

夏季南極対流圏中のエアロゾル粒子の分布と混合状態
—ANTSYO-II (AGAMES) 観測—原圭一郎^{1,2*}・平沢尚彦^{2,3}・山内 恭^{2,3}・和田 誠^{2,3}・
Andreas Herber⁴Spatial distributions and mixing states of aerosol particles in
the summer Antarctic troposphereKeiichiro Hara^{1,2*}, Naohiko Hirasawa^{2,3}, Takashi Yamanouchi^{2,3}, Makoto Wada^{2,3}
and Andreas Herber⁴

(2010年3月15日受付; 2010年4月24日受理)

Abstract: Airplane-borne atmospheric measurements (ANTSYO-II: AGAMES) were carried out in the Antarctic regions in December 2006–January 2007. Aerosol measurements and direct aerosol sampling were done around Neumayer, Kohlen, and S17 (close to Syowa Station). Aerosol samples for individual particle analysis were obtained from 28 scientific flights from near ground to 24000 ft (ca. 7500 m) during the campaign using a one-stage aerosol impactor. Preliminary results of individual particle analysis indicate that sulfate particles (mostly H_2SO_4) were dominant aerosol constituents in all flights. In addition, combustion-origin aerosol particles (e.g., soot and sulfate containing K) were identified even in the upper troposphere in Antarctic regions. Also, mineral-like and sea-salt-like particles were identified in the free troposphere. This strongly suggests that combustion-origin aerosol particles and mineral particles were transported from low- and mid-latitudes toward Antarctic regions via the upper free troposphere in the austral summer. Spatial distributions of the number concentrations of aerosol particles indicate horizontal gradient of aerosols from the continent to the open water area due to emission of sea-salt particles from the sea surface.

¹ (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.

² 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.

³ 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.

⁴ Alfred-Wegener-Institute für Polar- und Meeresforschung (AWI), Bussestrasse 24, D-27570 Bremerhaven (Building Nordseevilla-001), Germany.

* Corresponding author. E-mail: harakei@fukuoka-u.ac.jp

要旨: 2006年12月~2007年1月に、南極域で航空機を使用した大気観測 (ANTSYO-II: AGAMES) を実施した。エアロゾル観測及びエアロゾルの直接採集は、Neumayer 基地, Kohnen 基地, S17 航空拠点 (昭和基地付近) で実施した。個別粒子分析用のエアロゾル試料は1段式のインパクターを用いて、地上付近から約7500 mの高度領域で捕集し、28回の観測飛行で試料を得た。個別粒子分析の結果、主要なエアロゾル粒子は硫酸粒子だった。さらに、南極域上空でも燃焼起源のエアロゾル粒子 (スス・K含有硫酸塩) が確認された。また、土壌粒子や海塩粒子も自由対流圏中で観測された。この結果は、夏季南極において燃焼起源粒子や土壌粒子が、対流圏上部経路で低・中緯度域から南極域へ輸送されていることを示唆している。エアロゾル数濃度の空間分布では、海洋表面からの海塩粒子発生によるエアロゾルの水平方向の濃度勾配が確認された。

1. はじめに

南極大気中のエアロゾル観測は、これまで数十年間にわたって継続されてきた (e.g., Shaw, 1988; Ito, 1989; 原, 2003)。過酷な環境下で観測を継続させるための保守作業や設営上の制約から、エアロゾル観測は主に地上で実施され、South pole 基地を除けば沿岸域に観測拠点が集中している。最近では、内陸部に位置するアイスコアの深層掘削拠点 (ドームふじ基地, Kohnen 基地, Concordia 基地 (Dome C) など) でのエアロゾル観測も行われつつあり、内陸地上付近のエアロゾルの変化に関する知見も得られ始めている (Hara *et al.*, 2004; Weller and Wagenbach, 2007; Jourdain *et al.*, 2008)。また、これまでのエアロゾル観測から、自由対流圏での新粒子生成 (Koponen *et al.*, 2003; Hara *et al.*, 2010a)、低中緯度域からの長距離輸送 (Yamazaki *et al.*, 1989; Reijmer *et al.*, 2002; Hara *et al.*, 2004, 2006; 原ほか, 2010b) などの上空で起きているエアロゾルが関連する過程について指摘され始めているが、観測例が極めて少なく、十分な理解に至っていない。南極大気中のエアロゾルが関係する物質循環過程をより理解するためには、上空でのエアロゾル観測が不可欠である。

上空のエアロゾルを観測するために、これまでに (1) 自由気球, (2) 係留気球, (3) 航空機が使用されてきた。自由気球でのエアロゾル観測は、OPC (Optical particle counter) や CNC (Condensation nuclei counter) を使用し、地上から成層圏にかけてのエアロゾル数濃度の鉛直分布を取得するために行われてきた (e.g., Ito *et al.*, 1986; 林, 2001)。自由気球の観測では、地上から成層圏に及ぶ広範囲のエアロゾル数濃度・粒径分布の情報を得られる利点があるが、南極域では測器回収が極めて困難なため、化学分析用試料採取に適した観測手法ではない。最近では、上空のエアロゾル観測・サンプリングのため、係留気球を用いたエアロゾル観測も実施されているが (Rankin and Wolff *et al.*, 2002; Hara *et al.*, 2010a)、観測高度は気球の係留に使用するラインの長さや風速の制約を強く受け、境界層内 (~300 m) (Rankin and Wolff *et al.*, 2002) や自由対流圏下部 (~2500 m) (Hara *et al.*, 2010a) までの観測にならざるを得ない。そのため、自由対流圏上層のエアロゾルの直

接採集・観測には、現状では航空機を使用するしかない。

これまでに航空機を使用した南極対流圏のエアロゾル観測は、日本南極地域観測隊 (JARE) で精力的に行われてきた (e.g., Iwasaka *et al.*, 1985; Yamazaki *et al.*, 1989; Yamanouchi *et al.*, 1999; 和田ほか, 2001; Hara *et al.*, 2006). OPC や CNC を使用したエアロゾル数濃度計測は、粒子数濃度の低い南極域でも比較的短時間 (高時間分解能) で観測を実施できるため、ほとんどの観測はエアロゾル数密度・粒径分布の空間分布に注目していた。上空でのエアロゾル直接採集も行われていたが (e.g., Iwasaka *et al.*, 1985; Yamazaki *et al.*, 1989; Hara *et al.*, 2006), 航空機観測にかかる設営作業の負担のため、観測数は非常に限られていた。

夏季の南極域は、大陸周辺海域での海洋生物活動起源物質が関係した新粒子生成や、低中緯度域から自由対流圏経由の輸送などの物質循環が活発であることが、これまでの観測から指摘されている (e.g., Koponen *et al.*, 2003; Hara *et al.*, 2010a; 原ほか, 2010b)。しかしながら、エアロゾルの空間分布に関する観測はまだ十分にはなされておらず、基礎的なエアロゾルの特性 (数濃度, 粒径分布, 化学成分など) の空間分布すらよく分かっていない。ANTSYO (Antarctic flight mission at Syowa region: Airborne Geophysical, Glaciological and Atmospheric Research in East Antarctica)-II: AGAMES (Antarctic Trace Gas and Aerosol Airborne Measurement Study) では、夏季南極対流圏中のエアロゾル特性や、温室効果気体とその空間分布に関して知見を得ることを目的とした。夏季の南極対流圏のエアロゾルの化学的・物理的特性を理解するために、第 48 次日本南極地域観測隊夏隊 (以下、第 48 次夏隊) で日本とドイツの共同による航空機大気観測 (ANTSYO-II: AGAMES) を、Neumayer 基地と昭和基地近傍の大陸上に位置する S17 を拠点にして実施した。ここでは、日本側が担当していた粒子数濃度・粒径分布観測と、エアロゾル粒子化学成分とその混合状態について得られた結果の一部を報告する。

2. エアロゾル観測と分析

2.1. 航空機観測

日本―ドイツ共同航空機観測のため、アルフレッド・ウェゲナー極地海洋研究所 (AWI) 所有の双発機 (Polar-2, Dornier-228 型) を使用し、第 48 次夏隊で大気エアロゾル及び温室効果気体の観測・サンプリングを実施した。期間中 28 回の観測飛行を実施することができた。2006 年 12 月 23 日~31 日は、Neumayer 基地周辺と Kohnen 基地周辺 (12 月 28, 29 日のみ) で、2007 年 1 月 7 日~24 日は昭和基地近傍の大陸上に位置する S17 を拠点として航空機観測を行った (図 1)。観測空域は (1) 海水縁周辺上空, (2) 大陸縁辺部氷床上空, (3) 内陸部上空を選定した。観測飛行方法は図 2 に示すように、(1) 鉛直飛行 (積雪・海洋表面上 < 60 m ~ 最高高度約 7500 m の間に数レベル), (2) 対流圏下層飛行 (積雪・海洋表

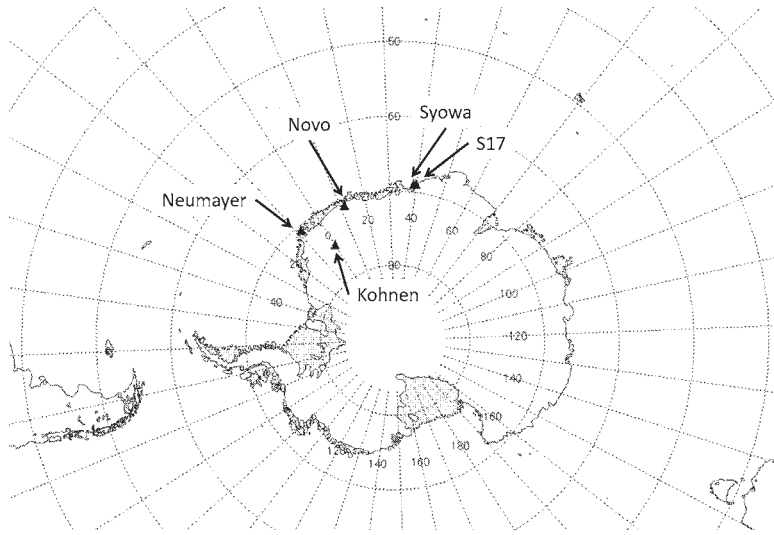


図1 昭和基地, S17, Neumayer 基地, Kohnen 基地, Novo 航空基地の位置
 Fig. 1. Locations of Syowa Station, S17, Neumayer, Kohnen Station and Novo Air Base.

面上 <60 m~最高高度約 4000 m の間に数レベル), (3) 水平飛行(巡航高度は約 3000 m) の3つのパターンに分けられる。(1)は対流圏全体のエアロゾル空間分布を得ること,(2)は氷床-海氷-流水域のエアロゾルの空間分布をとらえること,(3)は長距離飛行時に南極沿岸域でのエアロゾル水平分布をとらえることを目的としている。航空機の飛行は有視界飛行が基本となるため,視程障害が発生し得る気象条件(霧,強風,荒天)では行わず,比較的天候の穏やかな条件下で観測飛行を行った。夏の南極域では低気圧活動による荒天が少なくなり,天候が穏やかとなる日が多くなるため(Sato and Hirasawa, 2007),航空機観測により得られた結果は,典型的な夏のエアロゾル空間分布と対応する。

2.2. エアロゾル観測と個別粒子分析

AGAMESで使用した観測測器を表1にまとめる。観測に使用した観測機器のほとんどはPolar-2のキャビン内に設置した。エアロゾル・ガスの計測とサンプリングのため,機外の大気をiso-kinetic インレット(図3)を使用してキャビン内へ取り込み,各測器へ分配した。AGAMESで使用したエアロゾルインレットは北極で行った航空機観測(ASTAR-2004: Arctic study for tropospheric aerosol and radiation)と同一であり,インレットや配管の様子は,平沢・原(2007),山形ほか(2010)を参照されたい。飛行中のキャビン内の室温は10-15°C程度で,外気温は飛行高度に応じて-5°C前後から<-60°Cと大きく変化していたため,キャビン内に導入したエアロゾルの計測・捕集条件は低相対湿度(乾燥)である。また,高高度では外気とキャビン内の温度差が大きくなるため,有機化合物など

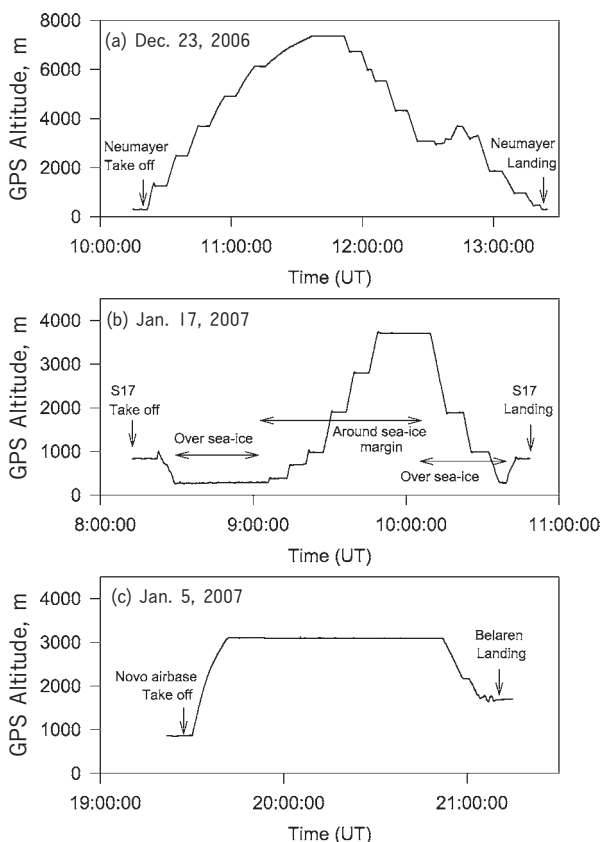


図2 典型的な飛行時の高度変化: (1) 鉛直飛行の例(2006年12月23日), (2) 対流圏下層で行った水平・鉛直飛行の例(2007年1月17日), (c) 水平飛行の例(2007年1月5日)。

Fig. 2. Typical examples of flight trajectories: (1) vertical flight on 23 December, 2006, (2) horizontal and vertical flight in lower troposphere on 17 January, 2007, and (c) level flight on 5 January 2007.

の高揮発性成分が揮発する可能性は避けられない。配管中の静電吸着によるエアロゾルのロスを防ぐため、配管にはステンレスチューブや導電性チューブを使用した。しかし、機外インレットから測器までの配管の長さは約3mになるため、測器に到達するまでにエアロゾル粒子(特に $D_p > 2.0 \mu\text{m}$)の損失が起きることは避けられない。そのため、エアロゾルサンプリングでは主に微小粒子($D_p < 2.0 \mu\text{m}$)が捕集されていたと考えられる。また、帰国後、観測に使用した配管を用いて航空機と同様の流量条件下の粒子損失率を求め、観測で得られた数濃度を補正した。

エアロゾル数濃度観測には、OPC(KC-22B, KC-01D, 共にRION社製)を使用した。KC-22Bの計測可能粒径域は、 $D_p > 0.08, 0.1, 0.2, 0.3, 0.5 \mu\text{m}$, KC-01Dの計測可能粒径域は、 $D_p > 0.3, 0.5, 1.0, 2.0, 5.0 \mu\text{m}$ である。本観測では北極で行ったASTARキャンペー

表1 Polar-2 に搭載した各観測測器と担当者
 Table 1. Instruments on Polar-2 and scientists.

Classification	Data and Instruments	Scientists and Institute	
Aerosols	Aerosol optical thickness	A. Herber (AWI), V. Vitale (Istituto FISBAT-C.N.R.)	
	Sun photometer		
	CN number concentration	A. Minikin (DLR)	
	CPSA/CPC		
	Aerosol and cloud number density (*)	A. Minikin (DLR)	
	PCASP-100X, FSSP-300		
	Aerosol number density	R. Krejci and J. Ström (Stockholm Univ.)	
	Optical particle counter (Grimm)		
	Number density of ultra fine particles	R. Krejci and J. Ström (Stockholm Univ.)	
	Tandem-DMA		
	Aerosol absorption coefficient	R. Krejci and J. Ström (Stockholm Univ.)	
	PSAP		
	Aerosol scattering coefficient	M. Wada and N. Hirasawa (NIPR)	
	Nephelometer		
	Aerosol number density and size distribution	M. Wada and N. Hirasawa (NIPR)	
	Greenhouse gases	Optical particle counter (KC22B and KC01D, RION)	
Aerosol sampling (bulk analysis)		K. Hara (Fukuoka Univ.)	
Filter holder			
Aerosol sampling (single particle analysis)		K. Hara (Fukuoka Univ.)	
Aerosol impactor			
Meteorological and flight data		Gas sampling	S. Morimoto (NIPR)
		GPS data	T. Garbrecht (Optimare)
		Meteorological data	T. Garbrecht (Optimare)
		Relative humidity (CR-2)	M. Wada (NIPR)

*Polar-2 機外（翼下）に設置した。



図3 ANTSYO-II: AGAMES で使用したエアロゾルインレットと航空機 (Polar-2)
 Fig. 3. Photograph of aerosol inlet and Polar-2 in ANTSYO-II: AGAMES.

ンと同様に短波長ネフエロメータ (Radiance Res.) を用いて、エアロゾル散乱係数の観測も実施したが、粒子数濃度が極めて低く、全ての観測でネフエロメータの計測下限以下だった。Polar-2 のキャabinは非与圧のため、OPC の計測データ取得に使用していた PC が上空で停止することがあり、5000 m 以上の高度ではデータ取得率が低くなった。

個別粒子分析用のエアロゾル試料採取には、航空機観測用に開発したエアロゾルインパクター (AIS Type-IV, 流量 25 L/分, カットオフ径約 $0.2 \mu\text{m}$) を使用した。粒子の捕集面には TEM (Transmission Electron Microscope=透過型電子顕微鏡) 用のニッケル製マイクログリッドで支持し、カーボン蒸着処理をしたコロジオン薄膜を用いた。個別粒子観察・分析には、TEM (JEM-100CX, JEOL) と SEM-EDX (走査型分析電子顕微鏡; Quanta FEG-200F, FEI; XL30, EDAX) を使用した。観察・分析条件は、TEM では加速電圧 80 kV, SEM では 20 kV, EDX 積算時間は 30 秒とした。分析手順は、Hara *et al.* (2002, 2005) に準拠した。

2.3. 後方流跡線解析

AGAMES で観測された空気塊の履歴を理解するために、国立極地研究所粒跡線モデル (<http://www.firp-nitram.nipr.ac.jp/>) を使用して、観測空域から 6 日間の後方流跡線を計算した。計算に使用したデータセットは NCEP の Reanalysis 2, 計算方法は Kinematic モードである。

3. 結果と考察

3.1. 夏季南極対流圏のエアロゾル組成

図 4 に、航空機観測で得られたエアロゾル粒子の TEM 像の一例を示す。多くの粒子 (例: 図 4a) はこれまでに南極域での航空機観測 (Iwasaka *et al.*, 1985; Hara *et al.*, 2006) でも確認されたサテライト構造を示す粒子だった。南極沿岸や内陸部で採取された Ca 薄膜との反応性から、サテライト粒子の主成分は H_2SO_4 であることが明らかとなっている (Yamato *et al.*, 1987)。また、サテライト粒子だけでなく、自由対流圏中層で海塩粒子や土壌粒子と見られる固体粒子も観察されることがあった (図 4b)。さらに、最高高度 (7400–7500 m) でサテライト構造を示さない液滴上粒子 (非サテライト粒子) が確認されることがあった (図 4b, c の矢印)。中性の硫酸塩粒子 (例えば $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$) の時は結晶のような構造を示すため (図 4c の▲印)、異なった化学組成を有していると考えられる。非サテライト粒子の電子透過性 (図 4b, c) を考慮すると、電子透過性の低いフライアッシュのような固体粒子ではない。この非サテライト粒子は、自由対流圏上層 (5000–6000 m 以上) で確認されることが多く、夏季南極対流圏に存在するエアロゾル粒子の起源を考慮する上で非常に重要である。

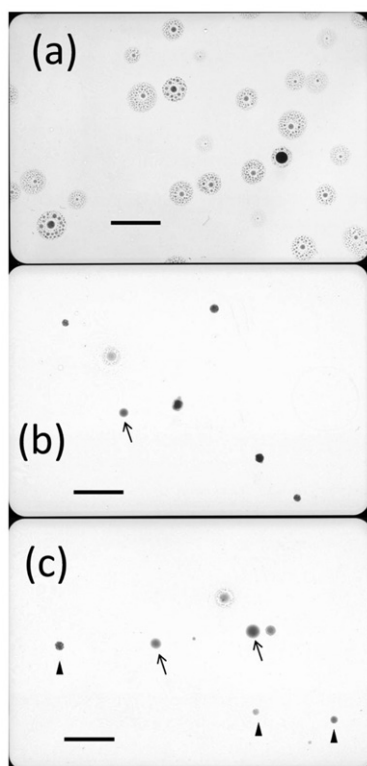


図4 2006年12月28日に Kohnen 基地上空で採取されたエアロゾル粒子のTEM像: (a) 3000-3200 mで捕集, (b) 6500-6800 mで捕集, (c) 7000-7300 mで捕集。黒色のバーは、 $2\mu\text{m}$ の長さを示す。

Fig. 4. Typical examples of TEM images of aerosol particles collected over Kohnen Station on 28 December 2006: (a) 3000-3200 m, (b) 6500-6800 m and (c) 7000-7300 m. Black bars indicate length of $2\mu\text{m}$.

図5に、SEM-EDXにより分析した個々の粒子組成の例を示す。図5aでは、エアロゾル由来の成分としてSのみが確認されていた。このタイプの粒子は全サンプルで主要な粒子であり、サテライト構造を呈した粒子だったため、前述のように H_2SO_4 を主成分とする粒子と同定される。また、TEMによる観察やEDX分析後に残渣として確認された固体粒子の形状から、まれにスス粒子を含む粒子も存在していた。図5bでは、Na, Mg, Sが粒子成分として確認された。NaとMgが確認されたことから、図5bの粒子は、硫黄を含む酸性成分によりClロスが進行した（完全にClが損失した）海塩粒子と考えられる。AGAMESでの観測では、対流圏下層で図5bのような粒子が頻繁に観測された。この結果は、夏季南極沿岸域対流圏下部で、硫酸やメタンスルホン酸によりClロスが進行していたことと非常によく一致していた (Mouri *et al.*, 1999; Hara *et al.*, 2005)。図5cでは、Na, Cl, Kが確認された。この粒子では、Kが明瞭に検出されていたが、海水組成比 (Wilson,

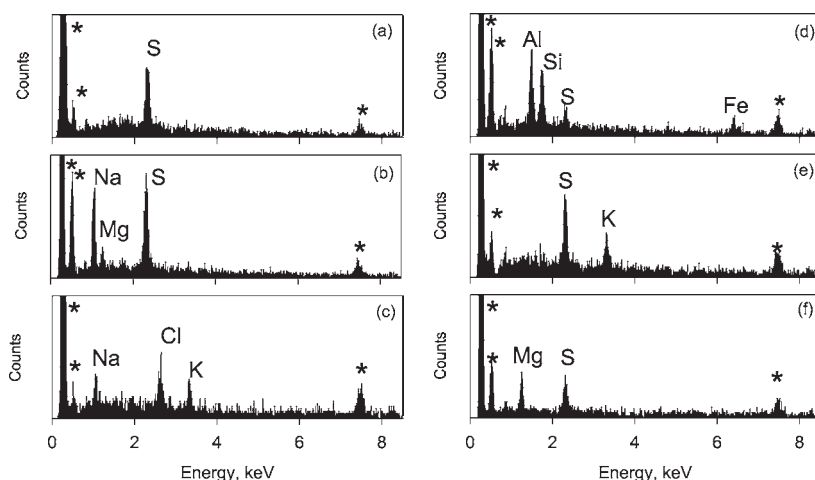


図5 ANTSYO-II: AGAMESで捕集された個々のエアロゾル粒子のEDXスペクトルの一例: (a) 硫酸粒子, (b) Clロスした海塩粒子, (c) K-richの海塩粒子, (d) Sを含む鉱物粒子, (e) Kを含む硫酸塩粒子, (f) Mgを含む硫酸塩粒子. アスタリスクは, サンプル基板に由来するバックグラウンドピークを示す.

Fig. 5. Typical examples of EDX spectra of each aerosol particle collected in the ANTSYO-II AGAMES campaign: (a) sulfate (H_2SO_4) particle, (b) wholly Cl-depleted sea-salt particle, (c) K-rich sea-salt particle containing S, (e) sulfate particle containing K, and (f) sulfate particle containing Mg. Asterisks indicate background peaks derived from supple substrates.

1975) と比べると, K の割合が高く, K が濃縮した海塩粒子あるいは海塩様粒子と考えられる. 海洋表面からの海塩粒子発生では図 5c のような K 濃縮は起こらないため (Keene *et al.*, 2007), 海洋表面以外の発生源から放出されている可能性を検討する必要がある. 南極圏内のほとんどは雪氷で覆われているため, 土壌粒子の発生強度は極めて低いが, 図 5d に示すように Al, Si を含有する土壌粒子が確認された. 一部の土壌粒子では, Fe や S も混合しており, 一部の土壌粒子は硫酸と内部混合していることが示唆される. 図 5e では, S と K が検出された. 夏季南極域の硫酸粒子の多くは海洋生物活動の影響を強く受けているが (原, 2003), 海洋生物活動由来の硫酸粒子に K が混合することはなく, 図 5a のような組成を有する粒子となる. Okada *et al.* (2006) によると, K を含む硫酸塩粒子は, バイオマス燃焼や化石燃料燃焼により大気へ放出される. 大気輸送中の不均一過程により, 図 5a のような硫酸粒子に K が混合する過程は起こりにくいため, K を含む硫酸塩粒子は低中緯度域での燃焼過程で大気へ放出され, 南極域まで長距離輸送されていたと考えられる. 図 5f では, Mg と S が検出された. EDX 分析で得られた Mg と S の原子数比から, この粒子は $MgSO_4$ を主成分としていると考えられる. 内陸部では Mg-rich の粒子が存在する可能性がドームふじ基地で行われたエアロゾル観測でも確認されており (原ほか, 2010c), 夏季南極対流圏中の物質循環を考察する上でも非常に興味深い粒子である. 図 5 に示した粒子以外

に, Zn を含有する人為起源粒子, CaSO_4 と見られる組成比を有する粒子なども観察された。

3.2. 夏季南極対流圏のエアロゾル混合状態と鉛直分布

図5で確認されたエアロゾル粒子に対して定量的に鉛直・空間分布の比較をするために, 各粒子組成・混合状態の存在割合 (Relative abundance) を求めた。ここでは TEM による形態観察や EDX 分析結果に基づき, (1) 海塩粒子 (Cl が検出される), (2) 変質海塩粒子 (完全に Cl が損失している), (3) 土壌粒子 (Si, Al が検出される), (4) CaSO_4 (Ca, S のみ検出), (5) K を含有する硫酸 (塩) 粒子, (6) 外部混合状態のスス粒子, (7) ススが内部混合した硫酸 (塩) 粒子, (8) 外部混合状態の硫酸 (塩) 粒子, (9) 人為金属含有粒子 (Zn などの重金属を含有), (10) その他に分類した。図5cで確認された海塩様粒子については, 起源がはっきりしないため, ここでは海塩粒子に含めた。各粒子の存在割合の鉛直分布を図6に示す。本報告では, 解析・集計が終わっている Neumayer 基地, Kohnen 基地周辺で観測された結果を中心に考察する。

Neumayer 基地 (沿岸部), Kohnen 基地 (内陸部) 周辺で捕集したエアロゾル粒子は, 主に図4aのようなサテライト粒子だったため, 前述のように主成分は H_2SO_4 と考えられる。硫酸 (塩) 粒子以外の成分で存在割合の高かった成分は, 海塩粒子と変質海塩粒子だった。海塩粒子は対流圏下層 (<3000 m) だけでなく, 中層 (>3000 m)~上層 (>6000 m) でも存在割合が高くなることもあり, 10% 程度まで増加することがあった。Neumayer 基地周辺 (沿岸域) 上空では, Cl を含有する海塩粒子は対流圏中層~上層で確認されたが, 下層では Cl が完全に損失した (変質した) 海塩粒子がほとんどだった。夏季の南極沿岸域では, 海塩粒子は主に SO_4^{2-} , CH_3SO_3^- により Cl が損失している傾向が得られていたことを考慮すると (Mouri *et al.*, 1999; Hara *et al.*, 2005), 下層で観測された変質海塩粒子は, 大陸沿岸域周辺を起源とする海塩粒子と考えられる。一方, 自由対流圏中層~上層に存在していた海塩粒子は Cl を含有する粒子が多く, 下層に存在する海塩粒子と組成が大きく異なっていた。夏季南極域内では, 対流により下層の物質が上層まで輸送されているとは考えにくい。上層に存在する海塩粒子は, 下層に存在する海塩粒子と発生する地域 (緯度) が異なっている可能性がある。K 含有硫酸 (塩) 粒子と, ススと内部混合した硫酸 (塩) 粒子は対流圏中層 (>3000 m)~上層 (>6000 m) で存在割合が高く, 7% 程度まで増加することがあった。K 含有硫酸 (塩) 粒子は対流圏下層 (<3000 m) で確認されることがあったが, ススと硫酸の内部混合粒子は, 対流圏中層~上層のみで確認された。また, ススと硫酸の内部混合粒子の割合が高い時は, K 含有粒子の割合が高い時 (例: 12月23日, 12月28日) に対応していた。一方, 上層 (>6000 m) で K 含有硫酸 (塩) 粒子, スス, 内部混合した硫酸 (塩) 粒子が検出されない例もあり (12月24日, 12月31日), 鉛直分布の違いと空気塊の履歴の対応を確認する必要がある。ススや K 含有硫酸 (塩) 粒子は, バイオマ

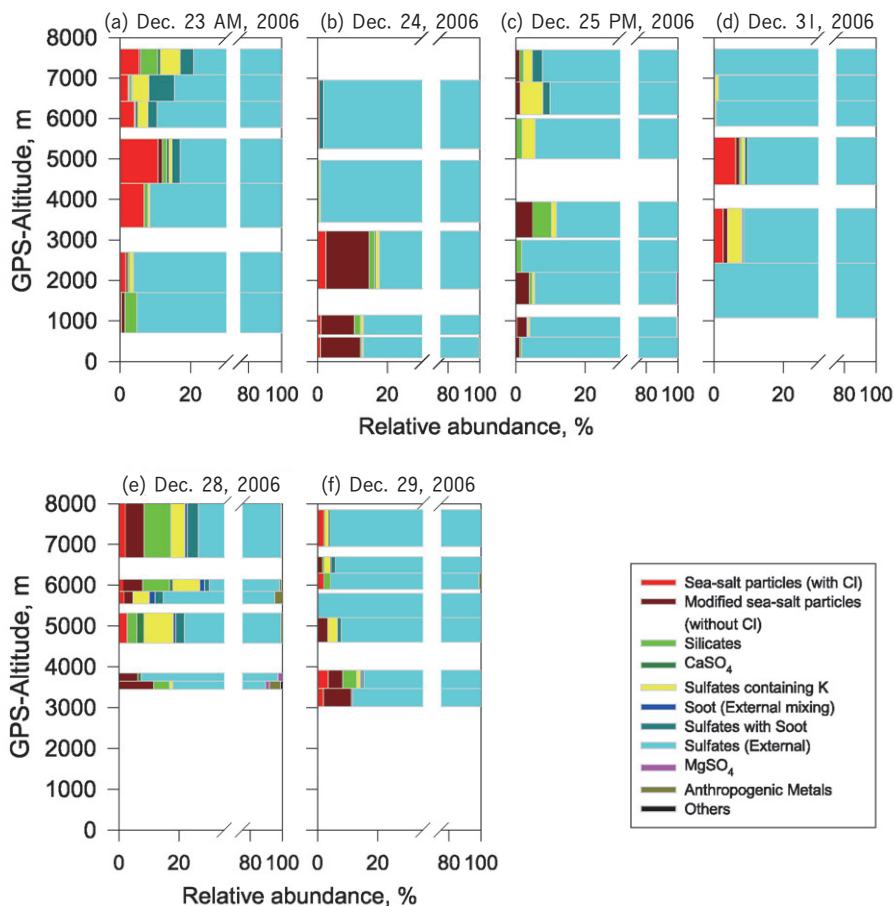


図6 ANTASYO-II AGAMES で得られたエアロゾル組成と混合状態の存在割合の鉛直分布
 Fig. 6. Vertical distributions of relative abundance of aerosol constituents and the mixing states in the ANTASYO-II: AGAMES campaign.

ス燃焼や化石燃料燃焼などの燃焼過程から放出されるため (Andreae and Merlet, 2001; Okada *et al.*, 2008), 図6で確認された鉛直分布は, 対流圏上層経由で燃焼起源物質が南極上空へ輸送されていることを示唆する。

3.3. エアロゾル捕集を行った空気塊の履歴

3.3.1. Neumayer 基地周辺上空の空気塊の履歴

図7に, 各観測空域・高度からの6日間の後方流跡線の分布を示す。2006年12月23日では(図7a), 最下層(ca. 1000 m)は大陸沿岸域に沿って東側から輸送されていた。<3500 mではウェッデル海~大西洋上の境界層や, 自由対流圏下層から輸送されていた。この空気塊の履歴は, 燃焼起源物質の割合が低く, 海塩粒子が中層で確認されていた結果(図6)と

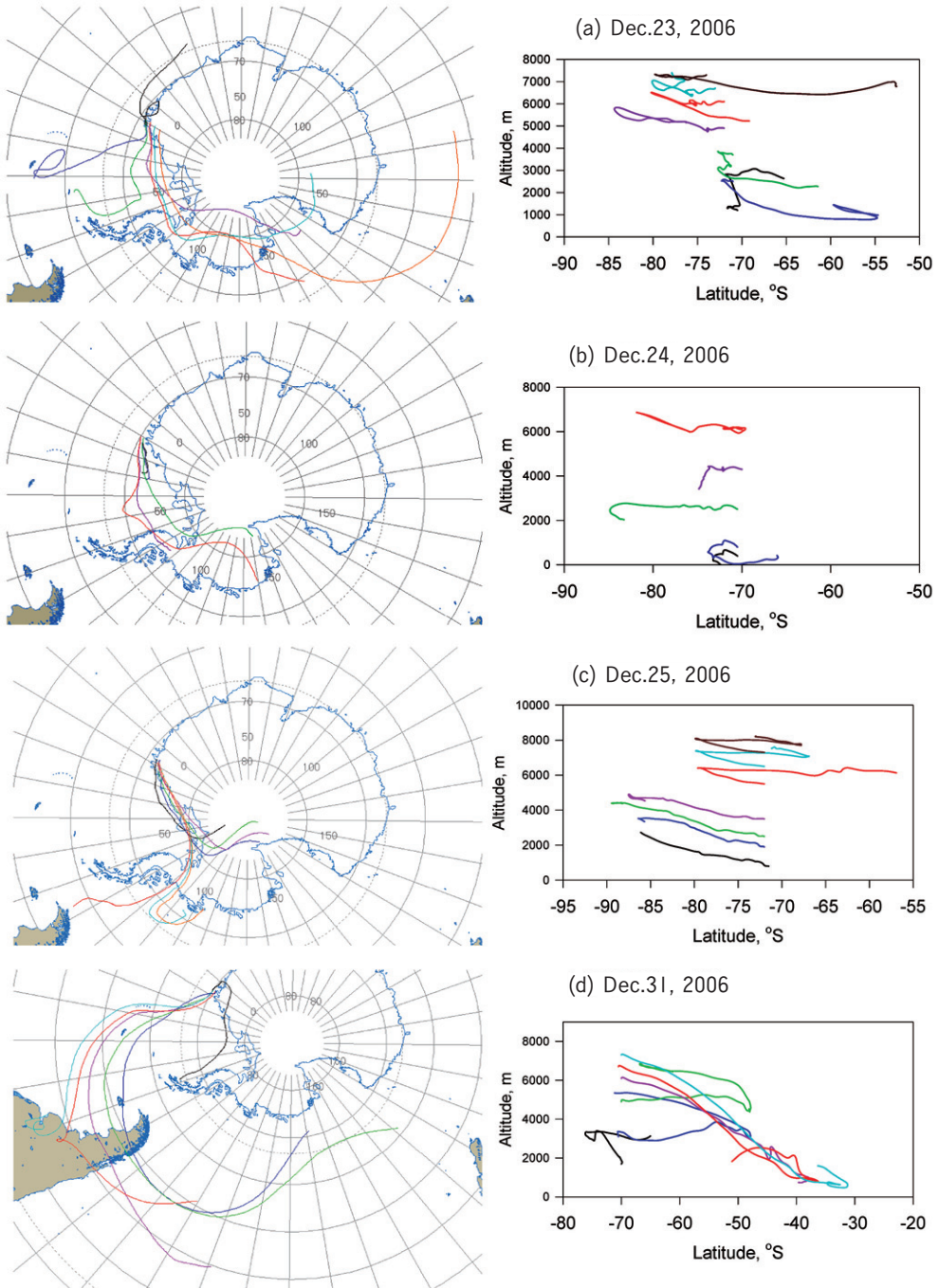


図7 飛行空域からの6日間後方流跡線: (a) 2006年12月23日, (b) 2006年12月24日, (c) 2006年12月25日, (d) 2006年12月31日.

Fig. 7. 6-day backward trajectories from the flight areas around Neumayer Station: (a) 23 December 2006, (b) 24 December 2006, (c) 25 December 2006, and (d) 31 December 2006.

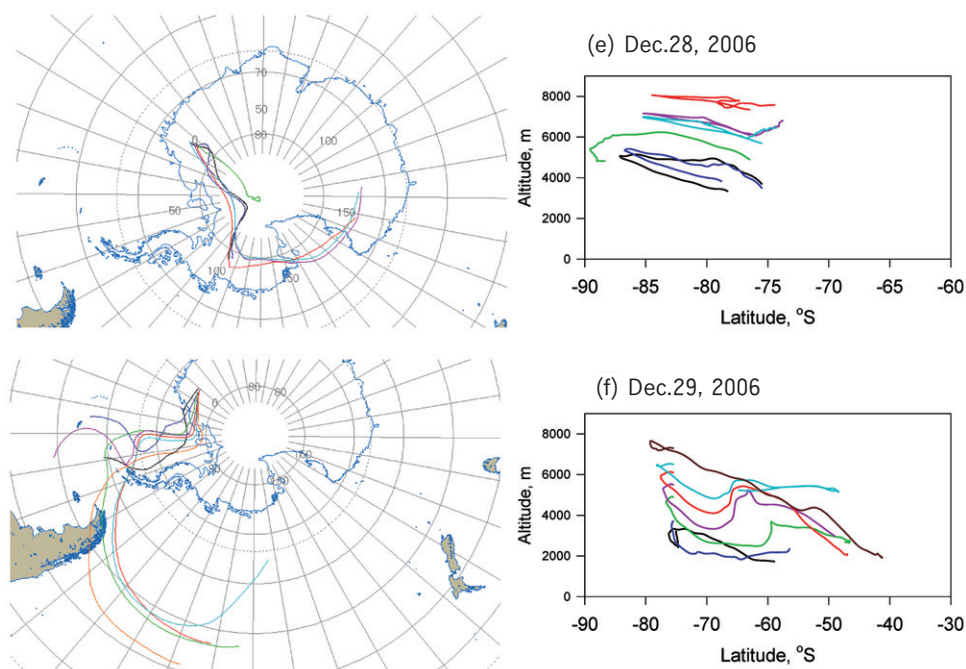


図7 飛行空域からの6日間後方流跡線: (e) 2006年12月28日, (f) 2006年12月29日.
 Fig. 7. 6-day backward trajectories from the flight areas around Kohonen Station: (e) 28 December 2006, (f) 29 December 2006.

よく対応している。>5000 m では、空気塊はロス海—太平洋—インド洋上空から輸送されていたが、過去6日間の輸送高度は5000 m より高く、下層との混合は確認されなかった。特に、最高高度(7500 m)の空気塊は、>6500 m の高度で中緯度(<55°S)から観測空域に輸送されていた。12月23日には、>6000 m で確認された燃焼起源物質(K含有硫酸塩、ススと硫酸の内部混合粒子)は中緯度域から南極域へ上空経路で輸送されていたのだろう。しかしながら、後方流跡線解析で得られた結果では、過去6日間は下層との混合は確認されなかった。参考のために10日間の後方流跡線も計算したが(図示はしていない)、下層からの混合は確認されず、空気塊は6000–8000 m の高度を流れていた。以上から、南極対流圏上部で確認された燃焼起源の粒子は、対流圏上層まで鉛直輸送され、観測空域まで輸送されていた可能性が考えられる。南極周辺域の対流圏上層に存在する燃焼起源の粒子の直接観測の例は、著者の知る限りこれまで行われていないため、他の観測との比較は行えず、現状では空気塊やBCの輸送を解析したモデルと比較することしかできない。モデルによるBC濃度の分布をみると、低緯度域のバイオマス燃焼起源のBC濃度は、南半球の夏季(1–3月)に低緯度~南極上空の対流圏上層~成層圏下部相当の高度(<200 hPa)において高い傾向が得られていた(Koch and Hansen, 2005)。また、Stohl and Sodemann *et al.* (2010)

による南極上空の空気塊の輸送に関するモデル検証でも、夏の南極自由対流圏では上空(成層圏)の大気の影響を強く受けていることが示唆されていた。モデルの結果の精度の問題はあるものの、観測から得られた結果とよく対応している。

図 7b に示したように、12月24日の空気塊は南極沿岸域(ウェッデル海~ロス海)から輸送され、鉛直方向の大きな混合も確認されなかった。この空気塊の履歴は、燃焼起源成分の割合が極めて低く、硫酸と海塩粒子が主要だった結果(図6)と非常によく対応している。12月23日の空気塊の履歴と比較すると、中緯度域からの空気塊の流入が燃焼起源物質の輸送に重要であることが示唆される。

12月25日の空気塊の履歴では(図7c)、 <4000 mの高度は南極沿岸域~内陸(南極点周辺)上空での輸送経路だった。この空気塊の履歴は、エアロゾルが硫酸(塩)粒子と変質海塩粒子で構成されていた観測結果とよく一致している。燃焼起源物質の割合が高かった >4000 mでは、南極周辺海域や南米南端から空気塊が輸送されていた。しかしながら、12月23日の例と同様に、過去6日間に対流圏下層との鉛直混合は確認されなかった。

12月31日では(図7d)、 2000 mの空気塊がウェッデル海周辺上空から輸送されていたのに対し、 >3000 mでは大西洋-南米-太平洋からの輸送が確認された。燃焼起源物質や海塩粒子の存在割合の高かった 3000 - 5000 mの空気塊では、中緯度域からの輸送が確認されたが、対流圏下層(境界層)からの鉛直混合は確認されなかった。 >6000 mの空気塊では、中緯度域からの輸送に加えて、対流圏下部(<1000 m)からの鉛直混合も起きていたが、エアロゾルは主に硫酸(塩)粒子で構成されていた。

3.3.2. Kohnen 基地上空の空気塊の履歴

図 7e-f に Kohnen 基地上空で観測した事例の空気塊の履歴を示す。12月28日の例では、(図7e)、空気塊はほぼ全高度で大陸上に滞留しており、鉛直方向の混合、特に対流圏下層からの鉛直混合は確認されなかった。しかし、図6に示したように、この日は上空で海塩粒子、土壌粒子、燃焼起源粒子の割合が高かった。12月23日の観測事例と同様に(図6)、上空経由の輸送で南極域に輸送されている可能性がある。

12月29日の事例では(図7f)、 <4000 mでウェッデル海上の境界層上端~自由対流圏下層とみられる高度から観測空域まで空気塊が輸送されていたが、 >4000 mでは南米最南端-太平洋上の境界層上端-自由対流圏下層から Kohnen 基地上空に輸送されていた。中緯度域からの輸送が確認されたが、高度が <3000 mとなるのは太平洋上空で、南米大陸上空に空気塊が到達する時には自由対流圏中層(>3000 m)付近に位置していたため、南米大陸南端付近の燃焼起源や、陸域起源物質の直接的な影響は少なかったと考えられる。

12月29日の空気塊の輸送経路は、12月31日の輸送経路と非常によく似ていた。いずれの日も鉛直混合が確認されたにもかかわらず、燃焼起源物質(K含有硫酸粒子)の検出される割合は低く、上空経由のみの輸送が確認された23日、28日で燃焼起源物質の割合が高

くなっていた。この結果は、(1) 鉛直混合時による雲形成に伴い、燃焼過程起源のエアロゾル粒子の湿性沈着（除去）が起きている可能性や、(2) 上空経由での燃焼起源物質の南極域への長距離輸送の可能性を検討する必要がある。(1)による過程が支配的であるならば、上空では燃焼起源物質の割合が高くなることはない(例: 12月23日)。鉛直混合が確認されなかった観測例でも、燃焼起源粒子の割合が上空で高かったことや、南半球中緯度域での温室効果気体 (CH_4 , CO) の観測から、低緯度域起源の大気微量成分が対流圏上部経由で輸送されていることが指摘されていたため (Francey *et al.*, 1999)、低緯度域の燃焼過程 (バイオマス燃焼) 由来のエアロゾル成分が対流圏上層経由で南極域まで輸送・拡散していることが考えられる。夏季の燃焼起源物質 (BC) の上空経由による南極域への輸送は、地上での BC 観測 (原ほか, 2010c) やモデル (Koch and Hansen, 2005) でも指摘されており、航空機観測で得られた結果 (図6) と非常によく対応している。BCなどの燃焼起源のエアロゾル粒子は、対流圏上層経由の輸送と、南極周辺海域の低気圧活動に伴う対流圏下層経由の輸送 (Hara *et al.*, 2010a, 原ほか, 2010b) があることが考えられる。この輸送過程を理解することは、エアロゾルの関連する物質の循環・輸送過程だけではなく、アイスコア記録の解釈などにも密接に関係しているため、今後の継続的な観測やモデルによる検証が重要である。

3.4. 夏季南極対流圏のエアロゾル粒子数濃度分布と粒径分布

3.4.1. 海水縁付近のエアロゾル数濃度変化と粒径分布

図8に、Neumayer 基地近傍の海水縁付近の観測で得られたエアロゾル数濃度変化を示す。12月25日には氷床 (大陸)、棚氷、開水域上を飛行した。12月25日の観測では、開水域に若干の流水が確認されたが、棚氷の末端が海水縁となっていた。 $D_p > 0.08 \mu\text{m}$ (0.1, $0.2 \mu\text{m}$ も同様) では、棚氷上と開水域上空の粒子数濃度に大きな差は確認されなかったが、 $< 1000 \text{ m}$ の高度では $D_p > 0.3 \mu\text{m}$ や $D_p > 1.0 \mu\text{m}$ のエアロゾル数濃度は海水・棚氷上で低く、開水域上空に達した途端に急激に粒子数濃度が増加する変化を示した。海塩粒子は海洋表面の波の破碎や泡の破裂によって生成するため、開水域でエアロゾル数濃度が明瞭に増加する主な要因は、海洋表面からの海塩粒子発生だと考えられる。 $D_p > 0.08 \mu\text{m}$ (0.1, $0.2 \mu\text{m}$) で大きな差が確認されなかった要因は、硫酸 (塩) 粒子などの非海塩粒子の寄与が大きいためだと推測できる。図8の1400 UT 前後や1500 UT 前後には、開水域上空をそれぞれ1000–1200 m、約1300 mの高度で飛行していたが、 $D_p > 0.3 \mu\text{m}$ や $D_p > 1.0 \mu\text{m}$ のエアロゾル数濃度は低い状態だった。1400 UT 前後の事例では、高度が下がるにつれ、エアロゾル数濃度が高くなっていた。この変化は、境界層上部~自由対流圏下部のエアロゾル鉛直分布をとらえていたと考えられる。

図9に、昭和基地近傍の海水縁付近の飛行で得られたエアロゾル数濃度変化を示す。

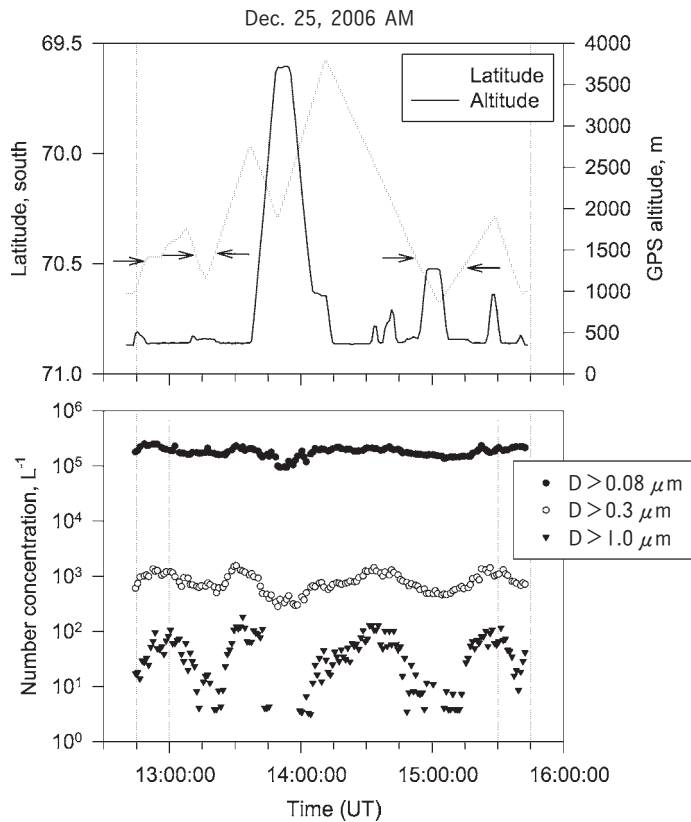


図8 2006年12月25日に観測されたNeumayer基地近傍の棚氷～開水域上空のエアロゾル数濃度変化。矢印は海水縁の位置を示す。

Fig. 8. Variation of aerosol number concentration over shelf ice and open-sea area off Neumayer Station on 25 December 2006. Arrows indicate location of sea-ice margin.

Neumayer基地と比べて航空拠点から海水縁までの距離があるため、大陸縁辺部の航空拠点—海水縁—流水域—開水域にかけてのエアロゾルの水平分布を観測することができた。図9に示した事例では、S17から海水縁に向かう際は高度約360mで飛行し、海水縁からS17へ戻る際には高度約1200mで飛行した。海水域上空<400mの高度では、 $D_p > 0.3 \mu\text{m}$ 、 $D_p > 1.0 \mu\text{m}$ の粒子数濃度は、それぞれ約1300個/L、約30個/L前後で、ごくわずかに海水縁側で高くなる傾向が確認された。定着氷の海水縁を超えた所で、 $D_p > 0.3 \mu\text{m}$ 、 $D_p > 1.0 \mu\text{m}$ の粒子数濃度は増加を始め、流水域を完全に抜けたところで急激に数濃度が増加していた。開水域上空で $D_p > 1.0 \mu\text{m}$ の粒子数濃度が急激に増加したことから、図8の事例と同様に、海塩粒子の水平分布に大きな濃度勾配があることが示唆される。このエアロゾル水平分布の要因としては、(1)海塩粒子の乾性沈着、(2)大陸縁辺部ではカタバ風(内陸性大気)の影響が強いことが考えられる。一方、<400mの高度で観測された $D_p > 0.08 \mu\text{m}$ の

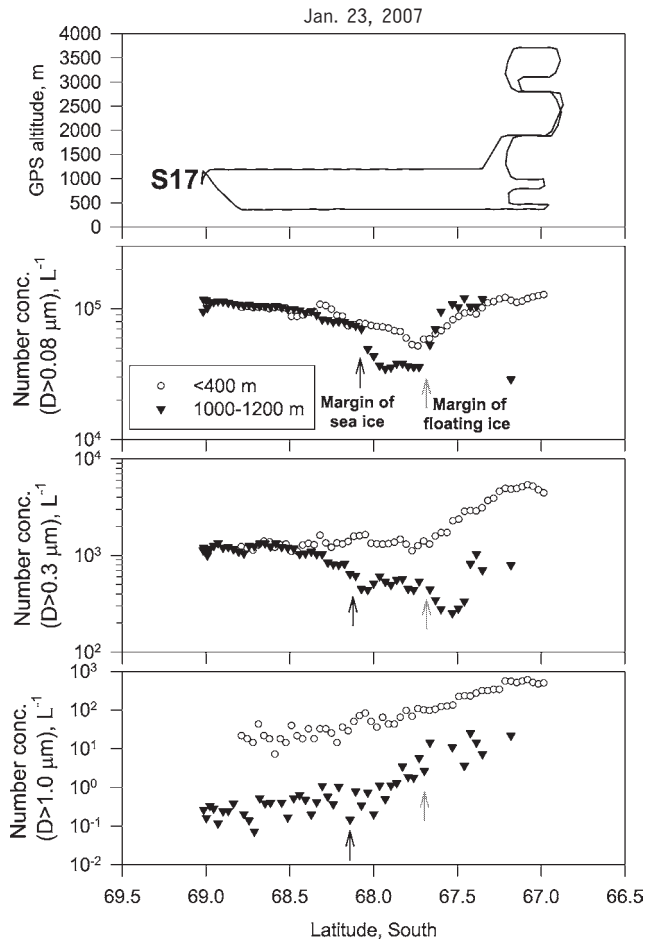


図9 2007年1月23日に観測された昭和基地近傍の海水~開水域上空のエアロゾル数濃度変化。黒矢印、灰色矢印は、それぞれ定着氷縁、流氷縁の位置を示す。

Fig. 9. Variation of flight height and aerosol number concentrations from continent to open-sea area off Syowa Station on 23 January 2007. Black arrow and gray arrow indicate margins of sea-ice and floating ice, respectively.

粒子数濃度では、S17から海水縁に向かうにつれて粒子数濃度が減少する傾向があり、開水域に到達した時に数濃度が増加する傾向が確認された。 $D_p > 0.08 \mu\text{m}$ の粒子数濃度は非海塩性粒子(例: 硫酸粒子)の影響を強く受けるため、非海塩性粒子の数濃度は境界層内では大陸縁辺部の方が高い分布を示す可能性がある。この点については、今後の検討・研究課題の一つである。

境界層上端~自由対流圏下層に相当する1000-1200 mの高度では、 $D_p > 0.08 \mu\text{m}$ 、 $D_p > 0.3 \mu\text{m}$ のエアロゾル数濃度は、大陸縁辺部から海水縁に向かうにつれて数濃度が下がる傾向が確認された。図10に一例を示したように、海水縁~開水域上空(1000-1500 m付近)で

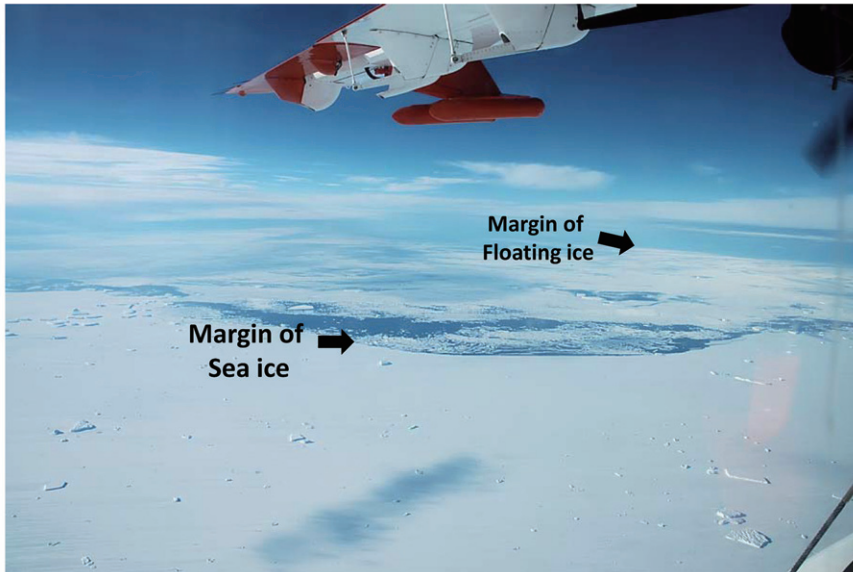


図 10 昭和基地沖の海水縁付近の写真 (2007 年 1 月 22 日撮影)

Fig. 10. Typical example of photograph around sea-ice margin off Syowa Station on 22 January 2007.

は雲が出ていることが多かった。1月23日の観測でも雲が出ており、雲底付近の高度では、降水(雪)も起きていたため、雲粒や降水過程によりエアロゾルの除去が起き、粒子数濃度が減少していた可能性がある。

1000-1200 m の高度で観測された $D_p > 0.08 \mu\text{m}$ の粒子数濃度は、開水域上空で高くなっていた。Hara *et al.* (2010a) でも指摘したように、夏季には境界層上端~自由対流圏下層で新粒子生成が頻繁に起きるため、開水域上空で $D_p > 0.08 \mu\text{m}$ の粒子数濃度が高くなっていたのは、新粒子生成やその後の粒子成長と関係していたと考えられる。詳細については、AGAMES で得られた CN 濃度 (ストックホルム大, DLR (Deutschen Zentrums für Luft- und Raumfahrt) が担当) などのデータと比較していく必要がある。

1000-1200 m の高度の $D_p > 1.0 \mu\text{m}$ の数濃度は、 $< 400 \text{ m}$ の分布と同様に大陸縁辺部から海水縁に向かうにつれ徐々に増加し、開水域に到達した時点で急激に増加していた。この水平分布は海洋表面からの海塩粒子の発生と、雲層 (あるいは高相対湿度) での粒子成長の影響を受けていることが考えられる。詳細は、他の観測事例と合わせて今後の解析を進めていきたい。

3.4.2. エアロゾル数濃度の鉛直分布

図 11, 図 12 に Neumayer, Kohnen, 昭和基地周辺で観測されたエアロゾル数濃度鉛直分布を示す。Neumayer 基地, 昭和基地近傍で観測された $D_p > 1.0 \mu\text{m}$ の数濃度は、 $< 1000 \text{ m}$

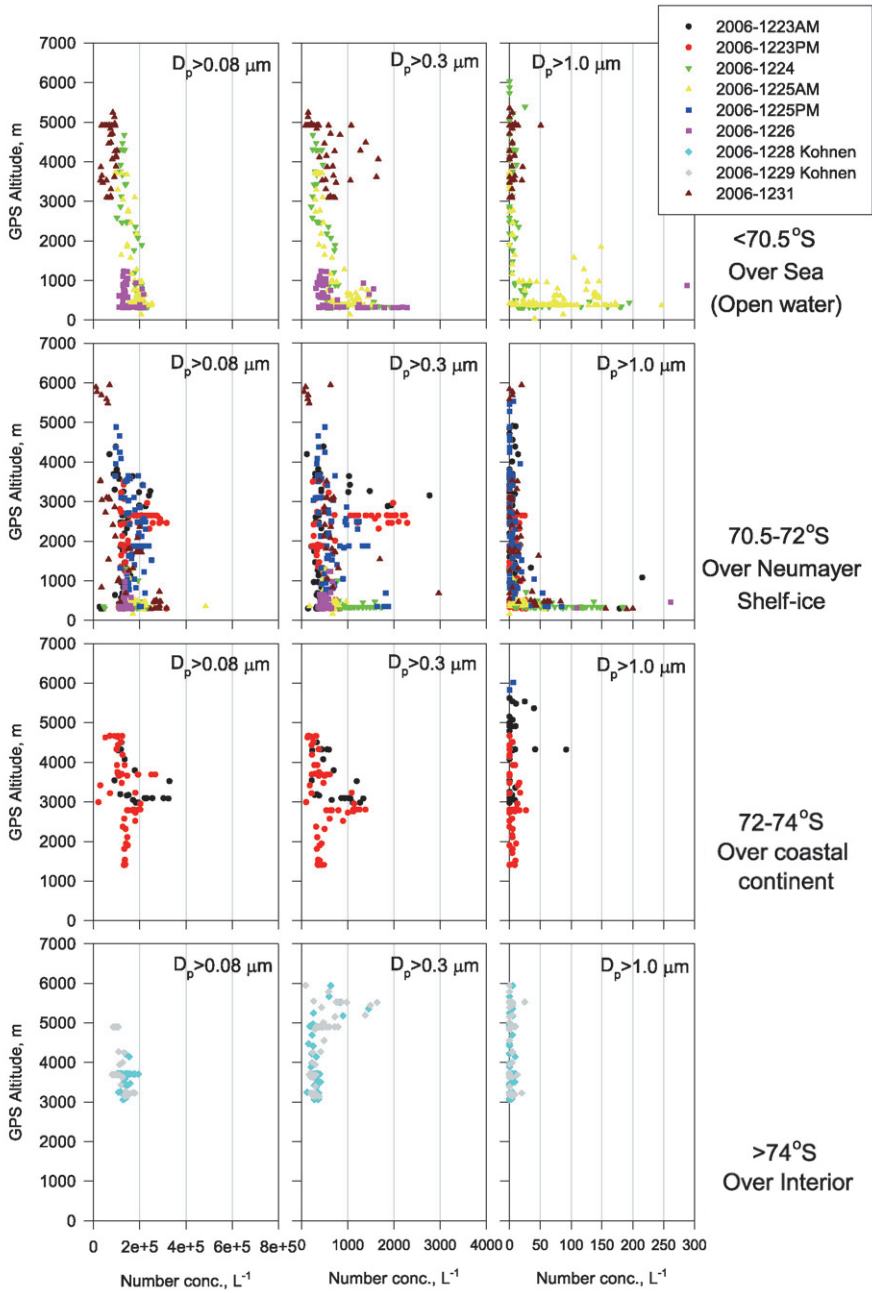


図 11 Neumayer 基地, Kohnen 基地上空のエアロゾル数濃度鉛直分布

Fig. 11. Vertical features of aerosol number concentration over Neumayer and Kohnen Stations.

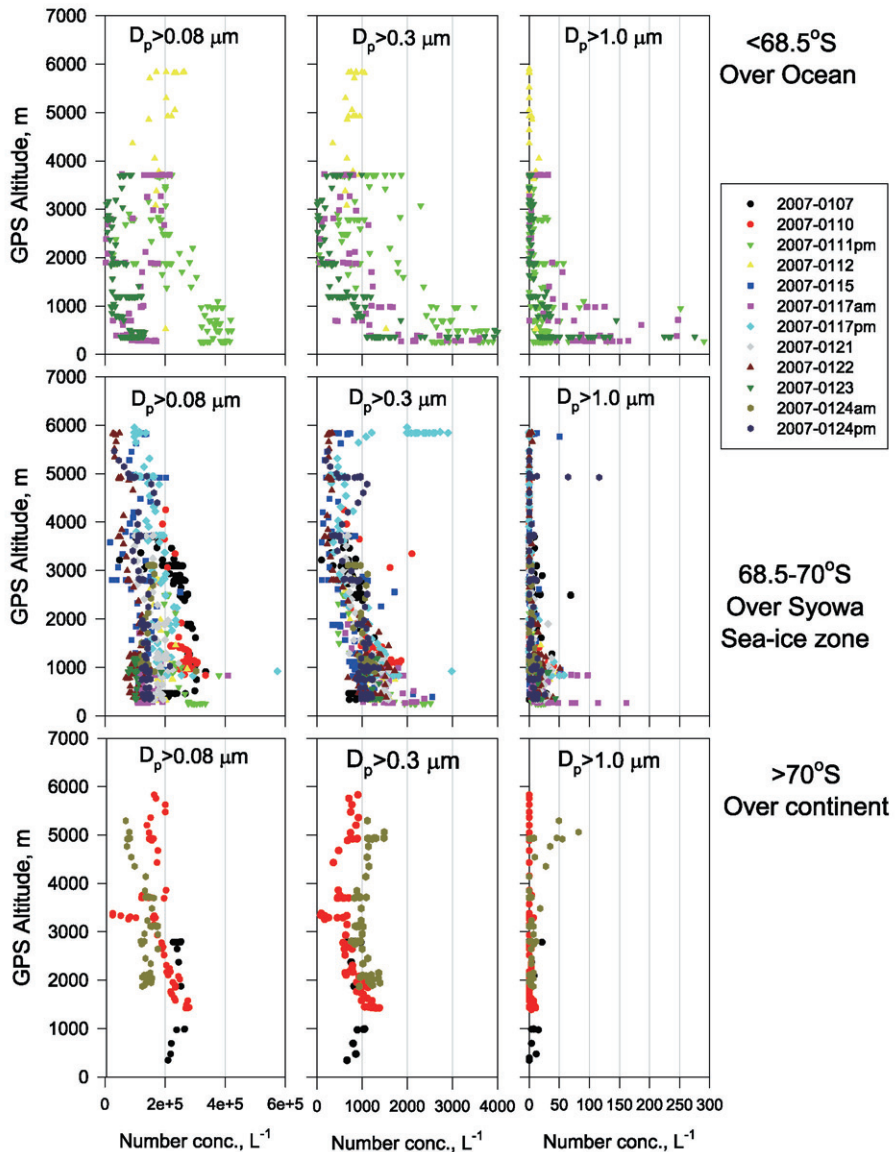


図 12 昭和基地上空のエアロゾル数濃度鉛直分布

Fig. 12. Vertical features of aerosol number concentration around Syowa Station.

の高度で濃度が高く、自由対流圏 (>1500 m) では極めて低い数濃度となっていた。図 8、図 9 で示したように、特に海氷縁~開水域の下層で数濃度が非常に高くなっており、海塩粒子の寄与が考えられる。大陸氷床や内陸部での数濃度は、沿岸~開水域と比べて非常に低かった。 $D_p > 1.0 \mu\text{m}$ の数濃度では、Neumayer 基地、昭和基地近傍の開水域での大きな差は確認されなかった。

$D_p > 0.3 \mu\text{m}$ の数濃度は、 $D_p > 1.0 \mu\text{m}$ の分布と同様に下層で数濃度が高くなっていた。図 8, 図 9 で示したように、開水域上で数濃度が高く、大陸上での数濃度は減少していた。 $D_p > 1.0 \mu\text{m}$ では、Neumayer 基地と昭和基地近傍の開水域では数濃度レベルに大きな差は確認されなかったが、 $D_p > 0.3 \mu\text{m}$ の数濃度では、昭和基地側の開水域で数濃度が高くなっていた。Neumayer 基地側で数濃度が高かった時（12月26日）の開水域最下層の風速が $< 6 \text{ m/s}$ だったのに対し、昭和基地側の開水域で数濃度が高かった時（1月11日）の開水域最下層の風速は $8\text{--}10 \text{ m/s}$ だった。海洋表面からの海塩粒子発生量は風速に強く依存するため（Lewis and Schwarz, 2004）、 $D_p > 0.3 \mu\text{m}$ の数濃度レベルの違いは地域差ではなく、観測時の風速の違いを反映していたことが考えられる。

Neumayer 基地周辺の $> 1000 \text{ m}$ の高度では、 $D_p > 0.3 \mu\text{m}$ の粒子数濃度は主に $< 1000 \text{ 個/L}$ に分布することが多く、平均すると約 500 個/L 前後であり、昭和基地側の $> 2000 \text{ m}$ の高度でも、Neumayer 基地周辺上空と同程度の数濃度レベルだった。ANTSYO-II: AGAMES で観測された $D_p > 0.3 \mu\text{m}$ の数濃度レベルは、これまでに昭和基地上空で夏季に行われた航空機観測で得られたエアロゾル数濃度とよく一致していた（Yamanouchi *et al.*, 1999; Osada *et al.*, 2006）。一方、内陸に位置する Kohlen 基地上空の $< 5000 \text{ m}$ では、 $D_p > 0.3 \mu\text{m}$ の数濃度は約 300 個/L 前後で、沿岸域と比べると低くなっていた。また、Neumayer 基地上空や Kohlen 基地上空では、12月28日、29日、31日に数濃度が $> 1600 \text{ 個/L}$ となることがあったが、昭和基地上空では1月17日に 3000 個/L に達する例が確認されたのみだった。 $D_p > 0.3 \mu\text{m}$ の数濃度が高くなる高度は、燃焼過程起源のエアロゾル粒子が存在する層（高度）と対応していることが多く（図 6）、燃焼起源物質が上空経由で低中緯度域から南極域へ長距離輸送されていたエアロゾル層をとらえていた可能性がある。北極域では、低中緯度域から燃焼起源物質（BC）が上空経由で輸送される可能性がモデルにより指摘されていた（Koch *et al.*, 2005）。また、南半球中緯度でも低緯度起源のガス成分が、対流圏上部経由で高緯度側へ輸送されることが観測されていることから（Francey *et al.*, 1999）、低中緯度域起源のエアロゾルの対流圏上部経由の輸送過程も、観測・検討していくことが重要である。

Neumayer 基地、昭和基地いずれの上空（ $< 3000 \text{ m}$ の高度）でも、 $D_p > 0.08 \mu\text{m}$ の粒子数濃度は $1.5 \times 10^5 \sim 2.0 \times 10^5 \text{ 個/L}$ だった。 $D_p > 0.3 \mu\text{m}$ や $D_p > 1.0 \mu\text{m}$ の数濃度と異なり、 $< 1000 \text{ m}$ の高度でも $D_p > 0.08 \mu\text{m}$ の数濃度が高くなる傾向は確認されなかった。一方、 $> 3000 \text{ m}$ の高度では $< 1.0 \times 10^5 \text{ 個/L}$ になることが多かった。各観測で得られている数濃度幅は大きいので、今後は空気塊の履歴や粒子組成と対応させて議論を進めていかねばならない。

3.4.3. エアロゾル数濃度の水平分布—Neumayer~S17間のエアロゾル濃度変化—

図 13 に、2007 年 1 月 5 日の Neumayer 基地から S17 へのフェリー（移動）飛行時のエア

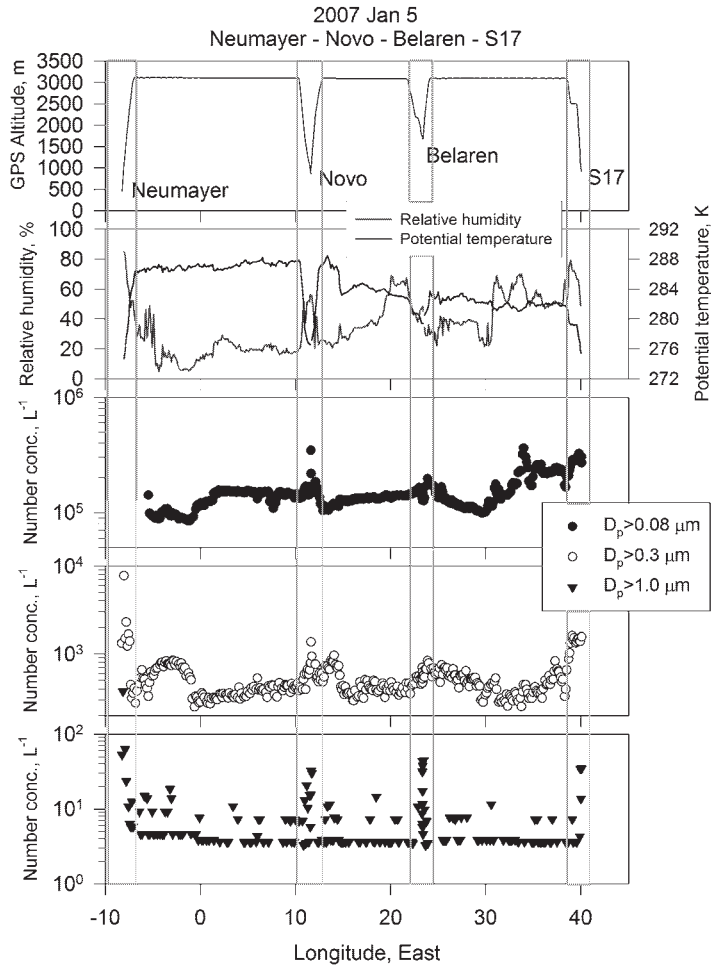


図 13 2007 年 1 月 5 日の Neumayer 基地から S17 への移動飛行時の飛行高度，相対湿度，温位，エアロゾル数濃度の水平分布。

Fig. 13. Horizontal features of flight height, relative humidity, potential temperature, and aerosol number concentration in ferry flight from Neumayer Station to S17 on 5 January 2007.

ロゾル数濃度変化を示す。この日の飛行は S17 への移動が主目的のため、高度約 3000 m で巡航飛行を行い、途中給油のため Novo 航空拠点、Belaren へ着陸した。Neumayer~S17 の飛行距離は約 1800 km だった。

巡航飛行した高度(約 3000 m)は自由対流圏下層に相当しており、3.4.2. 項で述べたように $D_p > 1.0 \mu\text{m}$ の数濃度は低く、水平分布が比較できなかった。巡航飛行中の $D_p > 0.08 \mu\text{m}$ の数濃度は $9.9 \times 10^4 \sim 3.6 \times 10^5$ 個/L で、 $D_p > 0.3 \mu\text{m}$ の数濃度は 252-966 個/L の範囲で変化していた。離着陸時の上昇・下降時の数濃度増加を除けば、エアロゾル数濃度、相対湿度、温位の変化から、 0°E 、 14°E 、 23°E 、 30°E 付近で変化の傾向が大きく変わっており、

性質の異なる空気塊の境界と対応していたと考えられる。

エアロゾル数濃度変化と空気塊の履歴を比較するため、5日間の後方流跡線を計算した。図 14 に後方流跡線の分布を示す。Neumayer 基地—Novo 航空拠点間では、0°E 付近で粒子数濃度と相対湿度が大きく変化していたが、後方流跡線ではいずれも内陸上空から大気が沈降する履歴を示しており、空気塊の履歴では大きな違いは確認できなかった。Neumayer 基地から 0°E 付近までは棚氷~海氷域上を、0°E—Novo 航空拠点までは大陸上を飛行していたため、海氷~大気縁辺部のエアロゾル水平分布あるいは、対地高度の変化と関係していたと考えられる。

0–14°E では $D_p > 0.08 \mu\text{m}$ の数濃度に大きな変化はなく、 $D_p > 0.3 \mu\text{m}$ の数濃度は東に向かうにつれて徐々に増加する傾向を示した。温位、相対湿度は Novo 航空拠点への離着陸時を除いて大きな変化は確認されなかった。14–23°E では、14°E 付近で温位が約 4 K 減少し、 $D_p > 0.3 \mu\text{m}$ の数濃度も急減していた。温位の違いから異なる性質の空気塊であると考えられるが、図 14 に示したように輸送経路による明瞭な違いは確認されなかった。

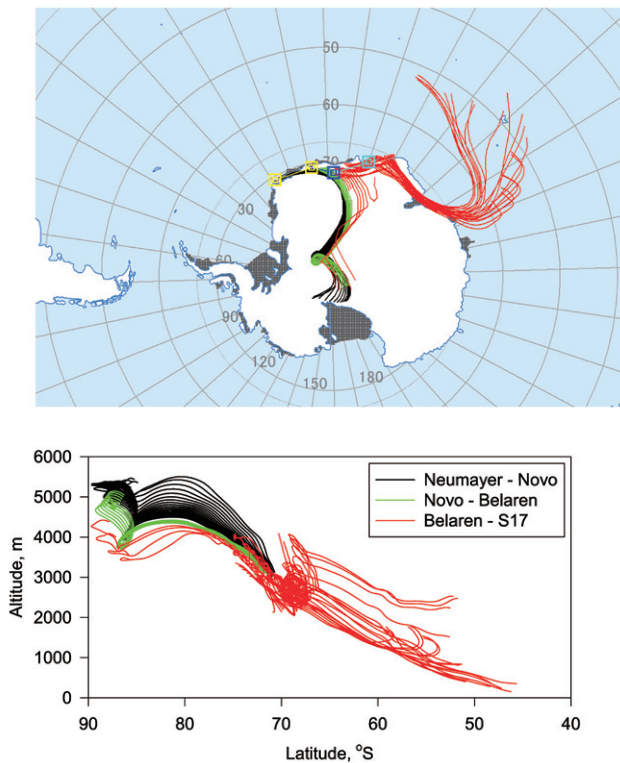


図 14 Neumayer 基地から S17 への移動飛行時の飛行高度からの 6 日間の後方流跡線
 Fig. 14. 6-day backward trajectories from flight area in the ferry flight from Neumayer Station to S17.

23-30°E の温位は、14-20°E の温位と比べると 1-2 K 程度下がり、エアロゾル数濃度 ($D_p > 0.08, 0.3 \mu\text{m}$) も東に行くほど減少する傾向を示していた。また、航路周辺からの後方流跡線では、依然として内陸上空からの沈降の傾向を示し、内陸上空に位置していた時の高度はさらに下がっていた。0-30°E の飛行経路上の空気塊は内陸上空から下降してきていたが、0-10°E の経路上にあった空気塊の方が内陸上の高度は高かった。0-30°E のエアロゾル数濃度変化は、内陸上空のエアロゾル鉛直分布と対応していると考えられる。内陸上空から飛行域への輸送経路は、3.2. 節で示したように低中緯度域から対流圏上層経由で南極上空へ輸送された燃焼起源粒子が、対流圏下層へ拡散・混合する過程となっていることが示唆される。

33-40°E では、23-30°E よりもさらに温位が約 1 K ほど減少し、相対湿度が 50-70% まで増加していた。エアロゾル数濃度 ($D_p > 0.08, 0.3 \mu\text{m}$) は東に向かうほど増加する傾向を示した。33-40°E 飛行経路周辺からの後方流跡線は、空気塊が大陸沿岸～海洋域の境界層内 (<1000 m) から輸送されていたことを示唆する。冬季～春季には、低気圧接近による海洋域から大陸沿岸への輸送が確認されることが多いが(原ほか, 2010b), 33-40°E の輸送経路は、天候が穏やかな時にも海洋域から大陸沿岸への輸送が起きていることを示していると考えられる。

図 13, 図 14 で示したエアロゾル数濃度の変化と空気塊の履歴に加えて、現在解析中のエアロゾル化学成分・混合状態の水平分布と比較することで、内陸上空からの大気沈降、沿岸域からのエアロゾル輸送の詳細を検討し、理解することができるだろう。

4. ま と め

第 48 次夏隊で、日本-ドイツ共同航空機大気観測 (ANTSYO-II: AGAMES) を Neumayer 基地, Kohnen 基地, 昭和基地周辺で集中的に実施した。夏季の南極対流圏中のエアロゾル粒子化学成分とその混合状態や、エアロゾル数濃度の空間分布に関する知見を得ることができた。沿岸部上空だけでなく、内陸上空でも燃焼起源のエアロゾル粒子成分 (BC, K 含有硫酸塩粒子) が確認された。また、燃焼起源成分の割合が高い高度では、エアロゾル数濃度 ($D_p > 0.3 \mu\text{m}$) も増加することがあった。燃焼起源成分の割合は、対流圏下層よりも上層の方が高くなっていたため、夏季には燃焼起源のエアロゾルが対流圏上部経由で、低中緯度から南極域へ輸送されていることが示唆される。大陸縁辺部-海氷・棚氷-開水域のエアロゾル水平分布観測では、海氷縁を境に開水域で数濃度が高くなる水平分布が確認された。この濃度勾配は、海塩粒子の数濃度と対応していると考えられる。海塩粒子の水平分布を議論する際には重要な知見となる。

ANTSYO-II: AGAMES により、夏季南極対流圏中のエアロゾルの空間分布や特性に関して、上記のような知見が得られてきているが、夏季以外の季節や、内陸部上空のエアロ

ゾルの分布に関しては依然として未知である。原 (2003) で示したように、エアロゾルの空間分布に関する知見を蓄積することは、南極大気中の物質循環・輸送過程を理解する上で不可欠であるだけでなく、アイスコアデータを解釈する上でも非常に重要である。沿岸部や内陸部の地上で行うエアロゾル連続観測に加えて、今後は、航空機や飛行体による空間的なエアロゾル観測を並行して実施していくことが必要であろう。

謝 辞

本観測を実施するにあたり、第 47-48 次日本南極地域観測隊、「しらせ」乗務員、ドイツ南極観測隊により、燃料輸送などの設営作業、計画調整、航空機観測中の数々の支援を受けた。また、Optimare (ドイツ: Dr. T. Garbrecht, J. Hoeltig) からは機内の測器設置、センサーの管理、調整を、DLR (ドイツ) のパイロット (H.-J. Berns, S. Grillenberck), 整備士 (R. Gebhardt, R. Koch) からは航空機の運用・保守の支援を受けた。本観測は極地研プロジェクト観測、科学研究費(16253001)により行われた。また、本観測には、Dr. R. Treffeisen (AWI), Dr. A. Minikin (DLR), Dr. R. Krejci (Stockholm Univ.) も参加していた。

文 献

- Andreae, M.O. and Merlet, P. (2001): Emission of trace gases and aerosols from biomass burning. *Emission Global Biochem. Cycle*, **15**, 955-966.
- Francey, R.J., Steele, L.P., Langenfelds, R.L. and Pak, B.C. (1999): High precision long-term monitoring of radiatively active and related trace gases at surface sites and from aircraft in the Southern Hemisphere atmosphere. *J. Atmos. Sci.*, **56**, 279-285.
- 原圭一郎 (2003): 南極対流圏のエアロゾル。エアロゾル研究, **18**, 200-213.
- Hara, K., Osada, K., Nishita, C., Yamagata, S., Yamanouchi, T., Herber, A., Matsunaga, K., Iwasaka, Y., Nagatani, M. and Nakada, H. (2002): Vertical variations of sea-salt modification in the boundary layer of spring Arctic during the ASTAR 2000 campaign. *Tellus*, **54B**, 361-376.
- 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 the Antarctic regions: compositional differences between coastal and inland stations. *J. Geophys. Res.*, **109**, D20208, doi:10.1029/2004JD004713.
- Hara, K., Osada, K., Kido, M., Matsunaga, K., Iwasaka, Y., Hashida, G. and Yamanouchi, T. (2005): Variations of constituents of individual sea-salt particles at Syowa Station, Antarctica. *Tellus*, **57B**, 230-246.
- Hara, K., Iwasaka, Y., Wada, M., Ihara, T., Shiba, H., Osada, K. and Yamanouchi, T. (2006): Aerosol constituents and their spatial distribution in the free troposphere of coastal Antarctic regions. *J. Geophys. Res.*, **111**, D15216, doi:10.1029/2005JD006591.
- Hara, K., Osada, K., Yabuki, M., Hashida, G., Yamanouchi, T., Hayashi, M., Shiobara, M., Nishita, C. and Wada, M. (2010a): Haze episodes at Syowa Station, coastal Antarctica: Where did they come from? *J. Geophys. Res.*, **115**, D14205, doi:10.1029/2009JD012582.
- 原圭一郎・長田和雄・西田千春・山内 恭・林 政彦 (2010b): 南極対流圏のエアロゾル鉛直分布とその季節変化, 南極資料, **54**, 731-759.
- 原圭一郎・長田和雄・矢吹正教・林 政彦・山内 恭・塩原匡貴・和田 誠 (2010c): 南極沿岸域でのブラックカーボン-季節変化と輸送過程-。南極資料, **54**, 562-592.
- 林 政彦 (2001): Optical particle counter による対流圏・成層圏エアロゾルの観測。エアロゾル研

- 究, **16**, 118-124.
- 平沢尚彦・原圭一郎 (2007): 第 48 次南極地域観測夏隊の S17 航空拠点における活動報告一日共同航空機観測に関連して一. 南極資料, **51**, 273-297.
- Ito, T. (1989): Antarctic submicron aerosols and long-range transport of pollutants. *Ambio*, **18**, 34-41.
- Ito, T., Morita, Y. and Iwasaka, Y. (1986): Balloon observations of aerosols in the Antarctic troposphere and stratosphere. *Tellus*, **38B**, 214-222.
- Iwasaka, Y., Okada, K., and Ono A. (1985): Individual aerosol particles in the Antarctic upper troposphere. *Mem. Natl Inst. Polar Res. Spec. Issue*, **39**, 17-29.
- Jourdain, B., Preunkert, S., Cerri, O., Castebrunet, H., Udisti, R. and Legrand, M. (2008): Year-round record of size-segregated aerosol composition in central Antarctica (Concordia station): implications for the degree of fractionation of sea-salt particles. *J. Geophys. Res.*, **113**, D14308, doi:10.1029/2007JD009584.
- Keene, W.C., Maring, H., Maben, J.R., Kieber, D.J., Pszenny, A.A.P., Dahl, E.E., Izaguirre, M.A., Davis, A.J., Long, M.S., Zhou, X. and Smoydzin, L. (2007): Chemical and physical characteristics of nascent aerosols produced by bursting bubbles at a model air-sea interface. *J. Geophys. Res.*, **112**, D21202, doi:10.1029/2007JD008464.
- Koch, D. and Hansen, J. (2005): Distant origins of Arctic black carbon: a Goddard Institute for Space Studies Model E experiment. *J. Geophys. Res.*, **110**, D04204, doi:10.1029/2004JD005296.
- Koponen I.K., Virkkula, A., Hillamo, R., Kerminen, V.-M. and Kulmala, M. (2003): Number size distributions and concentrations of the continental summer aerosols in Queen Maud Land, Antarctica. *J. Geophys. Res.*, **108** (D18), 4587, doi:10.1029/2003JD003614, 2003.
- Lewis E.R. and Schwartz, S.E. (2004): Sea salt aerosol production: mechanisms, methods, measurements and models: a critical review. Washington, D.C., American Geophysical Union, 413 p. (Geophysical monograph ; **152**)
- Mouri, H., Nagao, I., Okada, K., Koga, S. and Tanaka, H. (1999): Individual-particle analyses of coastal Antarctic aerosols. *Tellus*, **51B**, 603-611.
- Okada, K., Ikegami, M., Zaizen, Y., Tsutsumi, Y., Makino, Y., Jensen, J.B. and Gras, J.L. (2008): Submicrometer sulfur-rich particles in the middle troposphere: aircraft observations from Australia to Japan. *Atmos. Res.*, **88**, 185-198.
- Osada, K., Hara, K., Wada, M., Yamanouchi, T. and Matsunaga, K. (2006): Lower tropospheric vertical distribution of aerosol particles over Syowa Station, Antarctica from spring to summer 2004. *Polar Meteorol. Glaciol.*, **20**, 16-27, 2006.
- Rankin, A.M. and Wolff, E.W. (2002): Aerosol profiling using a tethered balloon in coastal Antarctica. *J. Atmos. Ocean. Tech.*, **19**, 1978-1985.
- Reijmer, C.H., van den Broeke, M.R. and Scheele, M.P. (2002): Air parcel trajectories and snowfall related to five deep drilling locations in Antarctica based on the ERA-15 dataset. *J. Climate*, **15**, 1957-1968.
- Sato, K. and Hirasawa, N. (2007): Statistics of Antarctic surface meteorology based on hourly data in 1957-2007 at Syowa Station. *Polar Sci.*, **1**, 1-15.
- Shaw, G. (1988): Antarctic aerosols: a review. *Rev. Geophys.*, **26**, 89-112.
- Stohl, A. and H. Sodemann (2010): Characteristics of atmospheric transport into the Antarctic troposphere. *J. Geophys. Res.*, **115**, D02305, doi:10.1029/2009JD012536.
- 和田 誠・猪原 哲・芝 治也 (2001): 第 41 次南極観測隊航空機大気観測報告 2000-2001. 南極資料, **45**, 257-278.
- Weller, R. and Wagenbach, D. (2007): Year-round chemical aerosol records in continental Antarctica obtained by automatic samplings. *Tellus*, **59B**, 755-765.
- Wilson, T.R.S. (1975): 6. Salinity and the major elements of sea-water. *Chemical Oceanography*, edited by J.P. Riley and G. Skirrow. 2nd. ed. London, Academic Press., 365-413. (v. **1**)
- 山形 定・原圭一郎・松木 篤 (2010): ASTAR2000/2004, AAMP2002 キャンペーンの航空機観測で得られた北極域対流圏における春季エアロゾルの散乱係数, 粒径分布および輸送形態. 南極資料, **54**, 868-881.

- Yamanouchi, T., Wada, M., Fukatsu, T., Hayashi, M., Osada, K., Nagatani, M., Nakada, A. and Iwasaka, Y. (1999): Airborne observation of water vapor and aerosols along Mizuho route, Antarctica. *Polar Meteorol. Glaciol.*, **13**, 22-37, 1999.
- Yamato, M., Iwasaka, Y., Ono, A. and Yoshida, M. (1987): On the sulfate particles in the submicron size range collected at Mizuho Station and in East Queen Maud Land, Antarctica. *Proc. NIPR Symp. Polar Meteorol. Glaciol.*, **1**, 82-90, 1987.
- Yamazaki, K., Okada, K. and Iwasaka, Y. (1989): Where do aerosol particles in the Antarctic upper troposphere come from?—A case study in January 1983—. *J. Meteorol. Soc. Jpn.*, **67**, 889-906.