

北極圏航空機観測 (AAMP 98) における  
大気エアロゾル粒子の直接採集原 圭一郎<sup>1\*</sup>・岩坂泰信<sup>1†</sup>・猪股弥生<sup>1†</sup>・長田和雄<sup>1†</sup>・  
松永捷司<sup>1†</sup>・山形 定<sup>2</sup>・長谷正博<sup>1</sup>・中田 滉<sup>1</sup>Direct sampling of atmospheric aerosol particles during  
Arctic Airborne Measurement Program (AAMP 98)Keiichiro Hara<sup>1\*</sup>, Yasunobu Iwasaka<sup>1†</sup>, Yayoi Inomata<sup>1†</sup>, Kazuo Osada<sup>1†</sup>,  
Katsuji Matsunaga<sup>1†</sup>, Sadamu Yamagata<sup>2</sup>, Masahiro Nagatani<sup>1</sup> and Hiroshi Nakata<sup>1</sup>

**Abstract:** In order to know the morphology and mixing state of atmospheric aerosol particles in the spring Arctic atmosphere, direct sampling of aerosol particles was carried out using an aerosol impactor system during the Arctic Airborne Measurement Program (AAMP 98). Aerosol samples were observed with a scanning electron microscope and analyzed with an energy-dispersive X-ray spectrometer. Aerosol particles with clear satellite structure due to sulfuric acid droplets were observed in samples collected in the lower stratosphere and free troposphere. On the other hands, aerosol particles with crystal and satellite structure due to droplets of sea salt particles were observed in the boundary layer.

**要旨:** 春季北極大気中の大気エアロゾル粒子の性状を知るために、AAMP 98 において境界層内～成層圏下部にかけて、大気エアロゾル粒子の直接採集を行った。捕集されたエアロゾル粒子は、走査型電子顕微鏡—エネルギー分散型 X 線分析装置により、形態観察と組成分析を行った。対流圏～成層圏下部の全体の空間では、硫酸と見られる S を含む粒子が多数を占めていた。また、土壌・ダスト粒子と考えられる不定形粒子、海塩粒子のような結晶質の粒子は境界層内～約 7000 m に確認された。

<sup>1</sup> 名古屋大学太陽地球環境研究所, Solar-Terrestrial Environment Laboratory, Nagoya University, Furo-cho, Chikusa-ku, Nagoya 464-8601.

<sup>2</sup> 北海道大学大学院工学研究科環境資源工学専攻, Division of Environment and Resource Engineering, Graduate School of Engineering, Hokkaido University, Kita-13, Nishi-8, Sapporo 060-8628.

Present address:

\*国立極地研究所, National Institute of Polar Research, Kaga 1-chome, Itabashi-ku, Tokyo 173-8515.

†名古屋大学大学院環境学研究科, Division of Earth and Environmental Sciences, Graduate School of Environmental Studies, Nagoya University, Chikusa-ku, Nagoya 464-8601.

## 1. はじめに

冬季～春季にかけての北極対流圏では、中緯度工業域（ヨーロッパ・ロシア・アメリカ・アジア）からの汚染物質の輸送により、しばしばヘイズが観測されている（*e.g.*, Pacyna, 1993; Barrie and Bottenheim, 1993）。このヘイズ現象は Arctic haze と呼ばれ、80年代以降、Arctic haze を調査するために、スバル諸島やグリーンランドといったヨーロッパ側、アラスカ側などの春季北極域で、主に大気エアロゾルを中心にしばしば航空機による観測が行われてきた（Schnell, 1984; Schnell *et al.*, 1989; Parungo *et al.*, 1993; Franke *et al.*, 1997）。これらの航空機による春季北極大気観測は、Arctic haze に焦点を合わせていたため、いわゆるヘイズ層（あるいは高エアロゾル数濃度層）が出現している高度や、その周辺の水平分布や若干の高度分布に観測の中心が置かれていた。しかし、北極域の大気エアロゾルを理解するには、Arctic haze の観点から見たヘイズ層という限定された空間のみの観測だけではなく、非 haze 空間のデータを得ることが重要である。

1998年3月に北極域で行われた Arctic Airborne Measurement Program 1998 (AAMP98) では、高度およそ 12 km まで上昇可能な航空機を使用したため、成層圏下部までの観測も可能となった。冬季～春季にかけての北極域上空では極渦 (polar vortex) 形成に伴って極域成層圏は中低緯度域から孤立していると考えられているため、地球規模の循環を理解する上では、成層圏下層 (~12 km) までの大気エアロゾルの観測は非常に重要な機会である。北極大気中での成層圏領域にまで及ぶエアロゾル粒子の現場での直接観測 (*in-situ* observation) は、気球を用いた粒子数濃度観測などがなされている (Hayashi *et al.*, 1998)。しかしながら、本研究の骨子であるエアロゾルの形態・成分・混合状態の観測には、直接採集 (サンプリング) とサンプル回収が大前提となるため、サンプル回収が極めて困難な極域での観測では、成層圏領域まで到達可能な航空機による観測 (あるいは大規模な大気球観測キャンペーン) に頼らざるを得ない。最近では、IPCC レポート (1995) にもあるように、放射過程における大気エアロゾルの直接効果 (温暖化へのインパクト) が議論されているが、直接効果の定量的な議論には、まだかなりの不確定性がある。この不確定性は、大気エアロゾルの濃度やその空間分布が大きく時間変動することだけではなく、エアロゾルの性状 (組成・混合状態・相状態・形態など) が大きく変化し光学特性が大きく変わることに原因がある。そのため、個々の大気エアロゾル粒子レベルで粒子の性状を正確に把握することは、大気放射過程 (日射の散乱・吸収体として) を理解する上で欠かせない情報である。さらに、大気中での物質循環 (トレーサーとして)、大気化学過程 (反応場として) においても、極めて重要かつ基礎的な情報となる。本研究では、AAMP98 において、上記の観点から、北極大気中に実際に存在するエアロゾル粒子の形態、成分、混合状態の観察をして、その特徴を得ることを目的とした。ここでは、顕著な例の見られた 1998年3月8日のフライトについて報告を行う。

## 2. 試料採集と観察

大気エアロゾル粒子は、名古屋大学太陽地球環境研究所で大気球を用いたエアロゾル直接採集に開発したインパクターゾンデを、航空機観測用に一部を改造して使用した。本装置は試料面（ここでは電子顕微鏡用のグリッド）を30枚セット可能なターンテーブルを内蔵したサンプルチャンバーと大気吸引用のカーボンベンポンプ、さらに、システム制御及び動作状況記録用のコンピュータとメモリーカードにより構成されている。地上大気圧下で約20 l/minの流量で大気を吸引し、カットオフ粒径が $0.2 \mu\text{m}$ になるように調整した。試料捕集面としては、コロジオン薄膜を付け、カーボン蒸着を施した電子顕微鏡用マイクログリッドを使用した。外部の空気は、機体上部のinletより機内へ導入し、インパクターへ空気を取り込むようにした（詳細はShiobara *et al.*, 1999）。しかしながら、Hermann *et al.* (2001) が検討を行っていたように、飛行機 (Gulfstream II) の高速な巡航速度とinletからインパクターまで数mの配管のため、粗大粒子 ( $>2 \mu\text{m}$ ) に関しては、そのほとんどがインパクターに到達するまでに、配管の壁面へ付着していると予想される。したがって、インパクターより捕集される粒子のほとんどが微小粒子 ( $2 > D > 0.2 \mu\text{m}$ ) と考えるのが妥当であろう。図1に示すように、鉛直方向観測時には、G-IIは最高高度まで上昇した後にスパイラルに最低高度まで降下していくフライトの予定だったため、インパクターによる大気エアロゾルサンプリングは、最高高度に到達する前に

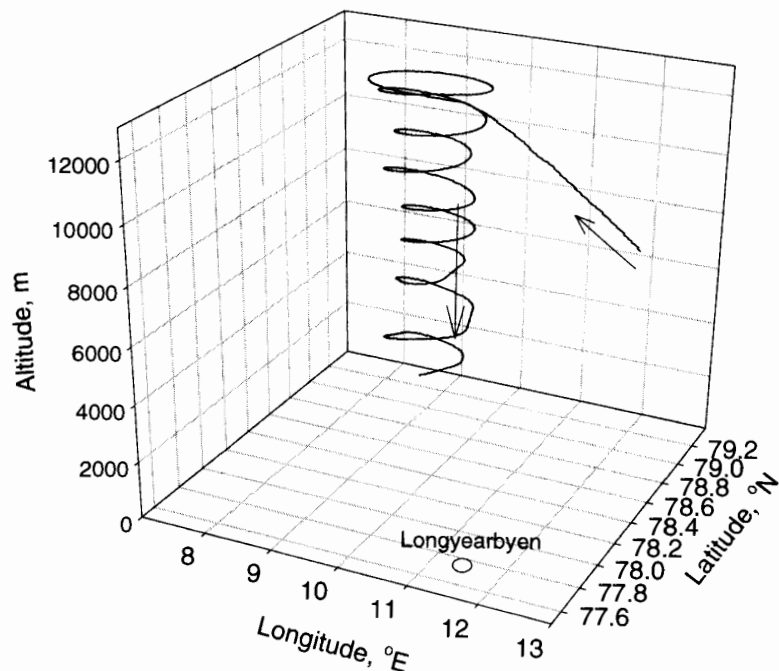


図1 1998年3月8日のエアロゾル直接採集時の飛行経路  
 Fig. 1. Trajectory of AAMP flight on 8 March during the aerosol sampling with aerosol impactor.

インパクトのシステム起動をしてサンプリングを開始するようにした。1 サンプル辺り 4 分のサンプリングタイムに設定したため、のべ 120 分間のサンプリングが可能であった。また、4 分間の時間間隔であること、G-II は徐々に降下していたため、平均すると 1 サンプル辺りは、500-600 m の高度分解能となる。

得られた試料は、サンプル回収後に各グリッドをポリエチレン製のビームカプセルに移し換え、ビームカプセルはチャック付のポリ袋へまとめて入れた。フライトごとにまとめられたサンプル入りのポリ袋は、シリカゲル入りのタイトボックス内で保管した。帰国後、走査型電子顕微鏡 (SEM; Akashi Beam Tech., ABT-55 と SEMEDX Type-N, Hitachi, EMAX-500, Horiba) にて、観察及び分析を行った。電子ビームによるダメージを極力避けるために、形態観察前にカーボン蒸着を施し、形態観察時の加速電圧は 5 kV に、EDX 分析時には 20 kV に調節した。なお、写真撮影時には、どのサンプルも同倍率 (2000 倍) で観察し、同枚数撮影するようにした。

後方流跡線の計算は、NOAA の HYSPLIT4 (HYbrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory) Model, 1997 (Web address: <http://www.arl.noaa.gov/ready/hysplit4.html>, NOAA Air Resources Laboratory, Silver Spring, MD) を用いて計算をした。なお、7000 m 以上の高度では、等温位面を仮定して、6000 m 以下の高度では、vertical motion mode で後方流跡線を計算した。

### 3. 結果と考察

図 2a に 3 月 8 日の気温の鉛直分布を示す。気温の鉛直変化から、観測当日の圏界面は 9000 m 付近に位置しており、最高高度 (約 12000 m) 付近の観測飛行は、成層圏下部に突入していたことがわかる。3 月 8 日各高度における後方流跡線を図 2b に示す。下部成層圏 (12000 m) の空気塊は、数日間かけて大きく北極上空を周回していた。圏界面付近と見られる 9000 m の空気塊は、成層圏下部 (12000 m) 同様に西側 (グリーンランド～アラスカ上空) より輸送されていた。しかしながら、成層圏下部 (12000 m) の空気塊とは異なり、北極域を大きく周回するほどではなかった。一方、対流圏上部 (7000 m) の空気塊は、東側 (ロシア上空～スカンジナビア半島) より輸送されており、成層圏下部や圏界面付近の空気塊とは全く異なった起源の空気塊であることが示唆される。また、6000-1000 m の各空気塊は、ロシア工業地域上空から輸送されていたため、対流圏中～下層には、少なからずロシア工業地域から放出された人為起源物質の影響の可能性も考えられる。しかしながら、図 2c に示したように鉛直方向の空気の輸送はそれほど活発ではなく、自由対流圏内の空気塊が、ロシア工業域の影響をどの程度受けていたかについては議論の必要がある。地上 (Ny-Ålesund) での大気エアロゾル・酸性ガスの観測では、3 月 8 日には非海塩性 (nss-)SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> や SO<sub>2</sub> の高濃度が確認された。流跡線解析の結果と地上観測の結果を考慮すると、対流圏下層はいわゆる Arctic haze, あるいは人為起源の影響を

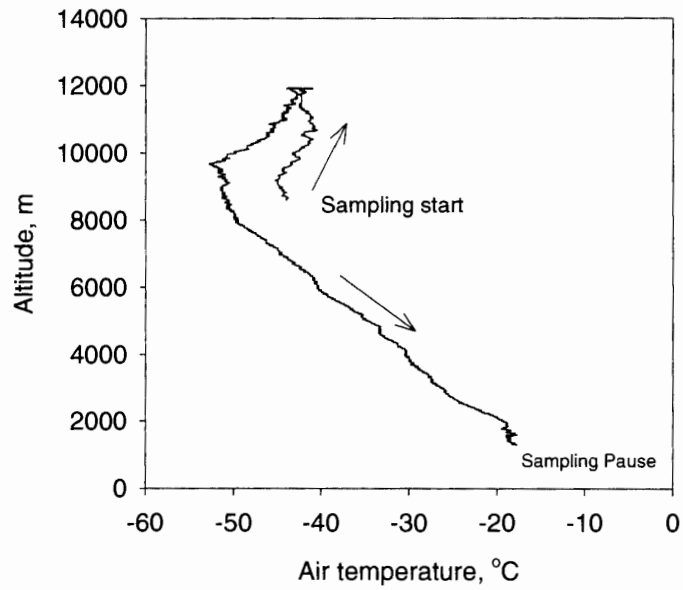


図 2a 1998 年 3 月 8 日フライト時の気温の鉛直変化

Fig. 2a. Vertical profile of air temperature during the AAMP 98 observation flight on 8 March 1998.

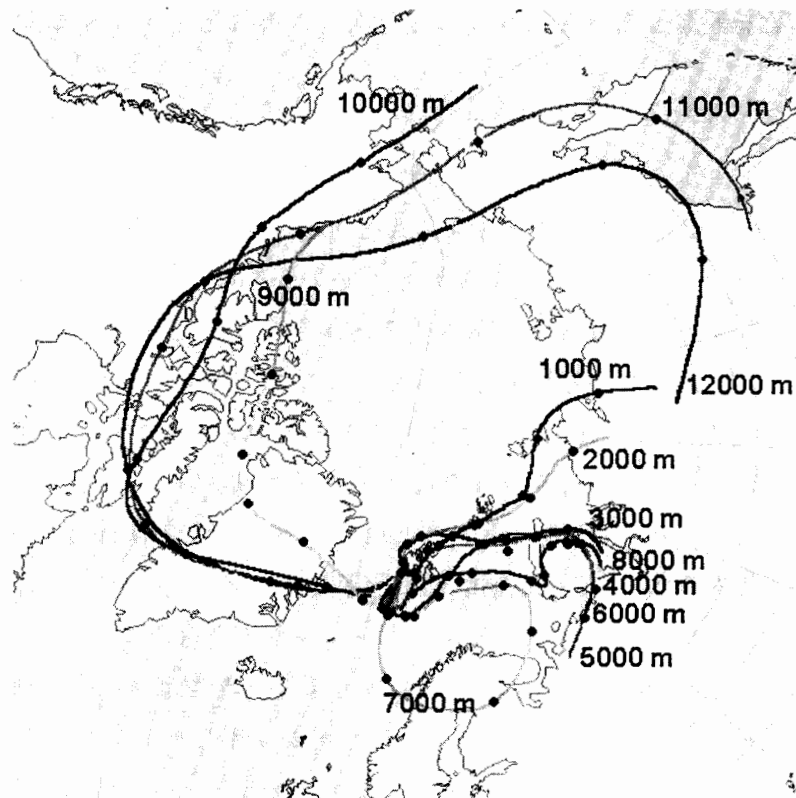


図 2b 1998 年 3 月 8 日 (12 UTC) での各高度における 160 時間後方流跡線。点は 24 時間ごとの位置を示す。

Fig. 2b. 160 hrs-backward trajectories at each altitude on 8 March 1998 (12 UTC). Circles show locations every 24 hrs.

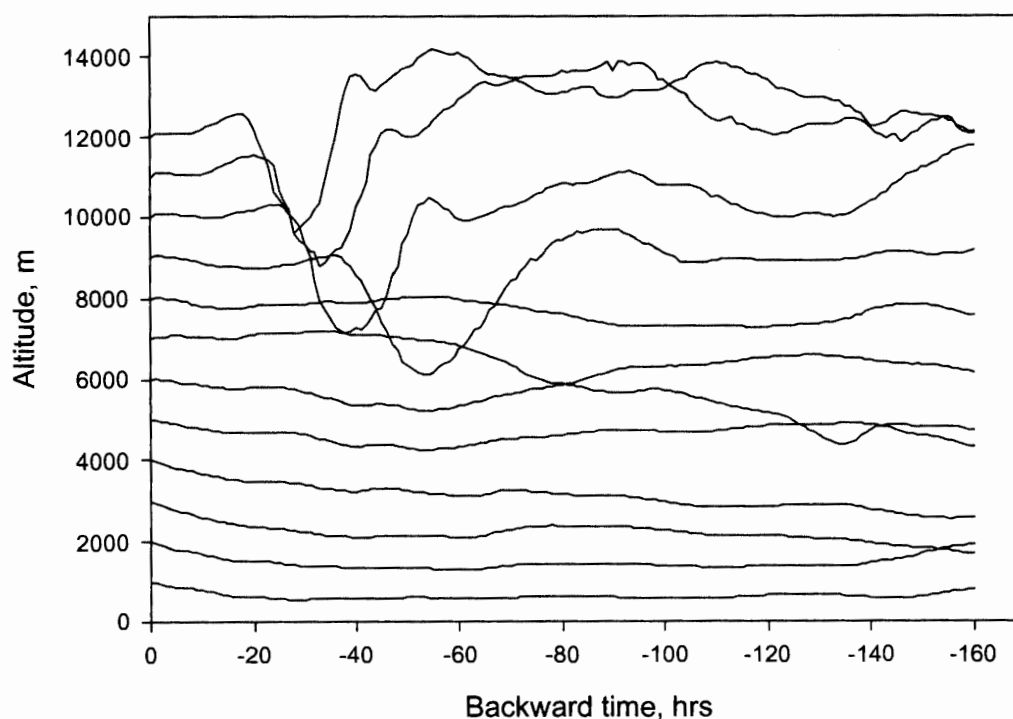


図 2c 1998 年 3 月 8 日 (12 UTC) での後方流跡線の高度変化

Fig. 2c. Variations of altitude in each backward trajectory on 8 March 1998 (12 UTC).

受けた状態でだったことが示唆される。

図 3 に、SEM 観察より得られた典型的なエアロゾル粒子の写真を示す。図 3a の粒子は、10000 m より上空で顕著に観察され、エアロゾル粒子の痕跡が円状に分布した極めて特徴的な形を示しており、捕集時には液状であったことが示唆される。自由対流圏～成層圏にかけては、いわゆる硫酸エアロゾルが主成分と言われているように、図 3a のエアロゾル粒子も液状の硫酸液滴と考えられる。しかしながら、一般に得られる硫酸液滴の電子顕微鏡像には、粒子の中心に小さな核のような成分が存在する様に見えるサテライト構造をすることが多いが、図 3a の粒子では粒子中心に核らしき成分が見られていないのが際立った特徴である。今回、SEM 像撮影に使用した SEM (ABT-55) の観察条件下での画面分解能は 10 nm 強程度とそれほど良くないため、粒子の中心に核らしき成分が見えない可能性も考えられる。便宜上、ここでは“無核サテライト粒子 (non-nuclei satellite)”と呼ぶことにする。non-nuclei satellite 粒子に加えて、図 3bc で見られるような、粒子中心に小さい核らしき成分が確認される“サテライト粒子 (satellite)”や、“液滴痕を呈さない粒子 (non-satellite)”も観察された。いずれの粒子の EDX 分析では、粒子成分としては、硫黄 (S) のピークのみが確認されたため、いわゆる硫酸 (塩) エアロゾル粒子と同定できる。non-satellite 粒子は円あるいは球形と見られ、電子ビーム照射による損傷 (揮発・変形) が著しかった。硫酸エアロゾルは、今回観測を行った空間 (対流圏～成層圏下部) では、液滴粒子として存在するため、non-satellite 粒子は、Yamato and Ono (1989) が

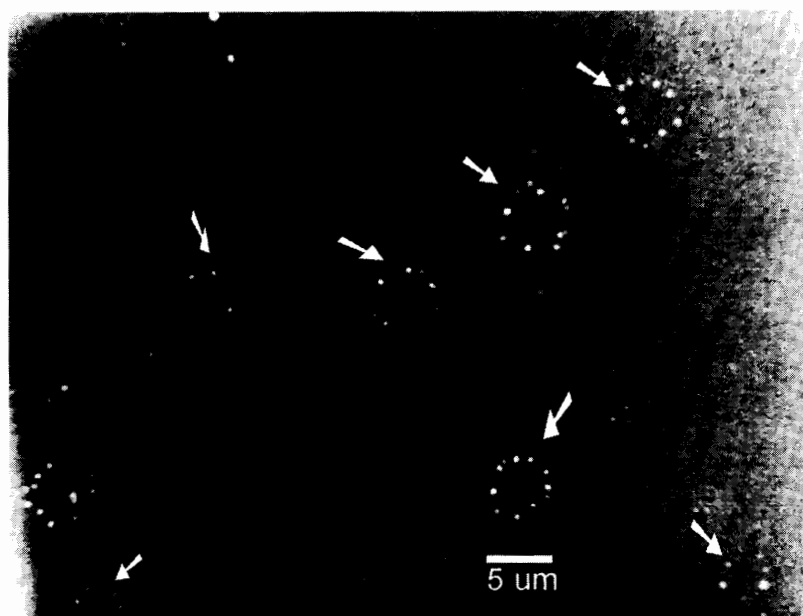


図 3a 3月8日に高度 11100-11917 m で捕集されたエアロゾル粒子 SEM 像の一例。  
矢印は“non-nuclei satellite particles”を示す。

Fig. 3a. Typical SEM image of “non-nuclei satellite particles” collected at 11100-11917 m asl on 8 March 1998. Arrows indicate “non-nuclei satellite particles”.

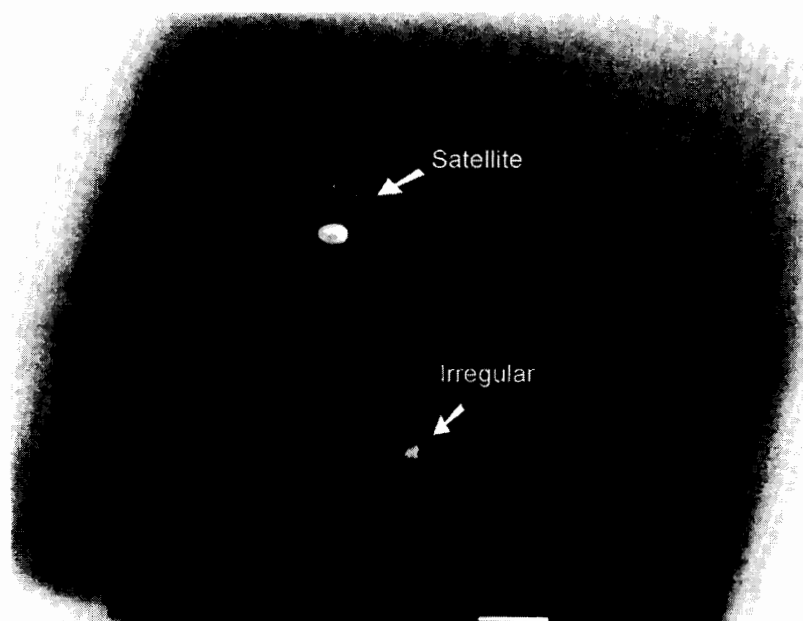


図 3b 3月8日に高度 1908-1295 m で捕集された“satellite particle”と“irregular particle”の SEM 像の一例。

Fig. 3b. Typical SEM image of “satellite particle” and “irregular particle” collected at 1908-1295 m asl on 8 March 1998.

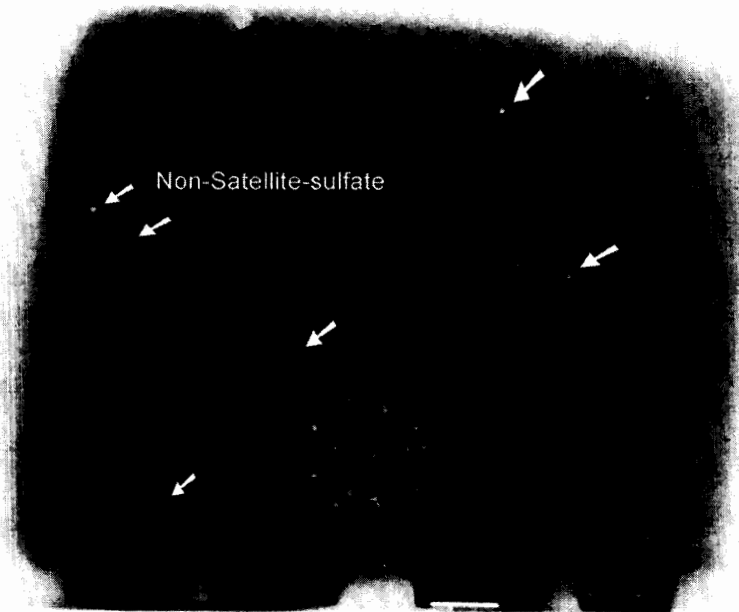


図 3c 3月8日に高度 7481-6864 m で捕集されたエアロゾル粒子 SEM 像の一例。  
矢印は“non-satellite particles”を示す。

Fig. 3c. Typical SEM image of “non-satellite particles” and “satellite particles” collected at 7481-6864 m asl on 8 March 1998. Arrows indicate “non-satellite particles”.

示していた様に、硫酸アンモニウムが主成分であるエアロゾル粒子、あるいはアンモニウムイオンを含んだ硫酸エアロゾル粒子である可能性がある。今回は、硫酸の痕跡をはっきりとらえられる  $\text{BaCl}_2$  や  $\text{Ca}$  を使用した試薬薄膜法を用いていないため、アンモニウム塩か否かについてははっきりした議論が出来ない。そのため、今回は、S のピークが明瞭に得られた non-nuclei satellite, satellite, non-satellite 粒子を硫酸 (塩) エアロゾルと同定した。また、対流圏内で確認された一部の球形粒子は、電子ビームによるダメージが見られなく、EDX 分析では Al や Si が検出された。球形粒子は燃焼過程を経た粒子、例えば fly ash、に良く見られる特徴 (Furuya *et al.*, 1987) であり、春季北極域では、ロシア工業域などの人間活動の影響を少なからず受けていることを考えると、Al, Si などを含む球形粒子は fly ash の様な工業域を起源とする粒子である可能性が強い。ここでは、ビームダメージのない球形粒子は、“spherical”として扱った。さらに、他にも土壌粒子あるいはダストと考えられる不定形 (irregular) 粒子や、海塩粒子あるいは  $\text{CaSO}_4$  を含有する粒子によく見られる結晶質 (crystal) を含んだ粒子も確認された。

定量的に議論するために、各形態・組成に分類し、観察視野より得られた粒子総数に対する割合 (検出頻度: %) を、図 4 に示す。non-nuclei satellite 粒子は、主に圏界面付近 (8000 m) ~ 成層圏下部 (12000 m) において観察された。春季北極成層圏下部で non-nuclei satellite 粒子の様な特徴的な粒子が得られたことは、硫酸 (塩) エアロゾル粒子の混合状態や性状を知る上で、非常に興味深い点である。インパクターによるエアロゾル粒子捕集時には、捕集面に粒子が慣性衝突した瞬間には、一時的大きく円盤状に広がり、その後に表面張力により小さな水滴状に



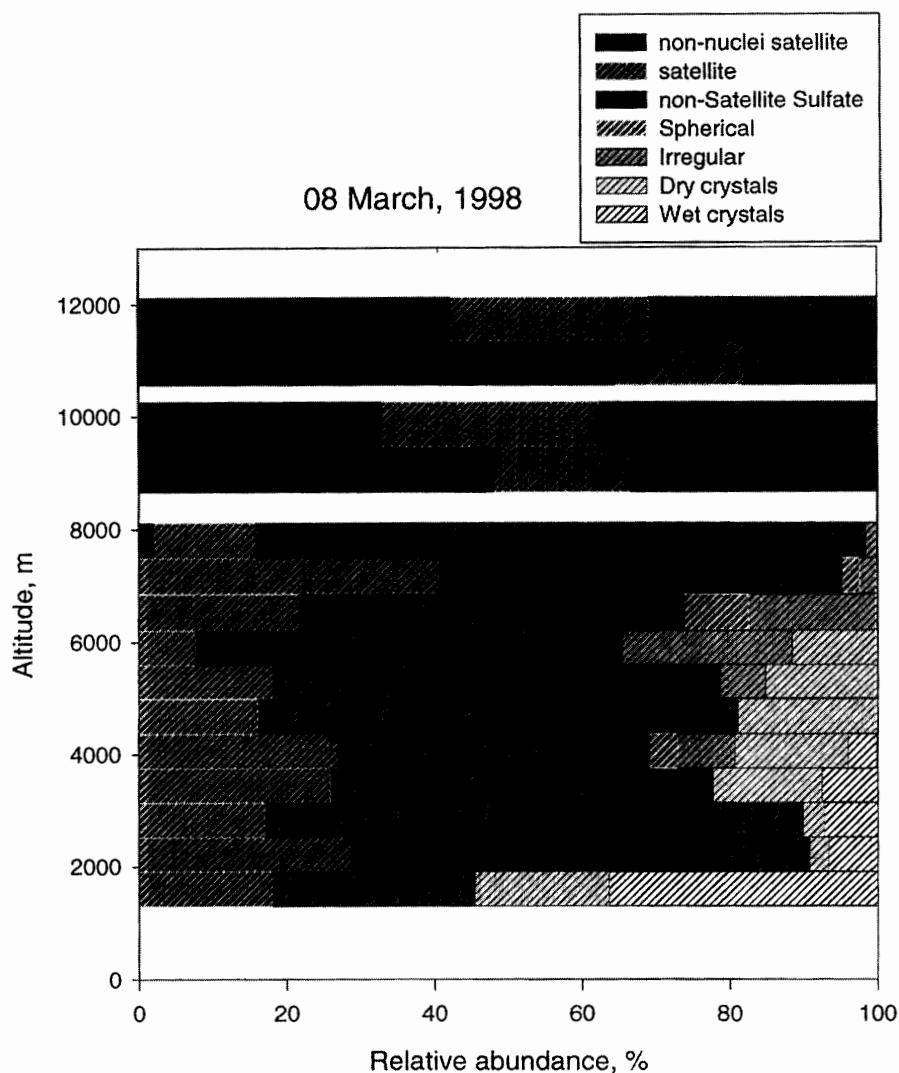


図4 1998年3月8日での各エアロゾル粒子の鉛直頻度分布

Fig. 4. Vertical distribution of relative abundance of each type of aerosol particle on 8 March 1998.

なり中央に核のように残る。そのため、non-nuclei satellite 粒子の様な際立った形態を呈した原因としては、(1) SEM の画像分解能、(2) 揮発成分の混合と揮発、(3) 硫酸濃度の違い (純度の違い) などがあげられる。個々のエアロゾル粒子観察には、SEM だけではなく、透過型電子顕微鏡 (TEM) もよく使用されるが、一般に TEM の方が高分解能であり、より微小の物体を確認することが可能である。そのため、TEM 観察においてしばしば確認された硫酸サテライトの非常に小さい核が、SEM では確認できていない可能性がある。今回は、TEM による観察は行っていないので、詳細については不明であるが、観察時に核がない、あるいは核の大きさが非常に小さいの何れかであることだけは確かである。また、液滴粒子の捕集時 (衝突後) には、(a) 衝突により液滴粒子が捕集面上に広がり、(b) 粒子の外周部に液滴痕が残り、(c) 中央付近にほとんどの液体が位置する (集まる) 過程を経る。non-nuclei satellite 粒子では、(b) の

過程の痕跡は明瞭に残っており、(c) の過程を経て最終的に残るはずの痕跡が見えていないことになる。そのため、捕集面への粒子衝突による捕集後 (サンプリング中、あるいは保管中) に、一部の粒子成分が揮発した可能性も考慮する必要があるだろう。冬季～初春北極成層圏においては、比較的揮発性の高い硝酸が主成分の一つであると考えられる極成層圏雲 (PSCs) が観測されるが、今回、試料採集を行った高度は PSCs 出現高度 (> 15 km) よりはるかに下層であった (e.g., Hayashi *et al.*, 1998; Shiraishi *et al.*, 1998) こと、成層圏下層の気温が PSCs 出現気温と比べると高かったことを考えれば、今回の non-nuclei satellite 粒子では、単純に「揮発成分＝硝酸」とは結論付けられない。実際、Iwasaka *et al.* (1993) においても、PSCs 出現高度では  $\text{NO}_3^-$  を内部混合した粒子が数多く見られていたが、PSCs の出現高度より下方の成層圏下部～対流圏では硝酸含有粒子はほとんど同定されていなかった。もし、この non-nuclei satellite 粒子の形成が、サンプリング中あるいはサンプリング後の、揮発成分によるものであるとすれば、硝酸以外の揮発成分や常温下で不安定な成分 (例えば、ニトロシル硫酸,  $\text{NO}_2\text{HSO}_4$ , (Burley and Johnston, 1992; Zhang *et al.*, 1996) や有機物) の寄与の可能性も考慮していく必要があるかもしれない。他に、non-nuclei satellite 粒子形成を及ぼす原因としては、硫酸の純度 (粒子内の  $\text{H}_2\text{O}$  の割合) により、観察される状態の形態が変わる可能性も考えられる。成層圏域の硫酸エアロゾルの硫酸は 70% 硫酸濃度に達すると言われており (Zeller, 1999)、水蒸気量としては対流圏の方が高いため、今回の観測においても、硫酸濃度としては成層圏下部の硫酸粒子の方が高かったと言えよう。濃硫酸は粘度が高いため、純度の低い (粘度の小さい) 液滴が示す形態 (液滴痕) と大きく変わる可能性は大いに考えられる。残念ながら現時点では、どの要因の寄与が大きいかははっきりしないが、北極成層圏下部～圏界面付近において、北極域上空を周回している空気塊に non-nuclei satellite 粒子が高頻度に観察されたことは確かであり、成層圏エアロゾル粒子の性状 (あるいは組成) が対流圏上部と大きく異なっていることを示唆している。

non-nuclei satellite とは異なり、non-satellite 粒子は対流圏内で高頻度 (約 20-80%) に存在する傾向を示していた。Satellite 粒子に関しては、成層圏・対流圏ともに大きな変化はせずに 20-40% の頻度で分布していた。一般に自由対流圏中では硫酸エアロゾルが卓越しているといわれているが、今回の観測結果では、典型的な硫酸エアロゾルの形態である satellite 粒子ではなく、non-satellite 粒子の割合がやや大きかった。S を含む粒子 (硫酸 (塩) エアロゾル) が様々な形態を示すことは、同じ硫酸イオンを含む粒子でも、全体的に均一な組成の硫酸 (塩) エアロゾル粒子が存在しているのではなく、組成の異なる硫酸 (塩) エアロゾル粒子が同一空気中に存在 (外部混合) していたことを示唆するものである。前述したように、non-satellite 粒子は、アンモニウムを含んでいるような硫酸 (塩) エアロゾル粒子である可能性もある。後方流跡線解析 (図 2) が示すように、3月8日の対流圏の空気塊は、ロシア工業地域周辺より輸送されていたこと、後述するように少なからず人間活動の影響があったことを考えると、 $\text{NH}_4^+$  を含有し

ている可能性は大いに考えられる。アンモニウム塩となっていた場合は、湿度によって、固体 ⇄ 液体の相変化を起こすため、春季北極対流圏中での不均一反応やエアロゾル粒子による放射を議論する上で重要な要素であろう。

硫酸 (塩) 粒子のほかに、土壌・ダスト粒子と見られる不定形粒子や、海塩粒子・ $\text{CaSO}_4$  粒子のような結晶形を含む粒子も観察された。不定形・結晶質粒子は、高度約 3000-7000 m と 1600 m に高頻度で得られていた。後方流跡線より得られた結果は、4000 m 以下で極わずかに下方より上昇されている様にも見受けられるが、対流圏上層の全体としては大きな鉛直方向の輸送はなく、下層の影響を数日間を受けていなかった様である。この不活発な鉛直方向の輸送を考えると、4000-7000 m の不定形粒子や結晶質粒子は、単純にロシア工業地域に起源があるとは言いがたく、Ishii *et al.* (2001) が示すように、海塩粒子や土壌粒子の中緯度域からの長距離輸送を考慮する必要もあるかもしれない。一方、4000 m 以下の空気塊では、自由対流圏下層～境界層上層 (<2500 m) の影響を受けている可能性もあるにもかかわらず、不定形粒子は観察されなかった。また、2000-4000 m では、硫酸 (塩) エアロゾル粒子のほかに、Na を含む結晶質粒子が多く見られていた。結晶質粒子の一部は液滴痕を示していた (wet crystal) ため、液滴あるいは潮解した海塩粒子と考えられる。境界層内と比べて相対湿度が低いと考えられる自由対流圏下層 (2000-4000 m) においても、wet crystal 粒子が確認されているため、早春季北極対流圏の自由対流圏下層においても、粒子表面が潮解した海塩粒子が存在していることが示唆される。冬～春季北極の自由対流圏中での海塩粒子の存在や輸送は、Ishii *et al.* (2001) も指摘していた。さらに、EDX 分析より得られた Na と Cl のピーク高さを、海塩粒子の主成分である NaCl での Na と Cl のピーク高さと比較すると、Cl のピークが低めに出ている傾向が得られていた。このことは、海塩粒子が大気中を輸送する間に不均一反応を経て徐々に Cl が脱離していた (いわゆる Cl ロス) ことを示唆している。実際、冬春季の北極大気中では、反応性窒素酸化物 (例えば、 $\text{HNO}_3$ ,  $\text{NO}_3$ ,  $\text{N}_2\text{O}_5$ ) により海塩粒子が変質していることが顕著に得られていた (Hara *et al.*, 1999)。北極周辺における自由対流圏中での海塩粒子の存在は、(1) 不均一反応過程による反応性ハロゲン成分海塩粒子からの放出、(2) 雲核 (CCN) としての海塩粒子の機能、(3) 放射過程 (日射の散乱) への海塩粒子の寄与において、大きく関係することが予想されるため非常に重要であろう。特に反応性ハロゲンのソースとしての海塩粒子の寄与は、春季北極境界層内で観測されるオゾン消失減少 (*e.g.*, Barrie *et al.*, 1988) でのハロゲン (特に臭素化合物) のソースになる可能性もあるため、極めて重要である。また、一般に自由対流圏中では境界層と比べると相対湿度が小さいために、今回得られたような潮解粒子ではなく、乾燥した海塩粒子も存在する可能性がある。乾燥した海塩粒子は結晶形を含む非球形となるため、北極域での放射観測では、固体海塩粒子による日射の散乱の寄与を考慮する必要があるかも知れない。

今回の観測・分析では、SEM を使用したために、冬～春季北極ではエアロゾル粒子の主成

分の一つであるスス粒子の同定や混合状態の観察は行えなかった。スス粒子は、エアロゾルの放射過程において非常に重要な吸収体と機能するだけでなく、スス粒子上での不均一反応も盛んに起こることが知られているため、今後の観測では、正確に把握することが重要となろう。また、海塩粒子の変質が、反応性ハロゲン化合物のソースとしてどの程度の寄与があるのか、変質する割合に鉛直分布があるのか、あるいは、ないのか観測をすることも重要となろう。

#### 4. ま と め

AAMP 98 において、大気エアロゾルの直接採集を境界層内 (≈ 1600 m)～成層圏下層 (12000 m) にて行い、個々の粒子の混合状態観察を行った。対流圏下層 (1600 m)～成層圏下部 (12000 m) において、硫酸エアロゾルが卓越していた。しかしながら、その形態は均一ではなく、non-nuclei-satellite, satellite, non-satellite と不均一な形態を示しており、その組成は不均一であることが示唆された。また、non-nuclei-satellite の硫酸エアロゾルは成層圏空間でのみで観測されていた。また、高度 6 km 付近までは、土壌・ダスト粒子と考えられる粒子も、多数確認されていたが、トラジェクトリー解析の結果と比較すると、ロシア工業域からの汚染物質流入だけではない要因、例えば中緯度域からの長距離輸送の可能性も考えられた。さらに、海塩粒子は、境界層内だけではなく、自由対流圏中にも存在し、その一部は潮解した状態で存在していた。

#### 謝 辞

本観測は、AAMP 観測キャンペーン航空機観測参加者、地上観測参加者の方々に、大きな協力並びに支援を受けました。また、ダイヤモンドエアサービス (株) のスタッフの方にも甚大な協力をしていただきました。この場を借りて、感謝の意を表します。本観測は、国立極地研究所北極圏環境研究センターの“北極圏環境観測国際共同研究 (代表：藤井理行)”により実施された。

#### 文 献

- Barrie, L.A. and Bottenheim, J.W. (1993): Sulphur and nitrogen pollution in the Arctic atmosphere. *Pollution of the Arctic Atmosphere*, ed. by W.T. Sturges. London, Elsevier, 155-183.
- Barrie, L.A., Bottenheim, J.W., Schnell, R.C., Crutzen, P.J. and Rasmussen, R.A. (1988): Ozone destruction and photochemical reactions at polar sunrise in the lower Arctic atmosphere. *Nature*, **334**, 138-141.
- Burley, J.D. and Johnston, H.S. (1992): Nitrosyl sulfuric acid and stratospheric aerosols. *Geophys. Res. Lett.*, **19**, 1363-1366.
- Franke, H., Maser, R., Vinnichenko, N., Dreiling, V., Jaenicke, R., Jaeschke, W. and Leiterer, U. (1997): Adaptation of microphysical and chemical instruction to the airborne measuring platform Iljushin Il-18 'Cyclone' and flight regime planning during the Arctic haze investigation 1993-95. *Atmos. Res.*, **44**, 3-16.
- Furuya, K., Miyajima, Y., Chiba, T. and Kikuchi, T. (1987): Elemental characterization of particle

- size-density separated coal fly ash by spectrophotometry, inductively coupled plasma emission spectrometry, and scanning electron microscopy-energy dispersive X-ray analysis. *Environ. Sci. Technol.*, **21**, 898-903.
- Hara, K., Osada, K., Hayashi, M., Matsunaga, K., Shibata, T., Iwasaka, Y. and Furuya, K. (1999): Fractionation of inorganic nitrates in winter arctic troposphere—Coarse aerosol particles containing inorganic nitrates—. *J. Geophys. Res.*, **104**, 23671-23679.
- Hayashi, M., Iwasaka, Y., Watanabe, M., Shibata, T., Fujiwara, M., Adachi, H., Sakai, T., Nagatani, M., Gernandt, H., Neuber, R. and Tsuchiya, M. (1998): Size and number concentration of liquid PSCs: Balloon-borne measurements at Ny-Ålesund, Norway in winter of 1994/95. *J. Meteorol. Soc. Jpn.*, **76**, 549-560.
- Hermann, M., Stratmann, F., Wilck, M. and Wiedensoler, A. (2001): Sampling characteristics of an aircraft-borne aerosol inlet system. *J. Atmos. Ocean Technol.*, **18**, 7-19.
- IPCC (1995): *Climate Change 1994—Radiative forcing of climate change and an evaluation of the IPCC IS92 emission scenarios*, ed. by J.T. Houghton *et al.* Cambridge, Cambridge Univ. Press, 339 p.
- Ishii, S., Shibata, T., Sakai, T., Kido, M., Hara, K., Osada, K., Iwasaka, Y., Nagai, T., Fujimoto, T., Itabe, T., Mizutani, K. and Uchino, O. (2001): The source, size and chemical composition of the winter Arctic tropospheric aerosol layer observed by LIDAR at Eureka, Canada. *J. Meteorol. Soc. Jpn.*, **79**, 61-78.
- Iwasaka, Y., Hayashi, M., Kondo, Y., Koike, M., Koga, S., Yamato, M., Amedieu, P. and Matthews, W.A. (1993): Two different type nitrate aerosols in the winter polar stratosphere: Morphology of individual particles observed with an electron microscope. *J. Geomagn. Geoelectr.*, **45**, 1181-1192.
- Pacyna, J.M. (1993): Chemical tracers of the origins of Arctic air pollution. *Pollution of the Arctic Atmosphere*, ed. by W.T. Sturges. London, Elsevier, 97-122.
- Parungo, F., Nagamoto, C., Herbert, G., Harris, J., Schnell, R., Sheridan, P. and Zhang, N. (1993): Individual particle analyses of Arctic aerosol samples collected during AGASP-III. *Atmos. Environ.*, **27**, 2825-2837.
- Schnell, R.C. (1984): Arctic haze and the arctic gas and aerosol sampling program (AGASP). *Geophys. Res. Lett.*, **11**, 361-364.
- Schnell, R.C., Watson, T. B. and Bodhaine B.A. (1989): NOAA WP-3D instrumentation and flight operations on AGASP-II. *J. Atmos. Chem.*, **9**, 3-16.
- Shiobara, M., Fujii, Y., Morimoto, S., Asuma, Y., Yamagata, S., Sugawara, S., Inomata, Y., Watanabe, M. and Machida, T. (1999): An overview and preliminary results from the Arctic airborne measurement program 1998 campaign. *Polar Meteorol. Glaciol.*, **13**, 99-110.
- Shiraishi, K., Fujiwara, M., Ayukawa, S., Iwasaka, Y., Shibata, T., Adachi, H., Sakai, T. and Tamura, K. (1998): LIDAR observation above Svalbard, Norway in the winter of 1996/97: Characteristics of backscattering ration and depolarization ratio of PSC particles. *Polar Meteorol. Glaciol.*, **12**, 29-39.
- Yamato, M. and Ono, A. (1989): Chemical and physical properties of stratospheric aerosol particles in the vicinity of tropopause folding. *J. Meteorol. Soc. Jpn.*, **67**, 147-166.
- Zeller, R. (1999): *Global Aspects of Atmospheric Chemistry*. New York, Springer, 216-239.
- Zhang, R., Leu, M-T. and Keyser L.F. (1996): Heterogeneous chemistry of HONO on liquid sulfuric acid: a new mechanism of chlorine activation on stratospheric sulfate aerosols. *J. Phys. Chem.*, **100**, 339-345.

(2001年10月1日受付; 2002年1月8日受理)