

# 30. 西太平洋域大気エアロゾルの光学特性観測

Measurement of optical properties of atmospheric aerosols in the western Pacific Ocean

藤谷雄二\*、太田幸雄\*、村尾直人\*、山形定\*、遠藤辰雄\*\*  
FUJITANI Yuji\*, OHTA Sachio\*, MURAO Naoto\*, YAMAGATA Sadamu\*, ENDOH Tatsuo\*\*

**Abstract;** It is necessary to assess the spatial distribution and variation of optical properties and chemical species of atmospheric aerosols to estimate the direct effect on climate. In the western Pacific Ocean, where the pollutants are transported from the East Asia, there are little aerosol measurements available to estimate the climate effect. In this study the aerosol optical and chemical properties were measured in June-July 2000 in the western Pacific Ocean on board the research vessel Mirai. In the southern area of 30° N, it was found that the area was under marine background condition due to less concentration of anthropogenic elements of aerosols such as V, Ni and Pb than those in the area north of 30° N. In south of 30° N, absorption coefficient ( $\sigma_{ap}$ ) were extremely low as those less than  $2 \times 10^{-7} m^{-1}$ , and scattering coefficients ( $\sigma_{sp}$ ) ranged from  $80 \times 10^{-7} m^{-1}$  to  $212 \times 10^{-7} m^{-1}$ . The single scattering albedo ( $\omega$ ), then, ranged from 0.97 to 0.99, which shows the aerosols were highly transparent in summer in the western Pacific Ocean.

**Key words;** Aerosols, Optical properties, Pacific Ocean

## 1. はじめに

大気中に存在するエアロゾル、特に人為起源の微小粒子は、太陽放射を散乱、吸収することにより地球大気が獲得する太陽放射量を変化させ、気候に影響を与えていた。これをエアロゾルの直接効果と呼んでいた。IPCC の報告によれば、エアロゾルの直接効果による放射強制力の見積もりは未だ不確かな部分があり、将来の気候変動をより正確に予測し、対策を立てるためにも、この効果の不確かな部分を明らかにしていかなければならぬ。直接効果を正確に見積もる為には、エアロゾルの総量、光学特性の広域分布とそれらの季節変動を把握する必要がある。また、エアロゾルは、発生源の違いや大気中での寿命が一週間から二週間程度と短いことから、地球各地で空間的(水平方向、鉛直方向)、時間的にも様々な分布をしており、広域的かつ長期的な大気観測が必要になる。

本研究で注目している太平洋海域は、ハワイ等、数カ所の島でエアロゾル観測が行われているのみで、その濃度や光学特性の広域分布は明らかになっていない。また、近年アジア諸国の工業化が著しく、その結果大量の人為起源物質が偏西風により太平洋海域に拡散、輸送されているものと考えられ、今後の動態が注目される海域である。

一方、エアロゾルの広域分布を瞬時に把握することができる、人工衛星によるリモートセンシングが期待されているが、その際には輝度データから算出される、光学的厚さの検証、較正が必要であり、その為の海

\*北海道大学大学院工学研究科 Graduate School of Engineering, Hokkaido University

\*\*北海道大学低温科学研究所 Institute of Low Temperature Science, Hokkaido University

上実測データの蓄積が必要となっている。

そこで本研究では、太平洋海域で観測船を用いて実際のエアロゾル観測を行い、太平洋上に存在するエアロゾルの光学特性を明らかにする。

## 2. 観測概要

2000年6月13日から7月6日にかけて、海洋科学技術センター所有の海洋地球研究船「みらい」MR00-K04航海に参加した。青森県むつ市関根浜港を出航し、東経140°線上、北緯5°まで南下し、北緯7°、東経140°付近で10日間の定点観測を行った後、7月1日に神奈川県横須賀港に向けて北上した。なお、北上中の観測は、北緯31°付近で終了している。航路図を図1に示す。外気は、20L/minでコンパスデッキ最前部（海拔25m）から長さ18m、内径12mmのホースにより汎用観測室に導入した。サイクロンを用いて2μm(50%分離径)以上の粗大粒子をカットした後、ディフューザーに導入し、Integrating Nephelometer(Radiance Research;M903)によって散乱係数(以

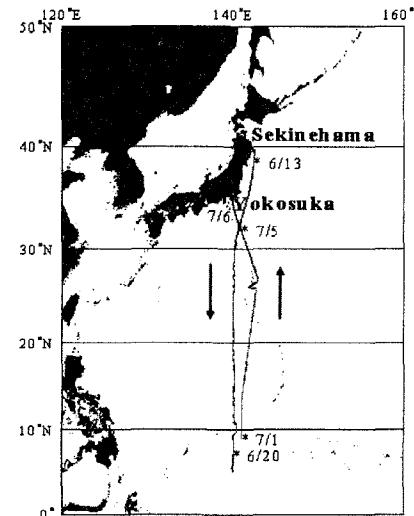


図1 航路図

下、 $\sigma_{sp}$ と略記)を、またParticle Soot/Absorption Photometer(Radiance Research)によって吸収係数( $\sigma_{ap}$ )を各々1分ごとに測定、記録した。また別系統で上記と同様に空気を導入し、フィルターによってエアロゾルを連続捕集した。この際には、自船の排煙の影響を受けないように、風を背後から受けている場合と、船が停止していた場合は、ポンプを止めてサンプリングを中断した。用いたフィルターは、テフロンフィルター(住友電工;FP-500;47mmφ)と石英フィルター(パルフレックス;2500QAT-UP;47mmφ)である。サンプリング後のフィルターはアルミホイルに包み冷暗所で保存した。サンプリングに関する詳細を表1、2に示す。

気象データは、「みらい」に常設のMirai meteorological observation systemにより、気温、湿度、風向、風速、雨量等の6秒平均値と10分平均値が測定、記録された。

表1 テフロンフィルターによるサンプリング状況

No.	日時(JST)		緯度(度)		降水量 [mm]
	Start	End	Start	End	
南 下 中	2	6/13 17:46	6/14 8:01	40.6	37.1
	3	6/14 8:50	6/15 8:16	36.9	31.6
	4	6/15 8:50	6/16 8:44	31.5	25.6
	5	6/16 9:54	6/17 18:44	25.3	17.5
	6	6/17 19:06	6/19 10:50	17.3	8.4
	7	6/19 11:11	6/20 8:54	8.3	6.7
	定 点 観 測 期 間	8	6/20 9:22	6/21 23:10	
北 上 中	9	6/21 23:56	6/23 16:42		
	10	6/23 17:44	6/25 11:11		
	11	6/25 12:46	6/26 19:04	7.0	
	12	6/26 21:05	6/28 16:18		
	13	6/28 17:52	6/29 22:29		
	14	6/29 23:44	7/1 11:53	7.0	9.7
	15	7/1 14:42	7/2 12:28	10.4	15.5
中	16	7/2 14:51	7/3 14:42	16.1	21.8
	17	7/3 15:02	7/4 17:34	21.9	26.9
	18	7/4 17:57	7/5 13:49	27.0	31.5
					0.0

表2 石英フィルターによるサンプリング状況

No.	日時(JST)		緯度(度)		
	Start	End	Start	End	
南 下 中	2	6/13 17:46	6/14 8:01	40.6	37.1
	4	6/14 8:50	6/15 8:16	36.9	31.6
	5	6/15 8:50	6/16 8:44	31.5	25.6
	6	6/16 9:54	6/18 4:21	25.3	15.0
	7	6/18 8:24	6/20 8:54	14.7	6.7
	8	6/20 9:22	6/21 23:10		
	9	6/21 23:56	6/24 13:41		
北 上 中	10	6/24 14:34	6/26 19:04		7.0
	11	6/26 21:05	6/29 22:29		
	12	6/29 23:44	7/2 12:28	7.0	15.5
	13	7/2 14:51	7/4 17:34	16.1	26.9
	14	7/4 17:57	7/5 13:49	27.0	31.5

## 3 データ処理

$\sigma_{sp}$ と $\sigma_{ap}$ に関して、背後から風を受けた場合(相対風向が90°から270°)および船が停止していた場合と相対風速が1m/sec以下の場合は、自船の排煙の影響を受けた可能性があるので削除した。また、 $\sigma_{sp}$ と $\sigma_{ap}$ は1時間～15時間の平均を行った。気象データは10分値を用いた。

## 4 分析方法

テフロンフィルター捕集試料より水溶性成分と金属成分の分析を行った。水溶性成分はイオンクロマトグラフィーによって、また金属成分は ICP-MS で分析を行った。また石英フィルター捕集試料については、燃焼法により、炭素成分（黒色純炭素；E.C.）の分析を行った。定量限界値はフィルターブランクの平均値の 2 倍とした。今回分析対象とした水溶性成分は、 $\text{Na}^+$ ,  $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ である。非海塩  $\text{SO}_4^{2-}$  (NSS- $\text{SO}_4^{2-}$ ) は、 $\text{Na}^+$ の濃度に海塩中濃度比の 0.251 倍をかけて、 $\text{SO}_4^{2-}$ から差し引くことにより求めた。金属成分は、 $\text{Na}$ ,  $\text{Mg}$ ,  $\text{Al}$ ,  $\text{K}$ ,  $\text{Ca}$ ,  $\text{V}$ ,  $\text{Cr}$ ,  $\text{Mn}$ ,  $\text{Fe}$ ,  $\text{Ni}$ ,  $\text{Cu}$ ,  $\text{Zn}$ ,  $\text{As}$ ,  $\text{Cd}$ ,  $\text{Pb}$  を分析対象としたが、定量性の悪い元素や、定量限界値以下のサンプルが多かった。今回は、人為起源の指標となる、 $\text{V}$ ,  $\text{Ni}$ ,  $\text{Pb}$  の結果を示す。E.C.も定量限界値以下となるサンプルがあり、定量限界以上の値が得られたもののみを示す。

## 5. 結果と考察

往路（南下中）と定点観測期間および、復路（北上中）で得られた結果についてそれぞれ分けて示す。

### 5.1 往路(南下中 6/13~6/20)および定点観測期間(6/20~6/30)

#### (A) 気象状況

北緯 40° を出発してから北緯 30° 付近までは梅雨前線の影響で雨が断続的に降っていた。前線を抜けた後は、時折スコールが降るのみで、ほぼ晴天が続いた。風系は、北緯 30° 以北では、北寄りの風を受けた場合もあった。一方、北緯 26° 付近以南では、貿易風帯となり、東寄りの風が卓越していた。北緯 25° 以南は、相対湿度 (R.H.) が 80%、気温が 28°C と一定しており熱帯海洋性気塊を観測した。以上の気象状況から、北緯約 30° 以北では日本や大陸の影響を直接受けた可能性がある海域、それ以南では海洋性バックグラウンド気塊を捉えた海域と考えられる。

#### (B) 化学組成

図 2 と図 3 に、往路で得られた金属成分と E.C. の緯度変化を示す。また図 5 には定点観測で得られた金属成分の経時変化を示す。図中の#2, #3 等は、表 1 中のフィルターフィルタ番号 (No.) に対応する。なお、E.C. に関して、定点観測において得られたサンプルはすべて定量限界以下であった。これらの成分は海洋上で主な発生源が無く、 $\text{V}$  と  $\text{Ni}$  は原油、重油燃焼起源、 $\text{Pb}$  はガソリン自動車起源、E.C. はディーゼルエンジンの排気やバイオマス燃焼の指標物質となる。

気象状況等から、北緯 30° 以北と以南とに分けて考察を進める。これらの成分の濃度分布を見ると、いずれの成分も北緯 30° 以北で得られたサンプルの濃度は、北緯 30° 以南（定点観測期間に得られたサンプ

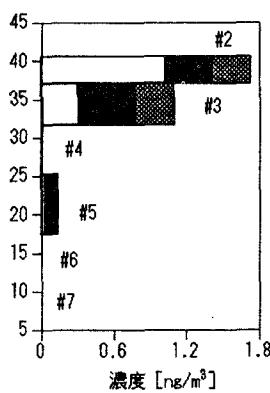


図2 往路中における金属成分緯度分布

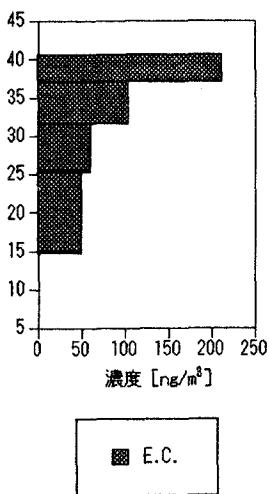


図3 往路中における炭素成分緯度分布

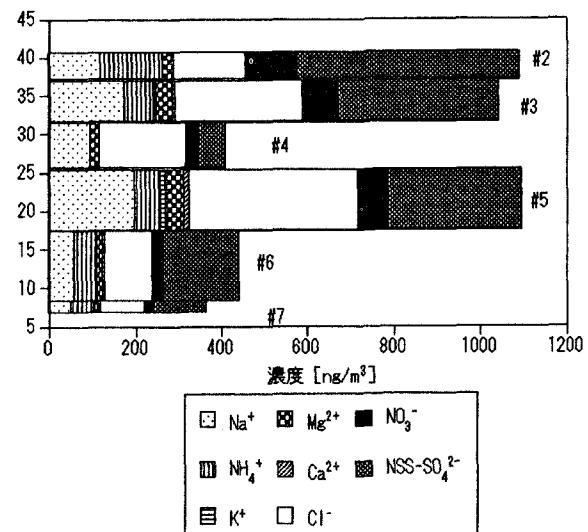


図4 往路中における水溶性成分緯度分布

ルも含む)よりも大きかった。よって北緯30°以北では、日本や大陸の影響を受けていたと考えられる。

図4と図6はそれぞれ、往路において得られた水溶性成分の緯度分布と、定点観測期間に得られた水溶性成分の経時変化を示したものである。水溶性成分は海上にも主な発生源があることから、E.C.濃度分布のように南下するにつれ濃度が減少していく傾向は見られなかった。海洋上では、陸から移流されてくるものの他に、自然起源エアロゾルも発生しているからである。すなわち海塩粒子 ( $\text{Na}^+$ ,  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ 等) や、微生物活動で発生したジメチルサルファイド (DMS) が酸化されて生成される NSS- $\text{SO}_4^{2-}$  がある。また水溶性成分の濃度は、風速や、降水量などの気象条件によっても

左右されている。しかしながら、金属成分同様、NSS- $\text{SO}_4^{2-}$ に関して北緯30°以北で得られた#2、#3は、それぞれ 510、370ng/m<sup>3</sup>であり、北緯30°以南と比較すると大きいことから人為起源の NSS- $\text{SO}_4^{2-}$ がかなり寄与していると考えられる。また  $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{NH}_4^+$ に関しても、同様のことがいえる。

次に北緯30°以南について得られた結果について述べる。NSS- $\text{SO}_4^{2-}$ の濃度は、20~310ng/m<sup>3</sup>、 $\text{NO}_3^-$ は、20~70ng/m<sup>3</sup>、 $\text{NH}_4^+$ は~60ng/m<sup>3</sup>であった。

<sup>1,2,3</sup>文献値によると、海洋バックグラウンドの値は、NSS- $\text{SO}_4^{2-}$ で 40~400ng/m<sup>3</sup>、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{NH}_4^+$ に関しては、両者とも 40ng/m<sup>3</sup>という値が報告されている。したがって今回得られた結果は海洋バックグラウンドを観測したと考えられる。

#5は大陸から 1000km 以上離れた場所で得られたサンプルであるにも関わらず、金属成分をはじめ、NSS- $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{NH}_4^+$ に関しても濃度が高くなつた。この海域は、船舶の主要な航路となっていることから、その影響があつたものと考えられる。また、表1に、テフロンフィルターサンプリング中の降雨量を示した。このサンプリング期間では、雨量が少なく、湿性沈着量が少なかつたことも原因となっていると考えられる。

### (C) 光学特性

図7~図9に往路で得られた $\sigma_{\text{sp}}$ および $\sigma_{\text{ap}}$ 、単一散乱アルベド ( $\omega$ ) =  $\sigma_{\text{sp}} / (\sigma_{\text{sp}} + \sigma_{\text{ap}})$  の緯度分布を示す。また、図10~図12に、定点観測期間に得られた $\sigma_{\text{sp}}$ 、 $\sigma_{\text{ap}}$ 、 $\omega$ の経時変化を示す。

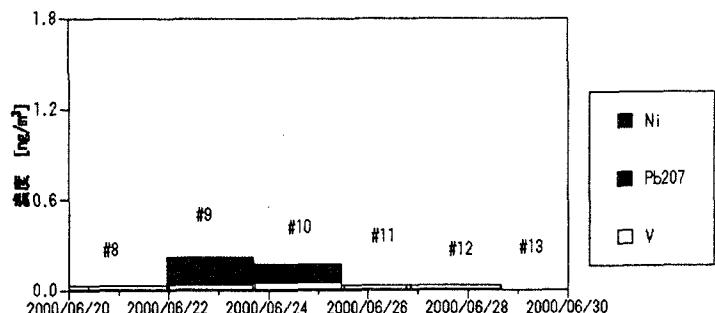


図5 定点観測期間における金属成分経時変化

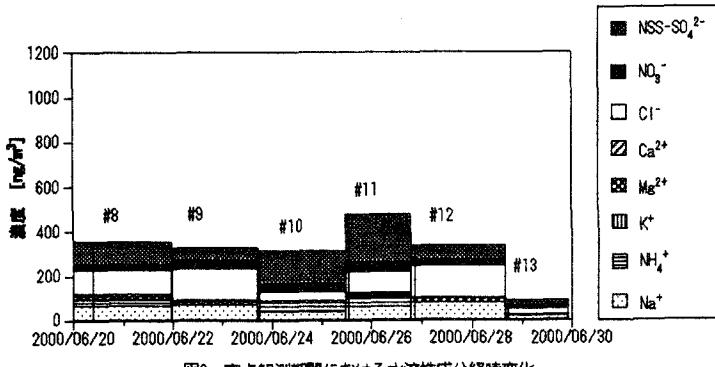


図6 定点観測期間における水溶性成分経時変化

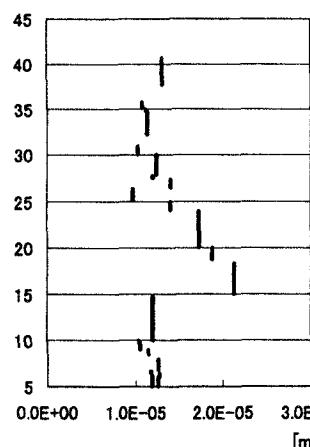


図7 往路中における $\sigma_{\text{sp}}$

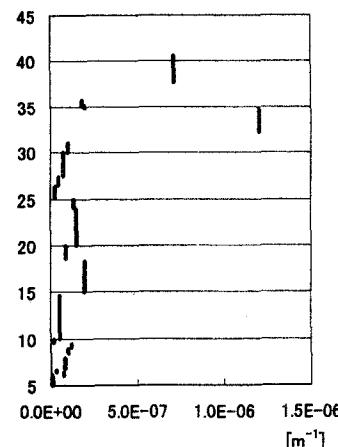


図8 往路中における $\sigma_{\text{ap}}$

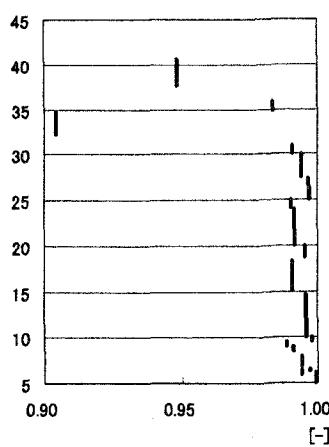


図9 往路中における $\omega$

$\sigma_{sp} + \sigma_{ap}$  は消散係数 ( $\sigma$ ) であり、 $\omega$  は光の消散に対する散乱の割合を表している。すなわち  $\omega=1$  の時は、光の減衰は散乱によるのみで、 $\omega$  が 1 よりも小さくなるほど吸収によって光のエネルギーが失われていることを表す。この値は、太陽放射の伝達過程を把握する上で、非常に重要である。

北緯  $30^{\circ}$  以南で得られた海洋バックグラウンドの値に注目すると、 $\sigma_{ap}$  は  $5 \times 10^{-7} \text{ m}^{-1}$  以下、 $\omega$  は  $0.97 \sim 0.99$  となつた。 $\sigma_{sp}$  は  $8.0 \times 10^{-6} \text{ m}^{-1} \sim 2.12 \times 10^{-5} \text{ m}^{-1}$  の範囲で変化した。特に北緯  $15^{\circ} \sim 18^{\circ}$  において増大しているが、この領域は、水溶性成分が増加したテフロンフィルター #5 のサンプリング領域と一致している。

なお、同海域（北緯  $26^{\circ}$  付近）で上田等により 1999 年の冬期（2月）に測定された値は、 $\sigma_{ap}$  は  $1 \times 10^{-5} \text{ m}^{-1}$ 、 $\sigma_{sp}$  は  $5.0 \times 10^{-5} \text{ m}^{-1}$ 、 $\omega$  は 0.8 であった。今回は冬期に比べて、 $\sigma_{ap}$  が  $1/20$  と、非常に小さく、また  $\omega$  は  $0.97 \sim 0.99$  と吸収性の非常に小さい（透明な）エアロゾルであることが示された。

## 5.2 復路（北上中 7/1～7/5）

### (A) 気象状況

北緯  $20^{\circ}$  以南では、時折スコールによる雨が観測されたが、それ以北ではほとんど晴れであった。気温はほぼ  $27^{\circ}\text{C}$  前後、R.H. は 80% 前後で変動していた。風向は北緯  $29^{\circ}$  付近を境に、以南ではほぼ東の風が吹いている貿易風帯であり、以北では、一時北よりの風も吹いていた。

### (B) 化学組成

図 13 は、金属成分の緯度分布、図 14 は水溶性成分の緯度分布を示す。E.C. はどのサンプルも定量限界以下であった。金属成分は日本に近づくにつれ増加する傾向がみられた。また、テフロンフィルター #17 のサンプルからは土壤起源物質である、Al が検出された。陸起源の気塊を捉えた可能性があるが、他の人為起源物質が著しく増加している訳ではないので大陸からの気塊を捉えたとは考えにくい。サンプリングした海

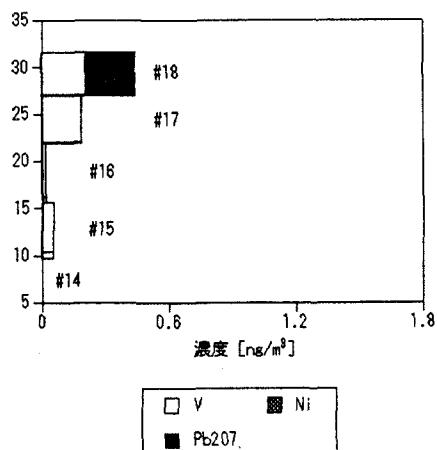


図13 復路中における金属成分緯度分布

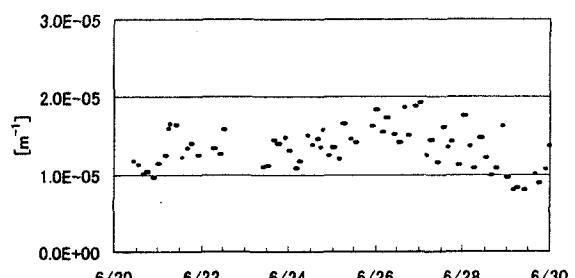


図10 定点観測期間における  $\sigma_{sp}$

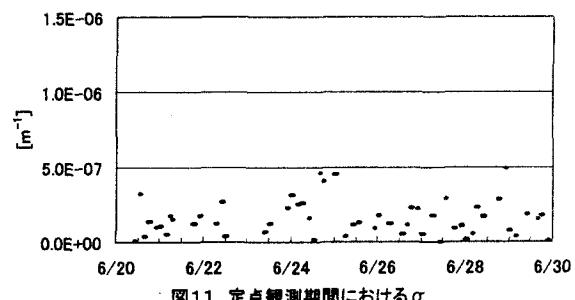


図11 定点観測期間における  $\sigma_{ap}$

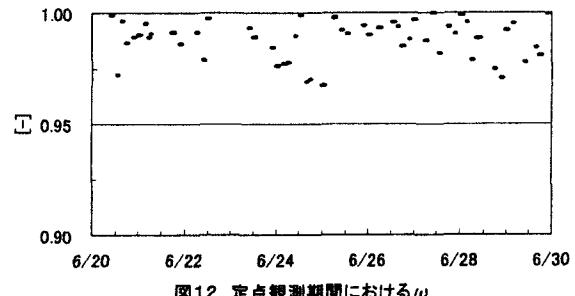


図12 定点観測期間における  $\omega$

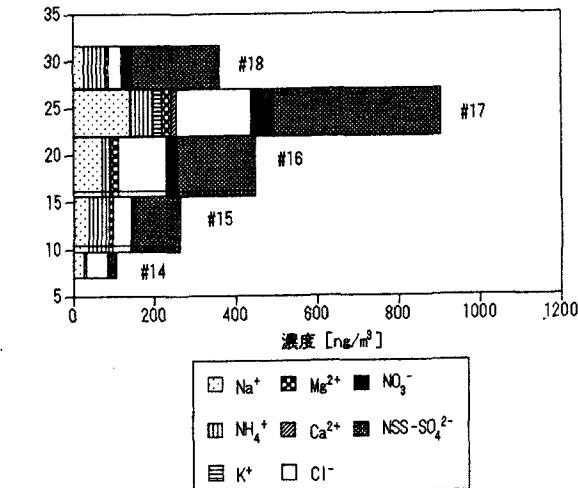


図14 復路中における水溶性成分緯度分布

域は離島に接近したことから、その影響があったものと考えられる。このサンプルは NSS-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>も増加していた。

水溶性成分は、NSS-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>は 20～410ng/m<sup>3</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>は～60ng/m<sup>3</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>は～60ng/m<sup>3</sup>と往路に得られた値と同程度であり、復路も海洋バックグラウンドを観測したと考えられる。

### (C) 光学特性

図15から図17に復路で得られた  $\sigma_{sp}$  および  $\sigma_{ap}$ 、 $\omega$  の緯度分布を示す。北緯 30° 以南では、 $\sigma_{ap}$  は  $2 \times 10^{-7} m^{-1}$  以下、 $\omega$  は 0.99 となった。 $\sigma_{sp}$  は  $1.01 \times 10^{-5} m^{-1} \sim 1.65 \times 10^{-5} m^{-1}$  の範囲で変化した。特に北緯 22° 付近において、 $\sigma_{sp}$  が増大しているが、テフロンフィルター#17の区間と一致している。

また、 $\sigma_{ap}$ 、 $\sigma_{sp}$  とも北緯 31° 付近から増大しており、大陸の影響を受けていると思われる。

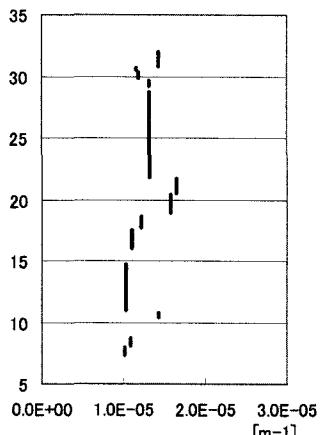


図15 復路中における  $\sigma_{sp}$

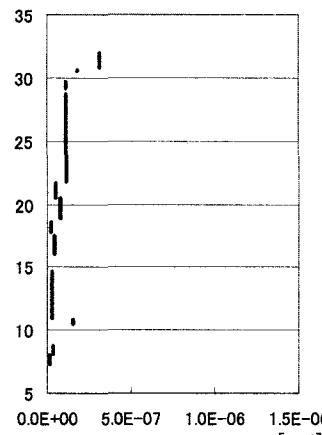


図16 復路中における  $\sigma_{ap}$

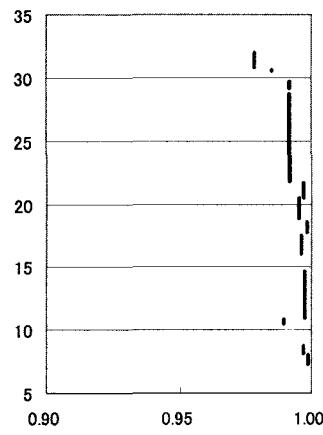


図17 復路中における  $\omega$

## 6. まとめ

往路、定点観測期、復路とも、北緯 30° 以南において、海洋バックグラウンドにおけるエアロゾルを観測した。 $\sigma_{ap}$  は  $2 \times 10^{-7} m^{-1}$  以下、 $\omega$  は 0.97～0.99 であった。また  $\sigma_{sp}$  は、 $8.0 \times 10^{-6} m^{-1} \sim 2.12 \times 10^{-5} m^{-1}$  まで変動することが分かった。冬期の値と比較すると、それらの値は非常に清浄であり、特に  $\sigma_{ap}$  に関しては、1/20 となった。

一方、北緯 30° 以北では、日本や大陸の影響を受けていた。 $\sigma_{ap}$  は、 $1 \times 10^{-7} m^{-1} \sim 1.2 \times 10^{-6} m^{-1}$  であり、 $\omega$  は 0.90～0.99 であった。 $\sigma_{sp}$  は  $1.03 \times 10^{-5} m^{-1} \sim 1.42 \times 10^{-5} m^{-1}$  であった。

太平洋域における、人為起源エアロゾルの光学特性および濃度変動を見積もる為に、今後さらに夏期、冬期とともに、データの蓄積が必要である。

## 参考文献

- 1) Kiyoshi Matsumoto, Ippei Nagao, Hiroshi Tanaka, Hideyuki Miyaji, Takao Iida and Yukimasa Ikebe (1998) Seasonal characteristics of organic and inorganic species and their size distributions in atmospheric aerosols over the northwest pacific ocean, Atmospheric Environment, Vol.32, No.11, pp1931-1946
- 2) 上田厚志 平成 11 年度北海道大学工学研究科環境資源工学専攻修士論文
- 3) Dennis L. Savoie, Joseph M. Prospero and Eric S. Saltzman (1989) Nitrate, non-seasalt sulfate and methanesulfonate over the Pacific Ocean, Chemical Oceanography, Vol.10, pp220-249

謝辞 この研究は、海洋科学技術センター所有の「みらい」MR00-K04 航海にて行われました。ここに感謝いたします。