

B-8(2) 大気の酸化能と温室効果ガスの消滅過程をコントロールする反応性大気微量気体の大気質へのインパクトに関する研究

① 海洋性気団領域における地上観測研究

独立行政法人産業技術総合研究所

環境管理研究部門 地球環境評価研究グループ

古賀聖治・兼保直樹

平成 11～13 年度合計予算額 7,626 千円

(うち、平成 13 年度予算額 2,531 千円)

[要旨]

小笠原父島において、汚染物質を高い濃度で含む大陸性気団に覆われる期間と、北太平洋高気圧の影響下で清浄な海洋性気団に覆われる期間の大気質の変化を、明瞭に捉えることに成功した。BC や  $\text{SO}_4^{2-}$  などの光学的にアクティブな大気エアロゾル成分と地上オゾン濃度はほぼ一致した位相で高濃度期と清浄期を示した。しかし、月平均濃度でみた場合の BC の最大濃度は 1 月から 2 月に現れるのに対して、地上オゾン濃度の最大値は 4～5 月の春期に出現し、同じ大陸性気団の影響ではあるものの、一次排出物質である BC と大気中での反応生成物であるオゾンの違いを反映している。BC 濃度の変動は、実際には 4～6 日程度の周期での通過する汚染気塊によってもたらされており、高濃度期にはこのような気塊の通過頻度が高いとともに気塊中の BC 濃度も高い。一方、清浄期においても、ときおり汚染気塊が流入してくることがあり、パーティクルカウンタのデータにも表れた。高濃度期、または清浄期においても汚染気塊が流入した場合、パーティクルカウンタのデータから推定した粒径分布曲線では、 $0.2\mu\text{m}$  付近にモードを持つ微小な粒子が卓越していた。

BC 濃度から換算された吸収係数と、積分型 Nephelometer により得られた散乱係数より単一散乱アルベドが計算され、汚染気塊流入時には単一散乱アルベドが 0.8 前後の強吸収性のエアロゾルが輸送されてくることが判明した。大気エアロゾルの消散係数を気柱全体にわたって鉛直積分した値である光学的深さは春期に最大値を持つ季節変動を示し、地上における BC などの汚染物質濃度とは位相が若干異なっていた。

[キーワード] 地上オゾン、大気エアロゾル、ブラックカーボン、粒径分布、光学的厚さ

1. はじめに

東アジア地域から放出される大気汚染物質のうち、大量の化石燃料消費により放出される  $\text{SO}_2$ 、およびこれが長距離輸送される過程で酸化され生成した  $\text{SO}_4^{2-}$  の影響に対する関心が集まっている。 $\text{SO}_2$  の酸化は、気相中での均一反応のみならず、雲水中に溶解した後、あるいは土壌粒子(黄砂)や black carbon (BC; 黒色炭素, すす)などの表面において進行する不均一反応によっても生ずる。東アジア地域においては、人為起源の汚染物質のみならず土壌粒子などの自然起源物質の発生量も膨大であり、また、 $\text{SO}_2$  発生源が主として石炭燃焼によるものであることから、米国など

と比較してエアロゾル中に占めるBCの割合が大きいことが推測される。このように、アジア太平洋地域における大気化学過程を把握するには、気相の汚染物質の挙動とともにエアロゾル状の物質の時空間的な変動を把握することが重要である。また、IPCC第二次レポート(1996)で指摘されて以来、気候変動の予測精度を高める上で、 $\text{SO}_4^{2-}$ やBCなどのエアロゾルの放射影響を定量的に明らかにすることが重要であるとの認識が定着してきている。化石燃料消費量の増加が著しい東アジア、およびその風下である北西太平洋地域は、今後このような影響が最も顕著となると予想されるため、光学的な特性および光学的な量の観点からエアロゾルの挙動を押さえていくことが重要となる。

## 2. 研究目的

小笠原諸島は、特定の都市域からの大気汚染の影響を直接には受けにくい距離(東京から南に約1000 km)にあり、かつ、アジア大陸起源の汚染物質や土壌性粒子に富む大陸性気団と清浄な海洋性バックグラウンド気団が季節の変化につれてせめぎ合う場所にあることから、両者の大気質の特徴を捉えるのに好適な環境であるといえる。本研究では、小笠原父島の海拔高度240mの地点において、両気団に含まれるオゾンおよびエアロゾル成分の変動要因、および放射影響を長期観測により明らかにすることを目的としている。

## 3. 研究方法

地上オゾン濃度測定のため測定地点に鉄柱を立て、その先端に試料空気を取り込み口を設けた。そこから外径6mm、内径4mmのテフロンチューブを使って管理棟内に設置した電子式冷却器に試料空気を導入した。このとき、濃度測定に影響を与える測定器内での水蒸気の結露を防ぐために、体積2Lのガラス容器を2.5℃に冷却して試料空気から水蒸気の除去を行った。その後、試料空気をオゾン濃度計(ダイレック: Model 1150)に導入した。また、B領域紫外線強度はScintec社製UV-S-B-T(波長280-315 nm)により瞬間値を10分毎に測定した。Mie領域のエアロゾル数濃度および粒径分布は、測定地点の小屋内にレーザー・パーティクルカウンタ(LPC)(日本KANOMAX: TF-500)を設置し、長さ1mの導電性チューブを使用して、通風口からLPCに外気を直接導入して測定した。捕集に際して、試料空気の湿度調節や巨大粒子の除去は行っていない。

また、大気エアロゾル中のBC濃度の変動を捉えるため、波長880 nmでの吸収係数の1時間平均値をAethalometer(Magee Scientific AE-16U)により測定した。Aethalometer内の石英繊維製フィルター・テープを回収し、捕集されたエアロゾル・スポット(24時間平均)を分析し、熱分析法によるBC濃度との対応、および $\text{SO}_4^{2-}$ などイオン成分の変動も同時に得た。エアロゾル散乱係数は積分型Nephelometer(TSI 3550)により測定し、エアロゾルの光学的厚さはサン・フォトメータ(Eiko MS-110)により6波長で連続測定した。

## 4. 結果・考察

### (1)地上オゾン濃度

図 1-1 は、1999 年から 2001 年までに観測した地上オゾンの日平均濃度の変動を示している。

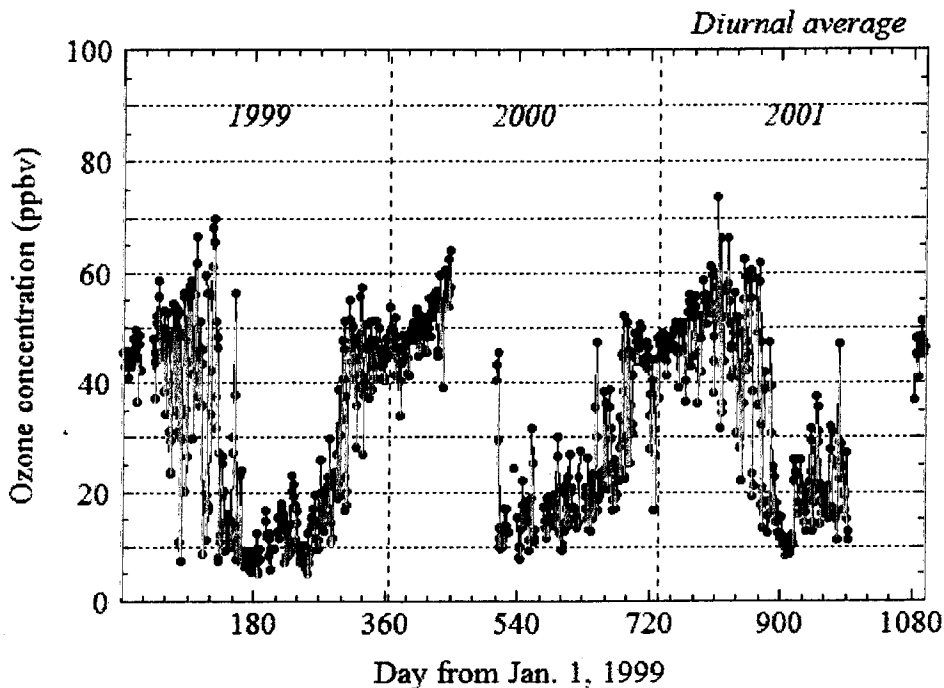


図 1-1 地上オゾンの日平均濃度の季節変動

日平均濃度を求める前に、まず、取得データの 1 時間移動平均値とその時の標本標準偏差を計算した。次に、ある時刻の観測値とその時刻の 1 時間移動平均値との差の絶対値が標本標準偏差以上の場合、その観測値を日平均の計算から除外した。

この図から、地上オゾン濃度の最大値は、春季の 4 月に現れることがわかる。また、春季は濃度変動が比較的激しい。反対に濃度

が低いのは 6 月から 10 月までの期間である。この低濃度期においても、季節の進行とともに地上オゾン濃度が徐々に増加してはいるが、その多くは 10 から 20ppbv の範囲にある。その後、11 月に濃度は 40 から 50ppbv 程度に急増している。そして、2 月まで 40 から 50ppbv の高濃度を維持している。さらに、冬季の濃度変動は春季よりも比較的小さい。

北太平洋高気圧の西端部の日本列島に張り出した部分は、小笠原高気圧とも呼ばれ、勢力は 12 月から 2 月にかけて最小になり、7 月から 8 月には最盛期となる。そして、10 月前後から急速に衰えていく。小笠原で観測される地上オゾン濃度の季節変動は、小笠原高気圧の盛衰と関係があることは明白である。一般に、人為的に汚染された空気塊中のオゾンは、海洋上の清浄空気塊中のそれと比較して高濃度であることが知られている。春季の 4 月と 5 月に濃度変動が激しいのは、両気塊の勢力が拮抗していて、入れ替わりが頻繁に起きていることに原因がある。夏季の小笠原諸島は、最盛期の小笠原高気圧下にあり、海洋性の清浄空気塊の観測に最も適している。この季節の地上オゾン濃度は、およそ 10ppbv を示す。しかし、しばしば 30ppbv 程度に濃度が増加し、それが数日間持続することがある。これは、台風などによる気圧配置の乱れによって、汚染空気塊が東アジアから小笠原に流入していることを示唆している。後退流跡線解析の結果は、この説明を強く支持している。秋季に小笠原高気圧が衰えた後、11 月から 2 月まで濃度変動は小さく、比較的安定している。しかし、3 月頃から濃度が増加し、年間での最大値が 4 月に現れる。冬季と春季における濃度の違いの要因について、父島に到達した空気塊の輸送経路を後退流跡線によってみると、2000 年 1 月と同年 3 月では、空気塊が辿った軌跡は両者の間に目立った違いはない(図 1-2)。図 1-2 には示していないが、流跡線の多くは高度 3000m 以下にあり、高度変化にも顕著な違いはみられない。そのため、1 月と 3 月でオゾン前駆物質 (NO<sub>x</sub>、非メタン炭化水

素類)の大气への放出量が同じであるなら、冬季から春季にかけての地上オゾン濃度の増加は、日射量の増大による光化学的なオゾン生成率の増加が寄与している可能性がある。

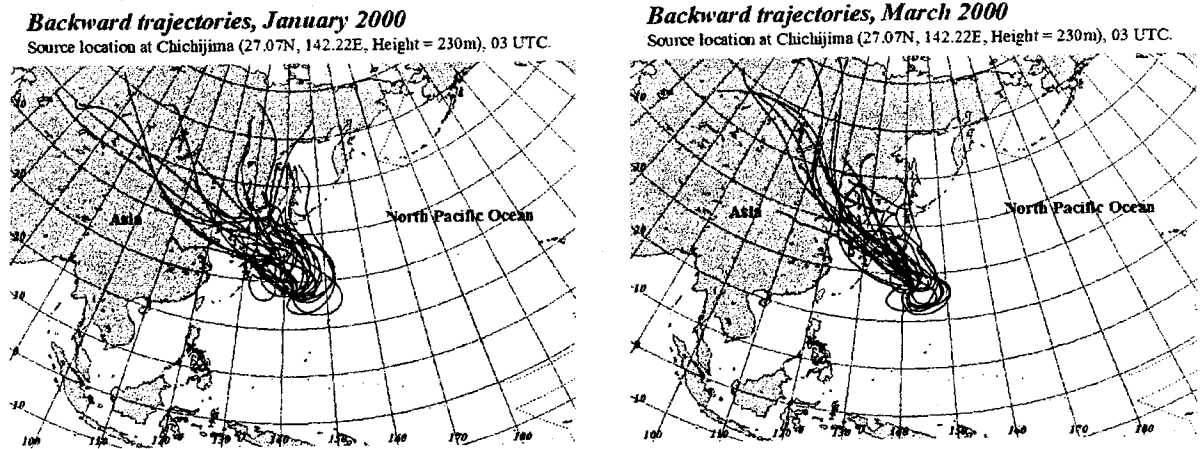


図 1-2 2000 年 1 月と 3 月の毎日正午に父島に到達した空気塊の過去 5 日間の履歴

父島では、B 領域紫外線強度も測定している。また、オゾン濃度の時間高度断面を調べるには、気象庁のオゾンゾンデデータが有効である。地上オゾン濃度の季節変動の原因を解明するために、これらのデータを利用して解析を進める予定である。地上オゾンに関するもう一つの問題として、濃度の日内変動のメカニズムが注目されている。例えば、海塩粒子起源のハロゲン原子によるオゾン破壊は極周辺の海域での春期の地上オゾン低下の要因として知られているが、中緯度における海洋大気境界層内でも同様の現象が起きていることが指摘されている。しかし、父島での日変動の変動幅は、空気塊の違いに起因する濃度の変動幅よりも小さいため、単なるデータの平均化によって日変動を議論することができない。日変動を抽出する目的で、データの精査をどのように行うかが、当面の課題である。

## (2)エアロゾルの粒径分布

エアロゾルの個数濃度は、パーティクルカウンタ (TF-500) により 10 分毎に 5 階級の半径 ( $0.15\mu\text{m} < r$ ,  $0.25\mu\text{m} < r$ ,  $0.5\mu\text{m} < r$ ,  $1.5\mu\text{m} < r$ ,  $2.5\mu\text{m} < r$ ) で分別計測された。

TF-500 では、光源から発せられた半導体レーザー (LD) 光はコリメーターレンズにより平行光にされた後、シリンダリカルレンズによってエアロゾル粒子の通過領域に集光される。エアロゾル粒子からの散乱光は 2 枚のミラーにより集光され、フォトダイオードで電気信号に変換される。この信号はエアロゾル粒子がレーザー光を通過している際に発生し、アナログ的なパルス信号となる。この散乱光強度は、エアロゾル粒子の半径に依存する。一般に、応答電流 (R) は、

$$R = \iint G \frac{dC_{sca}}{d\Omega} F d\lambda d\Omega \quad (2-1)$$

で表される。ここで、G はレーザー光が粒子によって散乱された後、フォトダイオードに集光される際の幾何学的割合、 $dC_{sca}/d\Omega$  は微分散乱断面積、F は光学系のスペクトル特性である。

TF-500 は、波長 780nm の LD を使用し、散乱光をほぼ全立体角にわたって集光するので、R は

$C_{sc}$  に強く依存する。ただし、 $C_{sc}$  は複素屈折率 ( $m$ ) によって変化する (図 2-1)。

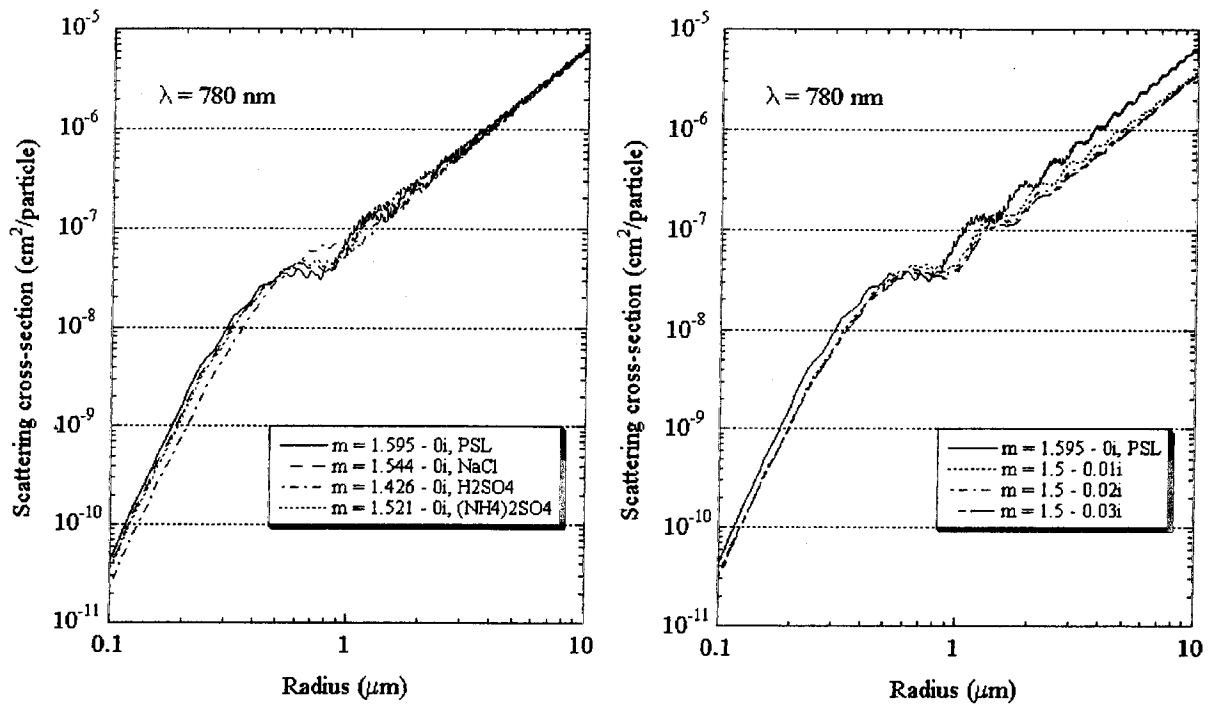


図 2-1 波長 780nm における等方性均質球形粒子の散乱断面積 (複素屈折率の  $m=1.5-0.01i$  は、自然大気中に存在するエアロゾル粒子の典型的な値である)

TF-500 の校正作業においては白色、球形のポリスチレンラテックス (PSL) 粒子 ( $m = 1.592-0i$ ) が用いられるため、複素屈折率が異なるエアロゾル粒子の個数濃度を測定する場合には、測定原理に由来する不可避な誤差が生じている。しかし、複素屈折率が図 2-1 に示した値の範囲にある限り、少なくとも、設定された粒径チャンネルの境界である半径  $0.5\mu\text{m}$  と半径  $1.5\mu\text{m}$  では、 $C_{sc}$  は複素屈折率に依存しない。それ以外の半径では、複素屈折率に対応した粒径チャンネル境界の補正が僅かに必要であろうが、現実には個々のエアロゾル粒子の複素屈折率を知ることが不可能なので、本研究では LPC で得られた値をそのまま採用している。

エアロゾル粒子は、降水によって除去されたり、凝結核として雲粒の形成過程に関与する。エアロゾル粒子の個数濃度は、これらの現象によって一時的に変動する。そこで、まず、取得したデータから降水時のデータの除去を行った。降水の有無は、気象庁月報から地域気象観測資料を用いて確認した。さらに、半径  $0.15\mu\text{m}$  以上から半径  $2.5\mu\text{m}$  以下の 4 階級において、1 時間移動

平均値から個々の時刻における個数濃度の変動係数 ( $\sigma/x$ :  $x$ は平均値、 $\sigma$ は標準偏差) を求め、その値が0.5以上になる時刻のデータも取り除いた。

図2-2は、2000年から2001年におけるエアロゾル粒子の階級別個数濃度の日平均値を示している。ここでは、1日あたり6時間以上のデータが取得された場合に日平均値を求めた。この図から、季節による個数濃度の変動をみることができる。

全個数濃度は地上オゾンと同様に6月に最低値を示す。しかし、地上オゾン濃度が3月から4月にかけて増加傾向を示すのに対し、全個数濃度には顕著な増加はみられず、春季に最大になるとは限らない。ただし、半径0.25から0.5 $\mu\text{m}$ の個数濃度に増加傾向がみられる。夏季の個数粒径分布の特徴は、半径0.15から0.25 $\mu\text{m}$ と半径0.25から0.5 $\mu\text{m}$ 、さらに半径0.5から1.5 $\mu\text{m}$ の個数濃度が互いに近

いことである。また、夏季とはいえ、半径0.15から0.25 $\mu\text{m}$ の個数濃度が、 $10^5$ 個 $\text{L}^{-1}$ を越えることがある。これは、東アジアからの汚染空気塊の流入を示していて、地上オゾン濃度が増加する時期と一致している。

2000年9月12日から13日には、三宅島を起源とする火山噴煙の影響と思われる変動を観測した。このとき、半径0.5 $\mu\text{m}$ 以下のエアロゾル粒子の個数濃度が急激に増加した。地上オゾンとblack carbonの濃度も増加したが、それらは汚染空気塊が流入したときほど高濃度を示さなかった。個数濃度は9月12日12時30分頃から増加し始め、半径0.15から0.25 $\mu\text{m}$ の範囲では、それまで2,500個 $\text{L}^{-1}$ 程度であったのが、同日の17時30分には300,000個 $\text{L}^{-1}$ に達した。そして、しばらく300,000個 $\text{L}^{-1}$ 程度の高濃度が持続し、9月13日6時20分には最大となる350,000個 $\text{L}^{-1}$ を記録した。この直後、濃度は急激に減少に転じ、同日の18時には2000個 $\text{L}^{-1}$ 程度に落ち着いた。

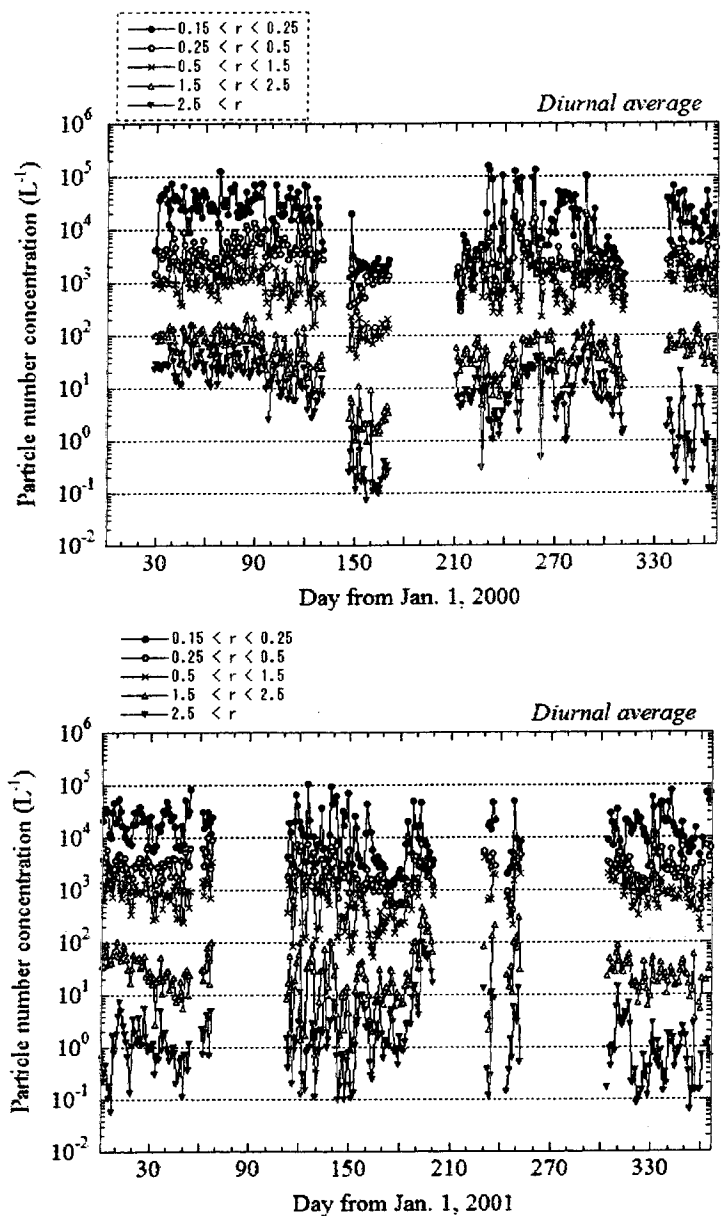


図2-2 エアロゾル粒子の階級別個数濃度の日平均値

### Backward trajectories, September 2000

Source location at Chichijima (27.07N, 142.22E, Height = 230m), 03 UTC.

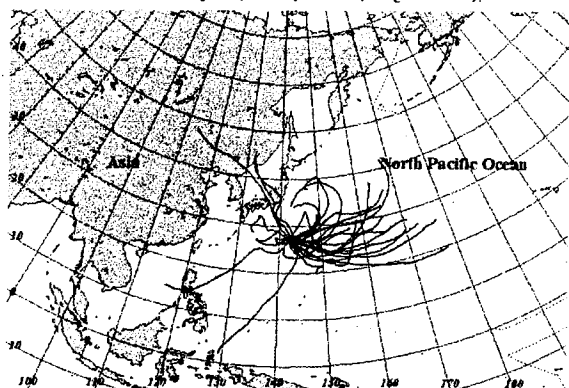


図 2-3 2000 年 9 月の毎日正午に父島に到達した空気塊の過去 5 日間の履歴

半径の 4 階級に対応した個数濃度の実測値を両対数グラフ上に描くと、4 つのステッププロットを得る。そして、粒径チャンネルの最大・最小半径の幾何平均値に実測値を対応させ、さらに隣接する階級の間で個数濃度と半径の幾何平均値を求めると、グラフ上に 7 点を得ることができる。ここで、個数粒径分布の特徴を捉えるために、これら 7 点を使って個数粒径分布を対数正規分布の和で記述することを考える。 $N_i$  を  $i$  番目の粒径分布の全個数、 $r_i$  を平均半径、 $\sigma_i$  を標準偏差とすると、個数粒径分布は、

$$\frac{dN(r)}{d(\log r)} = \sum_{i=1}^n \frac{N_i}{\sqrt{2\pi} \log \sigma_i} \exp \left\{ -\frac{(\log r - \log r_i)^2}{2 \log^2 \sigma_i} \right\} \quad (2-2)$$

となる。取得データから解析に不適当なデータを前述した方法で除去した後、3 時間の連続して個数濃度が得られている場合に個数濃度の 3 時間平均値を計算した。そして、毎日の 22 時 30 分から 1 時 30 分までと 10 時 30 分から 13 時 30 分までの個数粒径分布の平均値に対し、最小二乗法による対数正規分布のあてはめを行った (図 2-4 参照)。Jaenicke (1993)<sup>1)</sup>によると、エイトケン粒子 (半径 0.001 から 0.1 $\mu\text{m}$ ) までも含めた個数粒径分布を表すには  $n=3$  でなければならない。しかし、本研究では半径 0.15 $\mu\text{m}$  以下の個数濃度は測定できていないので、 $n=2$  とした。このあてはめに際しては、 $r_1 < r_2$ 、 $\sigma_1 < \sigma_2$  の条件を設けて、最小の  $\chi$  自乗値を得るときの  $N_1$ 、 $N_2$ 、 $r_1$ 、

一般に、半径 0.1 から 1.0 $\mu\text{m}$  までのエアロゾル粒子 (大粒子) の一部は、二酸化硫黄 ( $\text{SO}_2$ ) の酸化によって生成する半径 0.1 $\mu\text{m}$  以下の粒子 (エイトケン粒子) が凝集過程を通して成長することで形成される。そのため、上記の期間ではエアロゾル粒子の個数濃度だけが高いことから、三宅島からの  $\text{SO}_2$  の影響を受けていたと考えられる。後退流跡線解析の結果も三宅島近傍から空気塊が来ていることを裏付けている。このように、気象条件によっては、夏季にもしばしば人為的な汚染物質や火山からの噴煙が太平洋に流出している (図 2-3)。

半径の 4 階級に対応した個数濃度の実測値を両対数グラフ上に描くと、4 つのステッププロットを得る。

そして、粒径チャンネルの最大・最小半径の幾何平均値に実測値を対応させ、さらに隣接する階級の間で個数濃度と半径の幾何平均値を求めると、グラフ上に 7 点を得ることができる。

ここで、個数粒径分布の特徴を捉えるために、これら 7 点を使って個数粒径分布を対数正規分布の和で記述することを考える。

$$\frac{dN(r)}{d(\log r)} = \sum_{i=1}^n \frac{N_i}{\sqrt{2\pi} \log \sigma_i} \exp \left\{ -\frac{(\log r - \log r_i)^2}{2 \log^2 \sigma_i} \right\} \quad (2-2)$$

となる。取得データから解析に不適当なデータを前述した方法で除去した後、3 時間の連続して個数濃度が得られている場合に個数濃度の 3 時間平均値を計算した。そして、毎日の 22 時 30 分から 1 時 30 分までと 10 時 30 分から 13 時 30 分までの個数粒径分布の平均値に対し、最小二乗法による対数正規分布のあてはめを行った (図 2-4 参照)。

$r_2$ 、 $\sigma_1$ 、 $\sigma_2$ の値を求めた。

図 2-4 から、冬季と夏季の個数粒径分布の違いがわかる。冬季には半径  $0.5\mu\text{m}$  以下の個数濃度が、夏季のそれと比較して多いのが特徴である。しかし、前述したように、夏季ではあっても汚染空気塊が父島に到達すると、半径  $0.5\mu\text{m}$  以下の個数濃度の増加が観測される。後述する black carbon (BC) 濃度の変動を参考に清浄空気塊と汚染空気塊を区別して、 $r_1$  と  $r_2$ 、 $\sigma_1$  と  $\sigma_2$  の関係を調べると、汚染空気塊での  $\sigma_1$  と  $\sigma_2$  の差は清浄空気塊のそれよりも大きく、 $r_1$  と  $r_2$  差は反対に清浄空気塊のそれよりも小さかった。同様な傾向が年間を通じて認められるので、図 2-4 は汚染空気塊と海洋上の清浄空気塊での個数粒径分布の違いを表しているともいえる。

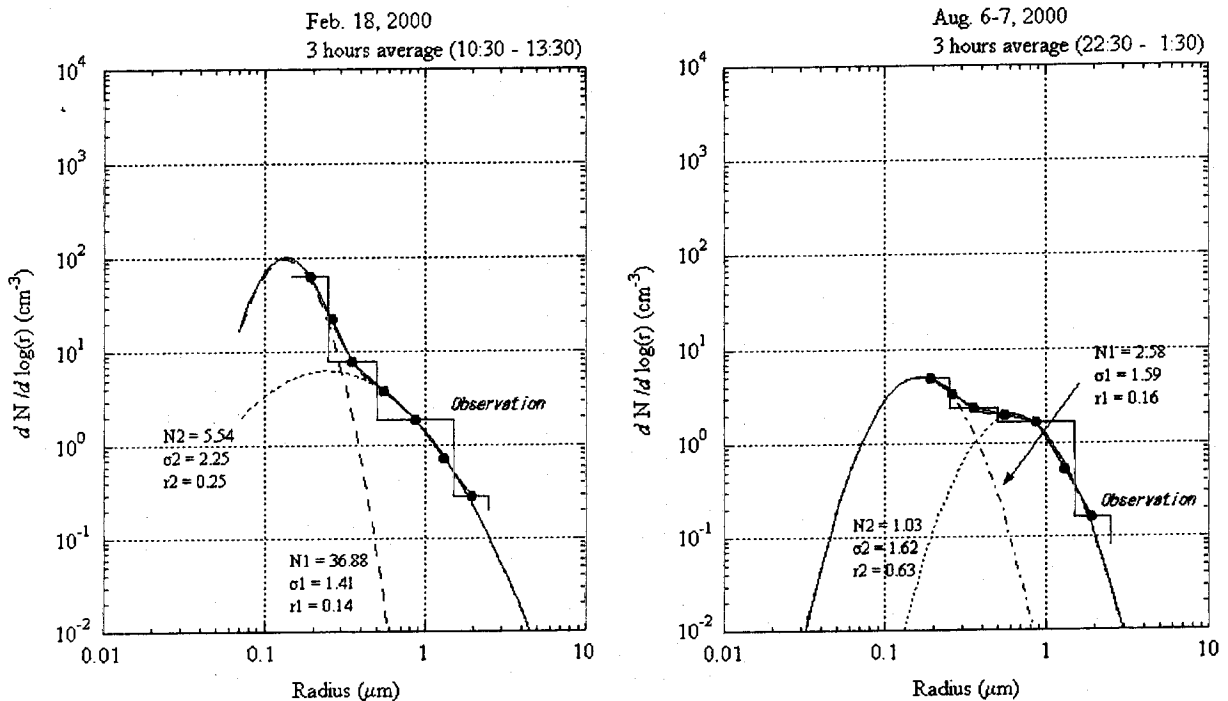


図 2-4 冬季と夏季におけるエアロゾル粒子の個数粒

図 2-5 に 2000 年と 2001 年の  $N$ 、 $\sigma$ 、 $r$  の季節変動を示す。Jaenicke (1993)<sup>1)</sup>では、海洋大気中での典型的な値として、 $N_1 = 66.6\text{cm}^{-3}$ 、 $N_2 = 3.06\text{cm}^{-3}$ 、 $r_1 = 0.133\mu\text{m}$ 、 $r_2 = 0.29\mu\text{m}$ 、 $\sigma_1 = 1.622$ 、 $\sigma_2 = 2.489$  を挙げている。本研究で得られた  $r$  は、2000 年で  $0.12 \pm 0.03\mu\text{m}$ 、2001 年で  $0.10 \pm 0.02\mu\text{m}$  である。 $r_2$  は、2000 年で  $0.34 \pm 0.18\mu\text{m}$ 、2001 年で  $0.43 \pm 0.12\mu\text{m}$  である。また、 $\sigma_1$  は 2000 年で  $1.52 \pm 0.11$ 、2001 年で  $1.61 \pm 0.11$  である。

これらの値は、Jaenicke (1993)<sup>1)</sup>によって示された値に近い。 $N_1$  と  $N_2$  は変動が激しく、観測した気塊における汚染の程度に強く依存している。 $\sigma_2$  は、2000 年に最大値 2.89 を示したが、その後は減少傾向にあり、2001 年には Jaenicke (1993)<sup>1)</sup>が示した値よりも小さくなっている。これは、2001 年における半径  $1.5\mu\text{m}$  以上の個数濃度が、原因は不明であるが、2000 年のそれよりも少ないためである。



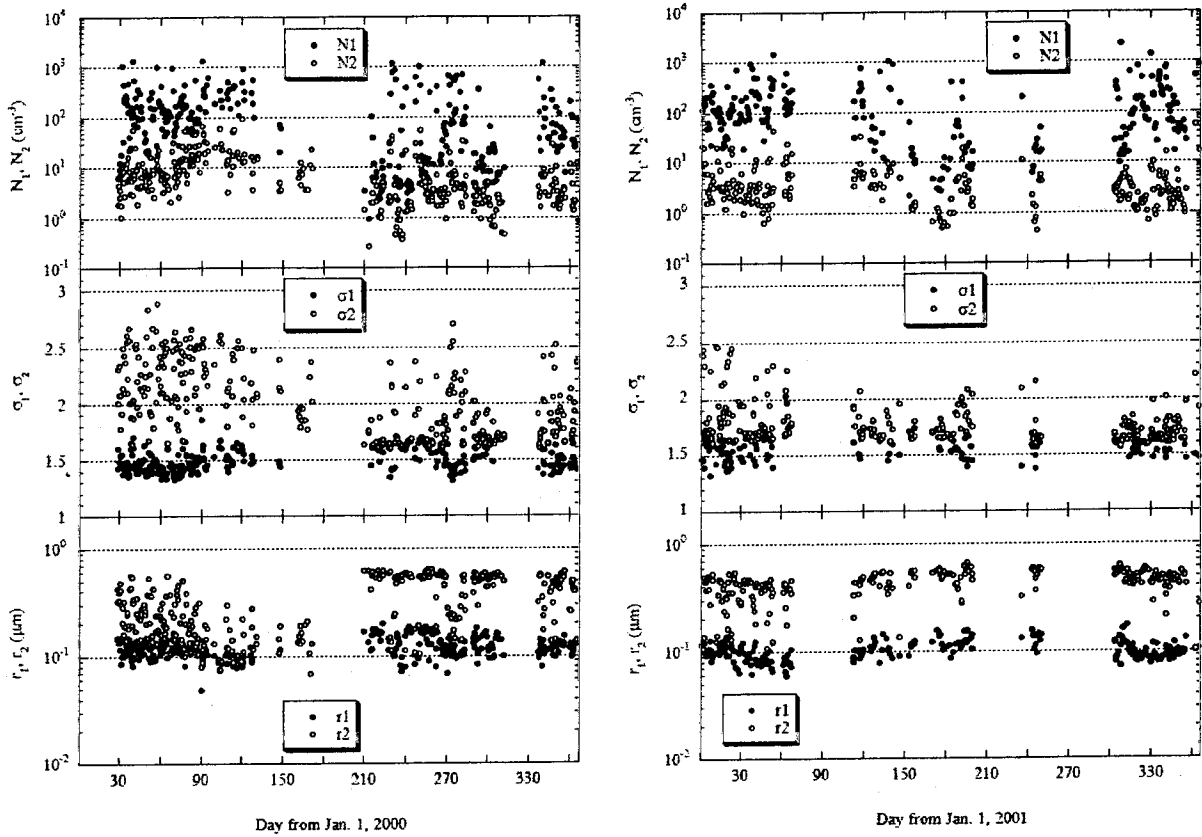


図 2-5 毎日の 22 時 30 分から 1 時 30 分までと 10 時 30 分から 13 時 30 分までの個数粒径分布の平均値に対して、対数正規分布をあてはめて求めた  $N$ 、 $s$ 、 $r$  の季節変動

半径  $0.1$  から  $1.0\mu\text{m}$  のエアロゾル粒子は、最も効率よく光を散乱させる。そのため、これらの半径を持つエアロゾル粒子の個数濃度の変動は、地球の放射収支に影響を与える要因の一つである。光が大気中を伝搬するとき、その強度は空気分子やエアロゾル粒子による散乱・吸収によって進行とともに減衰する。エアロゾル粒子による散乱係数は、単位体積内の個々の粒子の散乱断面積をすべて加え合わせれば求めることができる。いま、半径  $r$  から  $r+dr$  のエアロゾル粒子の個数濃度を  $N(r)dr$  とすると、散乱係数  $b_{sca}$  は、

$$b_{sca}(\lambda) = \int_{r_1}^{r_2} \pi r^2 Q_{sca}(m, \alpha) N(r) dr \quad (2-3)$$

で与えられる。ここで、 $Q_{sca}(m, \alpha)$  は散乱効率因子であり、エアロゾル粒子の複素屈折率 ( $m$ ) とサイズパラメータ ( $\alpha : \alpha = 2\pi r/\lambda$ ) の関数である。

図 2-5 中の値を用いて個数粒径分布を対数正規分布の和として表し、 $dN/d(\log r) = 2.303r(dN/dr)$  の関係を使って、2000 年と 2001 年の父島における散乱係数  $b_{sca}$  を式 (2-3) から推定した。ここでは、光の波長を  $550\text{nm}$ 、積分範囲を半径  $0.05$  から  $2.5\mu\text{m}$ 、複素屈折率を  $1.5-0.01i$  とした。この複素屈折率は、エアロゾル粒子の代表的な値である。

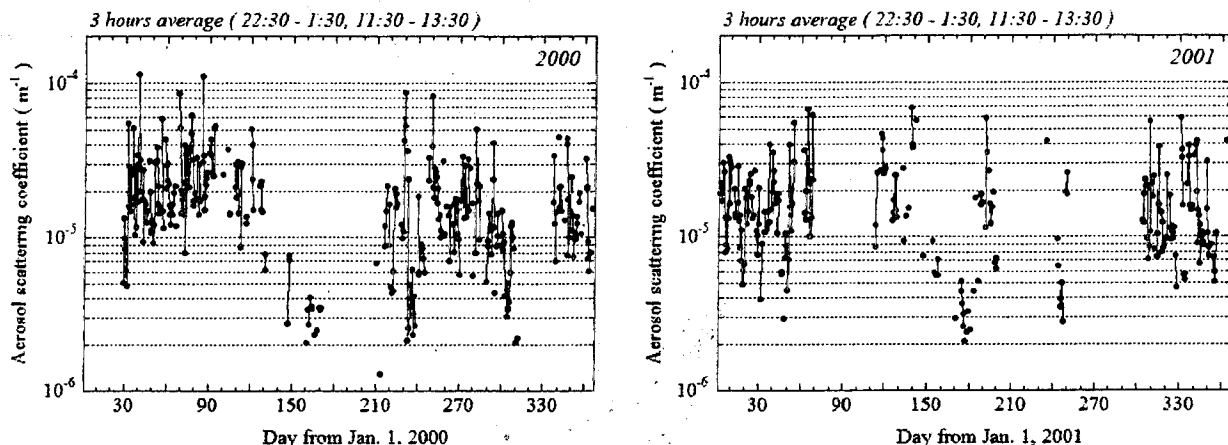


図 2-6 エアロゾル粒子の散乱係数の推定値

図 2-6 に計算結果を示す。この図から、散乱係数は冬季から春季に向けて増加して、4月または5月に最大（約  $5 \times 10^{-5} \text{m}^{-1}$ ）になることがわかる。また、散乱係数の最小値（約  $3 \times 10^{-6} \text{m}^{-1}$ ）は夏季6月に出現する。秋季における散乱係数は、しばしば夏季の値まで低下することがあるが、多くは冬季の値に近い。

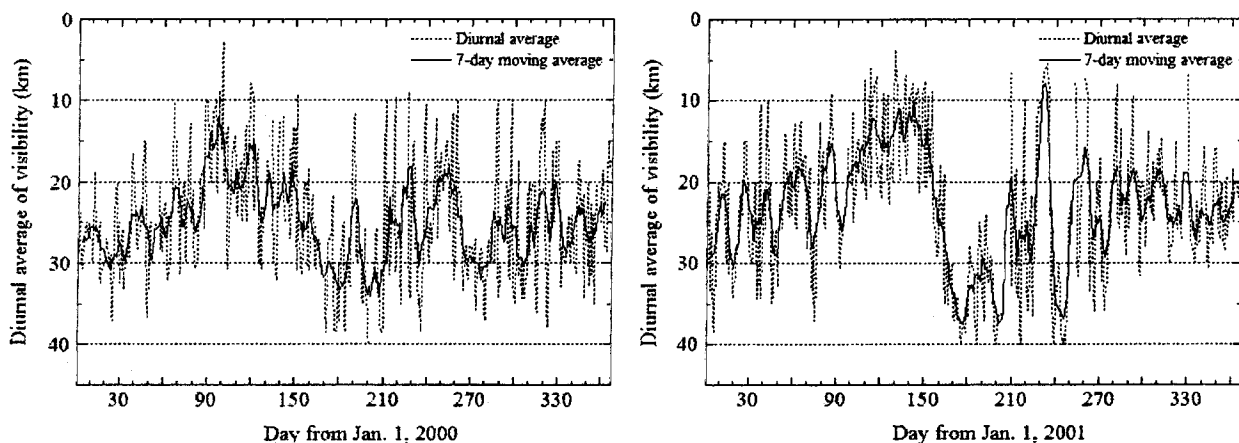


図 2-7 父島測候所で観測された視程の季節変化

観測値（観測は0時を除く3時間間隔、1日7回）から降水時の値を除いて平均値を求めた。

視程は、消散係数と反比例の関係にあることが知られている。散乱係数を推定したときの条件下では、消散係数は散乱係数の1.1倍程度であるから、図 2-6 と図 2-7 を比較することができる。ただし、図 2-6 中の値に海面付近でのレーリー散乱による  $1.32 \times 10^{-5} \text{m}^{-1}$ （波長 520nm）を加える必要がある。図 2-7 から、視程は冬季から春季に向けて悪化し、4月または5月に最低値になることがわかる。反対に、視程が最も良いのは夏季である。このように、図 2-6 に示した散乱係数の変動は、図 2-7 に示した視程の変動と矛盾がなく、特に散乱係数が冬季から春季にかけて増加することは、実際に視程が悪化していることと一致している。これは、ここで行った散乱係数の推定法に誤りがないことの証左である。エアロゾル粒子の光学特性を議論する場合には、化学組成や個数濃度だけでなく、個数粒径分布を正しく捉えておかなければならない。

(3)エアロゾルの光学的特性の季節変化

①光学的にアクティブな組成の挙動

BCは大気エアロゾル中で最大の太陽放射吸収成分であり、その存在量・存在形態如何では、硫酸塩による冷却効果を大きくキャンセルする可能性がある。このため、発源地帯から西部北太平洋域への輸送パターンや濃度の季節変化を詳細に明らかにするためには、高時間分解能の測定を長期にわたって行うことが求められる。そこで、1時間値が測定可能な Aethalometer を父島に設置し、長期測定を行った。Aethalometer 出力値から BC 重量濃度への換算は、図 3-1 に示すように、同時に採取されたエアロゾルの熱分析法による BC 測定値<sup>5)</sup>との比較により値づけを行った。

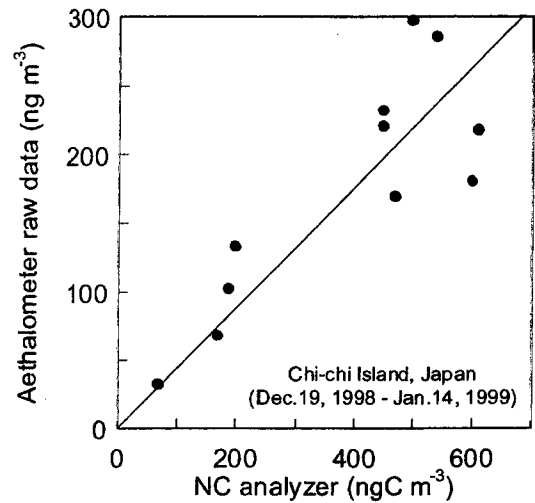


図 3-1 Aethalometer 生データと熱分析法と比較の

図 3-2 に示すように BC 濃度の日平均値は非常に大きな変動を示すが、図中に黒丸で示した平均濃度は地上オゾンと同期した変動を示し、大陸性気団の影響下の季節である秋から春にかけては $\sim 500 \text{ ngC m}^{-3}$ と非常に高い値を示すが、6月中旬を境として、夏季の北太平洋高気圧の影響下では $40 \text{ ngC m}^{-3}$ 以下の低い濃度で比較的一定した値をとる。秋から春にかけての濃度は Kaneyasu and Murayama (2000)<sup>2)</sup>で報告された東経175度線上で観測された濃度のうち中緯度偏西風帯の値( $150 \sim 300 \text{ ngC m}^{-3}$ )と、また夏季の濃度は貿易風帯の値と( $< 40 \text{ ngC m}^{-3}$ )とほぼ一致する。高濃度期と低濃度期の切り替わりは地上オゾンとほぼ一致するが、最大濃度が出現する時期は BC の方が1月から2月とやや早く、一次排出物質である BC と大気中での反応生成物であるオゾンとの違いがみられる。

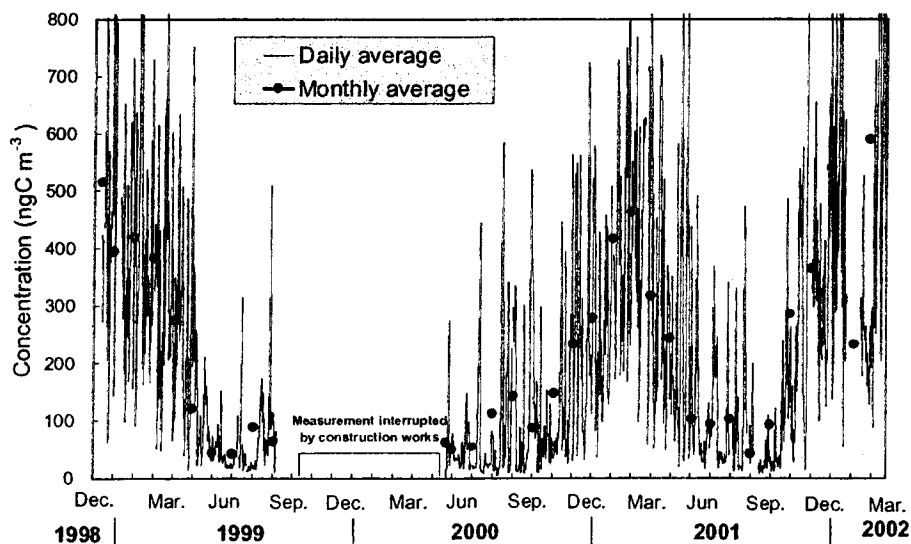


図3-2 小笠原父島(海拔高度240 m)における Black Carbon 濃度の季節変化

次に、BC濃度の変動を詳しく検討するため、高濃度期から低濃度期に移り変わる境の時期である2001年4月中旬から7月までの日平均濃度を図3-3に示す。高濃度時のBC濃度は4～6日

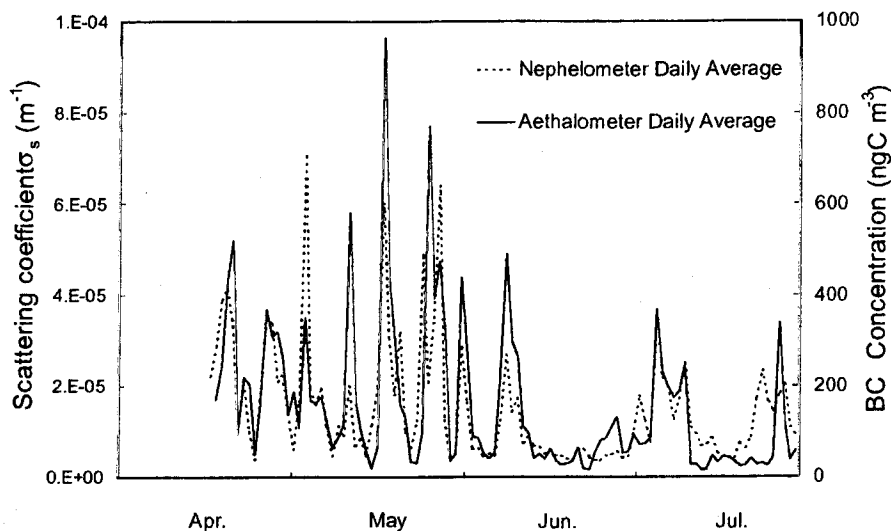


図 3-3 BC濃度および散乱係数の経日変化(2001年4～7月)

程度の周期で大きく変動しており、Kaneyasu et al.(2000)<sup>3)</sup>でエピソード解析により示された「温帯低気圧に伴う寒冷前線によってアジア大陸から引き出された汚染気塊の間欠的輸送」を時系列で捉えていることになる。6月中旬からの低濃度期には、北太平洋高気圧を起源とする海洋性気団の中に入るが、このような汚染気塊の間欠的輸送は頻度が減りつつもまれに存在しすることがわかる。この点はパーティクルカウンタのデータにも表れていたものである。ただし、この際に輸送される気塊中のBCの最大濃度は高濃度期と比較すると1/2程度に低下している。また、同図中に点線で積分型Nephelometerにより測定した大気エアロゾルの散乱係数の値を示す。散乱係数はBC濃度と完全に同期した変動を示し、汚染気塊は高吸収性であると同時に散乱成分を含んでいることがわかる。

②単一散乱アルベドの導出および季節変化

太陽放射伝達過程において、大気エアロゾルによる散乱を介して各気層でのエネルギー収支を支配するのが一回の散乱過程における消散と散乱の比(=単一散乱アルベド $\omega$ )である。単一散乱アルベドを求めるためには散乱係数と吸収係数が必要となる。

AethalometerはBCを測定対象としていることから、土壌粒子による吸収の影響を避けるため近赤外域である880nmで吸光測定を行っており、550nmにおける散乱係数を測

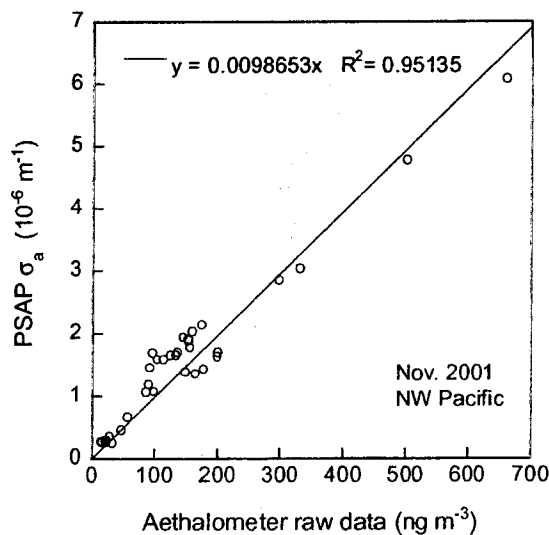


図 3-4 Aethalometer の生データと PASA 測定値の比較

定している積分型 Nephelometer の値と直接の比較はできない。そこで、520nm における吸収係数を測定している Particle/Soot Absorption Photometer (PSAP) との並行運転して結果を比較することで、Aethalometer の測定値を 520nm 付近の吸収係数に変換した。ただし、父島においての並行運転は実施できなかったため、東京大学海洋研究所の調査船「白鳳丸」における KH-01-3 次航海において実施された並行運転の結果のうち、日本近海の小笠原付近において得られたデータを図 3-4 に示す。これより Aethalometer の生データを基にした BC の specific absorption coefficient は  $9.8 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$  となり、この値を用いて Aethalometer の測定値を吸収係数  $\sigma$  に変換して単一散乱アルベドを計算した結果を図 3-5 に示す。単一散乱アルベドは BC 濃度と同様に細かい増減を繰り返しており、「汚染気塊の間欠的輸送」は散乱成分と吸収成分の同時輸送をもたらすものの、全体としては  $\omega_0$  の低い(吸収成分の割合の高い)エアロゾルが輸送されることがわかる。変動する曲線の上側の値に注目すると、6月中旬以前の高濃度汚染期(春期)には  $\omega_0$  は 0.97 付近を上限として変動しているが、以降9月末までの清浄期には 0.995 付近を上限としている。しかし、このような清浄期にあっても、例えば9月上旬のエピソードのように  $\omega_0$  が 0.8 を下回るような強吸収性のエアロゾルが輸送されることもある点が注目される。10月以降、再び大陸性気団に影響されるようになると、 $\omega_0$  の低いエアロゾルが比較的長い期間存在するようになる。2001年11月の下旬以降は積分型 Nephelometer のトラブルで  $\omega_0$  の測定が途絶えてしまったが、大陸性エアロゾルの輸送に伴う光学特性変化データを高時間分解能で長期間取得できたのは本研究が初めてである。

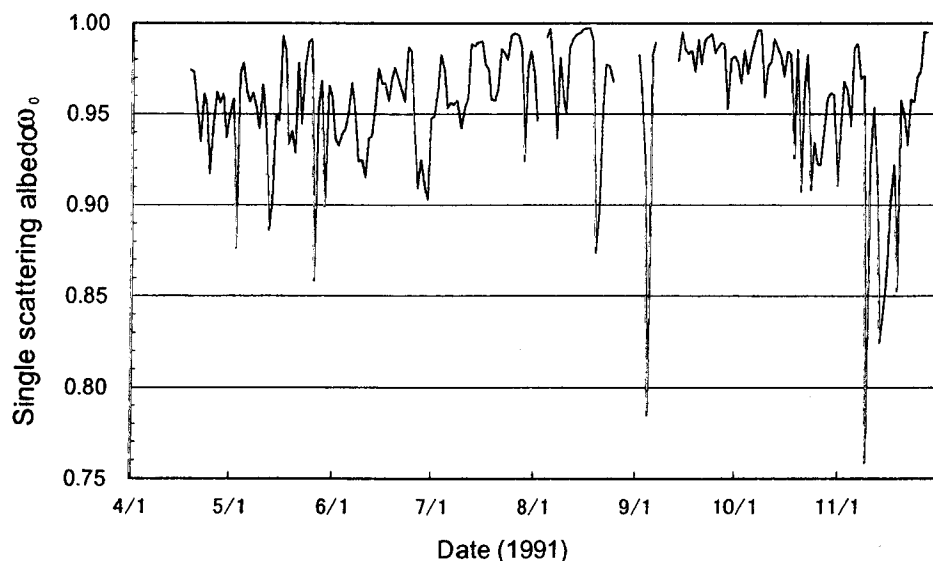


図 3-5 単一散乱アルベドの季節変化(1991年)

このような光学的特性の変動はエアロゾル化学成分とどのように関係づけられるであろうか。この点を見るため、Aethalometer のサンプル・スポットから  $\text{SO}_4^{2-}$  の分析を行った結果と BC 濃度を比較した結果を図 3-6 に示す。 $\text{SO}_4^{2-}$  濃度が  $0.5 \mu\text{g m}^{-3}$  以下の低濃度時には両者の比例関係は弱く、プロットは寝た形で固まっているが、高濃度時には  $\text{SO}_4^{2-}$  と BC の比例関係が明確になり、両者が同時に輸送されていることがわかる。また、BC/ $\text{SO}_4^{2-}$  重量濃度比は図より約 0.14 となり、

Kaneyasu and Murayama (2000)<sup>2)</sup>による太平洋中心部での測定値とほぼ一致している。このことは、大陸起源の汚染気塊は長距離輸送中に濃度減少が生じていても光学的性質はほぼ均一のまま輸送されていることを示唆する。

### ③大気エアロゾル鉛直積算量の季節変動

これまでの測定結果は地上付近で連続測定されたエアロゾルのものであるが、地表より大気上端までの消散係数(散乱係数+吸収係数)が積分された値である光学的深さをサンフォト・メータで測定し

た。波長500 nmにおけるエアロゾル光学的深さ $\tau_{500}$ にも、地上における物質濃度同様、顕著な季節変化が現れている。図3-7に示すように5月下旬から12月の期間の $\tau_{500}$ は0.08~0.13と非常に低く、Toon and Pollack (1976)<sup>4)</sup>の全球エアロゾルモデルの設定値(Maritime Type, 0° - 30° N:  $\tau_{500} = 0.20$  および 30° - 60° N:  $\tau_{500} = 0.15$ )と比較しても、清浄な気団中にあることがわかる。12月下旬から光学的厚さは増加を始め、3~4月をピークとして $\tau_{500} = 0.4$ 前後まで上昇する。この最大値出現時期は、1~2月月に最大値を迎える地上の汚染物質濃度とはずれており、春期に最大値なる上空の土壌粒子系の物質輸送を反映していると考えられる。

なお、図中には示していないが、3月中には黄砂イベントに対応するとみられる値( $\tau_{500} > 1.2$ )も数例記録されたが、これら極端に値の高いデータについては今後の解析が必要である。東アジア東岸におけるエアロゾル光学的総量の変動については、気象台における直達日射データより求めた

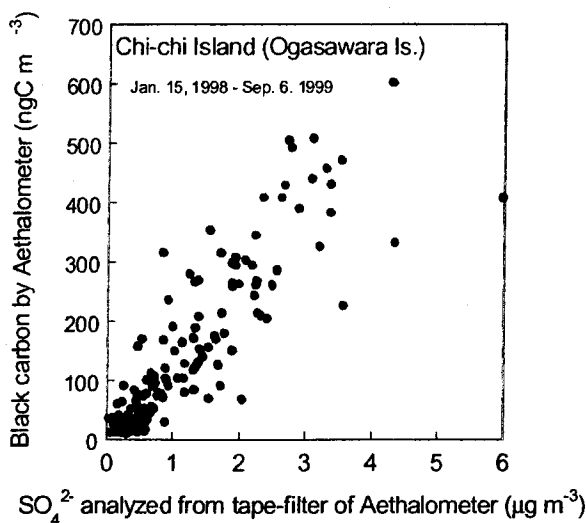


図3-6 エアロゾル中BCとSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度の比較

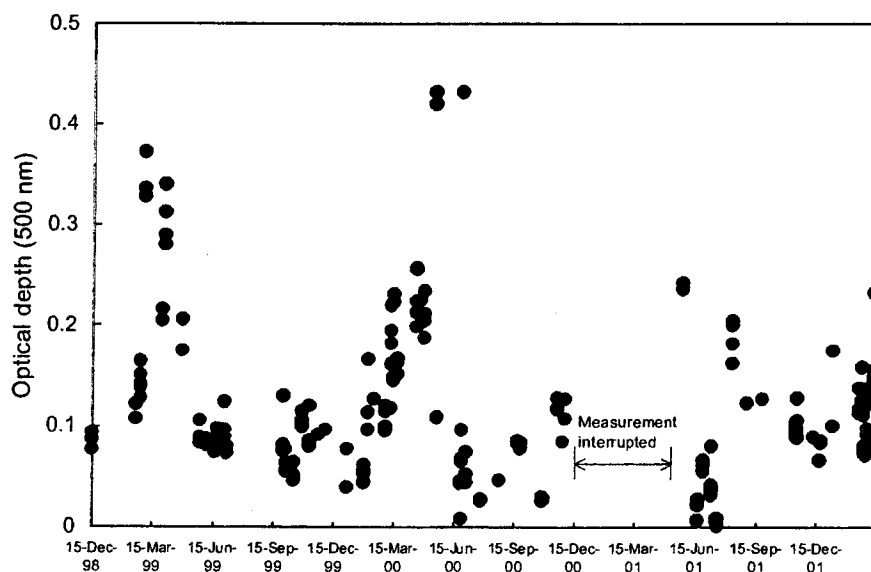


図3-7 小笠原父島におけるエアロゾル光学的深さ(波長500 nm)の季節変化

山本の大气混濁度(波長 $1\mu\text{m}$ における光学的厚さに相当)が Ohta *et al.* (1997)<sup>6)</sup>により1950年代~1995年までまとめられている。このうち、小笠原にほぼ相当する緯度帯にある石垣島のデータは数が少なく変動も大きい明瞭な季節変化をみることができないが、次いで小笠原に近い潮岬および土佐清水のデータでは、小笠原と同様に春季に最大値を示す一方、夏の間も比較的高い値を維持し、初冬季(11~12月)に最低値となる季節変化がみられる。これらの地点における夏季の高い値は、日本の主要都市域を起源とする汚染物質から光化学的に生成されたエアロゾルの影響を被っている可能性があり、小笠原ではよりバックグラウンド的なデータが得られたものと考えられる。

## 5. 本研究により得られた成果

小笠原父島において、汚染物質を高い濃度で含む大陸性気団に覆われる期間と、北太平洋高気圧の影響下で清浄な海洋性気団に覆われる期間の大气質の変化を、明瞭に捉えることに成功した。BCや $\text{SO}_2$ などの光学的にアクティブな大气エアロゾル成分と地上オゾン濃度はほぼ一致した位相で高濃度期と清浄期を示し、清浄期の始まりは6月上旬、高濃度期の始まりは10月下旬であった。

しかし、月平均濃度でみた場合のBCの最大濃度は1月から2月に現れるのに対して、地上オゾン濃度の最大値は4~5月の春期に出現し、同じ大陸性気団の影響ではあるものの、一次排出物質であるBCと大气中での反応生成物であるオゾンの違いを反映している。

BC濃度の変動は、実際には4~6日程度の周期での通過する汚染気塊によってもたらされており、高濃度期にはこのような気塊の通過頻度が高いとともに気塊中のBC濃度も高い。一方、清浄期においても、ときおり汚染気塊が流入してくることがあり、パーティクルカウンタのデータにも表れている。高濃度期、または清浄期においても汚染気塊が流入した場合、パーティクルカウンタのデータからパラメータ・フィッティングで推定した粒径分布曲線では、 $0.2\mu\text{m}$ 付近にモードを持つ微小な粒子が卓越していた。

パーティクルカウンタから得られたエアロゾル粒径分布をもとに散乱係数の季節変化計算し、小笠原測候所における視程観測結果と比較したところ、両者の間には定性的な一致がみられ、地上レベルでの視程の変化が粒径 $0.1\sim 1\mu\text{m}$ 程度のエアロゾルの濃度変動によるものであることが推測された。BC濃度から換算された吸収係数と、積分型Nephelometerにより得られた吸収係数より単一散乱アルベドが計算され、汚染気塊流入時には単一散乱アルベドが0.8前後の強吸収性のエアロゾルが輸送されてくることが判明した。大气エアロゾルの消散係数を気柱全体にわたって鉛直積分した値である光学的深さは春期に最大値をもつ季節変動を示し、地上におけるBCなどの汚染物質濃度とは位相が若干ずれていた。

現時点では、大量に収集されるデータの処理が終了したばかりであり、各測定項目間の相互の比較や解析には十分に踏み込めていない。今後の解析により、オゾン等反応性気体とエアロゾル成分の輸送パターンに関する特徴がより明らかになると期待される。

## 6. 引用文献

- 1) Jaenicke, R.: Tropospheric aerosols, in *Aerosol-Cloud-Climate Interactions*, edited by P.V. Hobbs, p.14, Academic Press, San Diego (1993).

- 2) Kaneyasu N. and S. Murayama: High concentrations of black carbon over middle latitudes in the North Pacific Ocean, *J. Geophys. Res.*, **105(D15)**, 19,881-19,890 (2000)
- 3) Kaneyasu, N., K. Takeuchi, M. Hayashi, S. Fujita, I. Uno and H. Sasaki: Outflow patterns of pollutants from East Asia to the North Pacific in the winter monsoon, *J. Geophys. Res.*, **105**, 17,361-17,377 (2000).
- 4) Toon, O. B. and J.B. Pollack: A global average model of atmospheric aerosols for radiative transfer calculations, *J. Applied Meteorology*, **15**, 225-246 (1976).
- 5) Ohta, S., and T. Okita, Measurements of particulate carbon in urban and marine air in Japanese areas, *Atmos. Environ.*, **18**, 2439-2445 (1984).

[国際共同研究等の状況]

なし。

[研究成果の発表状況]

(1) 誌上発表 (学術誌・書籍)

なし

(2) 口頭発表

- ① 古賀聖治、兼保直樹、松本潔、植松光夫：1999年日本気象学会秋季大会 (1999)  
「夏季の小笠原父島におけるエアロゾル粒子の粒径分布」
- ② 古賀聖治、兼保直樹：第5回大気化学討論会 (1999) 「小笠原諸島父島での対流圏オゾン濃度とエアロゾル粒子数濃度の変動の観測」
- ③ 古賀聖治：エアロゾルキャラクタリゼーション (ACE-Asia) 計画の推進と国際対応研究集会 (1999) 「小笠原諸島父島における大気微量成分観測の現状」
- ④ 古賀聖治、兼保直樹：第6回大気化学討論会 (2000)  
「小笠原父島におけるエアロゾル粒子数濃度の変動」
- ⑤ 兼保直樹、古賀聖治：2000年日本気象学会秋期大会 (2000) 「小笠原父島における東アジアからの大気エアロゾルの流れ出しの観測」
- ⑥ S. Koga and N. Kaneyasu : 7th International conference on atmospheric sciences and applications to air quality and exhibition, and workshop on air quality modeling challenges, Taipei, Taiwan, 2000  
“Characteristics of aerosol size distributions observed in the sub-tropical marine boundary layer in the western Pacific”
- ⑦ N. Kaneyasu, S. Koda : AGU 2000 Fall Meeting, San Francisco, USA (2000)  
“Particulate Black Carbon in the MBL over the North Pacific Measured on Chi-Chi (Bonin) island and in the series of research cruises”,
- ⑧ 兼保直樹、古賀聖治：2001年日本気象学会秋期大会 (2001)  
「小笠原父島における東アジアからの大気エアロゾルの流れ出しの観測 (II)」
- ⑨ 松本潔、植松光夫、太田一岳、兼保直樹：2001年大気環境学会年会 (2001)  
「日本近海における粒子状炭素成分濃度及びその関連物質の観測」
- ⑩ 古賀聖治、兼保直樹、太田一岳、植松光夫：日本気象学会秋季大会 (2001)



「父島におけるエアロゾル粒径分布の季節変動」

⑩古賀聖治、兼保直樹：第12回大気化学シンポジウム（2001）

「小笠原父島におけるエアロゾル粒子数濃度と元素状炭素濃度の変動」

（3）出願特許

なし。

（4）受賞等

なし

（5）一般への公表・報道等

なし

（6）その他成果の普及、政策的な寄与・貢献について

今後、Web等を通して研究結果を閲覧可能なようにする予定である。