

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

長田和雄^{1*}・西田千春¹・原圭一郎^{2,4}・矢吹正教^{3,4}・塩原匡貴⁴・
和田 誠^{4,5}・山内 恭^{4,5}・林 政彦⁶

Seasonal variation of size distribution of submicrometer aerosol particles
at Syowa Station, Antarctica

Kazuo Osada^{1*}, Chiharu Nishita-Hara¹, Keiichiro Hara^{2,4}, Masanori Yabuki^{3,4},
Masataka Shiobara⁴, Makoto Wada^{4,5}, Takashi Yamanouchi^{4,5}
and Masahiko Hayashi⁶

(2010年2月13日受付; 2010年3月3日受理)

Abstract: Number-size distributions (5–168 nm in diameter) of atmospheric aerosol particles were measured at Syowa Station, Antarctica from February 2004 to January 2005. Size distributions in winter consisted of 1 to 2 modes larger than 50 nm in diameter, whereas 2 to 3 modes contributed to the size distributions in October to March with mode diameters between 20 and 80 nm. Size distribution with a valley at around 50 nm was often observed in summer to fall when the open ocean was located near Syowa Station. From September to March, concentration of ultra fine particles (<20 nm) was occasionally high. Associated with local wind pattern after vertical mixing of boundary layer air in late afternoon, high concentrations of ultra fine particles were observed for several days in late November.

要旨: 2004年2月~2005年1月にかけて昭和基地で直径5–168 nmの粒径分布を連続観測した。粒径分布は、冬に1~2のモードから成り、濃度の高

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 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.

⁵ 総合研究大学院大学複合科学研究所極域科学専攻, Department of Polar Science, School of Multidisciplinary Sciences, The Graduate University for Advanced Studies (SOKENDAI), Midori-cho 10-3, Tachikawa, Tokyo 190-8518.

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.

* Corresponding author. E-mail: kosada@nagoya-u.jp

いモードは 50 nm 以上であることが多く、春～夏や秋には 2~3 のモードから成り、濃度の高いモードは 20-80 nm 付近にあることが多かった。50 nm 以上に谷を持つ粒径分布の出現頻度は、開水面が昭和基地に近い夏～秋に多かった。一山みの粒径分布は冬と初夏に多くなり、冬には幅が広く、初夏には幅の狭い分布を示した。初夏から初秋にかけて、10-20 nm 付近の核形成モード粒子の濃度が高くなることがあった。11 月下旬には、カタバ風の弱くなる午後に核形成モード粒子の濃度が高くなる事例を数日にわたり観測した。

1. はじめに

南極地域のエアロゾル粒子濃度は、都市大気に比べると千分の一程度とごく低い。南極地域が周囲を暴風圏で取り囲まれているために、人為起源物質を含む中緯度からのエアロゾル粒子の多くは降水によって除去されてしまうと考えられている。そのため、南極は人為的な影響が少ない大気エアロゾル粒子を観測できるという利点があり、逆に、わずかながら漏れてくる人為起源エアロゾルについて、地球環境のバックグラウンドの変遷を知るという意味でモニターが必要とされる場所でもある。このような意義づけのもと、昭和基地ではいくつか世界的にも先駆的な研究がおこなわれている（レビューは伊藤，1988；原，2003 を参照されたい）。例えば、約 30 年前に実施されたサブミクロン領域のエアロゾル粒子粒径分布の観測である（伊藤，1982；伊藤，1983）。しかし、伊藤（1982）での観測は 8-12 月の 4 カ月に限られていた。その後、大気エアロゾルの観測は一旦縮小したが、1996 年から連続観測が始まった（林ほか，2010）。

エアロゾル粒子の連続観測が始まった当初から、基地活動による局地的な汚染の影響を低減するために、風上側へ離れた場所での観測が望まれていた。そのため、プロジェクト研究観測「南極域における地球規模大気変化観測」並びに「地球環境変動に伴う大気・氷床・海洋のモニタリング」の一環として、第 45 次日本南極地域観測隊（以下、第～次隊）では、清浄大気観測施設を昭和基地中心部から見て風上側に新設し、2004 年 2 月から大気エアロゾル粒子に関する種々の観測を開始した（長田ほか，2006）。清浄大気観測施設では、南極域でのナノ～サブミクロン領域のエアロゾル粒子の生成・成長過程について知見を得るために、第 45-47 次隊にかけての 3 年間にわたり、走査型移動度粒径測定器（SMPS: Scanning Mobility Particle Sizer）を用いた通年観測もおこなった。ここでは、これまで一部の季節についてしか知見の得られていないナノ～サブミクロン領域のエアロゾル粒子粒径分布について、2004 年 2 月～2005 年 1 月にかけて通年で得られた観測結果について報告する。

2. 観測とデータスクリーニング

昭和基地・清浄大気観測施設において、2004 年 2 月 10 日～2005 年 1 月 31 日にかけて TSI SMPS-3936-N-25 を用い、直径 5-168 nm の粒径別粒子数濃度を測定した。他に光散乱

式粒子カウンター (YGK, TD100, TD500) や 10 nm 以上の粒子数濃度 (以下, CN 濃度) を計測する凝縮粒子カウンター (TSI, 3010) を用い, 気象要素 (Davis, Vantage Pro), オゾン濃度 (ダイレック, DY1150) など連続測定しており, 粒径別化学分析用のサンプルも取得している (長田ほか, 2006). 走査型移動度粒径の測定 (以後, SMPS) は 1 スキャンを 5 分間で連続観測した. 昭和基地の大気ではエアロゾル粒子濃度が低いので, 直径 5-168 nm の粒径範囲を 24 分割して集計した. スキャンデータは, CN 濃度や風向風速をもとにローカルな汚染の影響を受けたデータを除外し, 1 時間あたり 6 個以上のデータが残った場合に SMPS の時別平均値を算出した. その時別平均値をもとに, 1 日のうちに 12 個以上のデータがあった場合に日平均値・日中央値を算出している.

3. 結果と考察

図 1 に, 観測期間中の CN 濃度や, 日射量, $>0.3 \mu\text{m}$ のエアロゾル粒子についての表面積濃度 (灰色が $0.3\text{-}1.0 \mu\text{m}$, 黒が $1.0\text{-}5.0 \mu\text{m}$), 風速, 地上気温の日平均値を示す. 2004 年 2 月 10 日~2005 年 1 月 31 日までの平均 CN 濃度は, 日中央値の年中央値が $283 \text{個}/\text{cm}^3$, 日平均値の年平均値が $366 \pm 326 \text{個}/\text{cm}^3$ であった. 1997 年 4 月~2008 年 12 月までの平均 CN 濃度は, 日中央値の年中央値が $257 \text{個}/\text{cm}^3$, 日平均値の年平均値が $355 \pm 338 \text{個}/\text{cm}^3$ であるので (林ほか, 2010), ここに報告する第 45 次隊の CN 濃度は年並みだったことがうかがえる. 一方, 測定器 (最小可測粒径) が異なるので単純な比較は難しいが, 伊藤 (1988) にまとめられている 1977 年 2 月~1978 年 12 月までの日中央値の年平均値は $230 \text{個}/\text{cm}^3$ であり, 近年の方が若干高めであった (1997-2008 年について, 日中央値の年平均値は $324 \text{個}/\text{cm}^3$).

岩井 (1979) に報告されているように, 昭和基地の CN 濃度は夏に高く冬に低い, 全天日射量の季節変化に沿うような季節変化を示した. また, 冬のブリザード時には CN 濃度の上昇が見られた. $>0.3 \mu\text{m}$ のエアロゾル粒子表面積濃度は, 2-9 月くらいまでは風速と共に増加していたが, 10-11 月になると風速が強くてもエアロゾル表面積濃度はあまり上昇しなかった (詳細は Hara *et al.*, 2004; 長田ほか, 2010 を参照されたい).

図 2 に示したのは, SMPS による測定結果の一例 (2005 年 1 月 21 日の日平均値) である. 観測した粒径分布に対し, 最大 3 つの対数正規分布 (以下, モードと記す) の重ね合わせをフィッティングすることで, 粒径分布を 9 つのパラメータ (1 つのモードについて個数濃度と中央径, 標準偏差) として整理し, 解析をおこなった.

図 3 に, SMPS による個数粒径分布とモード径 (粒径分布における最頻値の直径), 各モード径での個数濃度の季節変化を示す. 図 1 で見た CN 濃度の季節変化の内訳が図 3 に示す粒径分布である. 直径 20-80 nm 程度のエアロゾル粒子濃度は日射量の多い 10-3 月に高く, 4-8 月に低かった. 3 月には 20 nm 以下のエアロゾルもしばしば見られたが, 二ないし

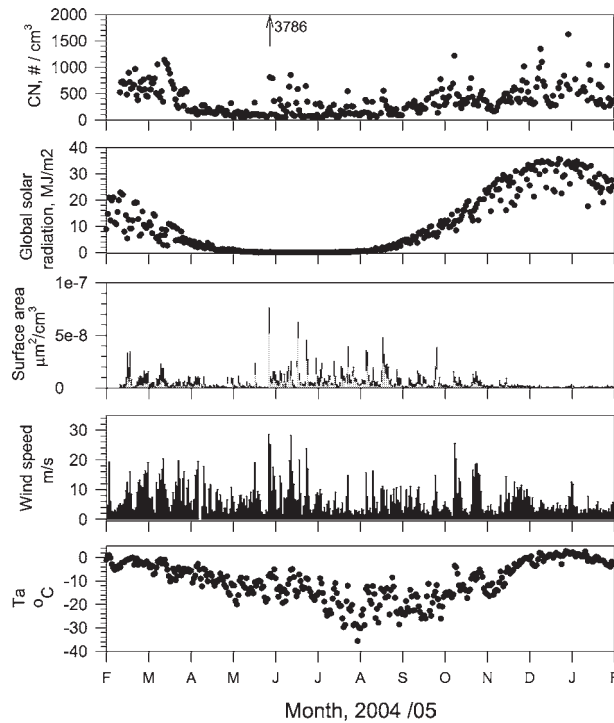


図1 2004年2月～2005年1月までの観測結果. 上から順に, CN濃度, 全天日射量, >0.3 μmのエアロゾル粒子についての表面積濃度 (灰色: 0.3-1.0 μm, 黒: 1.0-5.0 μm), 風速, 地上気温の日平均値.

Fig. 1. Results from February 2004 to January 2005 at Syowa Station. From the top panel, concentration of condensation nuclei (CN), global solar radiation, aerosol surface area concentration (gray: 0.3-1.0 μm, black: 1.0-5.0 μm), wind speed, and air temperature.

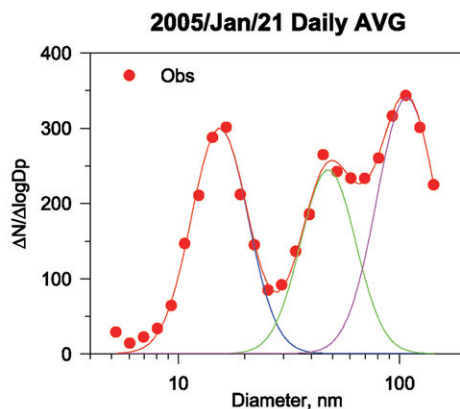


図2 SMPSによる測定結果の一例(2005年1月21日の日平均値). 丸印が観測値, 色別の実線がフィッティング結果.

Fig. 2. Example of size distribution on January 21, 2005 at Syowa Station. Circles represent observed data and color lines indicate results for fitting to 3 modal normal distributions.

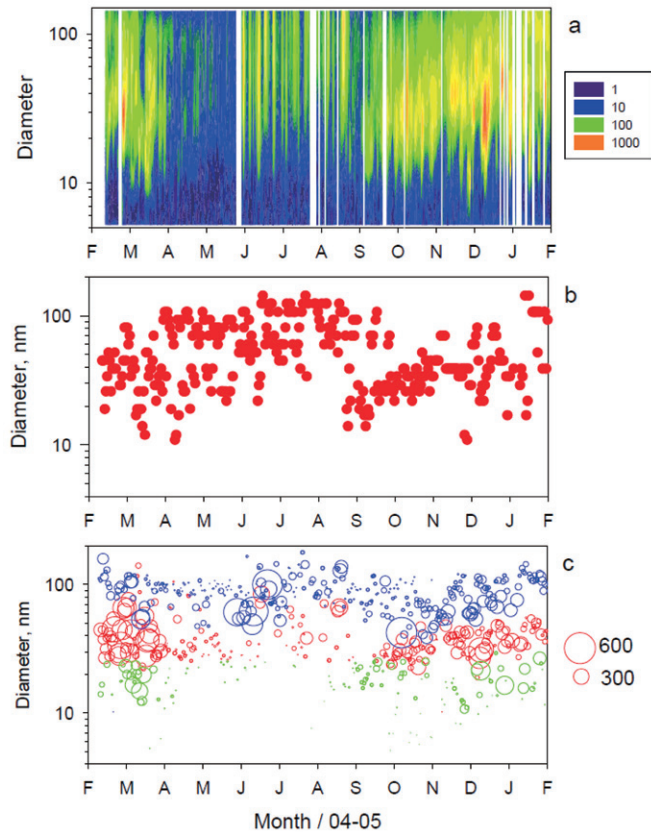


図3 (a) 昭和基地での個数粒径分布, (b) モード径(粒径分布における最頻値の直径), (c) モード径別(直径の小さい方から緑, 赤, 青の順)の個数濃度(円の大きさ).

Fig. 3. (a) Number-size distribution measured at Syowa Station, (b) peak mode diameters, and (c) mode diameters (color of circles: green, red, and blue from smaller mode diameter) and their concentrations indicated by size of the circles.

三山で構成されるような広い範囲にまたがる粒径分布が特徴的であった。極夜期から春にかけては、ブリザードに伴って80 nm以上の比較的大きいエアロゾルが1日~数日にわたって増えていたが、風速が弱くても高濃度のエアロゾルが観測されるケースがあった(Hara *et al.*, 2010)。図3中段のモード径の季節変化を見ると、秋~冬にかけてはばらつきながらも次第に粒径が大きくなり、8月下旬から急に20 nm付近の小さな粒径が主となり、9-10月にゆっくりと成長していくような変化を示している。11月からはモード径のばらつきが大きくなりつつ、翌年の秋につながるように推移している。20 nm以下の核形成領域のエアロゾル粒子濃度が高くなるのは、9月以降3月頃までであった。

各モード径とそのモードでの個数濃度の季節変化としては、冬には1~2のモードから成り、濃度の高いモードは50 nm以上であることが多く、春から夏、秋には2~3のモードか

ら成り、濃度の高いモードは 20-80 nm 付近にあることが多かった。これらの日別モード径を 1 年間の度数分布としてまとめたのが図 4 である。度数分布は、50 nm に谷を持つ二山分布を示していた。日々の粒径分布を並べて仔細に観察したところ、50 nm の粒径分布に着目して、図 5 に示す 3 つのパターンに分類できることがわかった。それらは、(a) 二山のモードでフィッティングできて、 > 50 nm の粒径分布に谷を持つ分布と、(b) 二山のモードでフィッティングできるが、谷ではなく肩を持つ分布、(c) 標準偏差の大きい一山の分布である。

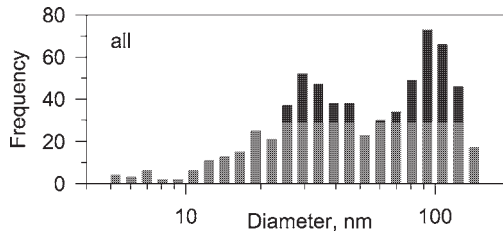


図 4 2004 年 2 月~2005 年 1 月までの日別モード径の度数分布
 Fig. 4. Histogram of daily mode diameter for study period.

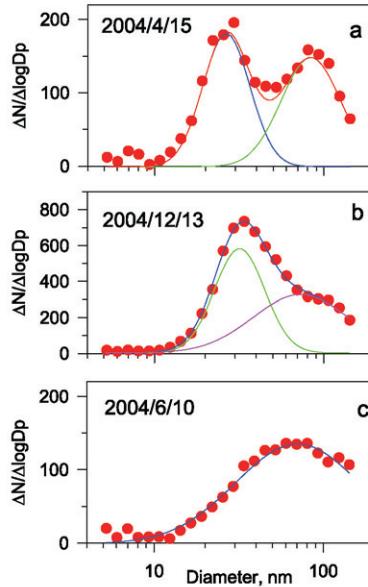


図 5 (a) 二山のモードでフィッティングできて、 > 50 nm の粒径分布に谷を持つ分布、
 (b) 二山のモードでフィッティングできるが、谷ではなく肩を持つ分布、
 (c) 標準偏差の大きい一山の分布。

Fig. 5. Examples of fitting for size distributions: (a) double modes with valley larger than 50 nm, (b) double modes with shoulder instead of valley, (c) single mode with large width (σ).

図6に、(a) 月ごとの3つのパターンの割合と (b) 昭和基地から東経40度に沿っての海水縁の距離 (牛尾, 2006), (c) 1989年の水雲や氷晶雲, 混合雲の割合 (Konishi *et al.*, 1994)を示す。まず、 >50 nmの粒径分布に谷のあるパターンの出現率は秋に最も多く、3月には58%に達した。冬から春にかけての7-11月には谷のあるパターンはほとんど観測されなかったが、12月から増えだした。

このような谷のある粒径分布は、降水に至らなかった水滴からなる雲の雲粒に SO_2 などの水溶性ガスが溶け込み、硫酸塩のように揮発しにくい物質へと変換された後に雲粒の水分が蒸発し、残ったエアロゾル粒子の直径が結果として増加したことによると考えられる。雲粒として活性化できた、ある粒径以上のエアロゾル粒子についてののみ残渣としての直径が増加することになるので、もとの粒径分布とはギャップを生ずるために谷ができると考えられており (Hoppel *et al.*, 1986), 実験的にも確かめられている (Hoppel *et al.*, 1994)。

Konishi *et al.* (1994) は1989年の昭和基地での観測から、水滴から成る水雲と氷晶から成る氷晶雲の割合の季節変化を解析した。その結果、海水が最も後退する秋に水雲の割合が高く、冬~春にかけて海水が発達する季節には雲中の水滴の濃度が低いことを示した(図

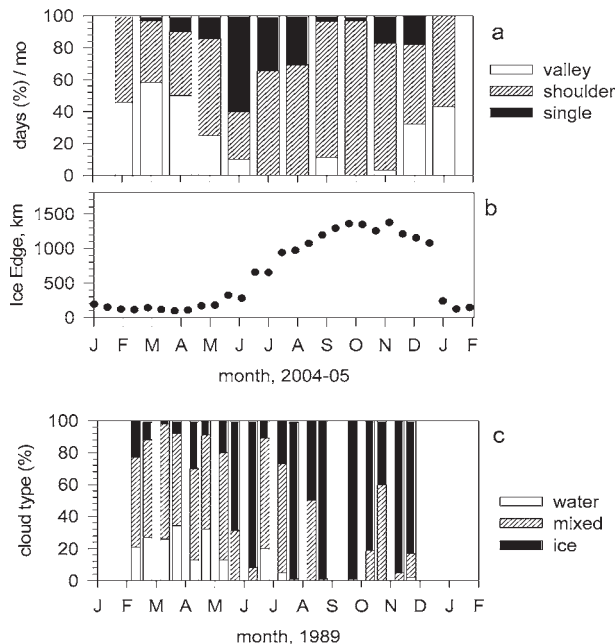


図6 (a) 図5に示した粒径分布の月別パターンの割合(%), (b) 昭和基地から東経40度に沿っての海水縁の距離 (牛尾, 2006), (c) 1989年の水雲や氷晶雲, 混合雲の割合 (Konishi *et al.*, 1989)。

Fig. 6. (a) type (in %) of size distribution for 2004 categorized as Fig. 5, (b) distance to the sea ice edge from Syowa station along 40°E (Ushio, 2006), and (c) cloud type (in %) according to radar echo (Konishi *et al.*, 1989).

6c). 第45次隊での観測期間には、夏~秋にかけて海水が流失しており、昭和基地の周辺は開水面となっていた。図6bに示したように、気温が比較的高く、海水縁が昭和基地に近い季節(1-5月)には谷を持つ分布の割合が高い。Konishi *et al.* (1994)の結果と併せて考えると、気温が高く開水面のある時期には、降水に至らなかった水雲の雲粒にSO₂などの水溶性ガスが溶け込み、揮発しにくい溶質を残して乾燥した結果、谷のある粒径分布ができたと考えられる。

一方、一山の粒径分布が6-8月に多かったことも興味深い。図7に示すように、同じ一山分布でも冬と夏とでは粒径分布の様子がかなり異なる。冬は標準偏差が大きく($\sigma=2.8$)、裾の広い分布だったのに対し、夏は標準偏差が狭くなっていった($\sigma=1.8$)。これらの分布を形成する要因や、エアロゾル粒子の化学成分との関係についての考察は今後の課題であるが、冬は海塩粒子、夏は硫酸塩粒子がサブミクロン領域でも主体なので、エアロゾル粒子の起源に関係することも予想される。

20 nm以下の核生成モード粒子は9月以降にしばしば観測され始め、11月下旬になると、現地時間の午後から著しく高濃度になる日が数日あった。図8にその例を示す。図8は、2004年11月26-30日にかけての全天日射量と直達日射量、気温と相対湿度、風速と風向、CN濃度とSO₂濃度、SMPSによる粒径分布である。11月26日や27, 28, 30日の午後にはCN濃度が急増し、10-20 nmの粒子数濃度だけが増えていた。CN濃度が増えるのは風速の弱くなる時間帯に対応しており、既存粒子表面積濃度も低くなっている。

11月は、夜間から朝にかけてカタバ風の影響を強く受けて10 m/sを越す風が吹き、午後になると風速が弱くなる日周リズムが顕著な時期である(遊馬・小松, 2010)。午後になると日射により地表が暖められて混合層高度が上がり、カタバ風の影響下から抜け出すと共に、混合層上部の空気との鉛直混合が起きると考えられる。この時期の航空機観測によれ

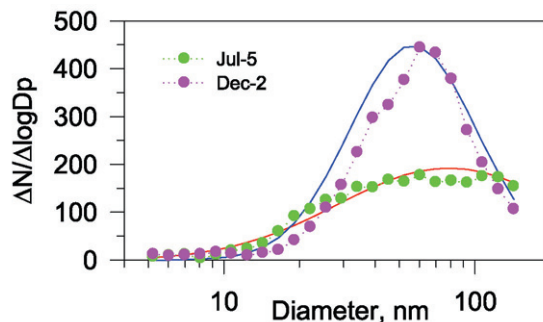


図7 2004年7月5日と12月2日の粒径分布。実線は、青: 11-12月の一山分布の平均値と、赤: 5-8月の一山分布の平均値をそれぞれ示す。

Fig. 7. Examples of single mode size distributions on July 5 (green circles) and December 2 (purple circles), 2004 with averaged distributions during May to August (red) and November to December (blue).

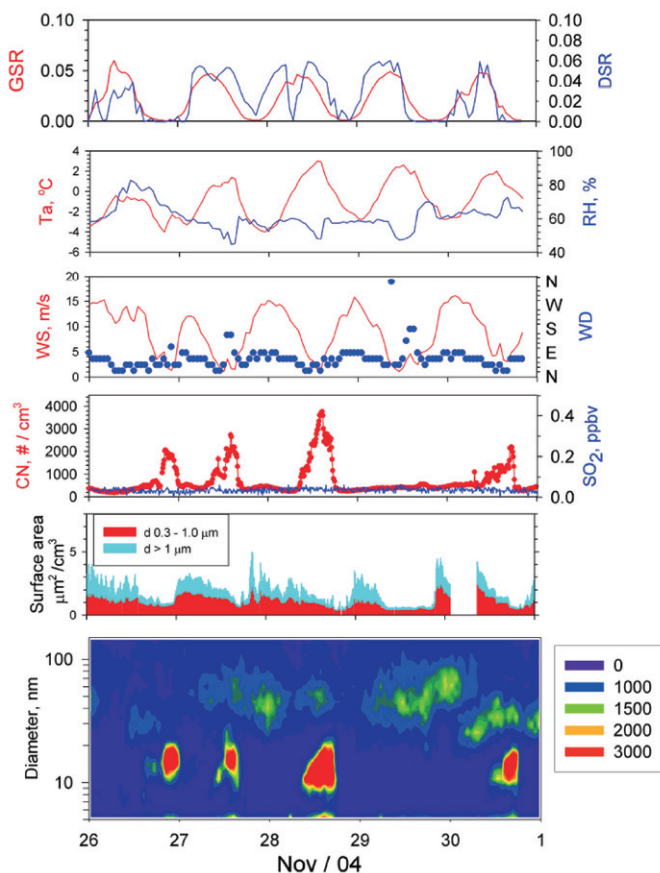


図8 2004年11月26-30日にかけての全天日射量と直達日射量，気温と相対湿度，風速と風向，CN濃度とSO₂濃度，SMPSによる粒径分布。

Fig. 8. Observation results during November 26 to 30, 2004. From the top panel, GSR: global solar radiation and DSR: direct solar radiation, air temperature and relative humidity, wind speed and direction, concentrations of CN and SO₂, surface area of aerosols (red: 0.3–1.0 μm, blue: 1.0–5.0 μm), and size distributions measured by SMPS.

ば，既存粒子数濃度の低い自由対流圏と，先駆物質濃度の高いことが予想される混合層上端との境目付近でCN濃度が高い事例を観測している (Osada *et al.*, 2006)。また，係留気球によるCN濃度鉛直分布の観測でも，混合層よりも上層で濃度が高い事例が夏季に観測されていた(原ほか，2010)。これらを総合すると，日射による加熱で混合層上部の空気と鉛直混合が起きることにより，上空ですでに10 nm程度に成長した核形成モードのエアロゾル粒子が地表付近へ輸送されて，核生成モードの粒子が観測されたと考えられる。夏には強い日射により大気中の先駆物質の酸化・粒子化が進みやすくなると漠然と考えていたが，ある条件下(混合層上端での低い既存粒子濃度と，ある程度先駆ガス濃度)でのみ粒子生成が生じ，地表ではある程度成長した後の粒子として観測されるようである。

4. まとめと今後の課題

昭和基地で2004年2月~2005年1月までサブミクロン粒子の粒径分布を連続観測した。冬には1~2のモードから成り、濃度の高いモードは50 nm以上であることが多く、春から夏、秋には2~3のモードから成り、濃度の高いモードは20-80 nm付近にあることが多かった。50 nm以上に谷を持つ粒径分布の出現頻度は、開水面が昭和基地に近い夏~秋に多かった。一山の粒径分布は冬と初夏に多くなり、冬には幅が広く、初夏には幅の狭い分布を示した。初夏から初秋にかけて、10-20 nm付近の核形成モード粒子の濃度が高くなることがあった。11月下旬の事例では、混合層上部で新粒子生成が起きた後に、午後の日射加熱により大気鉛直混合が進み、その結果、地表付近で成長の進んだ核形成モードの粒子が観測されたと考えられる。

この報告では、第45次隊での1年間の観測結果についてのみ報告した。第47次隊までの連続する3年間のデータの解析や、エアロゾル粒子を構成する物質の検討などは今後の課題である。

謝 辞

観測機材の準備や帰国後の後片付けにご協力頂いた研究室の皆様、昭和基地での観測に対する種々のご支援を頂きました第45次隊の皆様、気象データをご提供頂きました気象庁南極観測事務室に深く感謝いたします。また、水雲と氷晶雲割合のデータを快くデジタル化して頂きました大阪教育大の小西啓之博士に感謝いたします。なお、本研究はプロジェクト研究「南極域における地球規模大気変化観測」の一部として行われ、科学研究費(No. 15310012)による研究助成を受けた。

文 献

- 遊馬芳雄・小松麻美 (2010): 昭和基地周辺の局地風. 南極資料, **54**, 308-332.
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., 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.
原圭一郎・長田和雄・西田千春・山内 恭・林 政彦 (2010): 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.
Hara, K., Osada, K., Yabuki, M., Hashida, G., Yamanouchi, T., Hayashi, M., Shiobara, M., Nishita, C. and Wada, M. (2010): Haze episodes at Syowa Station, coastal Antarctica: Where did they come from? *J. Geophys. Res.*, **115**, D14205, doi:10.1029/2009JD0123582.
林 政彦・長田和雄・原圭一郎・矢吹正教・小林 拓・猪原 哲・和田 誠・山内 恭・橋田 元・塩原匡貴 (2010): 昭和基地における地上エアロゾルモニタリング. 南極資料, **54**, 474-486.
Hoppel, W.A., Frick, G.M. and Larson, R.E. (1986): Effect of nonprecipitating clouds on the aerosol size distribution in the marine boundary layer. *Geophys. Res. Lett.*, **13**, 125-128.
Hoppel, W.A., Frick, G.M., Fitzgerald, J.W. and Wattle, B.J. (1994): A cloud chamber study of the effect that nonprecipitating water clouds have on the aerosol size distribution. *Aerosol Sci.*

Technol., **20**, 1-30.

伊藤朋之(1982):南極大気中のサブミクロンエアロゾルの粒径分布について. 南極資料, **76**, 1-19.

伊藤朋之(1983):南極大気中のエアロゾルの性状と起源に関する研究. 気象研究所研究報告, **34**, 151-219.

伊藤朋之(1988):7. 対流圏エアロゾル. 気象. 東京, 古今書院, 221-255 (南極の科学;3).

岩井邦中(1979):昭和基地におけるエートケン粒子濃度について一序報一. 南極資料, **67**, 172-179.

Konishi, H., Wada, M. and Endo, T. (1994): Seasonal variation of precipitating clouds near Syowa Station, Antarctica derived from liquid water content data. J. Meteorol. Soc. Jpn., **72**, 709-717.

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.

長田和雄・林 政彦・塩原匡貴・原圭一郎・和田 誠・橋田 元・森本真司・矢吹正教・山内 恭 (2006):南極・昭和基地における清浄大気観測室の設置について. 南極資料, **50**, 86-102.

長田和雄・林 政彦・原圭一郎・矢吹正教・和田 誠・塩原匡貴・山内 恭・藤田耕史 (2010):昭和基地における大気中粗大粒子濃度の季節変化. 南極資料, **54**, 487-497.

牛尾収輝 (2006):南大洋インド洋区及びリュツォ・ホルム湾沖の海氷消長の特徴. 南極資料, **50**, 142-151.