

39. 太平洋域大気エアロゾルの光学特性

OPTICAL PROPERTIES OF ATMOSPHERIC AEROSOLS IN THE 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; Aerosols optical models are necessary to retrieve aerosol distributions from satellite data and to estimate aerosol direct climate forcing, however, aerosol optical properties such as single scattering albedo (ω) and optical thickness are rare information over ocean. In this study, the aerosol optical and chemical properties were measured from 1999 to 2003 in the western Pacific Ocean on board the research vessel Mirai. We encountered mainly four air masses which included maritime air mass, air mass influenced by fossil fuel combustion, that influenced by biomass burning, and dust plume in these cruises. The values of ω ranged from 0.68 in biomass burning to 0.99 in marine air mass. The region between 30° N and 40° N, air mass was influenced by aerosols emitted from fossil fuel combustion both in the summer and winter cruises. Since absorptive aerosols were measured in the winter cruise, the mean value of ω in this region in the winter cruise was 0.74, while transparent aerosols were measured in the summer cruise (mean value of ω was 0.92). This seasonal difference mainly comes from a difference in the concentration of elemental carbon.

Key words; Aerosols, Optical properties, Pacific Ocean

1. はじめに

大気エアロゾル（大気浮遊微粒子）は、太陽放射（日射）を散乱・吸収することにより、日射の地表面への到達量を変化させ、気候変動を引き起こす。これを大気エアロゾルの気候への直接効果と呼ぶ。この直接効果の大きさは、大気エアロゾルの地表から大気上端までの総存在量に比例する光学的厚さ τ （消散係数の総和）と、エアロゾルの散乱・吸収特性（単一散乱アルベド ω 、これを太陽放射吸収特性ともいう）に決定的に依存する。それゆえ、直接効果の算定においては、両者の季節別の広域分布が必須であるが、現在のところ、海洋上における測定値がほとんど得られていない。そこで、本研究においては、観測船「みらい」を用いて、太平洋海域の単一散乱アルベド ω および光学的厚さ τ の実測を行った。特に、 ω は散乱係数と吸収係数から算出されるが、これらは散乱光度計および吸収光度計などを用いて実測によってのみ決定される

*北海道大学大学院工学研究科 Graduate School of Engineering, Hokkaido University 現 国立環境研究所
PM2.5・DEP 研究プロジェクト National Institute for Environmental Studies, PM2.5・DEP Research Project

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

***鳥取環境大学環境政策学科 Department of Environmental Studies and Management, Tottori University of
Environmental Studies

表 1 各航海の概要

航海名	観測期間	海域	緯度	経度
MR99-K01	1999/2/8~3/10	西部太平洋	41° N ~ 9° S	140 ~ 160° E
MR99-K04 leg1, leg2	1999/7/23~8/19	本州東方沖	41° N ~ 31° N	139 ~ 158° E
MR00-K04	2000/6/13 ~ 7/6	西部太平洋	41° N ~ 5° N	140 ~ 143° E
MR01-K02	2001/5/14 ~ 5/28	本州東方沖	41° N ~ 30° N	140 ~ 153° E
MR02-K02 leg1, leg2	2002/2/21 ~ 3/31	西部太平洋	41° N ~ 5° S	140 ~ 156° E
MR02-K04 leg1, leg2	2002/6/25 ~ 8/22	西部太平洋、インド洋、インドネシア周辺	41° N ~ 11° S	90 ~ 143° E
MR02-K06 leg3, leg4	2003/1/13 ~ 2/13	西部および中部太平洋	41° N ~ 0°	142° E ~ 156° W

表 2 「みらい」観測におけるエアロゾル測定項目

測定項目	測定方法	備考
Scattering coefficient (σ_{sp})	Integrating Nephelometer	$\lambda=530\text{nm}$
Absorption coefficient (σ_{ap})	Particle Soot/Absorption Photometer	$\lambda=565\text{nm}$
Optical thickness (τ)	Skyradiometer	$\lambda=400, 500, 675, 870, 1020\text{nm}$
Water soluble component ($\text{Na}^+, \text{NH}_4^+, \text{K}^+, \text{Mg}^{2+}, \text{Ca}^{2+}, \text{Cl}^-, \text{NO}_3^-, \text{SO}_4^{2-}$)	Ion chromatography	Teflon filter
Metal component (Al, Fe, V, Ni, Zn, As, Pb)	ICP-MS	Teflon filter
Carbonous component (EC, OC)	Carbon analyzer	Quartz fiber filter

ものであり、太平洋海域における ω の季節別の広域分布は、本研究により初めて得られたものである。

2. 1 観測概要

太平洋における 1999 年から 2003 年の間の 7 回 (約 8 ヶ月間) にわたる、各海域・季節のエアロゾルの光学特性と化学組成の観測を行った。観測航海名、年日、主な観測海域を表 1 に示す。また、測定項目、測定方法等を表 2 に示す。試料空気を取り込み口は、コンパスデッキ最前部 (海拔 25m) に設置し、そこから長さ 18m のホースにより汎用観測室に導入した (MR01-K02 航海以降においては、海拔 30m で、ホースの長さは 25m とした)。散乱係数、吸収係数の測定およびエアロゾルサンプリングに関しては、サイクロンを用いて粒径 $2\mu\text{m}$ (50%分離径) 以上の粗大粒子を除去し、測定・捕集した。

2. 2 データ処理

散乱係数 σ_{sp} と吸収係数 σ_{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^{-1} 以下の場合、自船の排煙の影響を受けた可能性があるため削除した。また、 σ_{sp} と σ_{ap} は 1 時間~15 時間の平均を行った。次に、測定値である散乱係数 σ_{sp} と吸収係数 σ_{ap} を用いて、次式で単一散乱アルベド ω を算出する。

$$\omega = \frac{\sigma_{sp}}{\sigma_{sp} + \sigma_{ap}}$$

この値は、理論的には 0 から 1 の間をとり、札幌等の都市大気では 0.7 から 0.8 程度、清浄な大気であるほど 1.0 に近づく。

清浄な状況になると値が 1 に近づくのは、自然起源のエアロゾルは、散乱係数に寄与する透明なエアロゾル種が多いからである。すなわち、海面での気泡の破裂により生じる海塩粒子、微生物の代謝生成物である硫化ジメチルが酸化されて生じる SO_4^{2-} 等は、透明なエアロゾルであり、海洋上に普遍的に存在している。一方、単一散乱アルベドの値の低下に寄与する吸収性のエアロゾルは、主に燃焼過程で発生する黒色純炭素 (EC) である。

2. 3 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 (Na^+ , NH_4^+ , K^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+} , Cl^- , NO_3^- , SO_4^{2-}) はイオンクロマトグラフィーによって、金属成分 (Al, Fe, V, Ni, Zn, As, Pb) 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 EC、有機炭素 OC）の分析を行った。いずれの成分も定量限界値（N.D.）はフィルターブランクの平均値の 2 倍とした。非海塩起源 SO_4^{2-} （NSS- SO_4^{2-} ）および非海塩起源カリウム NSS- K^+ は、それぞれ Na^+ の濃度に海塩中濃度比の 0.251 倍、0.036 倍をかけて、 SO_4^{2-} から差し引くことにより求めた。他の成分は、次の式で算出した。

- ・海塩粒子 (SS) $\text{SS} = \text{Na}^+ \times 3.27$
- ・土壌粒子 (Soil) $\text{Soil} = \text{Al} \times 12.3$
- ・非地殻起源金属成分 (NC-X) $\text{NC-X} = \text{Al} \times (\text{各成分が土壌粒子に含まれている組成比})$

Al、Fe を除いた金属成分については、以後、非地殻起源金属成分として示す。

3 結果と考察

3. 1 季節別南北緯度分布

7 回の観測航海の結果について、エアロゾルの光学特性および化学組成の大気中濃度を各海域・季節毎に考察する。考察対象とする海域は、赤道から北緯 40° 、東経 130° から 160° の範囲とする。季節は冬季（1 - 3 月）、夏季（6 - 8 月）と分ける。冬季には、MR99-K01 航海（W1）、MR02-K02 航海（W2）、MR02-K06 航海（W3）の結果を含める。また、夏季には MR99-K04 航海（S1）、MR00-K04 航海（S2）、MR02-K04 航海（S3）の結果を含める。また、上記の区分とは別に、森林火災（バイオマスバーニング）の影響時に測定されたエアロゾル（BB：MR02-K04 航海：インドネシア周辺）、黄砂が飛来した時期に測定されたエアロゾル（Dust：MR01-K02 航海）、清浄な太平洋海域で測定されたエアロゾル（Base：MR02-K06 航海：赤道上）について、3. 2において考察する。

図 1 から図 4 に上記の海域について、単一散乱アルベド ω 、500nm における光学的厚さ τ_{500} 、530nm に

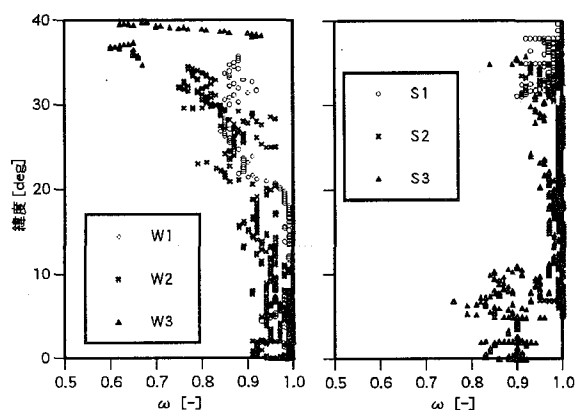


図 1 単一散乱アルベド ω の緯度分布 左：冬季 右：夏季

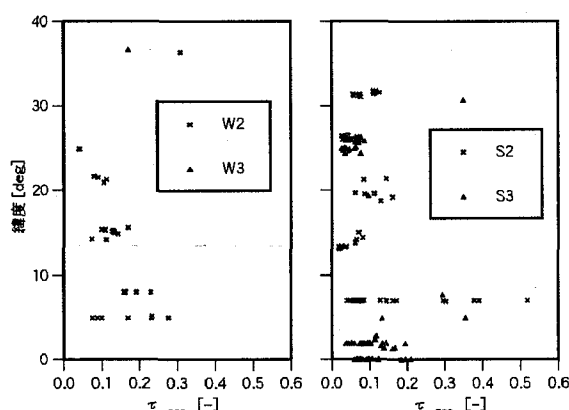


図 2 光学的厚さ τ の緯度分布 左：冬季 右：夏季

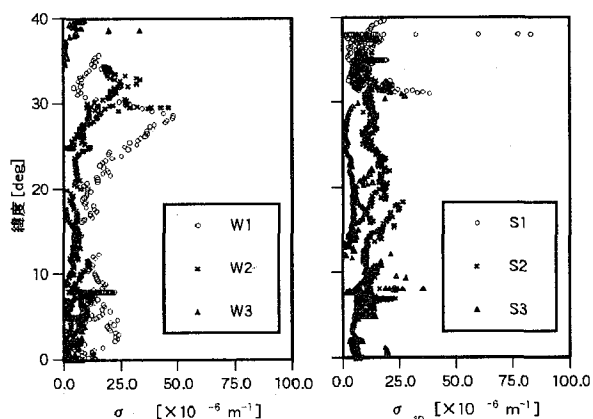


図 3 散乱係数 σ_{sp} の緯度分布 左：冬季 右：夏季

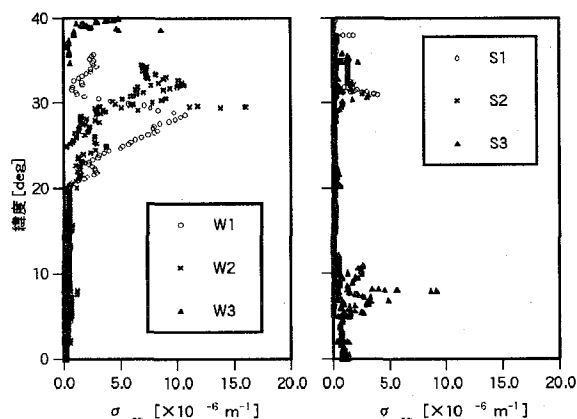


図 4 吸収係数 σ_{ab} の緯度分布 左：冬季 右：夏季

における散乱係数 σ_{sp} 、565nm における吸収係数 σ_{ap} の緯度分布を冬季、夏季に分けて示す。

表 3 には図 1 から図 4 に用いたデータについて各海域・季節における平均値を示す。図のパラメータに加えて、870nm における光学的厚さ τ_{870} 、オングストローム指数 α 、黒色純炭素 EC、有機炭素 OC、非海塩起源硫酸 $NSS-SO_4^{2-}$ 、バナジウム V、ヒ素 As、海塩粒子 SS、土壌粒子 Soil の大気中濃度の緯度分布を示す。なお、バナジウムは重油燃焼の指標元素、ヒ素は石炭燃焼の指標元素である¹⁾。海域は北緯 0-10°、10-20°、20-30°、30-40° の緯度帯に分けた。北緯 0-10°、北緯 10-20° の各領域では、緯度的に季節の違い（四季）はなく、冬季と夏季では結果に違いがみられないので、季節で区別せずに、緯度毎にそれぞれ平均値を算出した。ただし、2002 年の 7 月（MR02-K04 航海）の北緯 0-10° における観測では、森林火災の影響を受けていたので別途平均を行った。さらに表 3 には、3. 2 で述べる BB、Dust、Base の光学特性、化学成分の大気中濃度についても平均値を示した。

(A) 北緯 30° - 40°

冬季（1 - 3 月）および夏季（6 - 8 月）のどちらの季節においても、人為的な影響（化石燃料燃焼の影響）を受けている海域である。気柱あたりでは微小粒子が卓越していて、総量は冬季の方が多い。また両季節で光学特性が異なる。冬季は単一散乱アルベド ω の値が 0.81 と低く、夏季は 0.97 と比較的高い。 ω の季節による違いが明確である。

冬季には、重油燃焼の指標元素であるバナジウムに加えて石炭燃焼の指標であるヒ素も比較的高い。後退流跡線解析によると、大陸内部を起源として、日本上空を通過し飛来している傾向があること、および冬季の総観的な気圧配置などを考えると、大陸から季節風に乗ってこの海域に汚染物質が運ばれてくると考えられる。散乱係数に寄与する汚染物質である、 $NSS-SO_4^{2-}$ 濃度も増加するが、それ以上に吸収係数に寄与する EC 濃度の増加の効果が上回り、冬季の ω の値が低下すると考えられる。

一方、夏季においてはバナジウムの濃度は冬季の値と同程度 (0.16 ng m^{-3}) であるものの、ヒ素の濃度が冬季に比べて低くなる。また、後退流跡線の結果では、気塊の起源は冬季に比べて東方に移り、大陸沿岸もしくは、日本東方沖の太平洋上となる。その後、気塊は太平洋高気圧の勢力内で循環し、日本の上空を通過した気塊が飛来している。これらのことから、冬季に比べ、大陸の影響が相対的に小さくなり、日本の影響が相対的に大きくなると考えられる。冬季と比較して $NSS-SO_4^{2-}$ は 3 分の 1 以下、EC は 5 分の 1 以下に濃度が下がるので、 ω は、比較的高い値となる。

光学的厚さ τ_{500} に関しては、冬季の方が 2 倍高い値 (0.24) となったが、光学的厚さの波長依存性を表すオングストローム指数 α に関してはどちらの季節も高い値となった (0.97)。

(B) 北緯 20° - 30°

北緯 30° 以北と同様に、人為的な影響を受けている海域である。ただし境界層、大気気柱におけるその影響はどちらの季節とも北緯 30° - 40° と比べると同程度かやや小さい。 τ_{500} の値は 0.08 以下となった。

この領域における季節の違いについて述べる。この海域においても、単一散乱アルベド ω の値が冬季に低く (0.88)、夏季の値は高い (0.99) という相違がある。夏季と冬季の EC 濃度の違いが大きいことが原因である。

次に、冬季の南北変化に関して述べる。図 3、4 の散乱係数、吸収係数の緯度分布を見ると、値のピークは年によって若干異なるが北緯 30° 付近にある。高い値が観測された海域が、本州沖合ではなく、奄美大島から屋久島に相当する緯度帯である。また、散乱係数、吸収係数、化学成分の大気中濃度は北緯 20° 付近まで高いことから、大陸の影響はここまで及んでいることが分かる。また、 ω (図 1) に関してみると、北緯 30° から北緯 20° 付近までは 0.8 から 0.9 に微増しながら変化しており、吸収性のエアロゾルを含む気塊が南下するにつれ、海洋上に普遍的に存在する散乱性の粒子（海塩粒子）と混合していると考えられる。

(C) 北緯 10° - 20°

先の緯度帯と比較すると、人為的な影響をほとんど受けていない海域である。散乱係数、吸収係数、光学的厚さは比較的小さい。単一散乱アルベド ω の値は0.98である。金属成分が低濃度であること(V:0.02 ng m⁻³, As:検出限界)および後退流跡線によると、起源は東方の海洋上で、東風が卓越する貿易風によって海洋上を漂った気塊であることから、人為的な影響は比較的小さいと考えられる。

組成比をみると、分析した水溶性成分のうちの68%が海塩粒子SSで占められており、このSSが散乱係数に寄与していると考えられる。また、オングストローム指数 α の値は0.49と低く、気柱全体で粗大粒子が卓越している。すなわち粗大粒子である海塩粒子が卓越しており、この海塩粒子が光学的厚さにも寄与していると考えられる。

(D) 赤道－北緯10°

2002年の7月には、森林火災(バイオマスバーニング)の影響を受けた。単一散乱アルベド ω の値は小さく(0.89)、オングストローム指数 α の値は大きい(1.03)。ただし光学的厚さは大きくなく、北緯10-20°における平均値と同じであった。EC濃度、NSS-SO₄²⁻濃度は同緯度帯の他の観測期間よりも高い。

他の観測期間については光学的厚さが比較的高く(0.15)、大きくばらついているが(図2)、他の項目に関しては北緯10-20°の値とさほど違いはない。どちらの季節も金属成分が非常に低濃度であるので、人為的な影響は小さいと考えられる。

3. 2 特徴的なエアロゾル種

(A) 森林火災の影響時に測定されたエアロゾル

2002年8月のインドネシア周辺において、森林火災の影響を受けた。特徴的なことは、単一散乱アルベド ω が最も小さく(0.68)、オングストローム指数 α が最も大きい(1.56)ことである。吸収性で微小粒子が卓越した気塊が観測海域まで輸送されていたことを示す。また、化学成分については、ECおよびOCの炭素成分が多く含まれていることである。ところで、森林火災においてはNSS-K⁺濃度が上昇するという報告²⁾がある。この期間のNSS-K⁺は平均で0.26 μg m⁻³となり、大西洋上において、アフリカ大陸で発生した森林火災の影響時³⁾に得られた0.22-0.24 μg m⁻³と同程度の値を得た。また、この期間における全水溶性成分に占めるNSS-K⁺の割合が平均で10%に達しており(他の期間は0.8%)、このことから明らかに森林火災の影響を受けていたと言える。

(B) 黄砂が飛来した時期に測定されたエアロゾル(Dust)

2001年5月の日本東方沖で行った観測では人為起源物質と共に黄砂粒子が飛来した。単一散乱アルベド ω は冬季の北緯20-30°で得られた値と同程度の0.89と低い。特徴的なことは、光学的厚さ τ_{500} は0.39、 τ_{870} は0.26と最も高く、近赤外領域においても高いことである(表3)。したがって、光学的厚さの波長依存性があまりなく、 α の値は小さい。この値は、北緯20°以北で得られている値と比較して小さく、土壌粒子が混在していることが α の値の低下の原因と考えられる。

(C) 清浄な太平洋海域で測定されたエアロゾル(Base)

2003年1月の赤道上天で行った観測では、散乱係数、吸収係数ともに最も小さい値が観測された。この間に得られた単一散乱アルベド ω の値は0.98であった。光学的厚さ τ_{500} は0.08と低く、太平洋上(タヒチ、ナウル等)のAERONETサイト⁴⁾における平均値(0.08)と同程度であった。

NSS-SO₄²⁻大気中濃度は、0.30 μg m⁻³であったが、この発生源は、観測海域が赤道直下ということや、他の燃焼起源物質が非常に低濃度であることから考えて、微生物の代謝産物である硫化ジメチルDMSから酸化されて生成されたと推測される。また、海塩粒子は水溶性成分の70%近くを占める。OCも散乱係数に寄与していると考えられるが、OC/EC比をとると、8と大きな値となることからOCの発生源は人為的な燃焼由来とは考えにくく、海水中に含まれる微生物の代謝物と考えられる。これらの自然起源の物質が散乱係数(平均値:3.1×10⁻⁶ m⁻¹)に寄与していると考えられる。この散乱係数の平均値は、南半球で行われた海洋

表3 各海域・季節のエアロゾル光学特性および化学組成の平均値

季節、状況	海域	σ_{sp} [m^{-1}]	σ_{ap} [m^{-1}]	ω [-]	τ_{500} [-]	τ_{870} [-]	α [-]
Winter (Jan. - Mar.)	N30 - 40°	1.56E-05	4.71E-06	0.81	0.24	0.13	0.97
Winter (Jan. - Mar.)	N20 - 30°	1.61E-05	3.30E-06	0.88	0.08	0.05	0.75
Summer (Jun. - Aug.)	N30 - 40°	1.17E-05	4.50E-07	0.97	0.11	0.07	0.97
Summer (Jun. - Aug.)	N20 - 30°	1.14E-05	1.44E-07	0.99	0.05	0.03	0.96
	N10 - 20°	9.13E-06	2.09E-07	0.98	0.09	0.07	0.49
	N0 - 10°	8.00E-06	1.53E-07	0.97	0.15	0.13	0.49
Biomass Burning	N0 - 10°	9.03E-06	1.42E-06	0.89	0.09	0.06	1.03
Biomass Burning	Around Indonesia	2.00E-05	1.06E-05	0.68	0.18	0.08	1.55
Dust	East of Japan	1.37E-05	2.07E-06	0.89	0.39	0.26	0.78
Base	Equator (170 E - 160 W)	3.10E-06	7.44E-08	0.98	0.08	0.06	0.64

季節、状況	海域	EC [$\mu g-C m^{-3}$]	OC [$\mu g-C m^{-3}$]	NSS-SO ₄ ²⁻ [$\mu g m^{-3}$]	V [$ng m^{-3}$]	As [$ng m^{-3}$]	SS [$\mu g m^{-3}$]	Soil [$\mu g m^{-3}$]
Winter (Jan. - Mar.)	N30 - 40°	0.42	-	1.98	0.23	0.62	1.07	0.71
Winter (Jan. - Mar.)	N20 - 30°	0.25	-	1.83	0.21	0.20	1.00	0.33
Summer (Jun. - Aug.)	N30 - 40°	0.08	-	0.65	0.16	0.06	0.65	0.13
Summer (Jun. - Aug.)	N20 - 30°	0.03	-	0.25	0.10	0.07	0.35	0.12
	N10 - 20°	0.03	-	0.22	0.02	N.D.	0.92	N.D.
	N0 - 10°	0.01	0.13	0.14	0.01	N.D.	0.64	N.D.
Biomass Burning	N0 - 10°	0.22	0.37	0.70	0.08	0.05	0.79	0.18
Biomass Burning	Around Indonesia	0.91	0.94	1.18	0.10	0.15	0.67	0.19
Dust	East of Japan	0.29	-	1.98	0.34	0.38	0.65	1.01
Base	Equator (170 E - 160 W)	0.01	0.08	0.30	0.01	0.02	0.83	N.D.

-: 測定値なし N.D.:検出限界値以下

性気塊の状況⁵⁾における値 ($4.4 \times 10^{-6} m^{-1}$) と同程度であった。

4 まとめ

以上のように、本研究では、これまで明らかになっていない、太平洋上のエアロゾルの光学特性の実測を行った。また、光学特性の変動をもたらし化学組成の大気中濃度も同時に得ることができた。

今後、本研究で確立した海上観測システムを用いて各海域・季節でのエアロゾル観測を行うことにより各海域・季節における代表的なエアロゾルの光学モデルを作成することができる。さらに、この光学モデルを用いて、人工衛星のリモートセンシングにより、直接効果を評価するためのエアロゾルの光学的厚さの広域的な分布を継続的に得ることができる。

参考文献

- 1) Nriagu J.O. and Pacyna J.M. (1988) Quantitative assessment of worldwide contamination of air, water and soils by trace metals, Nature, 333, pp.134-139
- 2) Cachier H., Liousse C., Menard P.B., and Gaudichet A. (1995) Particulate content of savanna fire emissions, J. Atmos. Chem., 22, pp.123-148
- 3) Quinn P.K., Coffman D.J., Bates T.S., Miller T.L., Johnson J.E., Voss K., Welton E.J., and Neususs C. (2001) Dominant aerosol chemical components and their contribution to extinction during the Aerosols99 cruise across the Atlantic, J. Geophys. Res., 106, pp.20783-20809
- 4) Smirnov A., Holben B.N., Kaufman Y.J., Dubovik O., Eck T.F., Slutsker I., Pietras C., and Halthore R.N. (2002) Optical Properties of Atmospheric Aerosol in Maritime Environments, J. Atmos. Sci., 59, pp.501-523
- 5) Quinn P.K., Coffman D.J., Kapustin V.N., Bates T.S., and Covert D.S. (1998) Aerosol optical properties in the marine boundary layer during the First Aerosol Characterization Experiment (ACE1) and the underlying chemical and physical aerosol properties. J. Geophys. Res., 103, pp.16547-16563

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