

13. 日射観測と組成分析に基づいた大気エアロゾルの光学モデルの検討

INVESTIGATION OF OPTICAL PROPERTIES OF ATMOSPHERIC AEROSOLS BASED ON SOLAR RADIATION MEASUREMENT AND CHEMICAL CHARACTERIZATION

長谷川就一^{*} ・ 太田幸雄^{*} ・ 村尾直人^{*} ・ 山形定^{*}

Shuichi HASEGAWA, Sachio OHTA, Naoto MURAO, Sadamu YAMAGATA

ABSTRACT; Mixing condition and size distribution of atmospheric aerosols were investigated for determination of suitable optical aerosol model. If the geometric number mean radius and the standard deviation were $0.055\sim 0.079\ \mu\text{m}$ and $1.97\sim 2.29$ in internal mixing condition respectively, calculated values of the ratio of diffuse solar radiation to direct solar radiation correlated well with those observed. Whereas the geometric number mean radius of $0.035\ \mu\text{m}$ and standard deviation of 2.10, which have been recommended, gave less correlation. The difference of calculated single scattering albedo between external and internal mixture was 0.03, which has the possibility of the difference of 0.15°C of the global mean surface temperature.

KEYWORDS; albedo effect of atmospheric aerosol, optical properties, mixing condition, size distribution

1 はじめに

二酸化炭素などの温室効果気体の増加による地球温暖化が、今日の地球環境問題の1つの大きなテーマとなっている。温暖化に伴う気候変動によって、海面上昇による沿岸地域や島国への海水の侵入や、渇水・洪水・熱波などの極端な気象現象の頻発などが懸念されており、各方面でその対策の必要性に迫られている。その一方で、大気中に浮遊する微粒子、すなわち大気エアロゾルが、気候へ大きな影響を与える可能性が指摘されている。たとえば、Charlson らは人為起源の硫酸エアロゾルの放射強制力の直接効果は、温室効果気体の放射強制力と同程度の大きさであると述べている。これは、エアロゾルのアルベド効果と言われるものであり、エアロゾルの総量や光学的特性が変化することによって、地球—大気系の太陽放射の反射率(プラネタリーアルベド)が変化し、このため、地球—大気系の放射収支が変化して気候に影響をもたらす。したがって、アルベド効果の大きさを見積もるためには、エアロゾルの総量と光学的特性の、地球規模分布を把握しなければならない。現実には、あるエアロゾルモデルを用意して、モデル計算によってさまざまな評価がなされている。しかし、エアロゾルモデルの妥当性に問題を含んでおり、また、モデル計算と測定とのクロスチェックも不十分である。

そこで、本研究では、エアロゾルの光学的特性を明らかにするためのエアロゾルモデルとして適切な、エアロゾルの粒径分布と混合状態について検討した。日射観測とエアロゾルサンプリングを同時におこない、地上における直達日射量に対する散乱日射量の比(ここでは直散比と呼ぶ)を指標として、日射観測によって求めた値(測定値)と、エアロゾルの化学組成分析に基づいた理論計算によって求めた値(計算値)とを比較した。これによって、両者が最もよく一致する粒径分布と混合状態の組み合わせを検討した。ここで、混合状態とは、1つ1つの粒子が1つの成分で構成されている粒子(均質粒子)か、複数の成分で構成されている粒子(混合粒子)か、もし混合粒子

^{*}:北海道大学大学院工学研究科環境資源工学専攻 Div. of Environment Resources Engineering, Graduate School of Engineering, Hokkaido Univ.

があるならば、その成分は何か、それがどのように混合しているのか、また、どのくらいの割合で存在しているか、ということを目指す。

2 方法

2.1 日射観測とエアロゾルサンプリング

観測は、1996年10月、および、1997年6～11月にかけて、北海道大学工学部屋上においておこなった。観測にあたっては、測定値が雲の影響を受けないように、快晴の日を選んで実施し、計21日のデータを得た。観測は、おおむね午前10時～午後3時までの間の4～5時間程度おこなった。

(A) 日射観測

日射観測には波長別全天分光日射計(MS-131WP, 英弘精機)を用いた。全天日射量は、直達日射量と散乱日射量をあわせたものであり、全天日射量から散乱日射量を差し引くと直達日射量が求められる。そこで、実際の測定では、まず全天日射量を測定し、次に遮蔽板を用いて直達日射を遮ることによって、散乱日射量を測定した。測定は、各観測日につき約1時間ごとに4～5回をおこなった。なお、測定した波長は、590～695nmである。

(B) エアロゾルサンプリング

エアロゾルサンプリングは、観測開始から終了までの間、連続しておこなった。エアロゾルは、粒径 $2\mu\text{m}$ を境にして、 $0.4\mu\text{m}$ と $6\mu\text{m}$ にピークをもつ二山分布をなすことが知られており、粒径 $2\mu\text{m}$ より小さい粒子を fine particle, 大きい粒子を coarse particle と呼ぶ。本研究では、fine particle と total particle (fine particle と coarse particle の両方をあわせたもの)の2種類のエアロゾルを捕集した。本研究室でのこれまでの組成分析から、エアロゾルの主要な成分は、黒色純炭素・有機物・硫酸アンモニウム・硝酸アンモニウム・海塩・土壌の6つであるという結果が得られている。そこで、エアロゾルのサンプリングには、石英フィルター(PALLFLEX PRODUCTS CORP.2500QAT-UP, 47mm ϕ , 東京ダイレック), および、テフロンフィルター(AF-07P, FP-1000, 47mm ϕ , 住友電工)を用いた。石英フィルターからは、黒色純炭素と有機物成分の分析し、テフロンフィルターからは、硫酸アンモニウム・硝酸アンモニウム・海塩・土壌の分析、およびエアロゾル総重量の測定をおこなった。サンプリングには粒径別に2種類のフィルターを用いたため、サンプリング系は合計4系統となった。

また、日射観測とエアロゾルサンプリングに加えて、サンフォトメータ(MS-120, 英弘精機)を用いて光学的厚さの測定もおこなった。測定は、日射観測と同時に、各観測日につき約1時間ごとに4～5回をおこなった。

2.2 エアロゾルの化学組成分析

まず、分析の前に、エアロゾルの総重量を測定した。シリカゲルを用いて相対湿度30%以下に保った乾燥箱の中にテフロンフィルターを並べ、24時間以上放置した後、1枚1枚のフィルターの重量を電子天秤で秤量した。

(A) 炭素成分の分析

炭素成分の分析は、NC アナライザー(SUMIGRAPH NC-80, 住友化学)および GC-FID(HITACHI164, 日立)を用いておこなった。炭素成分には、300℃の温度でも燃えずに残る黒色純炭素(Elemental Carbon; 以下 E.C.)と、300℃で燃えてしまう有機炭素(Organic Carbon; 以下 O.C.)とがある。なお、この E.C.と O.C.を合わせて、ここでは全炭素(Total Carbon; 以下 T.C.)と呼ぶ。実際の分析では、まず、捕集されたままの状態のサンプル、すなわち T.C.を分析し、次にこれとは別に、300℃で30分間電気炉で熱して O.C.を燃やし、残った E.C.を分析した。そして、T.C.濃度から E.C.濃度を差し引くことで O.C.濃度を求めた。エアロゾル中の有機物は、C, H, O を含み、Countess et al.(1980)によると、 $(C+H+O)/C$ は 1.2 であることから、O.C.を 1.2 倍して有機物

濃度を求めた。

(B) 水溶性成分

水溶性成分(SO_4^{2-} , NO_3^- , Na^+)の分析には、イオンクロマトグラフィー(IC7000, 横河アナリティカルシステムズ)を用いた。テフロンフィルターに捕集されている水溶性成分を、超音波洗浄器を用いてイオン交換水に抽出し、その抽出水を分析した。海塩粒子の濃度は、海塩中の Na^+ の割合を 0.306 であるとして求めた。

(C) 土壌成分の分析

土壌成分の指標である Al の分析には、誘導結合プラズマ質量分析計(ICP-MS; HP4500, 横河アナリティカルシステムズ)を用いた。土壌粒子の濃度は、土壌中に含まれる Al の割合を 8.13% であるとして求めた。

3 光学的特性値の計算および放射伝達計算

エアロゾルの体積消散係数 σ_{ext} は、体積散乱係数 σ_{sca} と体積吸収係数 σ_{abs} の和として表される。

$$\sigma_{\text{ext}} = \sigma_{\text{sca}} + \sigma_{\text{abs}} \quad (1)$$

そして、体積消散係数に対する体積散乱係数の比を、単一散乱アルベド ω_0 という、これが、考えているエアロゾルの光学的特性を表すものである。

$$\omega_0 = \frac{\sigma_{\text{sca}}}{\sigma_{\text{ext}}} \quad (2)$$

本研究では、ある成分 i の粒子の粒径分布と複素屈折率を与えて、Mie 散乱の理論により、成分 i の粒子の体積消散係数を求め、エアロゾルの体積消散係数を、各成分の粒子の体積消散係数 σ_{ext}^i の総和として求めた。

$$\sigma_{\text{ext}} = \sum_i \sigma_{\text{ext}}^i \quad (3)$$

また、Mie 散乱の理論により、エアロゾルの散乱光角度分布関数を求め、この散乱光角度分布関数をデルタ関数と3次のルジャンドル関数で近似する δP_3 近似法を用いて放射伝達計算をおこなって、地表における直達日射量と散乱日射量を求めた。

大気層モデルは、大気境界層(0~2km)、自由対流圏(2~11km)、成層圏(11~40km)の3層にわけて考え、各層内では、単一散乱アルベドや散乱光角度分布関数などの光学的特性は一樣であると仮定した。この各層ごとに、エアロゾルの光学的厚さ、空気分子の光学的厚さを与えた。エアロゾルの光学的厚さとして、全光学的厚さはサンフォトメータで測定した値を与え、自由対流圏と成層圏の光学的厚さは文献による測定値を与えた。また、大気層全体のオゾンによる吸収を考慮した。

4 エアロゾルの粒径分布と混合状態のシナリオ

単一散乱アルベドや散乱光角度分布関数などの光学的特性を求める場合、エアロゾルの粒径分布と混合状態を与えなければならない。そこで、過去の研究に基づいたシナリオをいくつか用意して与え、計算した。

4.1 粒径分布

エアロゾルの粒径分布は、前述したように、二山分布になっており、その分布は、対数正規分布でほぼ近似することができる。たとえば、個数表示の粒径分布は次式で表される。

$$\frac{dN}{d \ln r} = \frac{N_0}{\sqrt{2\pi \ln \sigma_g}} \exp \left\{ -\frac{(\ln r - \ln r_{gN})^2}{2(\ln \sigma_g)^2} \right\} \quad (4)$$

ここで、 N_0 は全粒子数、 r_{gN} は個数表示の幾何平均半径、 σ_g は幾何標準偏差である。全粒子数 N_0 は、組成分析で得た各成分の重量濃度 [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]と密度から求められる。その際、吸湿性粒子(硫酸アンモニウム・硝酸アンモニウム・海塩)については、周囲の相対湿度によって粒子の体積が増加することを考慮した。

また、幾何平均半径 r_{gN} と幾何標準偏差 σ_g については、以下の3つのシナリオを考えた。エアロゾルの6つの成分のうち、黒色純炭素・有機物・硫酸アンモニウム・硝酸アンモニウムは粒径が $2\mu\text{m}$ 以下の fine particle とし、海塩・土壌は粒径が $2\mu\text{m}$ 以上の coarse particle とした。fine particle, coarse particle いずれも、粒径分布は成分によらないものとした。また、coarse particle は、3つのシナリオいずれにおいても同じとし、fine particle については、過去の研究の測定例にもとづいて、次の3つのシナリオを用意した(表1)。A は、これまでよく使用されてきた粒径分布であり、BとCは、本研究室で測定した粒径分布である。

表1 粒径分布のシナリオ

	fine particle		coarse particle		出典
	幾何平均半径 [μm]	幾何標準偏差	幾何平均半径 [μm]	幾何標準偏差	
A	0.035	2.10	0.49	2.15	Whitby and Sverdrup(1980)
B	0.079	1.97	0.49	2.15	本研究室の仙台での測定
C	0.055	2.29	0.49	2.15	本研究室の札幌での測定
Z	0.055	2.10	0.49	2.15	

4. 2 混合状態

従来のモデル計算等では、エアロゾルは、各成分がそれぞれ均質粒子として存在すると仮定している。しかし、エアロゾルが発生して輸送されてくる過程などで、その一部が異なる成分同士で混合し、1つの粒子が複数の成分からなる混合粒子が存在する可能性がある。そこで、本研究では、エアロゾルの混合状態について、External mixtureとInternal mixtureの2つのシナリオを用意した(図1)。External mixture とは、各成分がすべて均質粒子として存在するというシナリオである。それに対して、Internal mixture とは、E.C.と硫酸アンモニウムの体積のそれぞれ半分が、E.C.を核として、まわりを硫酸アンモニウムが覆っている混合粒子を形成していて、E.C.と硫酸アンモニウムの残り半分と、他の成分は均質粒子とするというシナリオである

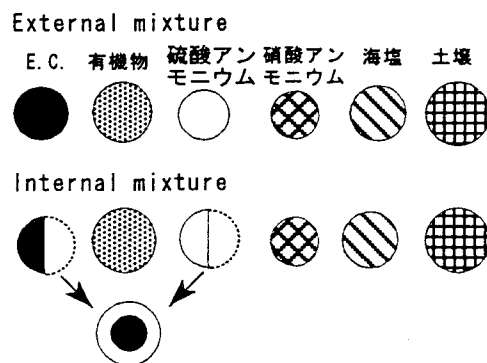


図1 混合状態のシナリオの概念図

5 結果と考察

混合状態と粒径分布のシナリオをそれぞれ組み合わせて、計6つのシナリオについて直散比を算出し、この計算値と、日射観測からの測定値と比較した。結果を図2に示す。

6つのシナリオの中で、Int-B および Int-C の組み合わせが測定値と計算値の一致がよいことがわかる。すなわち、混合状態としては、External mixture よりは Internal mixture のほうが一致が良く、また、粒径分布は、A よりは B や C のほうが良いという結果になった。したがって、混合状態としては、Internal mixture が適切であり、また、粒径分布としては、幾何平均半径は $0.055\sim 0.079\mu\text{m}$ 、幾何標準偏差は $1.97\sim 2.29$ 程度の値をとった粒径分布が適切であると考えられる。そこで、たとえば、幾何平均半径を $0.055\mu\text{m}$ 、幾何標準偏差を 2.10 とした(これを粒径分布のシナリオのZとする)、同様に直散比の測定値と計算値を比較したところ、やはり、測定値と計算値の一致がよいことがわかった(図3)。

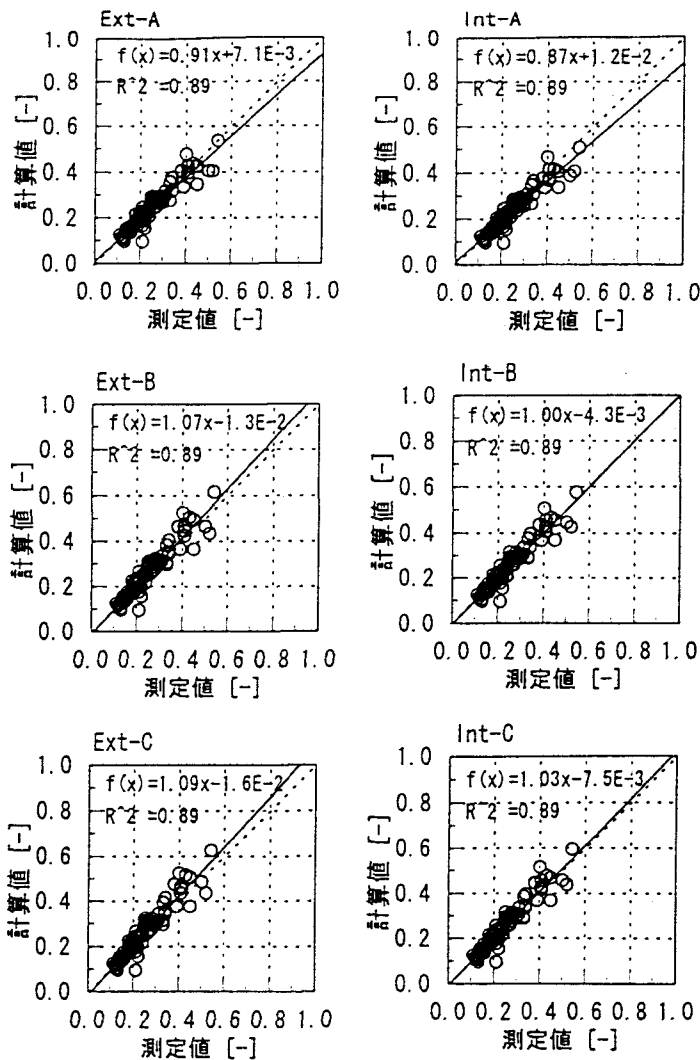


図2 直散比の測定値と計算値の比較 (1)

図中のExtは External mixture, Intは Internal mixtureを表す。

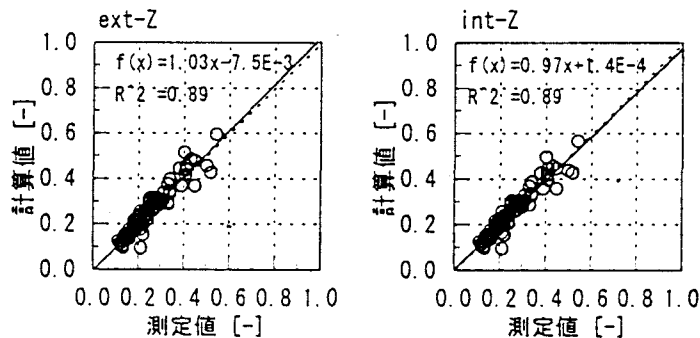


図3 直散比の測定値と計算値の比較 (2)

一方、エアロゾルの光学的特性を表す単一散乱アルベドを、Internal mixtureについて、図4に示す。Aと、他の粒径分布との単一散乱アルベドのちがいは、平均で 0.045~0.06, 最大で 0.08 であった。単一散乱アルベドのこのちがいは非常に大きく、地球一大気系の放射収支に影響する。したがって、粒径分布は、これまでよく使われてきたAではなく、BやC、あるいはZの粒径分布を使うべきであると考え。

また、同じ粒径分布で、混合状態による単一散乱アルベドのちがいを見ると、BやC、そしてZいずれでも、0.03 程度であった。しかし、この程度のちがいでも、清浄地域のような散乱が強い(単一散乱アルベドが 0.9 以上)エア

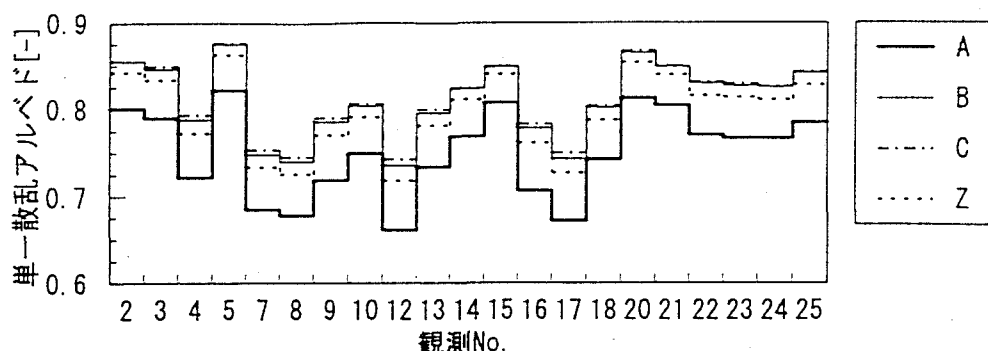


図4 Internal mixtureについての単一散乱アルベド

ロゾルであれば、その影響はかなり大きいものと予想される。そこで、単一散乱アルベドが 0.9 以上のエアロゾルについて、External mixture と Internal mixture とで、全球平均の地表気温がどの程度ちがうかを、Budyko の熱平衡モデルを用いて推定した。まず、地球-大気系の熱収支は次のように与えられる。

$$\pi R^2 S(1 - A) = 4\pi R^2 I \quad (5)$$

ここで、 R は地球の半径、 S は太陽定数、 I は大気上端から放出される赤外放射量である。 A は、

$$A = n_c A_c + (1 - n_c) A_0 \quad (6)$$

となる。 n_c は雲量、 A_c は雲の反射率である。 A_0 は雲がないところの大気上端での太陽放射の反射率(プラネタリーアルベド)であり、放射伝達方程式を解いて求める。また、Budyko(1969)によると、 I は地表気温 T_s との間に次のような関係が明らかにされている。

$$I = a + bT_s - (a_1 + b_1T_s)n_c \quad (7)$$

ここで、 a 、 b 、 a_1 、 b_1 は定数である。以上の関係式を用いて、表面反射率が異なる陸地と海洋についてそれぞれの地表気温 T_s を求め、陸地と海洋の存在比によって重み付けをして、全球平均の地表気温を求めた。その結果、全球平均の地表気温は、External mixture と Internal mixture とで 0.15°C のちがいがあることがわかった。したがって、混合状態のちがいによって、エアロゾルのアルベド効果の大きさが左右されることになる。現段階では、Okada(1983)が、夏季の名古屋における短期間の測定で、不溶性の核の周囲を硫酸塩が覆っている混合粒子の存在を確認し、エアロゾル中の混合粒子の割合が、20～70%であることを明らかにしたのにとどまっている。したがって、今後、各地の、特に清浄地域での混合状態を明らかにしていくことが非常に重要な課題であると考えられる。

6. まとめ

大気エアロゾルの光学的特性を求めるのに適切なエアロゾルモデルを決めるために、エアロゾルの混合状態と粒径分布を検討した。混合状態が Internal mixture で、粒径分布が幾何平均半径 $0.055 \sim 0.079 \mu\text{m}$ 、幾何標準偏差 1.97～2.29 の場合、組成分析から求めた直達日射量に対する散乱日射量の比(直散比)の計算値と、日射観測から求めた測定値はよく一致した。一方、これまでよく使用されてきた幾何平均半径 $0.035 \mu\text{m}$ 、幾何標準偏差 2.10 の場合、計算値と測定値はよい一致を示さなかった。External mixture と Internal mixture 両者の単一散乱アルベドのちがいは 0.03 程度であり、このちがいは全球平均の地表気温で 0.15°C のちがいを生じる可能性があることがわかった。