

B-8 有機エアロゾルの地域規模・地球規模の気候影響に関する研究

(1) 有機エアロゾルの輸送と放射強制力に関する研究

② 海洋上の有機エアロゾルに対する人間活動の影響およびその放射強制力の評価

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

兼保直樹・古賀聖治

東京農工大学 農学部

高田秀重

<研究協力者>

東京薬科大学 生命科学部

熊田英峰

平成14～16年度合計予算額 14,555千円

(うち、平成16年度予算額 4,655千円)

[要旨] 小笠原父島等の島嶼および富士山頂において長期に観測を行い、人間活動の影響を受けたアジア大陸起源の大気エアロゾルの長距離輸送の状況、その光学的特性を支配する有機エアロゾルおよび黒色炭素粒子の挙動およびその発生源を解析した。父島における観測から、海洋境界層内における汚染物質の長距離輸送の特徴である間欠的輸送が捉えられ、富士山頂で観測された自由対流圏における輸送と比較して顕著な季節性を示した。父島において大陸性汚染気団中で測定されたエアロゾルの複素屈折率虚数部は、WMO WCP-55エアロゾルモデルでContinental Typeとして採用されている0.01との比較でやや大きい吸収性(～0.013)が導かれた。光学式パーティクルカウンタによる長期観測結果から、大陸性汚染気団と海洋性清浄気団の典型的な粒径分布が得られた。また、広域輸送モデルにより、父島に到達したBCの濃度が高い気塊の発源地域は、中国南部を起源とする場合が多いことが示された。父島でフィルターサンプリングされた有機エアロゾルの分析結果より、多環芳香族炭化水素類の各物質濃度の季節変化から、父島に到達した燃焼起源エアロゾルには冬季の石炭燃焼等産業起源系のもの、および夏季のバイオマス燃焼系のものの寄与が唆された。夏季のバイオマス燃焼系の有機エアロゾルは、濃度レベル自体は低いものの、滞留時間の長さから、やはり長距離輸送されたものであることがわかった。父島における海洋境界層内エアロゾルの光学特性および鉛直分布を詳細にとらえるため、冬季に短期集中観測を実施した。これより、寒冷前線通過時の散乱係数および吸収係数の急増、その際のエアロゾルの鉛直分布、測定値の湿度補正係数等、今後の放射伝達計算に必要なパラメータをほぼセットとして揃えることができた。

[キーワード] 光学的特性、放射強制力、黒色炭素、多環芳香族炭化水素、季節変化

1. はじめに

人為起源大気エアロゾルの気候影響を評価する上で、東アジア-太平洋岸地域は世界のショウケースとなる場所と考えられる。それは、現時点で世界最大の石炭消費地域であり、また、21世紀中もSO₂等のエアロゾル前駆物質発生量が大幅に増大する地域であると考えられるからである。一方、気候影響評価を行うためには「人為起源でない」エアロゾルの状況を押さえておく必要が

ある。このためには、本来、産業革命以前の大気エアロゾルの濃度・分布を初期状態とし、それに対して現状の、または将来予測から得られたエアロゾル汚染による影響との差を求める作業が必要となる。この過程では、数値モデル的に産業革命以前の時期の大気エアロゾルを再現することが必要となるが、計算には多数の仮定を設ける必要があり、容易ではない。しかし、非常に清浄なバックグラウンド気団中の大気エアロゾルの放射強制力を実測により評価することで、これとの比較により、現状のアジア大陸起源のエアロゾルの放射強制力を評価することが可能である。

小笠原諸島・父島は東京から南方1000 km、北緯27°に浮かぶ亜熱帯性気候の島で、中緯度偏西風帯と貿易風帯の境に位置するため、アジア大陸起源の気団と太平洋中心部の北太平洋高気圧から吹き出す清浄な気団に季節によって交代で支配される。このため、海洋性バックグラウンドおよび大陸性(あるいは人為汚染)エアロゾルの特徴を捉えるには好適な地理的条件にある。また、朝鮮半島の南約100 kmに位置する済州島は、北西季節風がその後背にカルマン渦を作ることで有名なことからわかるように、アジア大陸から直接吹き出す気塊を観測するのに好適な立地である。

2. 研究目的

本研究では、特徴的な立地にある二つの島(済州島および父島)、および日本本土の影響をより大きく受ける八丈島、対流圏中層での物質輸送状況を反映する富士山頂等における観測を通じて、アジア大陸東岸に近い(数100 km)海域での海洋境界層内、1000 km以上離れた海域での海洋境界層内、および自由対流圏内での大気エアロゾルの組成、特に有機エアロゾルなどの炭素系粒子の季節的な濃度変動、発生源の変化、これらに影響される光学的特性の変動を明らかにし、結果としてもたらされる放射強制力の評価に必要なデータを揃える。

3. 研究方法

小笠原父島における観測は海拔240 mの宇宙開発事業団小笠原追跡所において実施した。大気エアロゾル中black carbon (BC)濃度の1時間値をAethalometer (Magee Scientific AE-16U)により、また散乱係数(scattering coefficient, σ_s)を積分型ネフェロメータ(TSI 3351)により測定している。AethalometerによるBC重量濃度測定値は、880 nmでのフィルターの吸光測定値からメーカー既定のspecific absorption coefficientにより計算されている。エアロゾル光学的深さと(optical depth)はサンフォトメータ(Eko MS-110)により、エアロゾル粒子の個数濃度(粒径0.3 μm 以上)は光学式パーティクルカウンター(Kanomax TF-500)により、10分毎の積算値として測定した。2002年8月からは、粒径2.5 μm 以下の大気エアロゾルを10日の吸引時間でフィルター捕集し、多環芳香族炭化水素類(PAHs)等、有機物の測定を行っている。また、韓国済州島ハルラ山1100地点においても、2003年3月～2004年2月までの期間で粒径2.5 μm 以下の大気エアロゾルを父島と同様な条件でフィルターサンプリングを行った。富士山頂、八丈島でも関連データの取得を行った。

2004年には、父島において通年で測定している観測項目に加え、大気エアロゾルの光学的特性を得る際に懸案となっていた問題に主眼を置き、2月9日～20日の期間で大陸からの汚染物質輸送が卓越する冬季に短期集中観測を実施した。地上の観測地点では、PSAPとAethalometerを同時運転、散乱係数の相対湿度依存性試験、インパクターによる粒径別エアロゾル組成観測等を実施した。また、航空機等による上空の*in-situ*観測手段を持たない現状では、地上で測定した大気エアロゾルの化学組成で境界層内のそれを代表させ、層内一様であると仮定せざるを得ないが、境界層高度

や層内での相対的な濃度分布、さらに境界層内での相対湿度の分布に関してデータを得ておく必要がある。そこで、シーロメータ(雲底高度計)をレーザーレーダの代替として用い、大気エアロゾルの対流圏下層における鉛直分布を連続的に測定した。また、寒冷前線通過後を狙って、ラジオゾンデによる上空の気温・相対湿度を集中的に観測した。

4. 結果・考察

(1) アジア大陸起源汚染気塊の間欠的輸送パターン

一般にアジア大陸辺縁におけるBC濃度の季節変化は、冬に高く夏に低い傾向を示すが、高時間分解である本測定では、高濃度のBCが比較的短時間(1日~数日)現れては濃度が再び低下する状況が明確に捉えられている。これは、Kaneyasu *et al.*¹⁾で示された汚染物質の間欠的輸送パターン、すなわち寒冷前線に引き

連れられた pollution frontとして大陸起源物質が次々と輸送されている状況を定点において観測したものである。冬季は高濃度の気塊流入の頻度が高く、ベースとなる濃度も高くなる一方、夏期においても頻度は低いながら高濃度の気塊が流入している。

富士山頂において約2年間測定されたBC濃度にも、父島と同様に前線通過に対応する激しい濃度増減がみられている。これより、山頂高度の自由対流圏における汚染物質の長距離輸送は、やはり幅の狭いイベントによるものであることが分かるが、境界層内と異なり、その季節変化は明瞭ではない。2003年5月下旬から6月上旬にかけては、シベリアでの大規模な森林火災煙の影響を受けた極端な高濃度が観測されている。

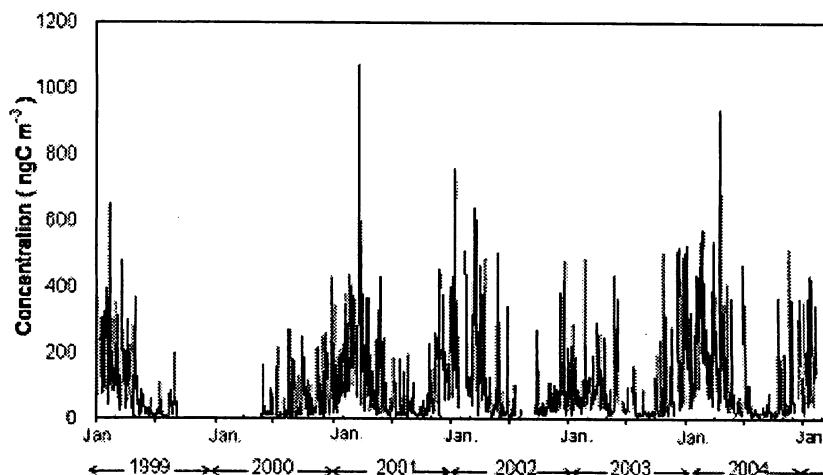


図1 父島におけるblack carbon濃度の季節変化

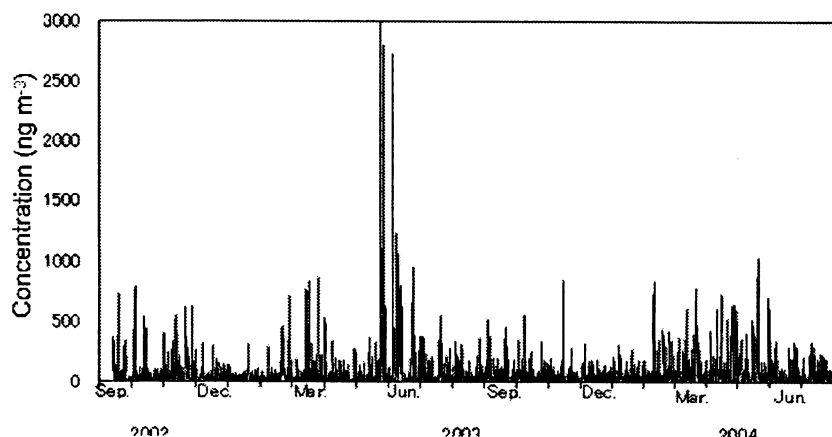


図2 富士山頂におけるblack carbon濃度の季節変化(2002年9月~2004年7月)

(2) 境界層内エアロゾルの光学的特性

(a) 単一散乱アルベドの季節変化

大気境界層内における幅の狭い汚染物質輸送の状況は、父島における散乱係数 σ_s の測定値にも明確に現れている。清浄時には $1 \times 10^{-6} \text{m}^{-1}$ 程度の値であるが、汚染気塊通過時には大気エアロゾルの流入により 2×10^{-5} から 10^{-4}m^{-1} レベルの高い散乱が生じている。

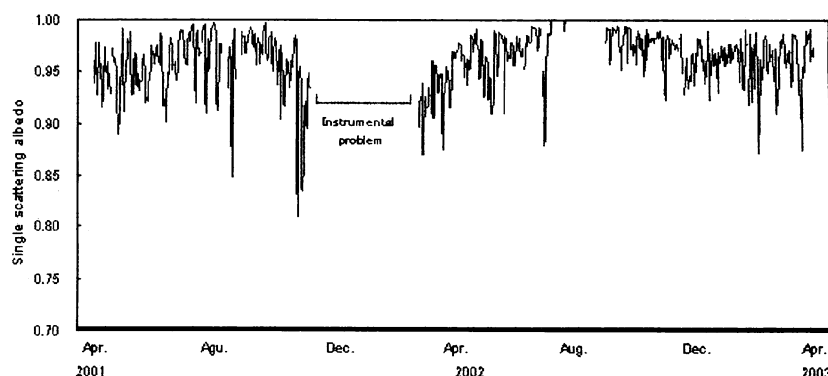


図3 父島におけるエアロゾル単一散乱アルベドの季節変化(2001年4月～2003年4月)

σ_a と σ_s から計算された単一散乱アルベド(single

scattering albedo, ω_0)を図3に示す。汚染気塊の輸送に同期して数日の周期で上下を繰り返す状況が捉えられている。平均的には、夏季の海洋性気団中で高く(0.98以上)、冬～春の大陸起源気塊の輸送シーズンで0.9程度に下がる状況が見えている。ただし、ここでは積分型ネフェロメータの測定値に対してはblind angle(測定不能角度領域)の補正はなされておらず、また相対湿度変化による σ_s の補正もなされていないため、同図は父島における海洋境界層内エアロゾルの光学的特性の大まかな傾向を示したものである。

(b) 測定値の再解析および複素屈折率の算出

ネフェロメータの測定値に対するblind angle補正のため、Yabuki *et al.*²⁾の方法により、光学式パーティクルカウンタの測定データに対してMie散乱計算を用いて再解析を行った。図4に2002年12月から2003年の1月にかけての北東季節風による輸送シーズンを対象とした単一散乱アルベド ω_0 および複素屈折率虚数部 n_i の再解析値を示す。

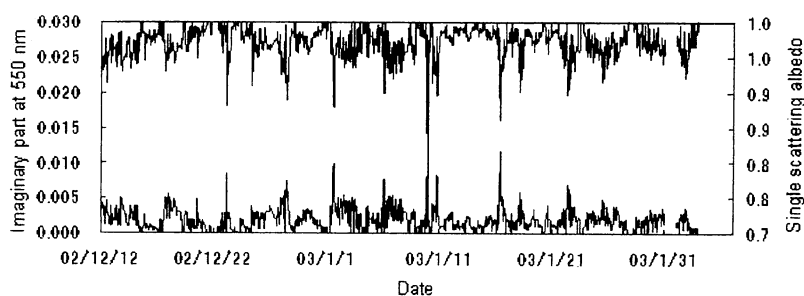


図4 父島におけるエアロゾル単一散乱アルベド再解析値と複素屈折率虚数部の時間変化(2002年12月～2003年2月)

この時期、汚染気塊通過時には ω_0 は0.87程度まで低下し、都市大気汚染と同程度に吸収性の強いエアロゾルが輸送されていることがわかる。また、この際の n_i は0.013は、WMO WCP-55エアロゾルモデルのContinental Typeとして採用されている0.01と比較してもやや大きい。

(3) 大気エアロゾル中の多環芳香族炭化水素組成からみた長距離輸送の特徴

(a) 総PAHs濃度の季節変化

多環芳香族炭化水素類 (PAHs) は化石燃料やバイオマスなどの燃焼により生ずる物質であり、燃焼起源エアロゾルの指標物質の一つである。父島における化学分析用エアロゾルは10日の時間分解能でサンプリングされているが、感度の問題からほとんどのサンプルを3または4回分をコンポジットして分析している。2002年7月から2003年2月までの期間に採取された大気エアロゾル中 PAHs は、観測期間中を通じて、3-7環の化合物でアルキル置換基を持たない化合物 (Parental PAHs) が優占し、メチル化合物はあまり検出されなかった。これらは燃焼過程に由来する PAHs に典型的な組成である。Parental PAHs の合計濃度の範囲は $3.9\text{--}441\text{ pg m}^{-3}$ 、平均値では $108\pm 137\text{ pg m}^{-3}$ 、中央値は 47.7 pg m^{-3} であり、東京郊外の大気中 PAHs 濃度と比較すると、 $1/1000\sim 1/100$ 程度と極めて低い値であった。図

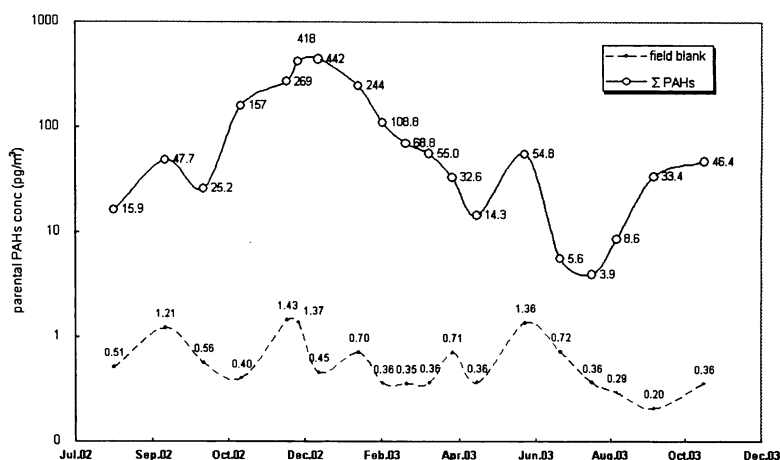


図5 父島における総PAHsの季節変化

5に示すように、季節変化としては、全般的に夏季・秋季(7-10月)には低濃度で、冬期・春期には高濃度であった。なお、同様な総PAHsの季節変化は済州島1100mサイトにおいても観測された。

大気エアロゾル中の PAHs は、気相にガス体として存在する PAHs と分配平衡にある。一般的に気温の上がる夏季にはエアロゾル中の PAHs のうち低分子量の化合物が選択的に気相へ分配されるためにエアロゾル中 PAHs の LMW/HMW 比(ここでは3-4環の Parental PAHs の合計量と5-7環の合計量の比と定義する)は低下し、冬季には低分子化合物の気化が抑制されるため、この比は高くなる傾向がある。父島では LMW/HMW 比は 0.70-1.50 の間で推移し、推移の仕方はやや不規則であったが、おおまかな傾向としては、夏期・秋期 > 冬期・春期となり、特に冬季において増加はしていない。このことから、冬季の ΣPAH 濃度増加は、相間の平衡移動の結果というより、BC と同様に大陸起源気塊の輸送の状況が現れているとみなすべきである。

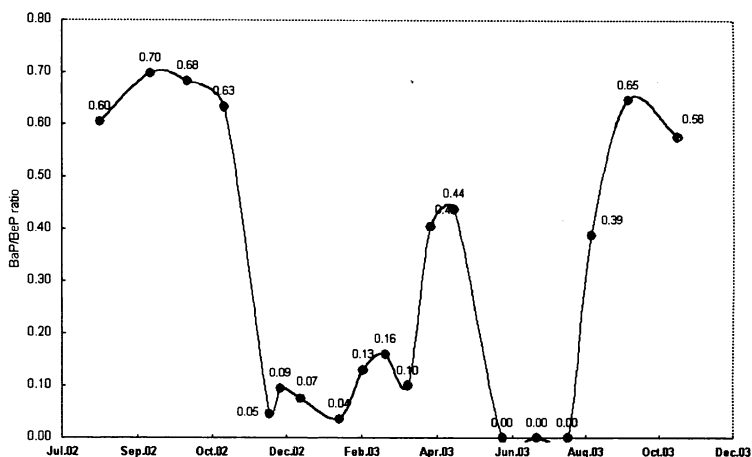


図6 父島におけるBenzo[a]pyrene / Benzo[e]pyrene比の季節

(b) B[a]P/B[e]P 比および retene 濃度からみた発生源

大気エアロゾルの発生源、滞留時間等の情報を、PAHs組成およびバイオマーカー化合物をもとに検討した。Benzo[a]pyrene と Benzo[e]pyrene は共に化石燃料、バイオマスの燃焼の際に およそ 1:1 の割合で発生する物質である。大気中において Benzo[a]pyrene は Benzo[e]pyrene よりも オゾンやOH ラジカルなどの酸化剤の攻撃を受けやすいため BaP/BeP 比は大気中での光化学反応の進行度の指標となりうる。BaP/BeP 比は0(検出限界未満)～0.70の間で推移した(図6)。分析が終了している2002年7月～2003年11月末までの期間では、夏季・秋季(7～10月)には高く(0.38-1.08)、冬期・春季(11～4月)には低い(0.04-0.16)傾向が認められた。また、2003年の4～5月にもBaP/BeP 比が約0.4と、その前後の時期に比べて突出して高い値となった。BaP/BeP 比の高い時期と低い時期とでは、観測されたPAHsの発生源となる地域もしくは種類が異なる可能性がある。すなわち、冬季(2002年11月～2003年3月)および初夏(2003年6～7月)に観

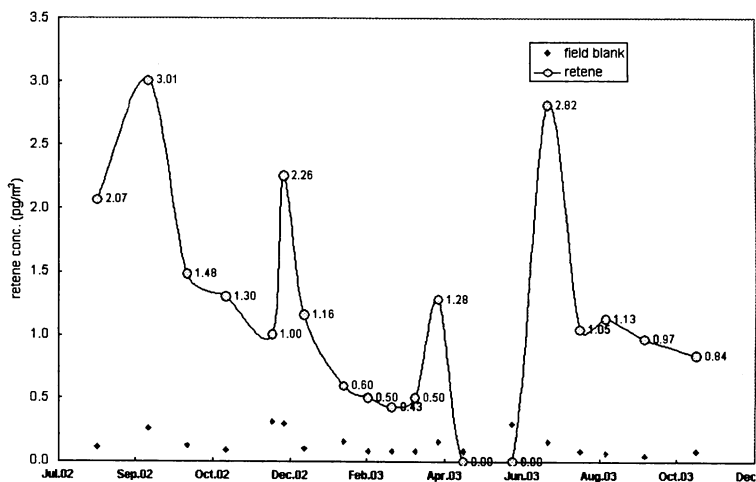


図7 父島におけるretene濃度の季節変化

測されたPAHsは、それ以外の時期よりも比較的滞留時間が長く、夏～秋季(2002年7～10月、2003年8～11月)と春季(2003年4～5月)には比較的対流時間の短い、「発生源に近い」ものであったと推測される。特に冬期のPAHs濃度は他の時期の10～100倍程度高濃度であったことから、長距離輸送によってもたらされる燃焼起源物質の寄与が重要であると言える。春季の「スポット」的なBaP/BeP比の上昇は、LMW/HMW比の上昇とも対応しており、2003年の5月頃の濃度極小期に、特に滞留時間の短いローカルな(島内の)発生源由来のPAHsをとらえている可能性が示唆された。

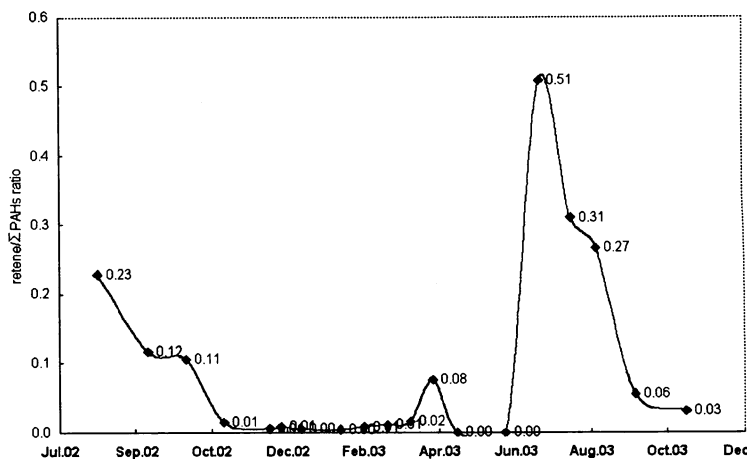


図8 父島におけるretene/ΣPAHs比の季節変化

reteneは針葉樹に含まれるアビエチン酸が燃焼時に熱変成して生成され、木材燃焼の指標として利用される。他の燃焼起源から発生するPAHsには、ほとんどreteneが含まれないため、retene/ΣPAHs比が高ければその PAHs には木材燃焼によって生成した PAHs が多く含まれていると考えられる。retene濃度は0(検出限界未満)～3.01 pg m⁻³の間で推移した。図7に示すように、2002年9月、12月、2003年4月、7月に前後の時期と比較して突出して高い濃度が観測された。これらの時期を

除くと夏期・秋期(7~11月)には高く(0.84-2.07)、冬期・春期(1~6月)には低い(0-0.60)という傾向が認められたが、その差はあいまいで、retene濃度単独では明確な季節トレンドは見いだせなかった。一方、retene/ Σ PAHs比には明確な季節傾向が認められた(図8)。retene/ Σ PAHs比は夏期・秋期(7~10月)には高く(0.11~0.51)、冬期・春期(11~6月)には低い(<0.06)傾向を示した。これは、父島で採取されたエアロゾル中PAHsに対する森林火災などバイオマス燃焼の寄与が、夏期・秋期においてそれ以外の季節よりも相対的に大きかったことを示している。また、2003年4月にはその前後と比較して突出して高いretene/ Σ PAHs比が認められ、この時期にもバイオマス燃焼の寄与が大きくなったと考えられる。

retene/ Σ PAHs比の変動から、バイオマス燃焼の寄与が夏季に最大となることが示唆された。この時期のPAHsは、BaP/BeP比、LMW/HMW比ともに最低値を示し、滞留時間が長かったと考えられる。一方、やはり滞留時間が長い、すなわち長距離輸送を経ていると推測された冬季にはretene/ Σ PAHs比が極めて低く、バイオマス燃焼の寄与は小さい。この違いは、季節によって燃焼生成粒子の発生源地域が異なる、もしくは季節によって燃焼起源物質が異なるためであると考えられる。すなわち、冬季にはアジア大陸東岸から季節風により輸送された石炭燃焼等産業起源のエアロゾルが、夏季には濃度レベルは低いものの、おそらく中国南部~東南アジア等南方系のバイオマス燃焼起源エアロゾルの長距離輸送の影響を受けている可能性を指摘できる。

(4) 光学式パーティクル・カウンタ長期測定データの解析

(a) エアロゾル粒子の個数粒径分布

OPC長期観測データをもとに、冬季におけるエアロゾル粒子の個数濃度とBC濃度の変動を引き起こす要因の考察を行った。汚染空気塊での個数濃度比は清浄空気塊のそれよりも高いことから、ここでは個数濃度比が7よりも小さい場合には清浄空気塊、個数濃度比が30よりも大きい場合には

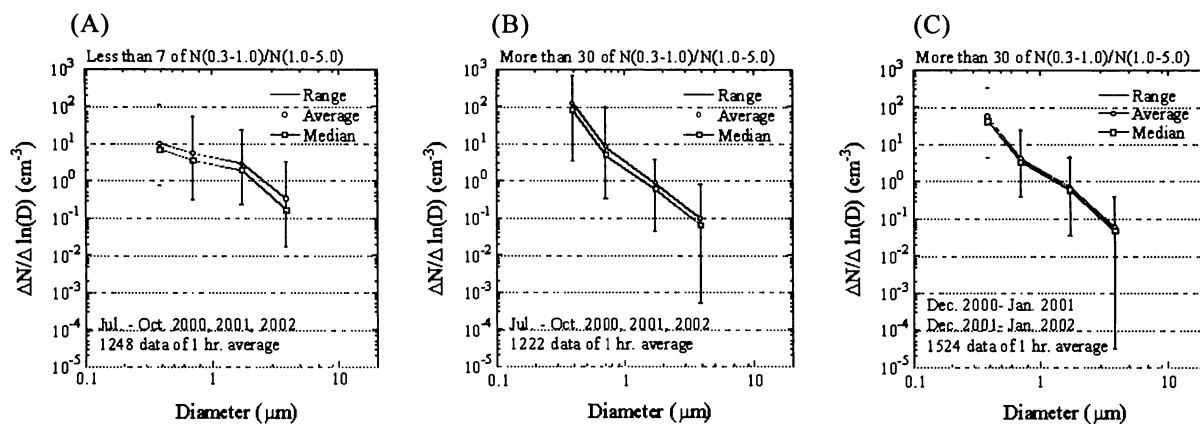


図9 清浄空気塊(A)と汚染空気塊(BとC)における個数粒径分布。2000年から2002年までの7~10月において、Aは個数濃度比が7よりも小さい場合、Bは30よりも大きい場合。Cは2000年12月~2001年1月と2001年12月~2002年1月において、濃度比が30よりも大きい場合。

汚染空気塊を観測したと仮定する。これらの条件を満たす観測データより、清浄空気塊と汚染空気塊におけるエアロゾル粒子の個数粒径分布を求めた。

図9Aは、2000年から2002年における7月から10月までの1時間平均個数濃度から個数濃度比を求

め、それが7よりも小さい場合の個数粒径分布である。図9Bは同期間において個数濃度比が30よりも大きい場合である。図9Cは2000年12月から2001年1月までと2001年12月から2002年1月において濃度比が30よりも大きい場合である。AとBの個数粒径分布は全く異なるが、BとCの個数粒径分布は類似している。Aは清浄空気塊における典型的な粒径分布、BとCは汚染空気塊における典型的な粒径分布である。Cにおいて、直径0.3から0.5 μm のエアロゾル粒子数濃度の中央値は、Aの約6倍である。Bにおける同じ粒径の中央値はAの約12倍である。しかし、BとCにおける粗大域(直径1.0 μm 以上)の個数濃度はAよりも低い。

(b) 広域大気汚染シミュレーションモデルを用いた濃度変動の解析

冬季に取得した直径0.3から0.5 μm および直径0.5から1.0 μm のエアロゾル粒子体積とBC重量濃度との間には正の相関が存在する。しかし、BC重量濃度の変動から排出源を推定することはできない。そこで、観測値を排出源毎のグループに区別するために、排出源毎の寄与率をオイラー型輸送モデルにより推定した。ここで、推定される硫酸塩濃度に対する排出源区分Aの寄与率 R_A

($R_A = (C_0 - C_A) / C_0 \times 100$) を定義する。 C_0 は計算領域内の全排出源から硫黄化合物が排出された場合の父島における任意時刻の硫酸塩濃度の推定値、 C_A は排出源区分Aからの排出量を零と仮定し、それ以外の排出源に排出量を与えた場合の同時刻の硫酸塩濃度の推定値である。この定義により、中国北部(北緯35度以北)、中国南部(台湾を含む北緯35度以南)、日本、朝鮮半島の人為排出源、

および火山からの硫酸塩濃度に対する寄与率を1時間毎に計算した。計算対象期間は、北西季節風が卓越する冬季の2000年12月～2001年1月と2001年12月～2002年1月である。

中国南部の排出源からの寄与率が50%以上と推定された時刻のBC濃度は、平均で 410 ng m^{-3} (中央値 370 ng m^{-3})であった。同様に中国北部では 220 ng m^{-3} (中央値 190 ng m^{-3})、日本と朝鮮半島ではそれぞれ 120 ng m^{-3} (中央値 110 ng m^{-3})と 150 ng m^{-3} (中央値 130 ng m^{-3})であった。中国南部からの寄与は、頻度としては日本からのそれよりも少ないが、父島での黒色炭素濃度の変動に与える影響は大きいことが示唆される。排出源毎に寄与率が50%以上となる時刻に観測されたエアロゾル粒子の体積粒径分布を示す(図10)。ここでは、各粒径の体積の代表値として中央値を用いた。中国南部を起源とする汚染空気塊中のエアロゾル粒子の体積粒径分布は、他の地域を起源とする空気塊のそれよりも大きい値を示している。父島において、粒径の広い範囲にわたってエアロゾル粒子数濃度が増加し、同時にBC濃度も高くなった場合、中国南部を起源とする汚染空気塊が父島に到達したと推定することができる。

次に、図10を作成する際に使用した観測値から、直径0.3から0.5 μm のエアロゾル粒子体積とBC濃度との関係を調べた。図11では、2000年12月、2001年1月および12月、2002年1月における排出

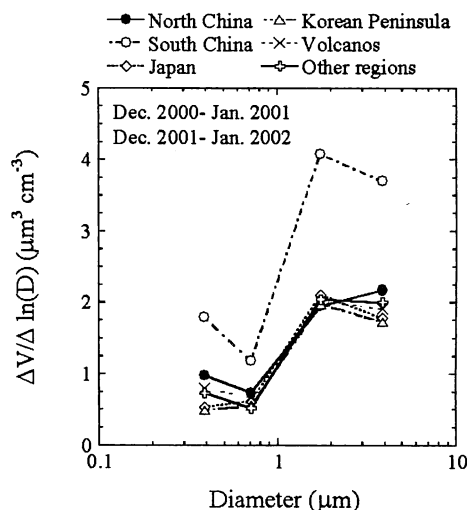


図10 排出源別のエアロゾル粒子の体積粒径分布

源別に区別された両者の関係を示す。中国北部を起源とするBCは比較的広い濃度範囲に分布するが、中国南部を起源とするBCは比較的高い濃度の範囲にある。反対に、日本・朝鮮半島・その他の地域からのBCは、比較的低い濃度の範囲に集中している。

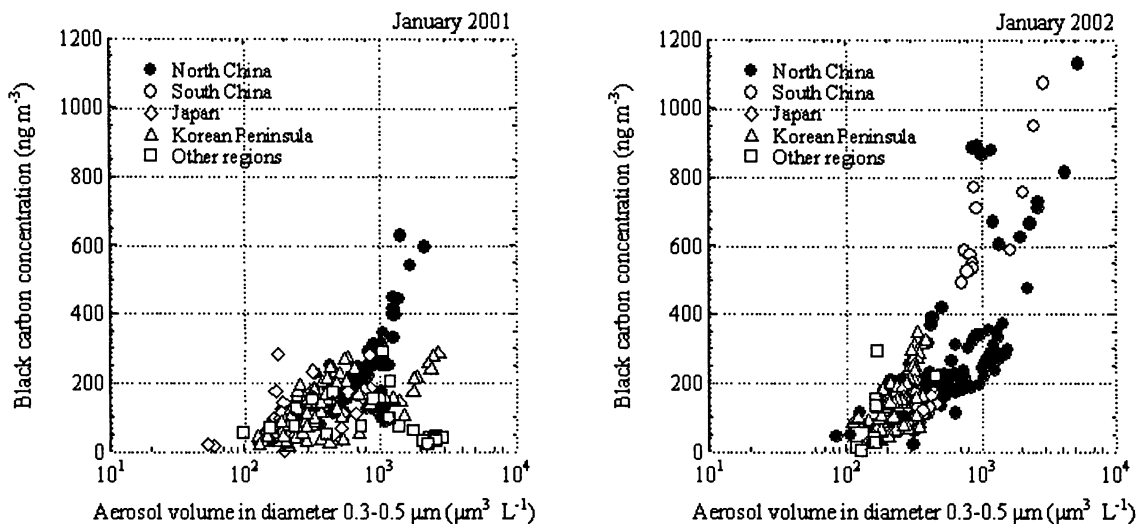


図11 硫酸塩濃度に対する寄与率が発生源別にそれぞれ50%以上になる時刻の観測値に関する直径0.3から0.5 μmのエアロゾル粒子の体積と黒色炭素の重量濃度との関係

(5) 2004年冬季集中観測による光学的にアクティブな物質の挙動の解明

(a) BC濃度変動と吸収係数

集中観測では、寒冷前線に引き連れられた pollution front 中のエアロゾルの光学的特性を詳細に観測し、その放射影響を解析した。集中観測期間中に父島付近を寒冷前線が通過したのは2月15日および2月18日である。この期間に連続観測された散乱係数およびBC濃度の経時変化を図12に示す。

同図から、2月10～11日を除いて、集中観測期間中の父島は200 ng m⁻³以上の比較的高い濃度のBCを含む気団に覆われていたことがわかる。また、

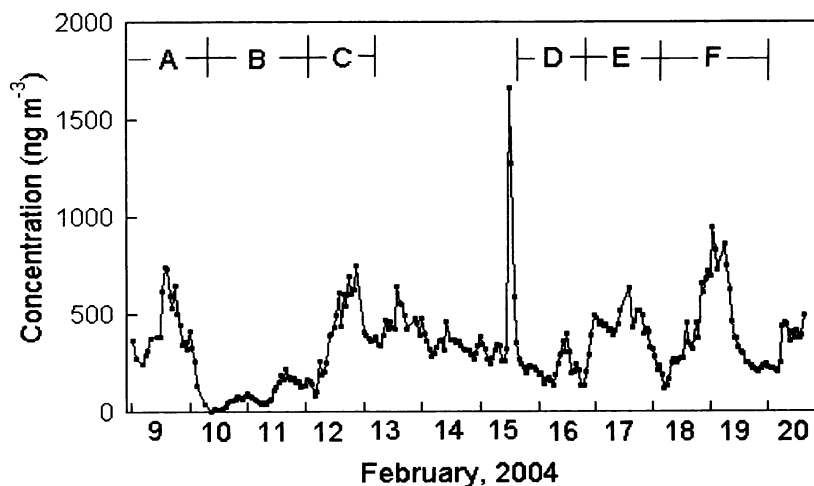


図12 父島における集中観測期間のエアロゾルBC濃度の経時変化

た、2月15日正午頃の寒冷前線通過直後に極端に高いBC濃度が記録されているが、島全体で視程が低下した状況が目視されたている点、ローカルな汚染によるものではなく長距離輸送起源の汚染

物質と考えられる。散乱係数の経時変化も二回の前線通過に伴う汚染物質の輸送は明確に捉えているが、残念ながら18日の物質輸送量増加は夜間に生じていたため、放射強制力の評価には使用できない。BC濃度そのものの値は、寒冷前線通過後の 1500 ng m^{-3} を越すような高濃度の出現後、 300 ng m^{-3} に下がっているが、シーロメータ(簡易型レーザーレーダ)のデータでは比較的高濃度のエアロゾルは15日深夜まで続いており、散乱係数の低下もBCのそれより緩やかである。これは散乱性の大気エアロゾルが吸収性の強いエアロゾルの後に続いて輸送されてきたことを示唆する。

集中観測期間にAethalometerとPSAPの同時運転により得られた両測定値の関係を図13(左)に示す。同図にみられる散布状態は、2001年に実施された東京大学海洋研究所所属の白鳳丸による観測航海において得られたもの(同図右)と比較すると、散らばりが大きく傾きが緩い。しかし、低濃度域に限ってみると比較的大きな傾きを示している。このことは、間欠的な高濃度の汚染物質の輸送時には、その間の冬型気圧配置中期～後期における光吸収物質とはスペクトル特性の異なる物質が輸送されることを示唆している。すなわち、PSAPで測定される550 nmの吸収がAethalometerで測定される880 nmにおける吸収に比べて相対的に弱い点が高濃度時の汚染気団に含まれるBCの特徴である。このように比較的大きく変動する両測定値の傾きをもとに、どのようにエアロゾル光吸収係数を算出すべきか、今後の検討課題である。

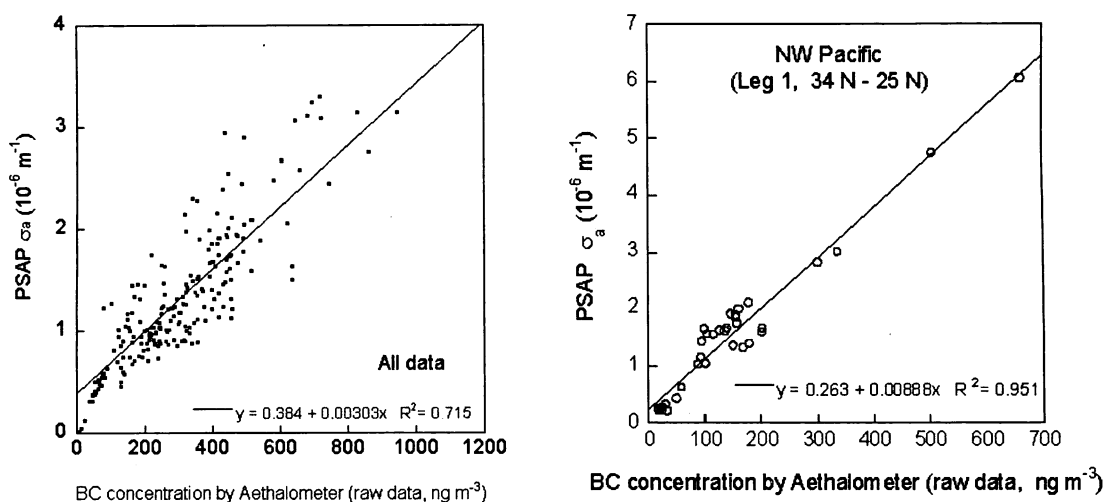


図13 集中観測期間のAethalometerとPSAP測定値の比較(左)、および2001年白鳳丸観測航海時のAethalometerとPSAP測定値の比較(右)

(b) 散乱係数の湿度依存性

散乱係数の相対湿度依存特性については、積分型ネフェロメータの外気導入ラインに加湿器を装着し、2月12, 13, および17日にそれぞれ二回ずつ導入空気相対湿度を変化させて測定を行った。図14に示す測定結果は、相対湿度30%のときの散乱係数によって正規化して表示してある。三日間ともAethalometerによるBC測定値が 300 ng m^{-3} 以上、乾燥状態(通常の積分型ネフェロメータの測定値)でのエアロゾル散乱係数が $5 \times 10^{-5} \text{ m}^{-1}$ 程度と比較的高い濃度の汚染状態での結果であるが、散乱係数の湿度依存特性はお互いに非常に近い曲線となった。相対湿度80%時と30%時の散乱係数の比を $f(80/30)$ で示すと、 $f(80/30) = 1.75 \sim 1.95$ となり、ほとんどが海塩で占められていたと推測されるACE-I期間中のCape Grimでの値 ~ 4.0 (Carrico *et al.*, 1998³⁾)より大幅に低く、IPCC(2001)でPolluted

continentalとして挙げられている 2.0 ± 0.3 と近い値が得られた。今回の3日間の測定で得られた散乱係数の湿度依存特性は比較的一定していたが、これがアジア大陸起源汚染気団中のエアロゾル一般について当てはまるのかどうかについては、さらに測定を重ねて検討する必要がある。

(c) クロージャースタディ

気候に対する人為起源エアロゾルの直接効果を見積るうえで、大気エアロゾルのoptical depth (AOD)および*in situ*なエアロゾル光学的特性の観測がともに求められる。異なった観測手法により得られるこれら物理量の間には閉心性(closure)が成立すべきであるが、アジア大陸起源エアロゾルに関してこの点を検討した例は少ない。そこで、この2月15日のイベントを対象に観測値のclosureを検討した。

15日の正午頃、前線の通過に伴ってAODは急激に上昇し、12時には $\lambda = 0.55 \mu\text{m}$ で最大0.47と非常に高い値をとった(図15)。実際、このときには霞みがかかったように視程が悪化している。地上測定での σ_{ap} の経時変化にもこれに対応する値の急上昇が生じ、最大で $5 \times 10^{-6} (\text{m}^{-1})$ を示した(図16)。 σ_{sp} にも同様の急上昇が生じたが(図17)、図14のhumidgraphを用いて σ_{sp} の実大気湿度補正を行って計算には用いた(図16中ではhumidity correctedとして示される)。

一方、図17に示すように上空の湿度分布はラジオゾンデにより実測し、各高度でのエアロゾル膨潤による σ_{sp} の上昇計算に用いた。

汚染物質層内でエアロゾル数濃度を一様と仮定し、各高度の σ_{sp} のみhumidgraphで補正し、各時刻の地表の消散係数(= $\sigma_{\text{ap}} + \sigma_{\text{sp}}$)を汚染物質層上端高度まで距離積分(時刻により1.2~1.3 kmを変化)して、汚染物質層の光学的厚さを計算した。図19

に、このようにして計算された汚染物質層の光学的厚さと、サンフォトメータにより得られた光学的厚さ実測値の経時変化を示す。12時以前の清浄状態においては両者の関係は上下しているが、

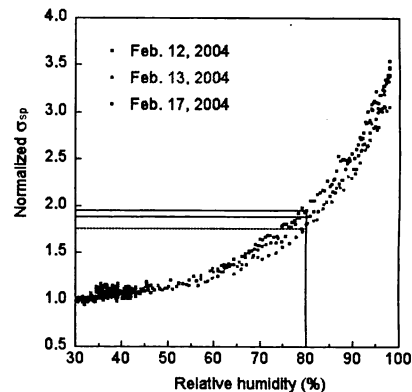


図14 父島における冬季エアロゾルの散乱係数($\lambda = 550 \text{ nm}$)の湿度依存特性

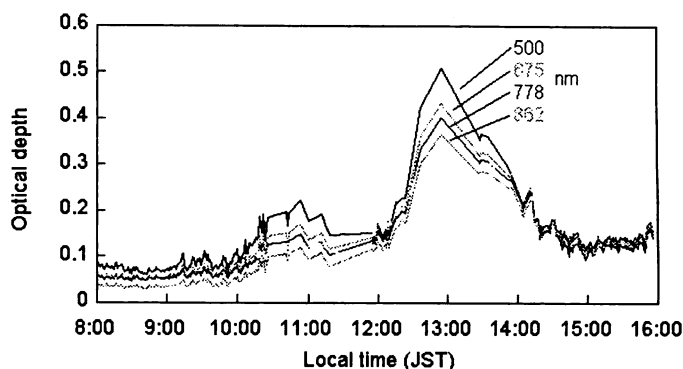


図15 父島におけるAerosol Optical Depthの経時変化(2004年2月15日)

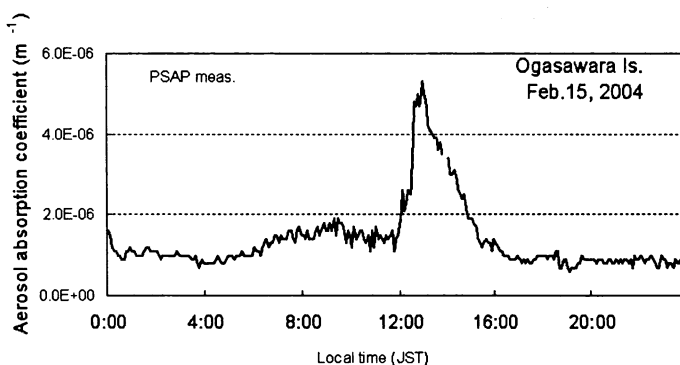


図16 父島における2004年2月15日のエアロゾル吸収係数 σ_{ap} の経時変化($\lambda = 550 \text{ nm}$)

12時以降の汚染物質到達後はAODと σ_{ext} 鉛直積分値の時間変化、絶対値ともよく一致しており、その差である0.03~0.05は境界層上端でのAODにほぼ相当する。以上より、Asian outflow 到達時のclosureはほぼ成立し、AODの厚い場合の測定値にはある程度の信頼を置けることが示唆された。

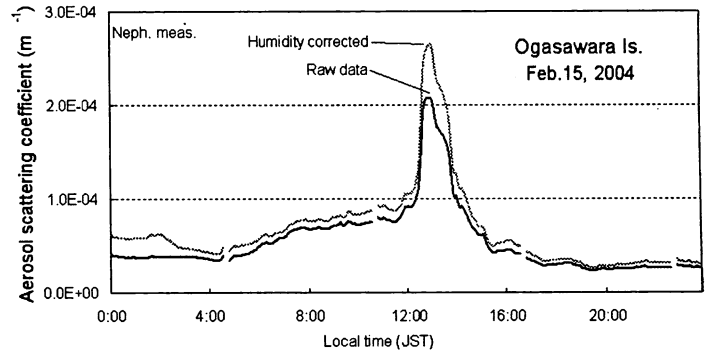


図17 父島における2004年2月15日のエアロゾル散乱係数 σ_{sp} の経時変化($\lambda = 550 \text{ nm}$)

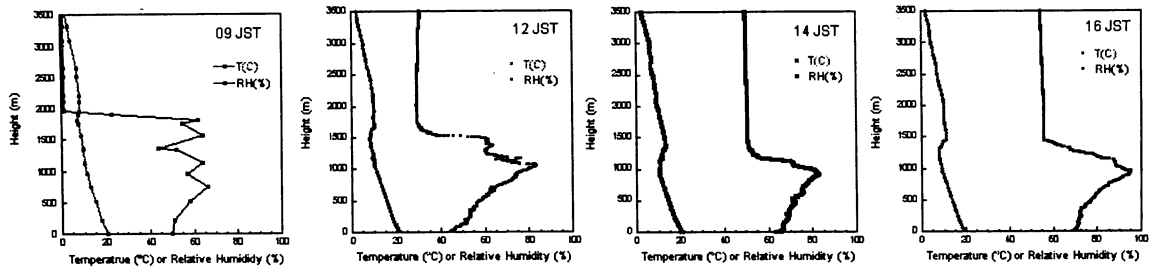


図18 ラジオゾンデにより観測した2004年2月15日の父島上空の温湿度プロファイル

5. 本研究により得られた成果

アジア大陸から太平洋上に輸送される大気エアロゾルによる放射強制力を評価するため、小笠原父島において長期連続観測に加えて冬季に短期集中観測を実施し、地表における観測、およびシーロメータ、ラジオゾンデなどによる上層観測組み合わせにより、放射伝達計算に必要なデータが収集された。また、フィルター捕集された有機エアロゾルの分析法を改善し、父島におけるPAHs濃度を pg m^{-3} レベルでのデータを得ることが可能となった。

測定されたPAHs組成比あるいはretene等の指標成分と総PAHs濃度との比より、産業起源系およびバイオマス燃焼系の有機エアロゾルの分別が可能となりつつある。また、富士山頂におけるBC濃度の長期観測により、自由対流圏高度における汚染物質の長距離輸送パターンが捉えられた。

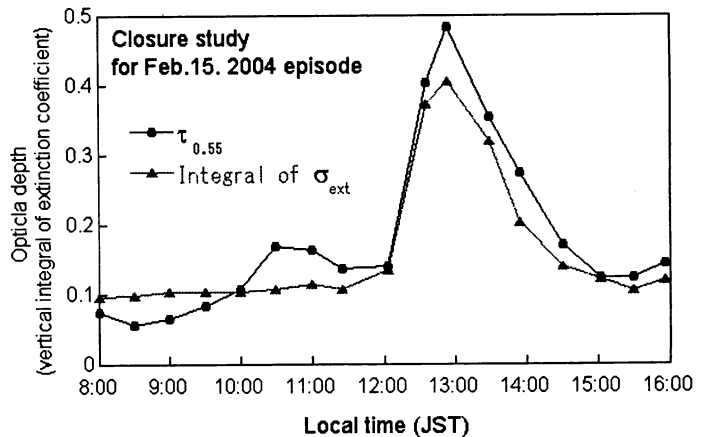


図19 父島における2004年2月15日のエアロゾル硝酸係数 σ_{ext} の鉛直積分値およびAODの経時変化($\lambda = 550 \text{ nm}$)

光学的特性に関して現在までに詳細に解析できたのは小笠原父島一地点のみであったが、本来存在するはずの物理量の間閉合性が、現有の測器による観測値の間で成立することが確認されたことから、同様の観測手法を用いて得られた他の島嶼地点における光学的特性データを含めて、北西太平洋域におけるアジア大陸起源エアロゾルの放射強制力を定量的に計算する基礎が整ったといえる。今後の研究の展開としては、個別粒子観察による粒子混合状態に関する知見を収集することが、より正確な光学的特性のモデル化には重要となるため、その方向に研究体制を見直し、拡充する予定である。

6. 引用文献

- 1) Kaneyasu, N., K. Takeuchi, M. Hayashi, S. Fujita, I. Uno, and H. Sasaki (2000). Outflow patterns of pollutants from East Asia to the North Pacific in the winter monsoon. *J. Geophys. Res.* **105**, 17,361-17,377.
- 2) Yabuki, M., M. Shiobara, H. Kobayashi, M. Hayashi, K. Hara, K. Osada, H. Kuze, and N. Takeuchi (2003). Optical properties of aerosols in the marine boundary layer during a cruise from Tokyo, Japan to Fremantle, Australia. *J. Meteor. Soc. Japan* **81**, 151-162.
- 3) Carrico, C. M., M. K. Rood, and J. A. Ogren (1998). Aerosol light scattering properties at Cape Grim, Tasmania, during the First Aerosol Characterization Experiment (ACE 1). *J. Geophys. Res.* **103**, 16,565- 16,574.

7. 国際共同研究等の状況

産業技術総合研究所環境管理研究部門と韓国済州大学化学科との間で交わされたMOUに基づき Joint study of long-range transport of air pollutantsが実施されている。カウンターパートはC-H.Kang教授であり、済州島ハルラ山1100 mサイトにおける長距離輸送観測を共同で実施している。済州島では、西端に位置するGo-sanにおいてAce-Asia等数多くのプロジェクトにおいて観測がなされてきたが、長距離輸送を捉える観点から高所に位置する1100 mサイトにおける長期連続観測が行われたのは本研究が初めてである。

8. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<学術誌（査読あり）>

- ① Kaneyasu, N., Y. Igarashi, Y. Sawa, H. Takahashi, H. Takada, and R. Höller : *Geophys. Res. Lett* (in press)
“Properties of smoke from Siberian forest fires observed at the summit of Mt. Fuji, Japan”

<学術誌（査読なし）>

- ① 兼保直樹：エアロゾル研究、18, 244-246 (2003)
「大気エアロゾルの気候影響に関する研究の過去と現在」
- ② 兼保直樹：月刊海洋、36, 107-113 (2004)
「小笠原－西部太平洋の大気観測塔－」

<報告書類等>

なし

(2) 口頭発表 (学会)

- ① 兼保直樹、古賀聖治、植松光夫、松本潔：日本気象学会2002年秋期大会(2002)
「島嶼における大気エアロゾルの長距離輸送の観測－小笠原父島と八丈島でのBC測定結果の比較－」
- ② 兼保直樹：シンポジウム「東アジアにおけるエアロゾルの大気環境インパクト」(2003)
「父島におけるエアロゾル光学的特性観測結果に対する予備的解析」
- ③ Kaneyasu, N., Y. Igarashi, C-H. Kang, H. Kumata, and K. Fujiwara: 8th International Conference on Atmospheric Sciences and Applications to Air Quality, Tsukuba, Japan, 2003
“Characteristics of Aerosol Transport over the Asia-Pacific Rim: Based on the Measurement at Chichi-Jima Island, Japan, the Summit of Mt. Fuji, Japan, and Mt. Halla, Korea”
- ④ 熊田英峰、兼保直樹、Kang Chang-Hee、藤原祺多夫：地球惑星関連学会合同大会、千葉 (2003)
「韓国済州島における大気エアロゾル中多環芳香族炭化水素濃度・組成の季節変動」
- ⑤ 兼保直樹、古賀聖治、塩原匡貴、矢吹正教：日本気象学会2003年秋季大会、仙台 (2003)
「太平洋上に輸送されるアジア大陸起源のエアロゾルの晴天的放射強制力－父島における事例解析－」
- ⑥ 塩原匡貴、兼保直樹：特定領域研究「微粒子の環境影響」シンポジウム、京都 (2004)
「エアロゾルの直接効果に関する「しらせ」船上観測および父島地上観測」
- ⑦ Dokiya, Y., Y. Igarashi, Y. Sawa, H. Takahashi, N. Kaneyasu, K. Yoshioka, Y. Katayama, and T. Akagi : IGOS, International Workshop, Tokyo, Japan, 2004
”Atmospheric Chemistry Observation at the Summit of Mt. Fuji”
- ⑧ 兼保直樹、塩原匡貴、村山利幸：第21回エアロゾル科学・技術研究討論会、札幌 (2004)「小笠原父島における大気エアロゾルの放射強制力の観測」
- ⑨ 兼保直樹、塩原匡貴、村山利幸：日本気象学会2004年度秋季大会、福岡 (2004)
「太平洋上に輸送されるアジア大陸起源エアロゾルの光学的特性－父島における輸送イベント時のクロージャースタディー」
- ⑩ 古賀聖治、前田高尚、兼保直樹：日本気象学会2004年度秋季大会、福岡 (2004)
「発生地域別に比較したエアロゾル粒子中の黒色純炭素濃度の割合」
兼保直樹、塩原匡貴、村山利幸：第45回大気環境学会、秋田 (2004)
「冬季季節風に伴うアジア大陸起源大気エアロゾルの北太平洋上への輸送－鉛直構造」
- ⑪ 兼保直樹：小笠原シンポジウム2004、東京 (2004)
「アジア大陸起源の大気微粒子の北太平洋上への輸送の観測」
- ⑫ Kaneyasu, N., M. Shiobara, and T. Murayama : 16th International Conference on Nucleation & Atmospheric Aerosols, Kyoto, Japan, 2004
“Long-term Observation of Aerosol Optical Properties on an Island over the NW Pacific”
- ⑬ Takahashi, H., Y. Igarashi, T. Tanaka, K. Yoshioka, N. Kaneyasu, K. Watanabe, Y. Dokiya : 8th International Global Atmospheric Chemistry Conference, Christchurch, New Zealand, 2004

“Mineral dust and black carbon at the summit of Mt. Fuji”

- ⑭ Dokiya, Y., Y. Igarashi, Y. Sawa, H. Takahashi, N. Kaneyasu, K. Yoshioka, Y. Katayama, T. Akagi : 8th International Global Atmospheric Chemistry Conference, Christchurch, New Zealand, 2004
- “Mt. Fuji - A Proposal for a Permanent Ground Base Platform in the Free Troposphere”
- ⑮ 兼保直樹：富士山高所科学研究会公開シンポジウム，東京（2005）
「富士山頂における光学的にアクティブなエアロゾル組成および光学特性の測定」
- ⑯ 東真紀子、皆己幸也、兼保直樹、五十嵐康人、土器屋由紀子：平成16年度気象学会中部支部研究会、名古屋（2004）
「秋の大規模黄砂時に富士山頂で採取したエアロゾルの化学組成」
- ⑰ 東真紀子、皆己幸也、兼保直樹、五十嵐康人、土器屋由紀子：大気環境学会中部支部学術講演会、金沢（2004）
「富士山頂の大気エアロゾルに対する黄砂の影響」
- ⑱ 兼保直樹、五十嵐康人、澤庸介、高橋宙、土器屋由紀子、高田秀重：日本気象学会2005年春季大会、東京（2005）
「富士山頂における2003年シベリア森林火災煙の光学・化学特性の測定」

(4) シンポジウム、セミナーの開催（主催のもの）

なし

(5) マスコミ等への公表・報道等

なし

9. 成果の政策的な寄与・貢献について

今後、国際学会、論文発表を通じ、成果の広報・普及に努める。