

—報告—
Report

海洋観測専用船による南極海の大気エアロゾル観測

長田和雄^{1*}・原圭一郎^{2,7}・矢吹正教^{3,7}・西田千春¹・小林 拓⁴・三浦和彦⁵・上田紗也子¹・
林 政彦⁶・橋田 元^{7,8}・塩原匡貴⁷・和田 誠^{7,8}・山内 恭^{7,8}

Observations of atmospheric aerosol particles over the Antarctic Ocean by ocean research vessels

Kazuo Osada^{1*}, Keiichiro Hara^{2,7}, Masanori Yabuki^{3,7}, Chiharu Nishita-Hara¹,
Hiroshi Kobayashi⁴, Kazuhiko Miura⁵, Sayako Ueda¹, Masahiko Hayashi⁶, Gen Hashida^{7,8},
Masataka Shiobara⁷, Makoto Wada^{7,8} and Takashi Yamanouchi^{7,8}

(2010年3月1日受付; 2010年3月17日受理)

Absrtact: To investigate spatial and temporal variation of number-size distribution of atmospheric aerosol particles in the Antarctic Ocean, atmospheric observations were conducted on research vessels: *Hakuho-maru*, *Tangaroa*, and *Umitaka-maru*. Concentrations of ionic constituents in aerosols and precursor gases (SO₂ and NH₃) were also measured during the cruises. Concentrations of nucleation mode particles (<20 nm in diameter) were often high under the conditions of very low number concentrations of preexisting aerosol particles larger than 0.1 μm in diameter, when the ocean was calm. Nucleation mode particles did not appear when concentrations of preexisting aerosols were high. Major ionic concentrations of aerosols at Lützow-

- ¹ 名古屋大学大学院環境学研究科, Graduate School of Environmental Studies, Nagoya University, Furo-cho, Chikusa-ku, Nagoya 464-8601.
 - ² (現所属 present affiliation): 福岡大学理学部地球圏科学科, Department of Earth System Science, Faculty of Science, Fukuoka University, 8-19-1 Nanakuma, Jonan-ku, Fukuoka 814-0180.
 - ³ (現所属 present affiliation): 京都大学生存圏研究所, Research Institute for Sustainable Humanosphere (RISH), Kyoto University, Gokasho, Uji, Kyoto 611-0011.
 - ⁴ 山梨大学大学院医学工学総合研究部, Interdisciplinary Graduate School of Medicine and Engineering, University of Yamanashi, 3-11, Takeda 4-chome, Kofu 400-8511.
 - ⁵ 東京理科大学理学部, Tokyo University of Science, Faculty of Science, Kagurazaka 1-3, Shinjyuku-ku, Tokyo 162-8601.
 - ⁶ 福岡大学理学部地球圏科学科, Department of Earth System Science, Faculty of Science, Fukuoka University, 8-19-1 Nanakuma, Jonan-ku, Fukuoka 814-0180.
 - ⁷ 情報・システム研究機構国立極地研究所, National Institute of Polar Research, Research Organization of Information and Systems, Midori-cho 10-3, Tachikawa, Tokyo 190-8518.
 - ⁸ 総合研究大学院大学複合科学研究科極域科学専攻, Department of Polar Science, School of Multidisciplinary Sciences, The Graduate University for Advanced Studies (SOKENDAI), Midori-cho 10-3, Tachikawa, Tokyo 190-8518.
- * Corresponding author. E-mail: kosada@nagoya-u.jp

Holmbukta observed by *Umitaka-maru* in January 2005 were almost the same as average values of those in January at Syowa Station. Especially for short-term increasing events in condensation nucleus concentration, large differences were found for number size-distributions of nucleation and Aitken mode particles between Syowa Station and *Umitaka-maru* in Lützow-Holmbukta.

要旨: 南極海における大気エアロゾル粒子の粒径分布やイオン成分濃度, 先駆ガス濃度の時空間分布を調べるために, 「白鳳丸」や「タンガロア」, 「海鷹丸」による船上観測をおこなった。海況の穏やかな南極海での観測では, 直径 $0.1 \mu\text{m}$ 以上の既存エアロゾル粒子数濃度が著しく低い条件下で, 高濃度の核生成モード粒子 (直径 $< 20 \text{ nm}$) を観測することがあった。逆に, 既存のエアロゾル粒子数濃度が高い場合には, 核生成モード粒子数濃度の増加は見られなかった。2005年1月に「海鷹丸」で観測したリュツォ・ホルム湾洋上のエアロゾル粒子中主要イオン濃度は, 昭和基地で1月に観測される平均的な濃度とほぼ同じであった。「海鷹丸」と昭和基地との同時観測の結果, 短時間に凝縮核数濃度が高くなるイベントの場合には, 核生成モードやエイテンモード粒子の粒径分布は両者で大きく異なっていた。

1. はじめに

日本南極地域観測隊による南極海の大気エアロゾル観測は, 南極観測船「しらせ」による昭和基地への人員・物資輸送の経路上で主におこなわれてきた, 「しらせ」による大気観測は, 毎年同じ時期にほぼ同じ経路をたどるため, 南極海と同じ海域, 同じ季節での経年変化を明らかにするのに適している, しかし, 「しらせ」には人員・物資輸送の任務があるため, 「しらせ」の航路以外の海域や, 昭和基地への物資輸送期間中 (おおよそ12月下旬~1月中下旬) の南極海の観測が困難である。そのため, 別の海域や, 1月上旬の南極海の大気エアロゾルを観測するためには, 「しらせ」以外の船舶を用いる必要がある。

海洋大気境界層内のエアロゾルのうち, サブミクロン粒子の主要成分である硫酸イオン濃度は, 大気と接する海洋表層での生物過程に強く影響を受けるため, 海洋生物活動の季節進行に伴って, 海洋生物由来の大気エアロゾル成分や粒径分布がどのように変化していくのか, 大気-海洋物質交換現象の観点からも興味を持たれている。南極海での海洋生物活動の季節進行は, 海氷の融解と海氷縁の南下により, 生物活動が活発な場所や時期が異なる。また, 生物活動が活発になりやすい海域もいくつかあり (例えば, Moore and Abbott, 2002), 海域ごとに生物活動の様相は異なる可能性がある。

これまでにも, 海洋研究開発機構の学術研究船「白鳳丸」による南極海航海など, 「しらせ」以外の船舶によるインド洋~太平洋セクターでの大気エアロゾル観測 (Kojima and Sekikawa, 1974; Miura *et al.*, 1996) はおこなわれているが散発的であり, 同じ海域について時系列での観測や, リュツォ・ホルム湾付近で昭和基地と同期する観測はこれまでにない。そこで, 南極海の季節進行を捉えるために国立極地研究所が計画した複数の船舶 (「白鳳丸」2002年1月と「タンガロア」2002年2月) を同じ海域に連続して派遣する「複船時

系列観測」(小達・福地, 2001)の一部に参加し, 大気エアロゾルと先駆物質の水溶性ガス成分について観測をおこなった。また, 「しらせ」が昭和基地で物資輸送をおこなっている1月に, 昭和基地沖のリュツォ・ホルム湾で大気観測をおこなうために, 「海鷹丸」での観測にも参加した。本報告では, 「しらせ」以外の船舶(観測専用船)による南極海の大気エアロゾル観測について, 各航海での観測項目の紹介と一部の航海での結果概要を述べる。各航海でのトピックについては別に報告される予定なので, そちらを参照されたい。

2. 観測海域と観測項目

南極海での観測専用船による大気エアロゾル観測は, 2002年1月の「白鳳丸」(KH01-3のLeg 3)から始まり, 同年2月にニュージーランドの水圏大気研究所(National Institute of Water & Atmospheric Research: NIWA)の「タンガロア」, 2005年1月に東京海洋大学の「海鷹丸」, 2006年1月に「海鷹丸」, さらに, 2009年1月にも「海鷹丸」を用いて実施された。このうち, 「海鷹丸」による観測では, 昭和基地沖のリュツォ・ホルム湾で観測をおこなっており, 昭和基地との同時観測となった。図1に, 各航海の航跡図を示す。観測専用船を用いた南極海観測の初期には, タスマニア島南方で140°Eに沿うデュモン・デュルビル基地沖への海域が主な観測対象になっていた(「白鳳丸」と「タンガロア」)。その後, 昭和基地沖のリュツォ・ホルム湾から東方にかけての海域を「海鷹丸」で観測している。

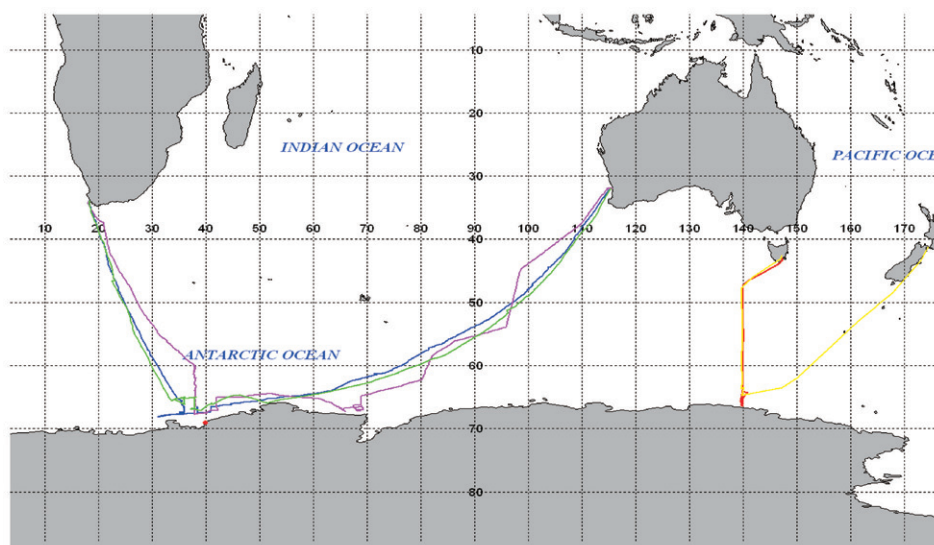


図1 各航海での航跡図。黄:白鳳丸(2001年12月), 赤:タンガロア(2002年2月), 青:海鷹丸(2005年1月), 緑:海鷹丸(06年1月), ピンク:海鷹丸(2009年1月)。

Fig. 1. Cruise tracks of Hakuho-maru (yellow, December 2001), Tangaroa (red, February 2002), Umitaka-maru (blue, January 2005), Umitaka-maru (green, January 2006), Umitaka-maru (pink, January 2009).

表 1 各航海での大気エアロゾル関係の観測機器と採取項目

Table 1. Parameters of aerosol observation and sample collection for research cruises in this report.

観測年月 観測船	2002年 1月 白鳳丸	2002年 2月 タンガロア	2005年 1月 海鷹丸	2006年 1月 海鷹丸	2009年 1月 海鷹丸
大気エアロゾル 観測乗船者	原・西田	原・長田	小林・矢吹・ 西田	小林	上田
OPC	KC01D KC18	KC01D KC18	KC01D KC18	KR12A	KC01D KC18
CN	3022	3025A			3781+3007
SMPS	○	○	○		2ch 差分
PSAP		○	○		○
IN			○		○
MVI-Chem	○	○	○		○
SO ₂ ・NH ₃	○	○	○		○
金属元素			○	○	
サンフォト			○	○	○
O ₃		○	故障		○
電顕サンプル	○	○			○
シーロメータ				CL-31	

表 1 に、これらの研究航海での大気エアロゾル観測関係の測定機器や採取項目を挙げる。

- OPC: 光散乱式粒径分布測定装置。リオン社製 KC01D は直径 $0.3 \mu\text{m}$ 以上のエアロゾルを 5 チャンネルに分けて計測し、KC18 は、 >0.1 , >0.15 , >0.2 , >0.3 , $>0.5 \mu\text{m}$ の各粒径の個数濃度を測定する装置である。KR12A は、ハンディタイプの OPC で、直径 $0.3 \mu\text{m}$ 以上のエアロゾルを 6 チャンネルに分けて計測する。
- CN: 凝縮粒子数濃度。凝縮粒子カウンター TSI 3022 と 3781, 3007 では直径 10 nm 以上、3025A では 3 nm 以上の凝縮粒子濃度を計測した。次に述べる SMPS とは別に、粒子総数を測定した。凝縮粒子カウンター TSI 3007 は、船上での種々の燃焼起源粒子による汚染のチェックや、インレットのチェック用に用いた。
- SMPS: 走査型移動度粒径分布測定装置。凝縮粒子カウンター TSI 3025A と静電式エアロゾル分級器 TSI 3071A の組み合わせなどを用いて、直径 6–230 nm の粒径分布を測定した。2009 年 1 月の「海鷹丸」では、拡散スクリーンを介した経路の ON/OFF 装置と凝縮粒子カウンター TSI 3781 とを組み合わせ、直径 $>10 \text{ nm}$ と $>20 \text{ nm}$ の個数濃度を 10 分おきに計測した。
- PSAP: 吸収率測定機 (スス濃度計)。Radiance Research PSAP を使用。2009 年 1 月の「海鷹丸」では、インパクターを組み合わせ直径 $0.5 \mu\text{m}$ 以上と全粒径でのスス濃度とを分けて測定した。
- IN: 積分型ネフエロメーター。Radiance Research M903 を使用。

- MVI-Chem: 粒径別エアロゾルインパクター。直径 $6\ \mu\text{m}$ 以上と $2\text{--}6\ \mu\text{m}$, $0.2\text{--}2\ \mu\text{m}$ についてはヌクレオアフィルターを捕集面としたカスケードインパクターを用いて捕集し、インパクターを通り抜けた直径 $0.2\ \mu\text{m}$ 以下のエアロゾルはテフロンフィルターで捕集した。さらにこの後段に、酸やアルカリの含浸ろ紙を配することにより SO_2 や NH_3 を捕集した。これらのフィルター試料は、名古屋大学と福岡大学でイオンクロマトグラフ法により分析した。
- サンフォト: 携帯型サンフォトメーター。MICROTOPS II (Solar Light Co.) を使用。
- 金属元素: HNLC 海域への微量金属の供給源の一つとして考えられている、大気エアロゾル中の金属成分濃度を測定した。自船の排気の影響を避けるため、船首方向からの相対風向の時にのみ、エアロゾルをテフロンフィルター (Sumitomo, Fluoropore FP-1000) 上に捕集した。基本的に一日一回、フィルターを交換した。
- シーロメータ: ヴァイサラ社製 CL-31 を船橋後部甲板に設置して、大気境界層の高度および雲底高度を測定した。

3. 結果概要

ここでは、表 1 に示した航海のうち、「タンガロア」と「海鷹丸」での航海から得られた結果の一部を紹介する。

3.1. 2002 年 2 月の「タンガロア」航海

大気エアロゾル連続観測用の試料大気は、アッパーデッキ左舷前端に設けたインレットから内径 $15\ \text{mm}$ のテトロンブレードホース (長さ $7\ \text{m}$) を用いて $18\ \text{L/min}$ の補助ポンプで吸引し、ブリッジ内のサンプリングマニホールドへ導入し、そこから各観測装置へ分岐した。南極海の観測では、外気温が低く室内が暖かいので、マニホールド内の湿度は相対湿度 40% 以下であることが多かった。表 1 の連続観測装置はブリッジ左舷後方に設置した。連続観測値は、船からの汚染の影響を除くため、10 分間の CN 濃度の相対変動率が 10% 以下の場合のデータセットのみを用いた。エアロゾルの連続観測は 2002 年 2 月 6 日のホバート出港時から開始し、同年 3 月 6 日にホバートへ帰港する前日まで継続した (図 1 の赤線)。図 2 に、エアロゾル濃度などの観測結果を示す。最上段の視程コードと、最下段の風速・湿度を見ると、観測期間は全般的に視程が悪く、風速の強い荒れた天気が多かったことがわかる。ホバートを出航後、CN 濃度は急激に低下して数百個/ cm^3 程度になり、以後、帰港する直前までほぼ同様の濃度が続いた。途中、デュモン・デュルビル基地沖の最南端ステーション 8 に滞在中の 2 月 13 日 (図 2, 薄い赤の縦ハイライト部分に相当) には、風速が弱まり、湿度が低下し、直径 $1\ \mu\text{m}$ 以上の粗大粒子数濃度が低くなった。1500 LT (0400

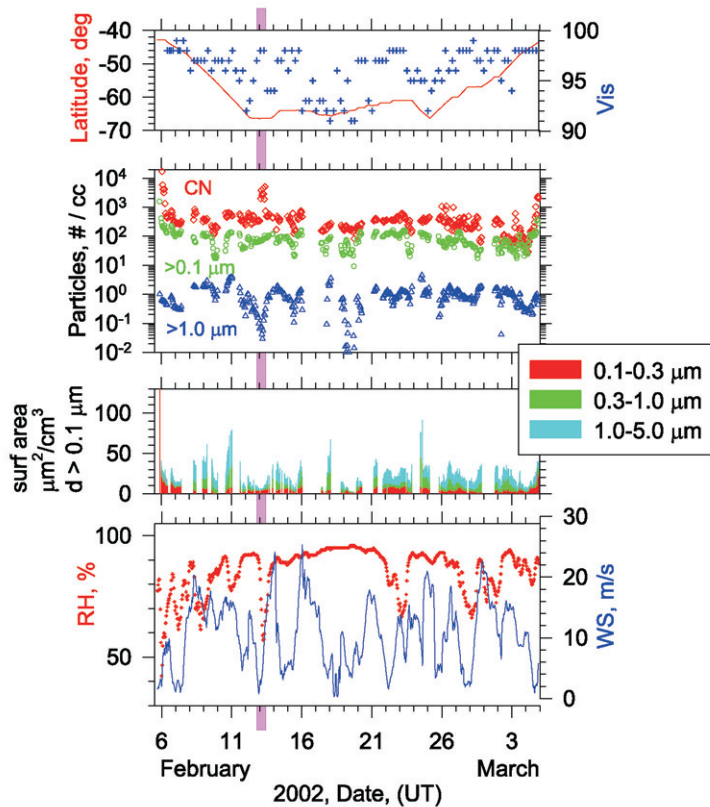


図2 「タンガロア」航海(2002年2月)での観測結果。上から順に、観測緯度(南緯)と視程コード(99: >50 km, 98: 20–50 km, 97: 10–20 km, 96: 4–10 km, 95: 2–4 km, 94: 1–2 km(中略) 90: <50 m), CN(凝縮粒子数濃度)と直径 $>0.1 \mu\text{m}$, $>1.0 \mu\text{m}$ の粒子数濃度, 球相当の粒径範囲別エアロゾル粒子表面積濃度, 相対湿度と真風速。

Fig. 2. Results of Tangaroa cruise in February 2002. Upper panel; longitude (red line) visibility codes (99: >50 km, 98: 20–50 km, 97: 10–20 km, 96: 4–10 km, 95: 2–4 km, 94: 1–2 km and 90: <50 m), number concentrations of aerosol particles, surface area of aerosol particles larger than $0.1 \mu\text{m}$ in diameter, relative humidity and true wind speed.

UT)頃から、新粒子生成と見られる直径 20 nm 以下の核生成モード粒子数濃度の急増現象(最高で約 $5 \times 10^3 \text{ 個/cm}^3$)が観測され始め、夕方になっても核生成モードの粒子数濃度は高いままであったが、風速の増加に伴い核生成モード粒子がなくなった。その時の個数粒径分布を図3に示す。イベント前には直径 70 nm 付近をピークとするエイトケンモードのエアロゾル粒子のみだったが、その後、観測下限粒径付近をピークとする核生成モード粒子のピークが現れた。図2の直径 $0.1 \mu\text{m}$ 以上の既存粒子表面積濃度に注目すると、値が低いのは2月13日以外にも何度かあり、いずれも悪天時に降水や霧を伴う場合であった。

図4に、「タンガロア」航海期間についてのサブミクロン粒子の粒径分布を示す。明確な新粒子生成イベントとしてはこの1回だけであったが、2月26日にも、核生成モード粒子

の濃度増加がうっすらと見て取れる。出港1日後から入港1日前までの遠隔海洋大気中では、直径30-40 nm付近や直径80-100 nm付近にモード径が観測された。観測期間の前半、2月7-12日頃は、直径30-40 nm付近にモード径を持つ粒径分布が支配的だった。その後、先に述べた核生成モード粒子のピークを13日に挟み、それ以後入港直前までは多くの時間で二山分布を示し、直径50-80 nm付近に谷を持つ粒径分布が多かった。

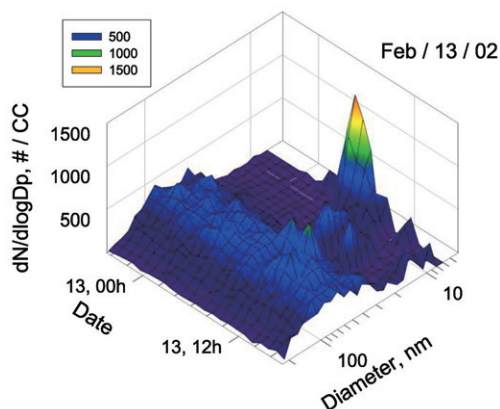


図3 2002年2月13日(UT)のエアロゾル個数粒径分布
 Fig. 3. Number size distribution observed onboard on February 13, 2002.

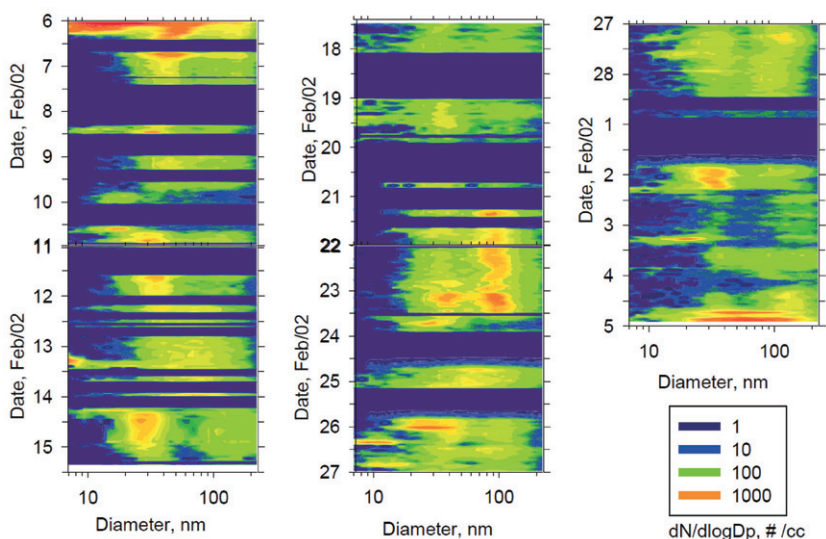


図4 2002年2月の「タンガロア」航海で得られた個数粒径分布。藍の塗り潰しは排ガスによる汚染データを除去した期間。
 Fig. 4. Number size distribution observed during the Tangaroa cruise in February 2002. Masked periods marked by indigo-blue indicate lack of data because of contamination from the ship exhaust.

「タンガロア」航海など船上でのサンプリング用に、船からの汚染大気の採取を避けるため、サンプラーと汚染発生源との位置関係からクリーンな風向・風速をあらかじめセットして、自動的にサンプルを切り替えられる装置を開発した。「タンガロア」では、ブリッジ前方の屋外スペースに設置し、粒径別化学分析用(MVI-Chem)サンプルをセットした。残念ながら、「タンガロア」での自動サンプル切り替え装置には風向制御に不具合があり、採取したサンプルは一部のイオン成分のデータのみしか使えなかった。しかし、この時期の種々のトラブルは、以後の「しらせ」船上観測や南極越冬期間中のサンプリングなど、野外での観測や長期の観測に活かすことができた。

3.2. 2005年1月の「海鷹丸」航海

2005年の「海鷹丸」航海では、ケープタウンを2004年12月31日に出港し、昭和基地沖リュツォ・ホルム湾に向かった(図1の青線)。2005年1月6-13日の約8日間は、昭和基地沖の氷縁域を含む南緯65度以南の海域で観測をおこなっている。その後北上し、2005年1月25日にフリーマントルに入港した。

OPCやSMPSは「海鷹丸」の船橋前部の右舷に設置され、サンプル空気は、装置の真上に近い天井の換気口を介して、コンパスデッキに設置したインレットから導入した。船の排気の影響を受けたデータについては、風向・風速データと排気の影響を受けやすい直径10-60 nmの粒子数濃度(生データ:3分値)の時間変動に基づいて、データから除外した。

観測した空気塊の過去5日間の後方流跡線について、HYSPLITモデル(Draxler and Rolph, 2010)を用いて、毎日0300 UTの高度500 mから計算をおこなった(図5)。流跡線の解析結果によれば、ケープタウンを出港してから南緯65度付近に至るまでは、南大西洋上からの空気塊を観測し、南緯65度付近以南の海域では、南極沿岸域周辺を輸送されてきた空気塊を観測していた。また、南緯65度以北をフリーマントルへ向かう航海中には、主にインド洋上からの空気塊を観測していた。

図6に、(a)「海鷹丸」の緯度と風速、(b)直径10-100 nmと、0.1-1 μm 、 $>1 \mu\text{m}$ の粒子数濃度の時系列変化を示す。直径 $>1 \mu\text{m}$ の粒子数濃度は、風速の強い暴風圏で高く、風速の弱い南極海で低かった。海塩粒子は海面付近の風速が強いほどたくさん生成するので(Lewis and Schwartz, 2004)、暴風圏における直径 $>1 \mu\text{m}$ の粒子数濃度の増加は海塩粒子濃度の増加によると考えられる。一方、直径 $>1 \mu\text{m}$ の粒子と比べ、直径0.1-1 μm の粒子数濃度には、暴風圏と南極海とで濃度の差は少なかった。

図7aに、SMPSで測定された直径5-200 nmの粒径別粒子数濃度の時系列変化を示す。図7aに示したコンターマップは、暖色系(赤系)の色ほど粒子数濃度が高いことを示している。白い帯は、船の排煙の影響を受けたためにデータが得られなかった期間を示す。期間の前半は船の前方や右舷側からの相対風向が多く観測に適していたが、後半は左舷から

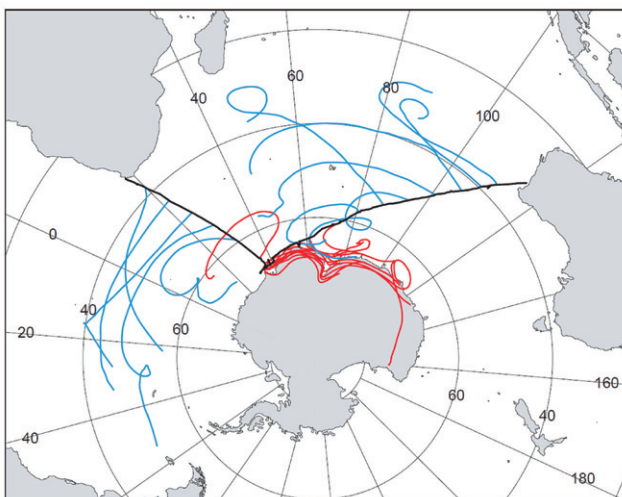


図5 2005年「海鷹丸」航海で日ごとに観測された気塊の過去5日間の後方流跡線。青線は南緯65度以北で観測した気塊の流跡線、赤線は南緯65度以南で観測した気塊の流跡線、黒太線は「海鷹丸」の航路を示す。

Fig. 5. 5 day backward air trajectories started from daily position of Umitaka-maru during January 2005. Blue and red lines represent the trajectories started respectively from north and south of 65° south. Thick black line indicates the cruise track of Umitaka-maru.

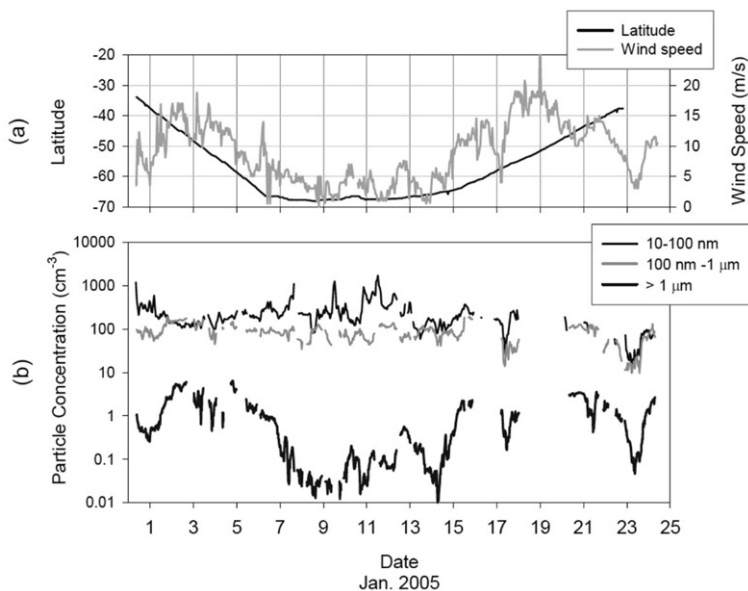


図6 2005年「海鷹丸」航海における (a) 緯度 (黒線) と風速 (グレー), (b) 粒径別粒子数濃度の時系列変化

Fig. 6. (a) Position (latitude, black line) of Umitaka-maru and wind speed (gray line) during the cruise and (b) aerosol concentrations for various size ranges.

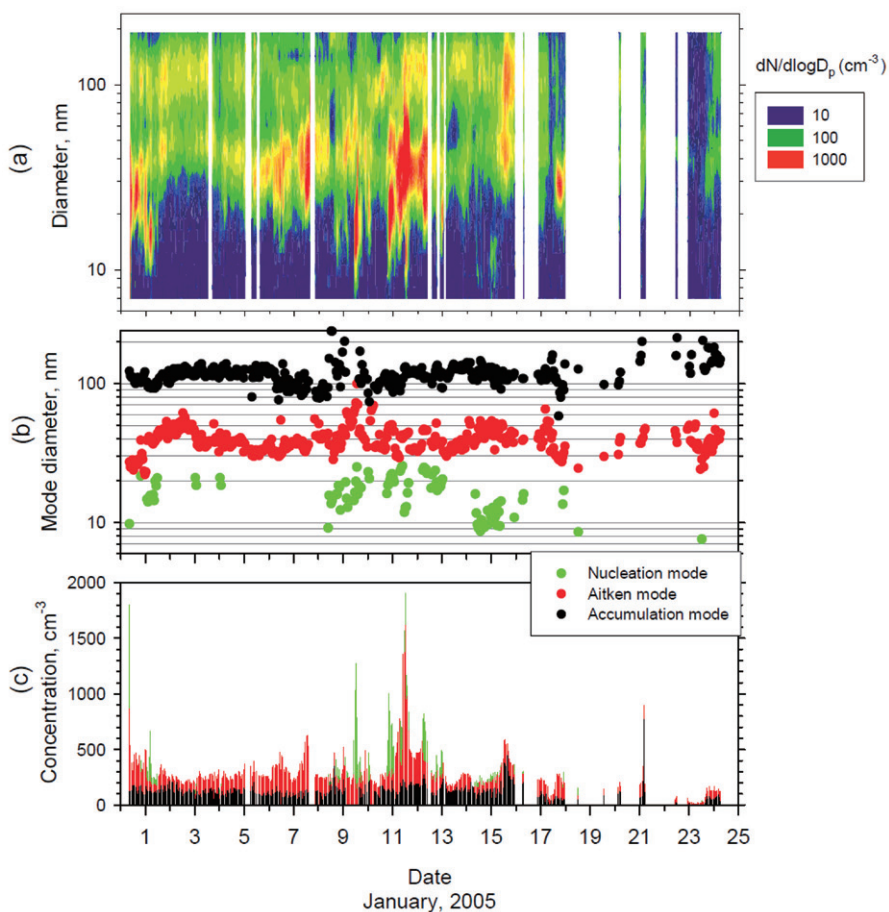


図7 2005年「海鷹丸」航海において観測された直径200 nm以下のエアロゾル粒子の (a) 粒子数濃度粒径分布, (b) モード径, (c) 各モードの粒子数濃度の時系列変化

Fig. 7. Results of Umitaka-maru cruise (January, 2005); (a) number size distribution, (b) mode diameter fitted for multiple log normal distributions, (c) particle concentrations for each mode.

の追い風となり、観測に不適な時間が多かった。図7aを見ると、直径30 nm以下の粒径で濃度の高いことはまれであり、直径30 nm以上の粒径で濃度の高いことが多かった。SMPSで観測された粒径分布の時間平均値に対し、最大で3つまでの対数正規分布関数の和でフィッティングをおこなった。フィッティングによって得られた粒径分布に現れる峰(モード)の直径と、そのモードに含まれる粒子数を、それぞれ図7bとcに示した。図7bからわかるように、インド洋を南下(6日まで)あるいは北上(15日以後)の期間中は、直径30-60 nmと80-120 nmにそれぞれモードを持つような粒径分布が支配的だった。一方、南緯65度以南の海域(1月6-13日の期間)では、例えば1月9日や10日のように、直径10-30 nmにモード(核生成モード: 図7bの緑丸)を持つような粒径分布がしばしば観測された。し

かし、核生成モード粒子の連続的な粒径成長は観測されず、直径 10 nm 以下の粒子数濃度の増加も観測されなかった。

核生成モード粒子が観測されると、その気塊中で近い過去（数時間から数日以内）に均一核生成による新粒子生成イベントが起きたと考えることが多い。夏の南極海で時折見られるような、直径 $0.1 \mu\text{m}$ 以上の既存粒子数濃度が極めて低い場合には、直径 10-30 nm の超微小粒子であっても、大気中での寿命がさらに長いこともあると考えられる。従って、超微小粒子の存在だけから、新粒子生成イベントの場所や時刻を推定することは難しい。

2005 年 1 月の「海鷹丸」観測期間中は、昭和基地でも SMPS によるサブミクロン領域の粒径分布観測をおこなっていた（長田ほか, 2010）。1 月 6-13 日のリュツォ・ホルム湾での観測時には、昭和基地と「海鷹丸」との距離はおおむね 500 km 圏内であった。「海鷹丸」と昭和基地で同じ気塊を観測しているわけではないが、両者の比較から、南極海でのエアロゾル濃度の水平分布について知見を得ることができる。

2005 年 1 月 1-26 日までの期間における「海鷹丸」と昭和基地での粒径分布観測結果について、図 8 に同じカラー尺度で示す。「海鷹丸」での観測結果のうち、リュツォ・ホルム湾に滞在していた期間を図の上に横矢印で示した。昭和基地での観測は、風速が弱いこと、ヘリコプターによる物資輸送、建築夏作業、清浄大気観測小屋の風上に「しらせ」が停泊したことなどのため、頻繁に欠測しているのが残念である。それでも、昭和基地の 1 月前半には直径 30-50 nm 付近に粒子数濃度の高い粒径範囲のあることが見て取れる。「海鷹丸」でも、1 月 6-8 日にかけては類似の粒径分布であった。「海鷹丸」では 9 日や 10 日、11 日、12 日に核生成モード粒子が観測されているが、昭和基地では核生成モード粒子濃度の増加は見られなかった。「海鷹丸」では粒子数濃度の高い粒径が 10 日に一旦直径 100 nm 付近にシフトしているのに対し、汚染頻度が高くてわかりづらいが、昭和基地では前日とほぼ同様の分布を示している。1 月 11-12 日にかけての粒径分布は、昭和基地に比べて「海鷹丸」では直径 20-30 nm 付近と直径 100 nm 付近の粒子数濃度が高い。このように、数百 km 程度の範囲内であっても、特に短時間に濃度が高くなるイベントの場合には、サブミクロン領域の粒径分布や粒子数濃度が大きく異なっていた。一方、「海鷹丸」が昭和基地から離れ始めた 13 日のように、粒子数濃度が低い場合には粒径分布が似ている場合もあった。

図 9 に、2005 年「海鷹丸」航海で採取された粒径別エアロゾル粒子中のイオン成分濃度を示す。図 6 で述べたように、インド洋を南下（6 日まで）あるいは北上（15 日以後）の期間中は、風速が強いために海塩粒子数濃度が増加し、その結果、エアロゾル粒子中の Na^+ 濃度も高い。特に粗大粒子の濃度増加が顕著である。逆に、南極海の観測期間中には、 Na^+ 濃度はごく低い。 NO_3^- や NH_4^+ 、非海塩 (nss) SO_4^{2-} 濃度については、南極海の中では濃度のばらつきが小さく、せいぜい 2 倍程度以内に収まっているのに対し、 CH_3SO_3^- 濃度はばらつきが大きい。 CH_3SO_3^- 濃度のばらつきは、海洋から放出された DMS が大気中でメ

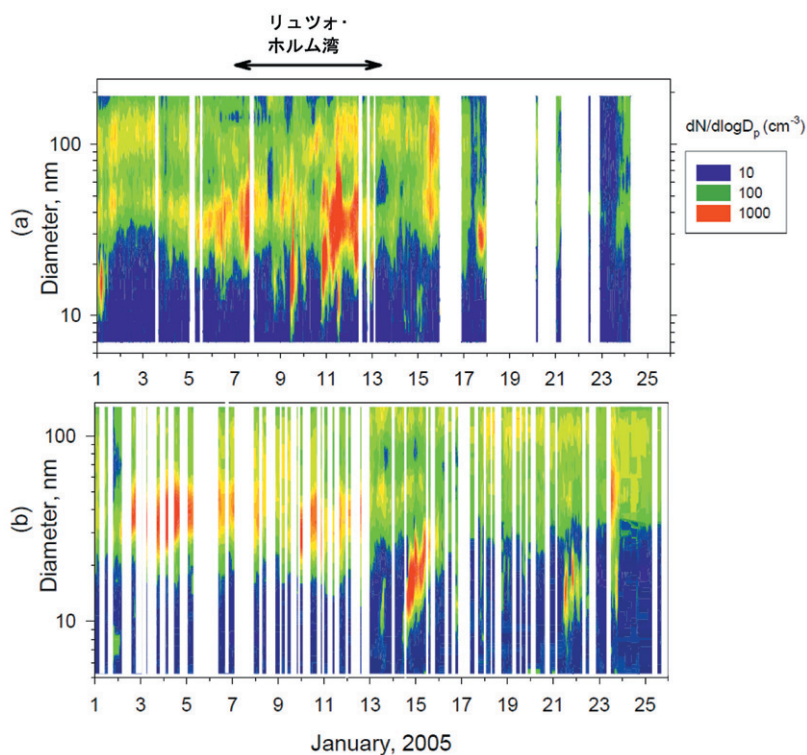


図 8 2005 年の「海鷹丸」(a) と昭和基地 (b) において観測されたエアロゾル個数粒径分布の時系列変化。(a) の上部の横矢印は、「海鷹丸」が昭和基地近くのリュツォ・ホルム湾に滞在していた期間を示す。

Fig. 8. Number size distributions observed at (a) Umitaka-maru and (b) Syowa Station. Horizontal arrow at the top of (a) indicates observation period in Lützow-Holmbukta near Syowa Station.

タンシルホン酸へと酸化される過程が、地理的・時間的に不均一なためであろうか。 SO_4^{2-} 濃度のばらつきが CH_3SO_3^- 濃度のそれより安定しているのは、より遠方からの、DMS 由来以外の SO_4^{2-} 含有粒子が寄与していることを示唆しているのかもしれない。一方、図中に示した矢印は、昭和基地で 1 月に観測される各イオン成分の平均的な濃度である (Hara *et al.*, 2004; 原ほか, 2007)。図示した成分について平均値を比較すると、ほぼ同じ濃度であった。

3.3. 2009 年 1 月の「海鷹丸」航海

2009 年の「海鷹丸」航海では、1 月 7 日に南アフリカ・ケープタウンを出港し、昭和基地沖のリュツォ・ホルム湾とケープダンレー沖を経て、2 月 6 日にオーストラリア・フリーマントルに入港する航路で大気エアロゾルの観測をおこなった (図 1, ピンク線)、この航

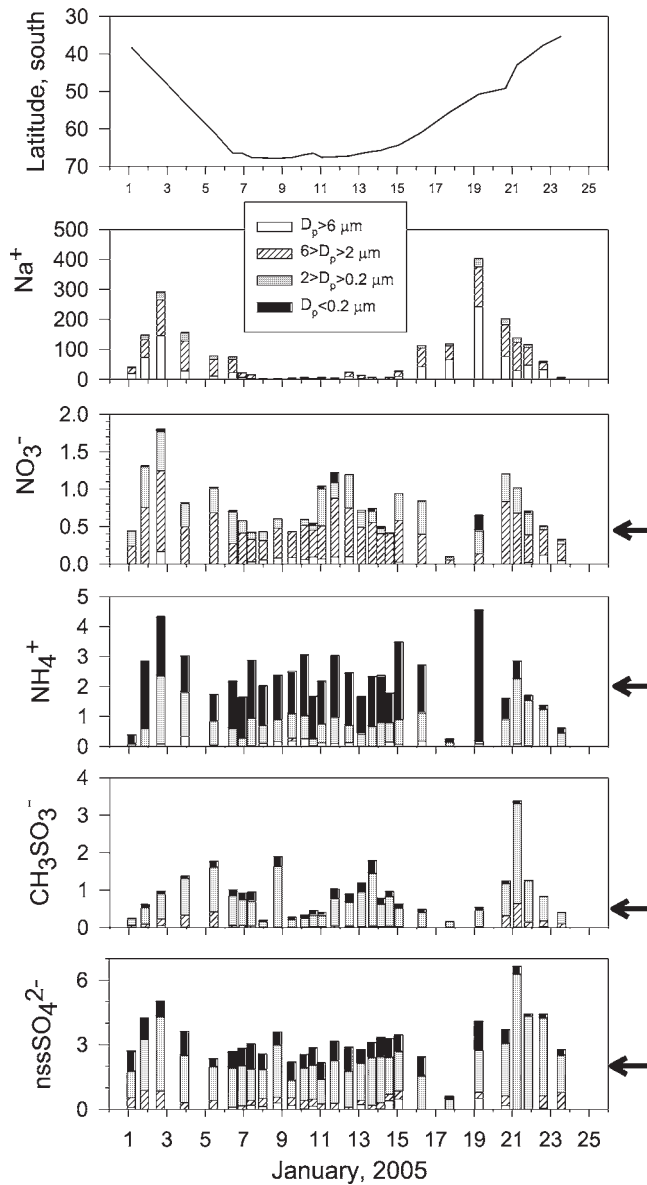


図9 2005年「海鷹丸」の位置（緯度）とエアロゾル粒子中の粒径別イオン成分濃度（ nmol/m^3 ）の時系列変化、矢印は、昭和基地における1月の平均的な値。

Fig. 9. Position (Latitude) of Umitaka-maru and size-segregated ionic concentrations in nmol/m^3 for January 2005. Arrows represent average values at Syowa Station in January.

海では、1月13-27日の期間が南極高気圧圏内での南極海観測に相当している。

図10に連続観測結果の一部を示す。図10の上から順に、直径 $<0.5\ \mu\text{m}$ と $0.5\text{--}1.0$ 、 $>1.0\ \mu\text{m}$ の粒径別スス濃度、スス含有粒子濃度の粒径比($<0.5/ <1.0$)、雲量、直径 $0.3\text{--}5.0\ \mu\text{m}$ の粒子体積濃度と風速、大気中 NH_3 濃度と総粒子数濃度(CN濃度: 直径 $>10\ \text{nm}$)、直径 $10\text{--}20\ \text{nm}$ の粒子数濃度である。スス含有粒子の粒径分布を見ると、ケープタウンを出航してから2日間は、濃度も粒径分布も顕著に変化していた。出航直後には粒径の小さいスス含有粒子が支配的だったのに対し、3日後には直径 $0.5\text{--}1.0\ \mu\text{m}$ の区分が主となった。リュツォ・ホルム湾での観測の前半はスス濃度が比較的高かったが、18日以後、ごく低くなった。スス濃度がごく低いためにスス濃度の粒径比はこの期間に大きくばらついている。

図6と同様に、この航海でも暴風圏(1月8-12日)では、風速が強く海塩粒子の生成が活発なため、直径 $0.3\text{--}5.0\ \mu\text{m}$ の粒子体積濃度も高めだった。暴風圏内では雲量が多く、悪

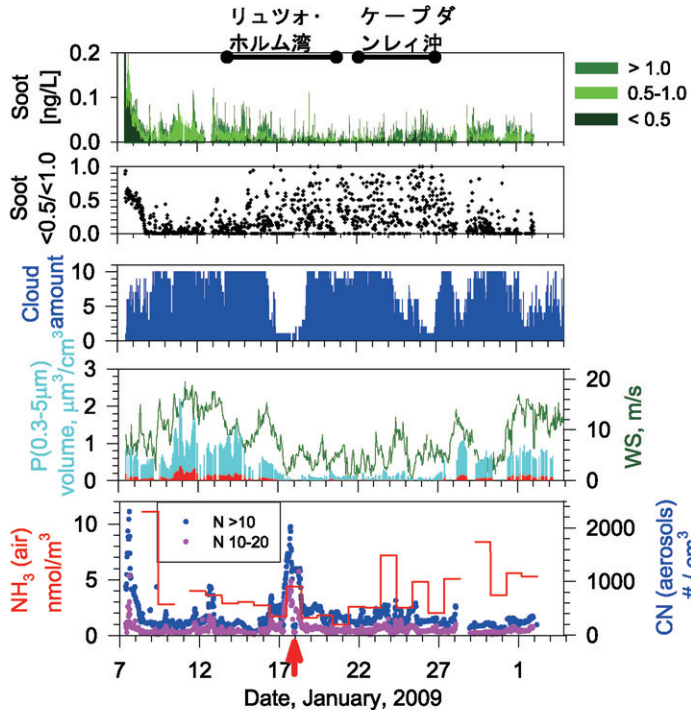


図10 2009年「海鷹丸」航海での観測結果。上の段から順に、粒径別スス濃度、粒径別スス濃度比、雲量、直径 $0.3\text{--}5\ \mu\text{m}$ の粒子体積濃度(赤: $0.3\text{--}1.0\ \mu\text{m}$, 青: $1.0\text{--}5.0\ \mu\text{m}$)と風速、大気中 NH_3 濃度(赤折れ線)とCN濃度(青: $>10\ \text{nm}$ の総CN濃度, 赤: $10\text{--}20\ \text{nm}$ の差分個数濃度)

Fig. 10. Results of the Umitaka-maru cruise in January 2009. From the upper panel, size segregated soot concentrations, ratio ($D < 0.5 / < 1.0$) of soot concentration, volume concentrations of aerosol particles (red: $0.3\text{--}1.0\ \mu\text{m}$ blue: $1.0\text{--}5.0\ \mu\text{m}$) and wind speed, and NH_3 concentration and CN ($>10\ \text{nm}$ and $10\text{--}20\ \text{nm}$ in diameter) concentrations.

天が続いていた。1月13-27日の期間は南極高気圧圏内での大気観測にあたり、風速が弱い
ため海塩粒子の生成が少なく、直径 $0.3\ \mu\text{m}$ 以上の粒子体積濃度は低かった。夏の南極海で
は好天に恵まれることが多いが、この航海では17日や26日を除いて、雲量の多い日が続
いた。CN濃度をみると、南極海では17日に濃度が高くなっていた。この時、直径10-20
nmの差分濃度も高くなっており、新粒子生成イベントの影響をうかがわせる。同時に、大
気中の NH_3 濃度も高くなっていた。この図には示していないが、別に測定された大気中
DMS濃度も、この時期に上昇していた(和田ほか, 2011)。大気中の NH_3 濃度は、1月23
日などでも高くなっており、連動するように大気中のDMS濃度も高いことが多かった。し
かし、直径10-20 nmの差分濃度は取り立てて高くはなかった。

以上述べてきたほか、電子顕微鏡による粒子観察や粒径別化学成分などはまだ解析の途
中であるので、いずれまとまったら報告したい。

4. ま と め

南極海における大気エアロゾル粒子の粒径分布やイオン成分濃度、先駆ガス濃度の時空
間分布を調べるために、「白鳳丸」や「タンガロア」、「海鷹丸」による船上観測をおこな
った。その結果、直径20 nm以下の核形成モードの粒子数濃度は南極海に入ってから高い値
が観測されることが多く、直径 $0.1\ \mu\text{m}$ 以上の既存粒子数濃度が著しく低い条件下でのみ、
核生成モードの粒子数濃度の急増が観測された。事例解析に留まるが、核生成モード粒子
濃度が増加したときに、大気中の NH_3 やDMS濃度も高いことがあった。しかし、これら
の先駆物質濃度が高くても、既存粒子濃度が高い場合には、核生成モード粒子濃度は増加
しなかった。

リュット・ホルム湾にて観測したエアロゾル中の主要イオン濃度は、メタンスルホン酸
イオンを除いて期間中のバラツキが少なく、昭和基地で1月に観測される平均的な濃度と
ほぼ同程度であった。「海鷹丸」と昭和基地との同時観測結果を比較したところ、特に短時
間に核生成モード粒子数濃度が高くなるイベントの場合には、サブミクロン領域の粒径分
布が大きく異なっていることがわかった。これは、南極海におけるサブミクロン領域のエ
アロゾル粒子数濃度や粒径分布の変動に、時空間的にばらつきの大きな現象が支配的であ
ることを示唆している。

謝 辞

船上での大気エアロゾル観測を始めるにあたり、特に国立極地研究所生物圏研究グルー
プの福地光男、小達恒夫両教授をはじめ、東京大学の植松光夫教授、東京海洋大学の神田
穰太教授、石丸 隆教授、山口征夫教授、橋濱史典博士、笠松伸江博士、国立環境研究所
の中岡慎一郎博士ほか、多くの皆さまに貴重なご助言とお力添えを頂き、たいへんお世話

になりました。また、準備から観測、片付けに至るまで、乗船中の海洋グループの方々と乗組員の方々に多大なご協力を頂きました。記して深く感謝いたします。

文 献

- Draxler, R.R. and Rolph, G.D. (2010): HYSPLIT (Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory) Model access via NOAA ARL READY Website (<http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT.php>). NOAA Air Resources Laboratory, Silver Spring, MD.
- 福地光男・小達恒夫 (2001): 「極域海洋研究における複合領域研究立案に関する研究小集会」報告。南極資料, **45**, 148-156.
- Hara, K., Osada, K., Kido, M., Hayashi, M., Matsunaga, K., Iwasaka, Y., Yamanouchi, T., Hashida, G. and Fukatsu, T. (2004): Chemistry of sea-salt particles and inorganic halogen species in Antarctic region: compositional differences between coastal and inland stations. *J. Geophys. Res.*, **109**, D20208, doi:10.1029/2004JD004713.
- 原圭一郎・長田和雄・矢吹正教・橋田 元・西田千春・林 政彦・山内 恭 (2007): 南極昭和基地での大気エアロゾル成分と酸性ガスの季節変化。第30回極域気水圏シンポジウムプログラム・講演要旨。東京, 2007-11, 国立極地研究所, 93-94.
- Kojima, H. and Sekikawa, T. (1974): Some characteristics of background aerosols over the Pacific Ocean. *J. Meteorol. Soc. Jpn.*, **52**, 499-505.
- Lewis, E.R. and Schwartz, S.E. (2004): Sea salt aerosol production: mechanisms, methods, measurements and model: a critical review. Washington, DC, American Geophysical Union, 413 p. (Geophysical monograph ; **152**)
- Miura, K., Nakae, S., Matsuda, K., Tsuge, N. and Aoki, K. (1996): Size distribution of aerosol particles over the western Pacific Ocean and the Southern Ocean. *Proc. NIPR Symp. Polar Meteorol. Glaciol.*, **10**, 102-110.
- Moore, J.K. and Abbott, M.R. (2002): Surface chlorophyll concentrations in relation to the Antarctic Polar Front: seasonal and spatial patterns from satellite observations. *J. Marine Syst.*, **37**, 69-86.
- 長田和雄・西田千春・原圭一郎・矢吹正教・塩原匡貴・和田 誠・山内 恭・林 政彦 (2010): 南極・昭和基地におけるサブミクロン粒子粒径分布の季節変化。南極資料, **54**, 530-540.
- 和田 誠・中岡慎一郎・笠松伸江 (2011): 海鷹丸による南大洋の大気中硫化ジメチル濃度観測。南極資料, **55**, 掲載予定。