
- (注8) 粒子形状の不確実性を包括的に考慮：大気中の黒色炭素はエイジングに伴いよりコンパクトな凝集体に変形していくことが観測的に知られている。本研究では、未知である凝集体形状が複素屈折率の推定に及ぼす影響を除外するため、形状が可変の凝集体形状モデルを採用し、その形状パラメータも複素屈折率と同時に推定できるようにした。
- (注9) ベイズ事後確率：ベイズ統計学では、推定したい未知のパラメータを確率変数とみなし、観測結果を説明できるようにその確率分布を更新する方法をとる。観測前の分布を事前分布、観測結果を説明できるように更新した分布を事後分布と呼ぶ。本研究では、事前分布として何も仮定しない一様分布を採用している。複素屈折率の事後確率は、粒径分布や形状のパラメータ群の事後確率を周辺化することで導出しているため、粒径分布や形状の変動の影響をほとんど受けない。