

## 南極沿岸域でのブラックカーボン—季節変化と輸送過程—

原圭一郎<sup>1,5\*</sup>・長田和雄<sup>2</sup>・矢吹正教<sup>3,5</sup>・林 政彦<sup>4</sup>・  
山内 恭<sup>5,6</sup>・塩原匡貴<sup>5</sup>・和田 誠<sup>5,6</sup>

## Black carbon at a coastal Antarctic station (Syowa Station): seasonal variation and transport processes

Keiichi Hara<sup>1,5\*</sup>, Kazuo Osada<sup>2</sup>, Masanori Yabuki<sup>3,5</sup>, Masahiko Hayashi<sup>4</sup>,  
Takashi Yamanouchi<sup>5,6</sup>, Masataka Shiobara<sup>5</sup> and Makoto Wada<sup>5,6</sup>

(2010年2月9日受付; 2010年3月17日受理)

**Abstract:** Measurement of atmospheric black carbon (BC) was carried out at Syowa Station Antarctica (69°00'S, 39°35'E) from February 2004 until January 2007. The BC concentration at Syowa Station ranged from below detection to 176 ng m<sup>-3</sup>. Higher BC concentrations were observed frequently from April until October. Increase of BC concentration may be associated with poleward flow due to the approach of a cyclone and/or blocking event during winter-spring. The BC-rich air masses traveled through the lower troposphere from the Atlantic and Indian Oceans to Syowa (Antarctic coast). During the summer (November-February), the BC concentration showed a diurnal variation together with surface wind speed and increased in the presence of katabatic wind from the Antarctic continent. Considering the low BC source strength over the Antarctic continent, the higher BC concentration in the continental air (katabatic wind) might be caused by long range transport of BC via the free troposphere from mid- and low- latitudes. The seasonal variation of BC at Syowa Station had a maximum in July-September, while at the other

<sup>1</sup> (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.

<sup>2</sup> 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.

<sup>3</sup> (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.

<sup>4</sup> 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.

<sup>5</sup> 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.

<sup>6</sup> 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: harakei@fukuoka-u.ac.jp

coastal stations (Halley, Neumayer, and Ferraz) and a continental station (Amundsen-Scott), the maximum occurred in October. This difference may result from different transport pathways, significant contribution of source regions and scavenging of BC by precipitation during the transport from the source regions. During the austral summer, long-range transport of BC via the free troposphere is likely to make an important contribution to the ambient BC concentration along the Antarctic coasts.

要旨: 2004年2月~2007年1月(JARE-45~JARE-47)に南極昭和基地で、大気中ブラックカーボン(BC)の連続観測を実施した。昭和基地での観測期間中のBC濃度範囲は、検出下限~176 ng/m<sup>3</sup>だった。4-10月には、低気圧の接近やブロッキング現象による中緯度から極域に向けた空気塊の流入により、BC濃度の増加が頻繁に観測された。BC濃度の高い空気塊は、大西洋やインド洋から対流圏下部経由で南極沿岸域である昭和基地へ輸送されていた。夏季(11-2月)に、BC濃度は地上風速と共に日変化を示し、大陸から吹き下りるカタバ風内でBC濃度が増加していた。南極大陸内でのBCソース強度は低いため、大陸上の大気(カタバ風)中のBCは、低中緯度から自由対流圏経由で南極域へ長距離輸送されていると考えられる。昭和基地でのBC濃度季節変化は、7-8月に極大を示していたが、他の南極沿岸基地(Halley, Neumayer, and Ferraz)や大陸上の基地(Amundsen-Scott)では、10月に極大をとっていた。この違いは、輸送経路、重要なBC発生地域、輸送中の降水によるBCの除去過程の違いによると考えられる。

## 1. はじめに

黒色炭素(Black carbon; 以下、BC)は、対流圏エアロゾルでは重要な成分の一つであり、燃焼過程での不完全燃焼により生成され、大気へ放出される。大気中に浮遊するBCは吸収特性から、放射収支やエアロゾルによる気候影響(直接効果)の観点からも注目を集めている(Hansen *et al.*, 2005; IPCC, 2007)。エアロゾルとしてのBCの吸収特性に加え、積雪表面に沈着したBCは表面アルベドに大きく影響を及ぼし、融雪や温暖化効果を増加させる(Aoki *et al.*, 1998; Hansen and Nazarenko, 2004; Hansen *et al.*, 2005; IPCC, 2007)。また、グリーンランドでのアイスコア解析から、工業化の進んだ20世紀では、積雪表面中のBC濃度と気温変動に関係があったことが指摘されている(McConnell *et al.*, 2007)。極域でのBCの空間分布や大気エアロゾルによる気候影響に関して知見を得るための、多くのエアロゾル観測(e.g., Hara *et al.*, 2003; Yamanouchi *et al.*, 2005)やモデル計算から(Rinke *et al.*, 2004; Stohl, 2006)、北極域では中緯度工業地域や北極圏内に存在する工業地域から著しい影響を受けていることが示されていた。

北極域と比べて、南極域は他の大陸上での人間活動から隔離されている。南極域の隔離された環境は、人為起源物質の濃度が低いため、他の地域と比べるとエアロゾル数密度は極めて低い(e.g., Ito, 1989)。南極域ではエアロゾル数濃度やBC濃度は極めて低く、エアロゾルの直接効果による気候影響はほとんどない(Bodhaine, 1995)。CO<sub>2</sub>やCH<sub>4</sub>のような長寿命の大気微量成分は南極域でも増加傾向が得られているが(Aoki *et al.*, 1992; 青木・

中澤, 1997), 現在の南極域では, 大気エアロゾルや寿命の短いガス成分は人間活動の影響をほとんど受けていないと考えられている。しかし, 人間活動由来の金属成分(例えば Pb)が, 南極域での積雪資料やアイスコアでも確認される例もあった (Planchon *et al.*, 2002a, 2002b; Vallelonga *et al.*, 2002)。南半球での人間活動や工業化の発展に伴い, 将来的には南極域に輸送される人為起源物質や陸域起源物質質量が増加する可能性もある。現在から未来の人為起源物質の影響や, 低中緯度から南極への長距離輸送過程を理解するためには, BC の連続観測が重要となってくる。

大規模な燃焼過程から隔離されているため, 南極圏内の BC ソースは, (1) 各観測基地での人間活動(主に沿岸部に分布する), (2) 雪上車などの極めて少ない車両の利用, (3) 南極圏内での航空機や船舶活動(主に夏期)に限定される。Warren and Clarke (1990) や Hansen *et al.* (2001) により示されているように, 基地からの BC 発生は風の状況によって, 局所的なスケールでは大気観測に大きな影響を与えるが, 南極全域での BC ソース強度では極めて小さいか, 無視できる程度である。

南極域での BC 観測は, これまでに内陸基地の Amundsen-Scott 基地(緯度, 90°S) (Hansen *et al.*, 1988; Bodhaine, 1995), 沿岸基地の Halley 基地(75°35'S, 26°34'W) (Wolff and Cachier, 1998), Neumayer 基地(70°39'S, 08°15'W) (Weller, R.; <http://web.awi.de/GPH/AirChemistryObservatory/results.html>), Ferraz 基地(62°05'S, 58°20'W) (Pereira *et al.*, 2006) で実施されていた。Halley 基地で観測された BC 濃度(2 時間平均)の範囲は, 検出下限~約 20 ng/m<sup>3</sup> (Wolff and Cachier, 1998), Amundsen-Scott 基地での BC 濃度(日平均)の範囲は 0.02–50 ng/m<sup>3</sup> だった (Hansen *et al.*, 1988; Bodhaine, 1995)。南極域は BC の発生源から隔離された環境であるにもかかわらず, 明瞭な季節変化を示していた。

Amundsen-Scott 基地での BC 濃度の季節変化は, 夏に最大, 冬に最少を示しており (Hansen *et al.*, 1988; Bodhaine, 1995), Halley 基地 (Wolff and Cachier, 1998) や Ferraz 基地 (Pereira *et al.*, 2006) でも同様だった。しかし, Neumayer 基地では春(10 月)に最大を示していた (Weller, R., private communication)。過去の南極でのエアロゾル観測でも, BC が荒天により中緯度域から輸送されることを示していたが (Murphey and Hogan, 1992; Perreira *et al.*, 2004; Perreira *et al.*, 2006; Fiebig *et al.*, 2009), BC の南極域への輸送過程はまだよくわかっていない。Amundsen-Scott 基地での BC 観測を除けば, BC 観測はウェッデル海や南極半島周辺の西南極沿岸部のみで実施されている。南極大気中での BC 濃度の季節変化や空間分布, 南極域へのエアロゾル成分の輸送過程を理解するためには, インド洋や太平洋セクターに位置する東南極域での BC 観測が必要だろう。また, 非常に大きな燃焼過程や人為発生源のない南極域では, 実際に計測されている BC 濃度や明瞭な季節変化を維持するには, 南極圏外から輸送されていなければならない。言い換えれば, BC は南極域への長距離輸送のトレーサーとして用いることができるかもしれない。

低中緯度域から南極域へのトレーサーとして、 $\text{CO}_2$  (e.g., Murayama *et al.*, 1995) や鋳物粒子 (e.g., Basile *et al.*, 1997; Delmonte *et al.*, 2004; Revel-Rolland *et al.*, 2006), 水蒸気やその同位体比 (e.g.,  $\delta^{18}\text{O}$ ) (Reijmer *et al.*, 2002; van Lipzig and van den Broeke, 2002; Massom *et al.*, 2004; Suzuki *et al.*, 2008) が用いられることがある。昭和基地で実施された地上と上空の長期の  $\text{CO}_2$  観測では、 $\text{CO}_2$  濃度の高い空気塊は、低緯度や北半球から上空経由で輸送されていることを示唆していた (Murayama *et al.*, 1995; 青木・中澤, 1997)。対流圏での  $\text{CO}_2$  の寿命は、降水や乾性沈着で除去されるエアロゾル粒子と比べると非常に長いため、エアロゾルの南極域への長距離輸送を議論するためには、寿命の違いや除去過程の違いを考慮しなければならない。土壌粒子の主成分の一つである Al の季節変化は、Neumayer 基地では夏に極大となる変化をしていた (Wagenbach, 1996)。アイスコア解析では、南極の雪やアイスコア中の土壌粒子の発生源は主にパタゴニア域であり (Basile *et al.*, 1997; Delmonte *et al.*, 2004), オーストラリアも若干の発生源であること (Revel-Rolland *et al.*, 2006) を示唆していた。しかしながら、これらの研究はアイスコア試料中の土壌粒子の安定同位体比解析 ( $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ,  $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$ ) に基づいており、土壌粒子の季節変化や発生源からの輸送過程を議論するのは難しい。土壌粒子と異なり、BC 連続観測は、南極域でも比較的高時間分解能で実施することができる。BC が燃焼過程から放出された後では、BC の除去過程は降水や乾性沈着のみであり、輸送中の化学反応により消失することはないため、BC は低中緯度域から南極へのエアロゾル輸送を議論する際には非常に良いトレーサーとなるだろう。

本研究は、(1) 東部南極沿岸域に位置する昭和基地での BC の季節変化、(2) BC の南極への輸送過程、(3) 南極沿岸に位置する各観測基地での BC 濃度範囲や季節変化の違いについて新たな知見を得ることを目的としている。

## 2. 観 測

### 2.1. 昭和基地でのエアロゾル観測

日本南極地域観測隊 (JARE: Japanese Antarctic Research Expedition) の計画の一部として、2003 年 2 月~2007 年 1 月 (JARE-44~47) まで 4 年間のエアロゾル重点観測を昭和基地で実施した。昭和基地での BC 連続観測は、2004 年 2 月 11 日~2007 年 1 月 12 日 (JARE-45~47) に行った。昭和基地の位置する東オングル島は、図 1 に示すように大陸から約 4 km 離れている。エアロゾル観測に使用するすべての機器は、基地主要部からの局所的な汚染を防ぐために、2004 年 1 月に建てられた「清浄大気観測室」に設置した。観測室は基地主要部から約 400 m 離れた風上側に位置する。観測室の詳細については、長田ほか (2006) に述べられている。

図 2 に、観測室の大気取り込み口や配管を示す。大気取り込み口は、観測室の風上側に



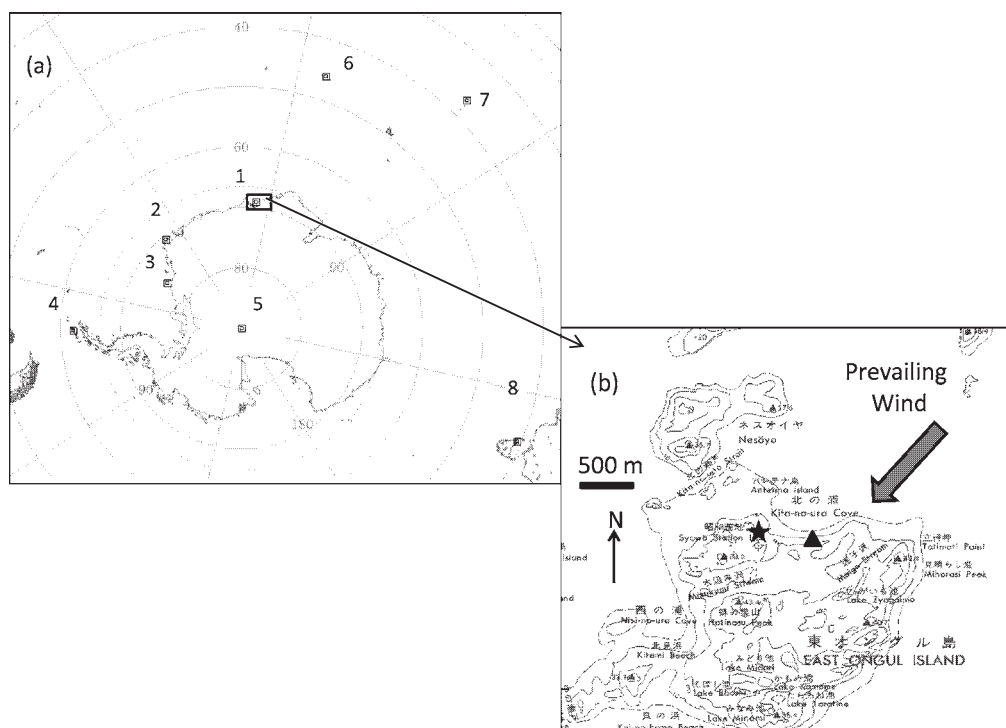


図1 BCやECの観測が行われた南極周辺の観測基地: (1) 昭和基地, (2) Neumayer, (3) Halley, (4) Ferraz, (5) Amundsen-Scott (South Pole), (6) Crozet Island, (7) Amsterdam Island, (8) Cape Grim. (b)の図中に示した星印, 三角印は発電棟, 清浄大気観測室の場所を示す。

Fig. 1. Location of research stations carrying out measurements of black carbon or elemental carbon: (1) Syowa, (2) Neumayer, (3) Halley, (4) Ferraz, (5) Amundsen-Scott (South Pole), (6) Crozet Island, (7) Amsterdam Island, and (8) Cape Grim. The star and triangle marks in (b) indicate the location of the diesel power station and “clean air observatory” at Syowa Station, respectively.

ある大気サンプリング用のタワー最上部に固定し, その高さは地面から約5 m程度である。大気は内径100 mmφのステンレス配管と吸引ファン(MB10V-B, Oriental Motor)で観測室内へ取り込んだ。配管内の流速は, 2-3 m/sになるように調整した。外の大気取り込み口部と観測室内でのOPC同時観測結果から, 配管内での粒子損失は,  $D_p > 0.3, > 0.5, > 1.0, > 2.0 \mu\text{m}$ の各サイズレンジで, それぞれ6, 7, 12, 13%だった(長田ほか, 2006)。室内に導入したサンプル大気は導電性チューブやステンレス配管を使用し, 各エアロゾル観測用測器に分配した。

BC濃度計測にJARE-45ではPSAP (Particle soot absorption photometer, Radiance Research)を, JARE-46~47では7波長型のエサロメータ(AE31, Magee Science)を使用した。BC観測時の流量は, PSAPで約1.5 L/分, エサロメータで約9 L/分に調節した。

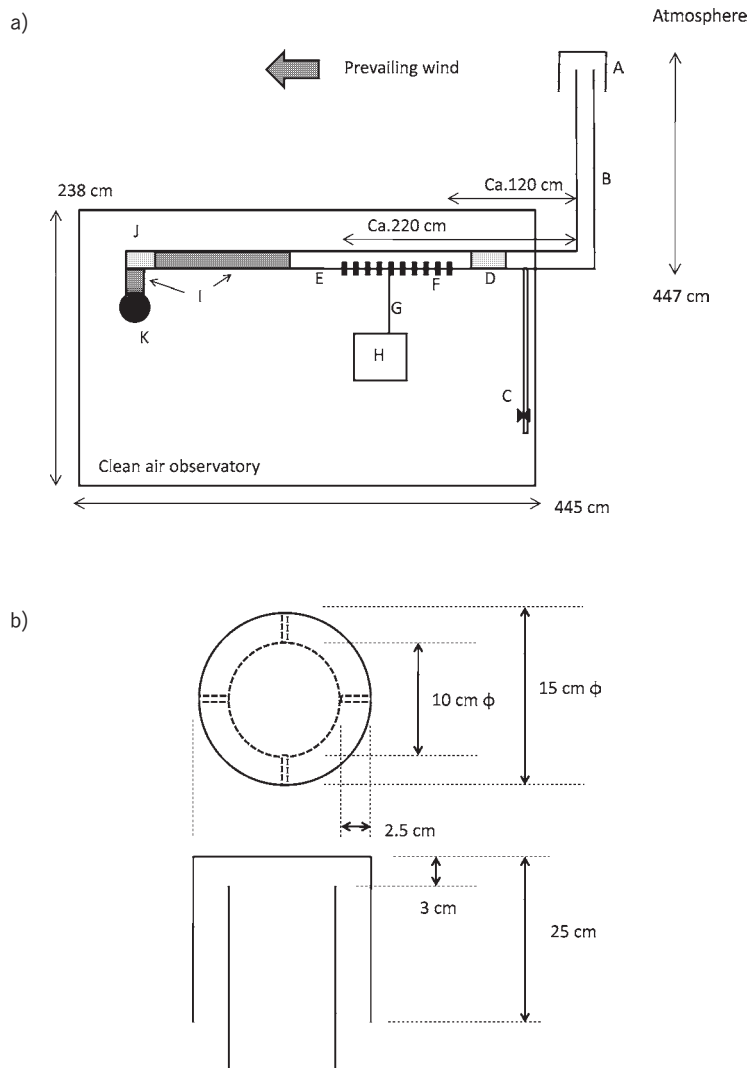


図2 清浄大気観測室の大気取り込みの配管 (a: 大気インレットと配管の概略図, b: 大気取り込み口の寸法). A: 外気取り込み口, B: ステンレス管 (直径 10 cm), C: 降水除去用の配管, D: アクリルパイプ (長さ 30 cm), E: ステンレス管 (直径 10 cm) と分岐口 (9 か所), F: 真鍮製チューブ継ぎ手, G: 電性チューブあるいはステンレス管, H: エアロゾル観測測器 (例: PSAP, エサロメータ), I: フレキシブルプラスチックチューブ (10 cm $\phi$ ), J: シロッコファン, K: 観測室外への排気口

Fig. 2. Air sampling system at the observatory (a: design of schematic figure of air inlet line, b: design of the air intake). A: air intake, B: stainless tube (dia. 10 cm) supported by tower beside the observatory, C: drain tube and valve for removal of precipitation, D: acrylic pipe (length: 30 cm) for checking snow stacking inside the pipe, E: Stainless tube (10 cm $\phi$ ) with nine air ports, F: brass pipe connection fixed in air ports, G: conductive (or stainless) tubes, H: instruments such as PSAP and aethalometer, I: flexible plastic tube (10 cm $\phi$ ), J: air fan, and K: air exhaust to the outside of the observatory.

PSAP とエサロメータは光学的に吸収係数あるいは BC 濃度を計測している。光源波長は PSAP では 565 nm, エサロメータでは 370, 470, 520, 590, 660, 880, 950 nm である。相互比較のため, PSAP とエサロメータは昭和基地において 2005 年 1 月に 2 週間程度, 同時観測を実施した。同時観測では, PSAP とエサロメータの観測値は良い一致を示していた。PSAP では BC 計測に Pallflex フィルターを使用し, エサロメータには石英フィルターを使用した。PSAP とエサロメータの計測では, 光学的に吸収性のある粒子量を計測しているため, BC 以外の吸収性粒子が存在する時には, BC 濃度を過大評価する可能性がある。BC 以外に, 土壌粒子も光学的には吸収性粒子であるが, 土壌粒子による吸収は BC の 1/100~1/1000 程度である (Hansen, 2003)。南極域では土壌粒子も BC 同様に南極圏外から輸送されてくるが, 土壌粒子濃度は, BC 濃度の 100~1000 倍になるようなことはない。Amundsen-Scott 基地や Neumayer 基地での土壌粒子濃度は, BC 濃度レベル程度であり (Wagenbach, 1996), 本研究で計測される BC 濃度 (あるいは吸収特性) の値には, 土壌粒子の影響はほとんどないだろう。PSAP では 1 分ごと, エサロメータでは 15 分ごとに BC 濃度を記録するようにした。

BC 観測と並行して, CN 数濃度 ( $D_p > 10 \text{ nm}$ ) と  $D_p > 0.3 \mu\text{m}$  と  $D_p > 0.08 \mu\text{m}$  のエアロゾル粒子の数濃度と粒径分布の観測も実施した。CN 濃度連続観測には, CPC (Condensation particle counter; 3010, TSI) を用いた。 $D_p > 0.3 \mu\text{m}$  のエアロゾル粒子数濃度・粒径分布の連続観測には, OPC (Optical particle counter; TD-100, Sigma Tech.) を使用し,  $D_p > 0.08 \mu\text{m}$  エアロゾル粒子数濃度・粒径分布の連続観測には OPC (KC-22B, Rion) を使用した。CPC, OPC (TD-100)の流量は 1 L/分, OPC (KC-22B)の流量は 0.28 L/分であり, 数濃度は 1 分ごとに記録した。CPC, OPC (TD-100) による連続観測は全期間で行い, OPC (KC-22B) では 2005 年 1 月~2007 年 1 月に連続観測を行った。

## 2.2. エアロゾル試料採集と個別粒子分析

個別粒子分析用試料は, 2 段式 LVI (Low volume impactor) を使用し, 大気観測室の上で採取した。LVI のカットオフ径は, 流量 1.2 L/分で 2.0, 0.2  $\mu\text{m}$  である。ニッケル製の透過型電子顕微鏡 (TEM: Transmission electron microscopy) 用マイクログリッドで支持したコロジオン膜に, カーボン蒸着を施した薄膜を試料採取に使用した。基地主要部からの局所汚染を防ぐため, 試料採取は清浄な大気が流れてくる卓越風向からの風の時にのみ試料採集を行った。得られた試料は直ちにポリエチレンカプセルに回収した。試料を入れたカプセルは, チェック付きポリ袋に入れ, 乾燥材 (ニッソードライ製,  $\text{MgCl}_2$ ) を入れた密閉容器に入れて相対湿度 10% 以下で保管した。

エアロゾル試料は, 走査型電子顕微鏡 (SEM: Scanning electron microscopy) —エネルギー分散型 X 線分析装置 (EDX: Energy dispersive x-ray spectrometer) により, 観察・分

析を行った。電子ビーム照射による試料損傷を軽減するため、分析前に各エアロゾル試料にカーボン蒸着を施した。本研究で使用した SEM は、FEI 社の Quanta FEG 200 であり、EDX 分析には検出器に元素番号 4 以上の軽元素の分析も可能な薄膜窓が付属した、EDAX 社製の Genesis 400 を用いた。EDX による個別粒子分析は、加速電圧 20 kV、積算時間 30 秒、面分析の条件で行った。分析手順は Hara *et al.* (2005) に準拠した。

### 3. BC データの解析

#### 3.1. 局所汚染データの抽出

PSAP から出力されるデータは吸収係数 (単位:  $\text{m}^{-1}$ ) であり、エサロメータから出力されるデータは重量濃度 (単位:  $\text{ng m}^{-3}$ ) である。PSAP の生データを重量濃度に変換するために、本研究では、以下の式を用いた (Hansen, 2003)。

$$(\sigma_{\text{ab}})_{\text{PSAP}} = 10.78 \times (\text{BC})_{\text{Aethalometer}},$$

ここで、 $(\sigma_{\text{ab}})_{\text{PSAP}}$  は平均吸収係数 ( $\text{Mm}^{-1}$ ) を、 $(\text{BC})_{\text{Aethalometer}}$  はエサロメータによる重量濃度 ( $\mu\text{g m}^{-3}$ ) を示す。

清浄大気観測室は卓越風向の風上側に位置しているが、基地主要部から風が吹く時や、弱風 ( $\leq 1 \text{ m sec}^{-1}$ ) の時、雪上車が観測室風上側を通行する時には汚染データが記録される。図 3 に、局所汚染が確認された時のエアロゾル (CN) 数濃度と BC 濃度変化の一例を示す。風向が局所汚染源のない卓越風の風向 ( $0-80^\circ$ ) の時には、BC 濃度や CN 濃度は非常に安定していた。しかしながら、風向が発電棟のある主要部側 ( $190-320^\circ$ ) の時は、BC 濃度や CN 濃度は非常に高い濃度となっており、この風向は「汚染大気セクター」と分類することができる。本研究では、風向が  $330^\circ-0^\circ-180^\circ$  を「清浄大気セクター」、 $180^\circ-330^\circ$  を「汚染大気セクター」として定義した。

風向が汚染大気セクターの時や、風速が  $2 \text{ m/s}$  以下の時の BC データはすべて解析・考察の対象外とした。雪上車などの移動汚染源からの汚染データを除外するために、風速が  $15 \text{ m/s}$  以下の時は、10 分平均 CN 濃度の標準偏差が 10% 以上となる時間帯の BC データも削除した。風速が  $15 \text{ m/s}$  を超えた時には、図 4 に示したように卓越風向 (清浄大気セクター) から風が吹いてきていた。JARE の安全指針から、強風で視程低下をしている時には観測室風上側の海氷上での雪上車使用を控えるため、風向が清浄大気セクターで風速が  $15 \text{ m/s}$  以上の時には、燃焼過程による局所汚染は含まれない。強風時には積雪・海氷表面からもエアロゾル粒子が発生するため、CN データの標準偏差が大きくなる。また、2.1. 節で述べたように、PSAP やエサロメータで得られた BC 濃度は、BC のような吸収性粒子濃度に依存する。以上から、風速が  $15 \text{ m/s}$  以上の時の BC データは「非汚染データ」として解析・考察対象に残した。PSAP の光源波長は  $565 \text{ nm}$  のため、本研究ではエサロメータのデータは光源波長が  $520, 590 \text{ nm}$  の BC データを使用した。

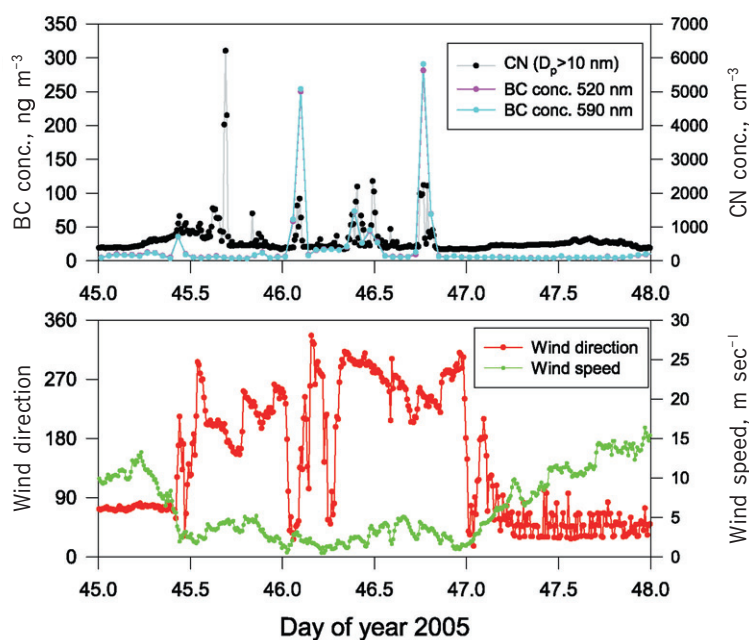


図3 2005年2月15日~18日に得られた局所汚染時のBC濃度, CN濃度, 風向風速の時間変化.  
 Fig. 3. Example of the non-filtered BC and wind data in the case of local contamination on 15-18 February (day of year = 45.0-48.0), 2005. The graph is plotted in Universal Time (UT; 3 hours difference to local time).

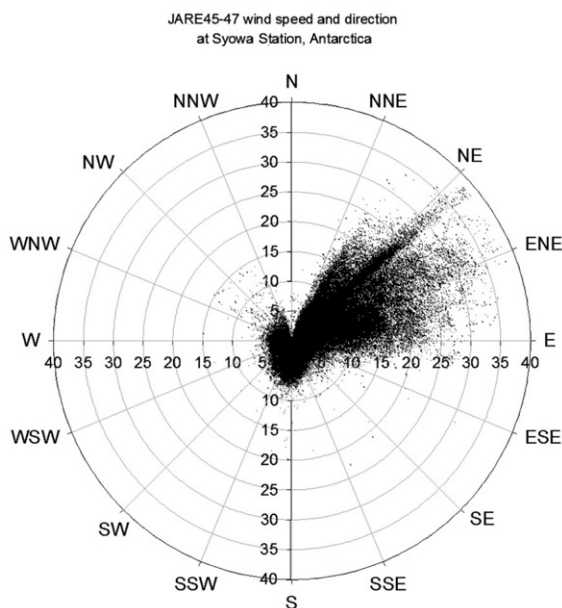


図4 観測期間中の風向と風速の関係  
 Fig. 4. Relationship between wind speed and wind direction at Syowa Station during aerosol measurement program in JARE45-47 (2004-2007).



Hagler *et al.* (2008) によるグリーンランドの観測拠点で局所汚染の影響を検証した研究では、大気中の BC 濃度は BC 発生源から 1-2 km 以内の距離で急激に減少することが示されていた。彼らの見積もりでは、BC が  $1 \text{ ng/m}^3$  に達する距離は、10 km (風速  $7.9 \text{ m/s}$ )、14 km (風速  $4.5 \text{ m/s}$ )、27 km (風速  $1.2 \text{ m/s}$ ) だった。昭和基地に一番近いマラジョーナヤ基地 (Molodezhnaya,  $67.41^\circ\text{S}$ ,  $45.51^\circ\text{E}$ ) でも約 300 km 離れているため、昭和基地での BC 観測に他基地の影響は無視できる。弱風時に BC は基地主要部から拡散されるが、弱風のため、局所汚染の影響を受けた空気が拡散する規模は極めて局所的なレベルだと考えられる。そのため、風向が「清浄大気セクター」で風速が  $2\text{--}5 \text{ m/s}$  であれば、1-3 時間も風が吹いていれば局所汚染のないデータが得られるだろう。

表面積雪中の BC 濃度が高い時には、風により積雪表面から再飛散される BC を考慮する必要がある。南極点での表面積雪中の BC 濃度観測 (Warren and Clarke, 1990) では、多くの BC は基地の風下側に沈着し、風上側の積雪ではバックグラウンドレベルだった。昭和基地においても卓越風向 (清浄大気セクター) 側で、積雪中の BC 濃度が低いことが予想される。強風状況の昭和基地では、海塩粒子は  $7 \mu\text{g m}^{-3}$  ( $\text{Na}^+$ 換算で  $100 \text{ nmol m}^{-3}$  相当) に達する (Hara *et al.*, 2004)。エアロゾル中の BC/ $\text{Na}^+$  濃度比と、昭和基地近傍の表面積雪中の  $\text{Na}^+$  濃度 (Osada *et al.*, 2001) を用いて、大気中の BC 濃度が  $1 \text{ ng/m}^3$  となり得る雪中の BC 濃度を推定した。海塩粒子や BC はすべて風により積雪表面から放出されると仮定すると、積雪中の BC 濃度は  $700 \text{ ng/g}$  になってしまう。南極点の基地風下側での積雪中の BC 濃度は  $3 \text{ ng g}^{-1}$  足らずであることと比べると (Warren and Clarke, 1990)、推定された値は「清浄大気セクター」の表面積雪中の BC 濃度レベルとしては非現実的であり、風による積雪表面からの BC 再放出は、大気中の BC 濃度に寄与することはほとんどないと考えられる。

### 3.2. BC 計測データ

図 5 に、BC 生データ (15 分値) と 1 時間平均値の変化を示す。生データでは、負の値となるデータも散在したが、1 時間平均値では確認されていない。図 5 の期間での標準偏差は 1 時間平均でおよそ  $1.32$ 、日平均で  $0.94$  となっていた。本研究でのエサロメータでの BC 検出下限は、1 時間平均で約  $1.3 \text{ ng/m}^3$ 、日平均で約  $0.94 \text{ ng/m}^3$  と見積もられる。同様に、PSAP の検出下限は、1 時間平均でおよそ  $10.2 \text{ ng/m}^3$  となる。

先行研究 (Bond *et al.*, 1999; Arnott *et al.*, 2005) で指摘されているように、フィルター上に存在する固体粒子は吸収係数を過大評価させることがある。フィルター上の固体粒子の影響を検討するために、本研究では、エアロゾル数濃度と PSAP やエサロメータで計測された BC 濃度の比較を試みた (図 6)。BC 濃度とエアロゾル数濃度の関係は以下の式で得られた。

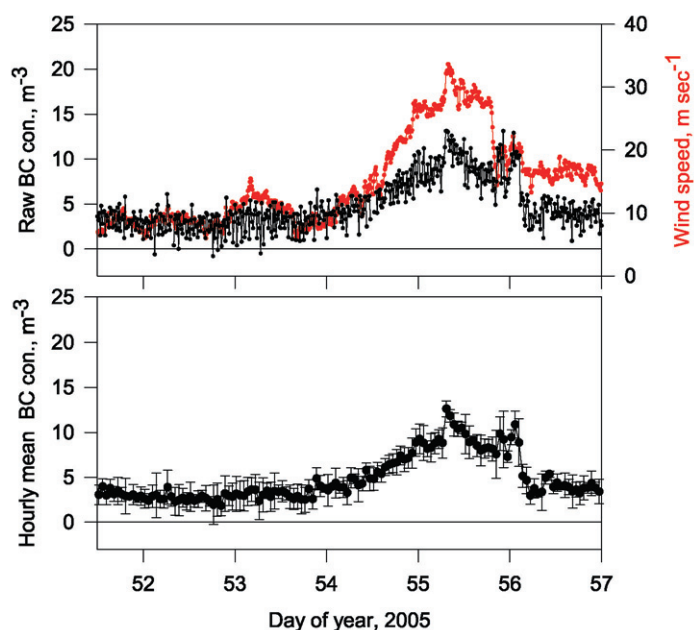


図5 BC生データ(15分値)と一時間平均BC濃度の変化。図中のバーは1時間平均をしたときの標準偏差を示す

Fig. 5. Variations of (a) raw (15 minute) BC data and (b) hourly mean BC data and standard deviation measured by aethalometer.

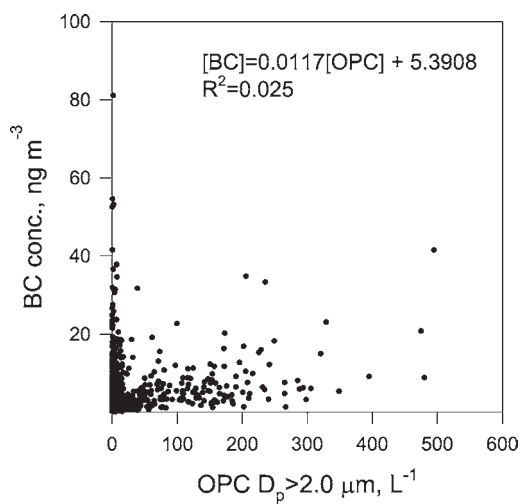


図6 エアロゾル数濃度 ( $D_p > 2.0 \mu\text{m}$ ) とBC濃度の関係

Fig. 6. Relationship between daily mean of aerosol number concentration of size  $D_p > 2.0 \mu\text{m}$  and daily mean of BC concentration during our measurements.

$$(BC)=0.0005 \times (D_p > 0.3 \mu m) + 3.63 (R^2=0.299),$$

$$(BC)=0.0117 \times (D_p > 2.0 \mu m) + 5.39 (R^2=0.025),$$

ここで、(BC)、( $D_p > 0.3 \mu m$ )、( $D_p > 2.0 \mu m$ ) はそれぞれ、BC 濃度、 $D_p > 0.3 \mu m$  の数濃度、 $D_p > 2.0 \mu m$  でのエアロゾル数濃度を意味する。いずれの粒径域でも相関関係は確認されなかったため、本研究ではフィルター上に存在する固体粒子の沈着は、BC 濃度や吸収係数の計測に大きな影響を及ぼしていないと考えられる。2-3 日平均の BC 濃度とエアロゾル中の  $Na^+$  濃度の相関も極めて低かった ( $(BC)=0.0238 \times (Na^+) + 5.63$ ,  $R^2=0.0149$ )。以上から、先行研究 (Bond *et al.*, 1999; Arnott *et al.*, 2005) で指摘されているような固体粒子による吸収係数 (あるいは BC 濃度) の過大評価の影響は少なく、観測値は吸収性粒子 (主に BC) の濃度に対応した値と見なしてよいだろう。

### 3.3. 昭和基地での BC 濃度と炭素質粒子濃度の比較

光学的に BC 濃度を計測する PSAP やエサロメータから得られる値の精度を評価するため、個別粒子分析から算出される BC 濃度との比較を行う。図 7 に、2004 年 6 月 18 日の高 BC 濃度中に採取されたエアロゾル粒子の一例を示す。SEM-EDX による元素分析では、原子番号 9 以上の元素 (F) は粒子から検出されておらず、外部混合状態の炭素質粒子と同定される。バックグラウンド BC 濃度時に捕集された試料には、このような外部混合状態の炭素質粒子は確認されなかった。図 1 に示したように、一番近い BC 発生源は基地主要部にあるディーゼル発電機であるが、ディーゼルエンジンでの高温過程は鎖状に球状粒子 (15-30 nm in diameter) が凝集した形になることが多い (Maricq, 2007)。鎖状凝集体粒子 (スス) は、人間活動の影響による北極ヘイズで観測されているが (Hara *et al.*, 2003)、図 7 に示したような凝集構造をした炭素質粒子は確認されなかった。図 7 のような形態の炭素質粒子は、アフリカ南部でのバイオマス燃焼によるヘイズ中で観測されていた (Li *et al.*, 2003)。以上から、このような凝集構造をした炭素質粒子は、ディーゼル発電機から放出された粒子ではなく、長距離輸送されてきた粒子であることが期待される。

表 1 に、2004 年 6 月 18 日と 2005 年 8 月 10 日に採取されたエアロゾル粒子成分の検出頻度を示す。いずれの日も昭和基地でヘイズ現象が確認された日であり (Hara *et al.*, 2010)、南米やアフリカ南部でのバイオマス燃焼起源物質の輸送が確認されている。海塩粒子は、Na や Cl などの海塩成分の検出により同定した。また、土壌粒子は、Si や Al のような地殻成分の検出により同定した。本研究では、SEM-EDX を個別粒子分析に使用したため、他成分と内部混合をした炭素質成分の判定は行えなかった。検出頻度と OPC により計測されたエアロゾル数濃度 (2004 年 6 月:  $D_p > 0.3 \mu m$ ,  $75706 L^{-1}$ ;  $D_p > 2.0 \mu m$ ,  $201 L^{-1}$ ; 2005 年 8 月:  $D_p > 0.2 \mu m$ ,  $96695 L^{-1}$ ;  $D_p > 2.0 \mu m$ ,  $580 L^{-1}$ ) を用いて、炭素質粒子数濃度をそれぞれ見積もった。2004 年には、 $D_p > 0.2 \mu m$  の粒子数濃度を計測できる OPC を使用

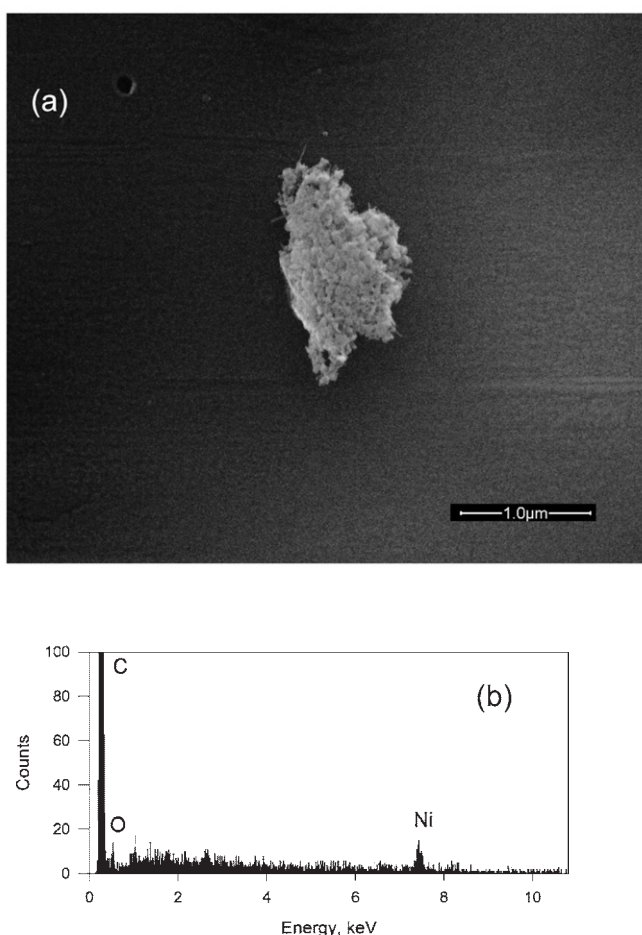


図7 2004年6月18日に捕集された炭素質粒子の (a) SEM 像 (Hara *et al.*, JGR, 2010) と (b) EDX スペクトル.

Fig. 7. Example of (a) SEM image of carbonaceous particles collected during high BC concentration on 18 June 2004 (Hara *et al.*, JGR, 2010) and (b) EDX spectrum.

していなかったため、2004年の見積もりには  $D_p > 0.3 \mu\text{m}$  の数濃度を使用した。粗大粒子では  $2.0 \mu\text{m}$  の球形、微小粒子では  $0.2 \mu\text{m}$  の球形と仮定し、炭素質粒子の密度を  $0.7\text{--}1.0 \text{ g cm}^{-3}$  と仮定し、炭素質粒子の質量濃度を推定した。計算された炭素質粒子の質量濃度は、2004年6月の例では  $31.6\text{--}45.2 \text{ ng m}^{-3}$ 、2005年8月の例では  $51.1\text{--}71.1 \text{ ng m}^{-3}$  だった。この推定値は、PSAPの計測値 ( $42.7 \text{ ng m}^{-3}$ ; 2004年6月) とエサロメータの計測値 ( $55.5 \text{ ng m}^{-3}$ ; 2005年8月) と良く一致していた。光学的に計測されたBC濃度と個別粒子分析結果から得られた炭素質粒子の質量濃度が一致していたことは、フィルター上の海塩粒子や土壌粒子がBC濃度（あるいは吸収係数）計測に影響をほとんど与えていないことを示唆している。

表 1 2004 年 6 月 18 日, 2005 年 8 月 10 日に昭和基地で捕集された各エアロゾルの存在割合  
 Table 1. Relative abundances of aerosol particles collected on 18 June 2004 and 10 August 2005 at Syowa Station.

	18 June 2004		10 August 2005	
	Coarse*	Fine**	Coarse	Fine
	$N=115$	$N=116$	$N=96$	$N=106$
Sea salt particles	87.0%	98.3%	97.9%	91.5%
Sea salt particles with minerals	3.5%	0.0%	0.0%	0.0%
Sulfate	0.0%	(not observed)	0.0%	(not observed)
	(not observed)	(not observed)	(not observed)	3.8%
Mineral particles	0.9%	0.0%	0.0%	0.0%
		(not observed)	(not observed)	(not observed)
Carbonaceous particles	8.7%	1.7%	2.1%	4.7%

\*Coarse:  $D_p > 2.0 \mu\text{m}$

\*\*Fine:  $D_p 0.2-2.0 \mu\text{m}$

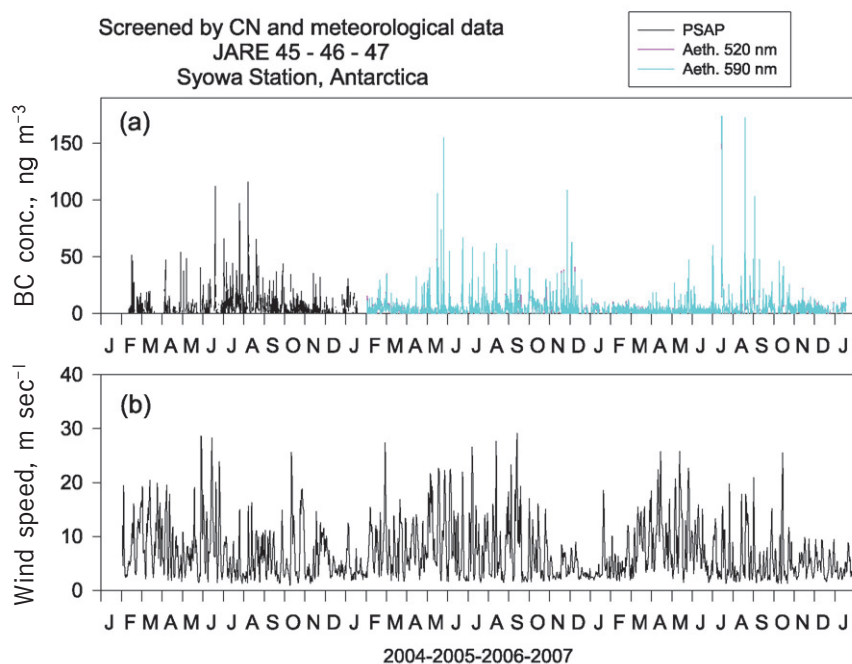


図 8 2004 年 2 月~2007 年 1 月に昭和基地で観測された BC 濃度と地上風速の変化  
 Fig. 8. Seasonal variation of (a) the filtered hourly mean BC concentration and (b) daily mean of wind speed at Syowa Station from February 2004 (JARE-45) until January 2007 (JARE-47).



## 4. 結果と考察

### 4.1. 昭和基地への BC 輸送過程と経路

図 8 に、JARE-45~47 (2004~2007 年) 期間中の BC 濃度 1 時間平均値の変化を示した。観測期間中の昭和基地での BC 濃度は検出下限 (BDL) ~176 ng m<sup>-3</sup> の範囲だった。冬季~春季にかけて、多くのスパイクピークが確認されたが、夏季にはピーク数は少なくなっていた。ピーク時の BC 濃度は、バックグラウンド BC 濃度 (BDL~3 ng m<sup>-3</sup>) の数十~数百倍まで明瞭に増加していた。多くの BC スパイクピークは、Halley 基地 (Wolff and Cachier, 1988) や Amundsen-Scott 基地 (Bodhaine, 1995) でも観測されていた。BC 濃度は、強風下 (主に荒天時) で濃度が増加していた。本研究では BC の輸送過程を、(1) 低気圧、(2) ブロッキング現象、(3) カタバ風に分類した。以下、これらの点について比較・考察を行う。

#### 4.1.1. 低気圧による昭和基地への BC 輸送

図 9 に、BC 濃度がピークを示す期間 (2005 年 7 月 8~12 日) の BC 濃度、CN 濃度、各気象要素の変化を示す。風が弱い時の BC 濃度はバックグラウンドレベル (<5 ng m<sup>-3</sup>) だったが、荒天時には濃度が増加し、>30 ng m<sup>-3</sup> まで達していた。BC 濃度が高い時には CN 濃度も 80 cm<sup>-3</sup>~800 cm<sup>-3</sup> まで増加し、水蒸気圧の増加や気温の上昇も確認された。荒天時には、低気圧活動により中緯度域の大気が南極沿岸域へ流入し、気温上昇や水蒸気分圧が増加することが多く (Hara *et al.*, 2004; Suzuki *et al.*, 2008)、図 9 の事例でも中緯度大気からの大気輸送が予想される。

空気塊の履歴を確認するため、5 日間の後方流跡線を計算した。後方流跡線解析には、NOAA の HYSPLIT モデルを使用した (Draxler and Rolph, 2003)。計算には NCEP 再解析データを使用し、Vertical motion mode で昭和基地上空 500 m、1000 m を始点として計算した。5 日間の後方流跡線解析結果 (図 10a) は、2005 年 7 月 10 日~11 日に観測された高 BC 濃度の空気塊が、南大西洋や南アメリカ大陸に近い海域から輸送されていたことを示している。この輸送経路は、BC 濃度が増加していた「南極ヘイズ現象」時の解析でも確認された輸送経路と非常によく似ていた (Hara *et al.*, 2010)、図 10b-e に示したように、低気圧 (図中 L1 と示した) は西経 10 度から 5 日間かけて徐々に昭和基地近く (約 30°E) まで接近していた。低気圧の接近により極域方向への空気塊の輸送しやすい状況となり、BC が昭和基地へ輸送されていることが示唆される。

低気圧接近に伴う高 BC 濃度大気の輸送経路を考察するために、BC 濃度が高い時の 5 日間後方流跡線解析 (始点は昭和基地上空 500、1000 m) の比較を行った (図 11)。BC 濃度が増加する各事例を比較すると、図 10 に示したように低気圧が東進し、昭和基地へ接近することが多かった。昭和基地上空 500 m と 1000 m からのトラジェクトリーの計算をした期間 (5 日間) の最低緯度は、主に南大西洋やインド洋の 65~50°S (500 m)、60~50°S (1000

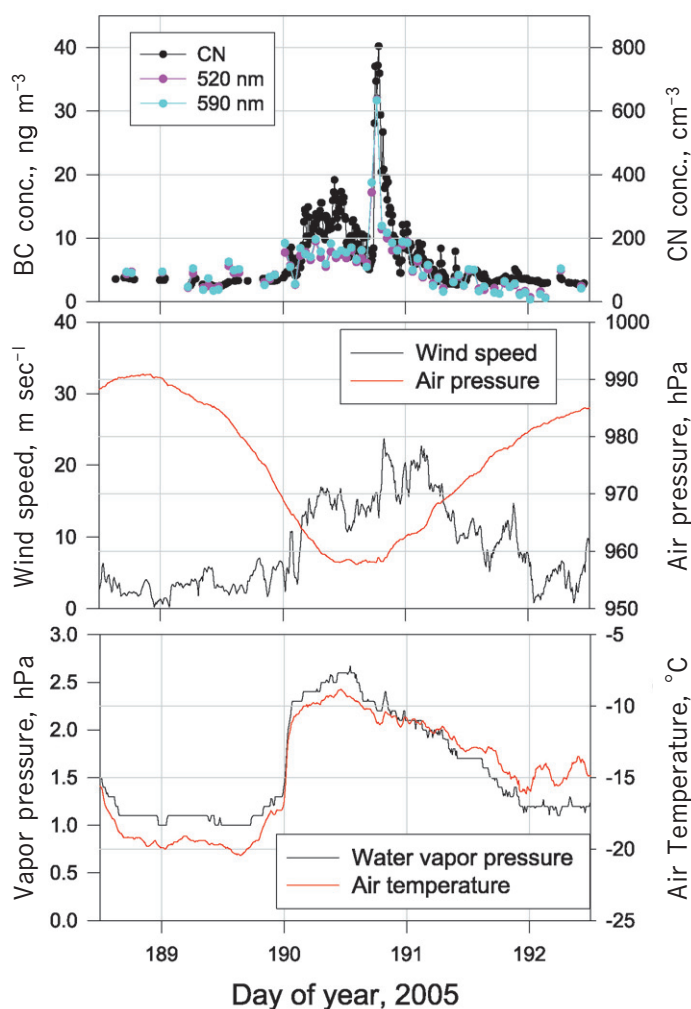


図9 2005年7月8日~12日に観測された気象要素(風向・風速, 気温, 気圧), BC濃度, CN濃度の変化。

Fig. 9. Short-term variations of meteorological parameters (wind speed, wind direction, air temperature, and air pressure), and the concentrations of BC and CN ( $D_p > 10$  nm) in DOY=188.5–192.5, 2005 (8–12 July, 2005).

m) に分布していた。いくつかの点は、東経90度より東側に位置していたが、これは低気圧が西進して接近してきた事例である。観測期間中の各流跡線の中で最も低緯度だった緯度は、南緯37–38度でアフリカ大陸南部沖だった。これらの点の分布は、南大洋のストームトラックと重なっていた (Hoskins and Hodge, 2005)。さらに、図11b, dに示したようにBC濃度の高い空気塊は、中緯度域から対流圏下層を経由して輸送されていた。インド洋や大西洋上で行われたBC濃度観測では、1–4月のインド洋南部のBC濃度は $< 10 \text{ ng m}^{-3}$ だったが (Moorthy *et al.*, 2005), 10–12月のインド洋~南大洋では $20\text{--}80 \text{ ng m}^{-3}$ だった

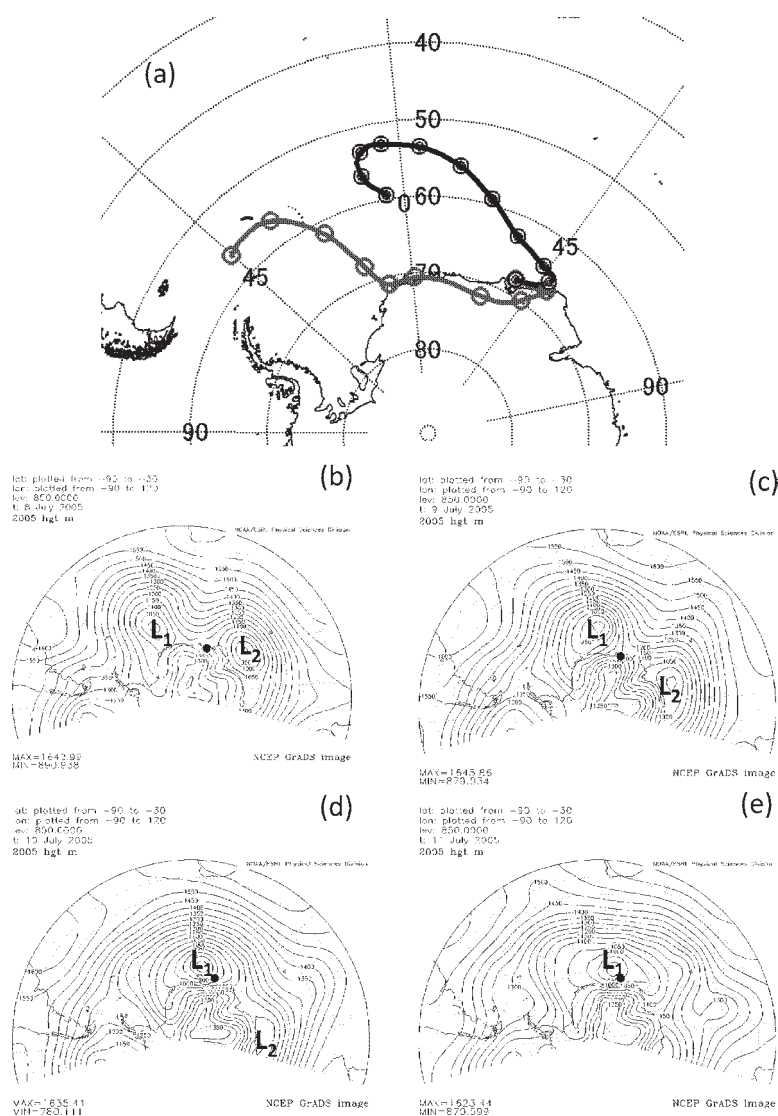


図 10 (a) 2005 年 7 月 10 日の後方流跡線と 7 月 8 日~11 日の 850 hPa のジオポテンシャル高度 (b: 7 月 8 日, c: 7 月 9 日, d: 7 月 10 日, e: 7 月 11 日)。

(a) 中の黒線は 500 m, 灰色線は 1000 m からの後方流跡線を, 丸印は 12 時間ごとの位置を示す。b-e 中の黒丸印は昭和基地の場所を示す。

Fig. 10. Five-day backward trajectory from Syowa Station on 10 July 2005 (a) and distribution of geopotential height on 850 hPa in 8–11 July 2005: (b) July 8, (c) July 9, (d) July 10, and (e) July 11. Black and gray lines in (a) indicate trajectory from 500 m a.s.l. and 1000 m a.s.l., respectively. Circles in (a) show location every 12 hours. Black circle marks in (b–e) indicate the location of Syowa station. The maps were drawn by “Visualize NCEP Data” (<http://www.cdc.noaa.gov/>).

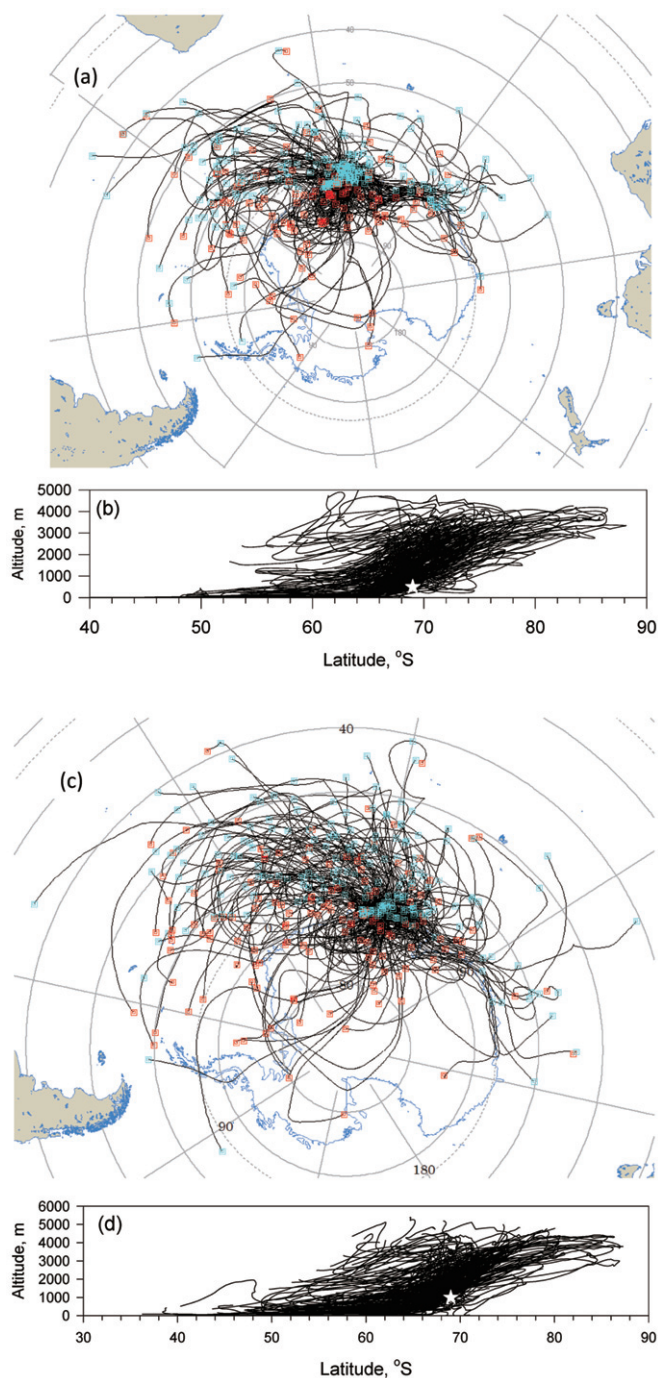


図 11 昭和基地からの 5 日間後方流跡線の地理・空間分布: a-b: 500 m からの後方流跡線, c-d: 1000 m からの後方流跡線.

Fig. 11. Geographical and spatial distributions of 5 day backward trajectory from (a and b) 500 m and (c and d) 1000 m over Syowa Station.

(Sakerin *et al.*, 2007). 南アフリカ大陸に近い南大西洋~南大洋での BC 濃度は, 10-11 月には  $<10\text{--}160\text{ ng m}^{-3}$  であり, 2-3 月には  $<10\text{--}120\text{ ng m}^{-3}$  だった (Evangelista *et al.*, 2007). これらの BC 濃度範囲は, 南アメリカ大陸近傍の高 BC 濃度を除けば, 昭和基地で得られた BC 濃度範囲 (図 8) と一致していた. 以上から, BC を輸送する空気塊は低気圧の東進 (まれに西進) により, 対流圏下層経由で大西洋やインド洋から昭和基地へやってきていると考えられる.

#### 4.1.2. ブロッキング現象による BC の輸送

約 3 年間の観測期間中に, ブロッキング現象による BC 濃度増加も観測された. 図 12 に,

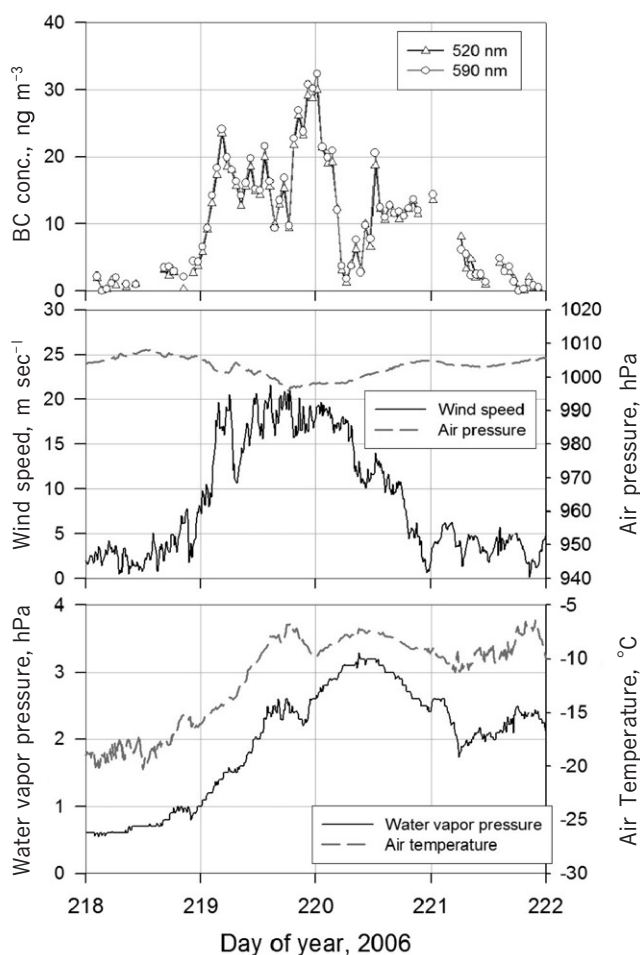


図 12 2006 年 8 月 8 日~10 日に観測された気象要素 (風向風速, 気温, 気圧), BC 濃度, CN 濃度の変化.

Fig. 12. Short-term variations of meteorological parameters (wind speed, wind direction, air temperature, and air pressure), and concentrations of BC and CN ( $D_p > 10\text{ nm}$ ) in DOY = 218-222 (8-10 August) 2006.



2006年8月8日~10日に観測されたブロッキング現象時のBC濃度変化を示す。低気圧接近時の例(図9)と同様に、BC濃度が増加する時には水蒸気分圧の増加、気温の上昇が確認された。低気圧接近によるBC輸送と同様に、中緯度域の空気塊の輸送によりBC濃度が増加していることがうかがえる。しかしながら、昭和基地の気圧は大きく降下しておらず、1010 hPa~1005 hPaにわずかに減少したのみだった。図13に示したように、低気圧(図中L1と表記)は、8月8日~9日は67°S、10°Wのあたりに位置した状態を継続し、高気圧(図中H1と表記)が徐々に南下し53°S、45°Eあたりまで接近していた。高気圧の張り出しの結果、昭和基地付近で気圧傾度が大きくなり、インド洋から南極沿岸域への大気流入が起きやすい状況となっていた。図13aに示すように、大西洋~インド洋上の大気が昭和基地へ輸送されていた。以上から、ブロッキング現象による強風・荒天により、BCが中緯度域から南極沿岸域(昭和基地)まで輸送されることが示唆される。先行研究(Hirasawa *et al.*, 2000; Hara *et al.*, 2004; Suzuki *et al.*, 2004; Massom *et al.*, 2004)で示唆されるように、ブロッキング現象により高気圧が高緯度域へ侵入する際には、BCのような大気成分の南極内陸域への輸送を議論する事が重要だろう。

#### 4.1.3. カタバ風によるBCの輸送

夏季の昭和基地は、他の季節と比べて荒天となる頻度が減少するため(Sato and Hirasawa, 2007)、11月~1月下旬頃に穏やかな天候となることが多い。図14に示したように、夏季の昭和基地では、地上風速が夜間に極大、午後に極小となる日変化を示す。夜間の風が強い時の風向は卓越風向(清浄大気セクター)であり、カタバ風の影響を強く受けている。図14に矢印で示したように、地上風速が明瞭に日変化を示す際には、BC濃度も夜間に高くなる傾向を示していた。このBC濃度の日変化は、10月~2月下旬頃まで観測されていた。前述のように、固体粒子が高濃度の時にはBC濃度を過大評価する可能性がある。しかしながら、夏季には海塩粒子( $\text{Na}^+$ )が $\leq 5 \text{ nmol m}^{-3}$ であり、特に1-2月は $2\text{--}3 \text{ nmol m}^{-3}$ 程度となり、冬季と比べて濃度は1-2桁程度低くなる(Hara *et al.*, 2004, 2010)。一方、昭和基地では $\text{SO}_4^{2-}$ 濃度はおよそ $3 \text{ nmol m}^{-3}$ まで増加していた(Osada *et al.*, 1998)。エアロゾル粒子の個別粒子分析でも、夏季は昭和基地や大陸上でも硫酸粒子が卓越することが示されており(Yamato *et al.*, 1987; Hara *et al.*, 1996)、内陸部から沿岸域へ吹き下りるカタバ風内のエアロゾルは硫酸粒子が多く、海塩粒子の寄与は大きくない。図14の期間中のエアロゾル数濃度とBC濃度の相関は低く( $R^2=0.36$  in  $D_p>0.3 \mu\text{m}$  and  $R^2=0.35$  in  $D_p>2.0 \mu\text{m}$ )、海塩粒子のBC濃度変化に対する影響はほとんどなく、図14に見られるBC濃度の日変化は、吸収性粒子(BC)の変化に起因すると考えられる。

Hagler *et al.* (2008)が示したように、日中の弱風時には昭和基地周辺に局所発生源から放出されたBCが拡散する。しかし、夜間の高BC濃度は局所汚染源のない風向(清浄大気セクター)から卓越風が吹き始めてから観測され、数時間にわたり卓越風向からの風が継

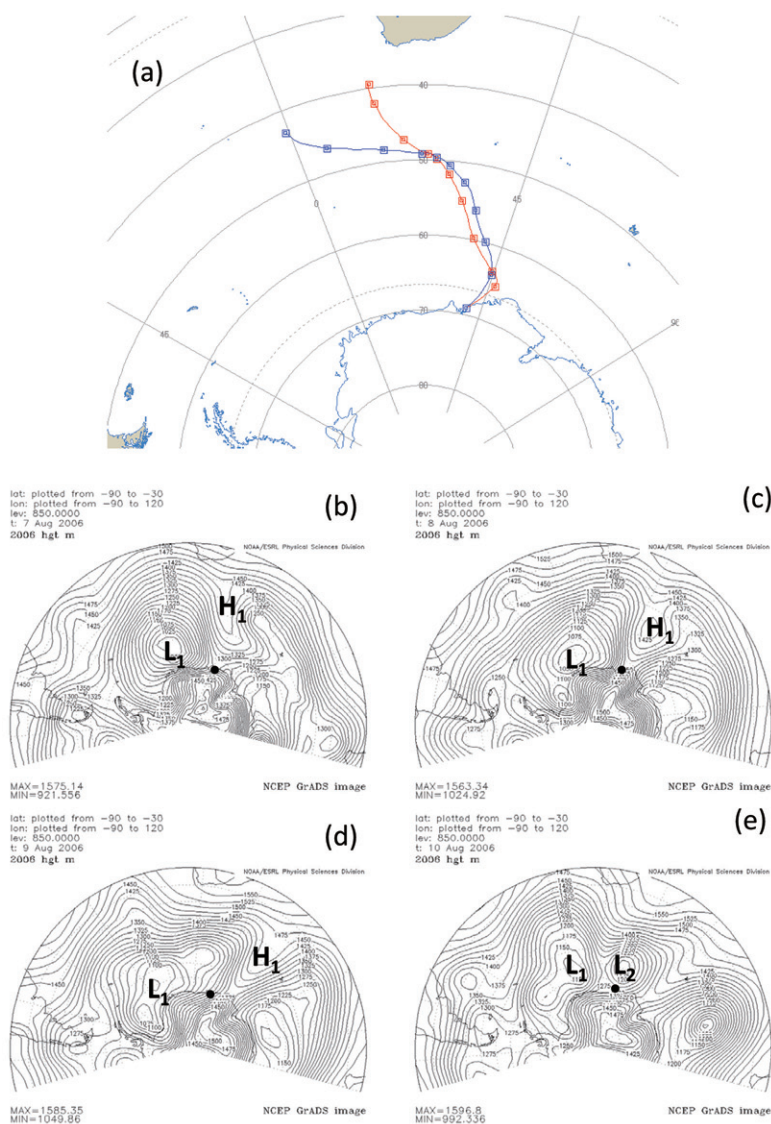


図 13 (a) 2005 年 8 月 10 日の後方流跡線と 8 月 7-10 日の 850 hPa のジオポテンシャル高度 (b: 8 月 7 日, c: 8 月 8 日, d: 8 月 9 日, e: 8 月 10 日)。

(a) の赤線は 500 m, 青線は 1000 m からの後方流跡線, 四角印は 12 時間ごとの位置を示す。b-e の黒丸印は昭和基地の場所を示す。

Fig. 13. Five-day backward trajectory from Syowa Station on 10 August 2005 (a) and distributions of geopotential height on 850 hPa in 7-10 August 2006: (b) August 7, (c) August 8, (d) August 9, and (e) August 10. Red and blue lines in (a) indicate trajectory from 500 m a.s.l. and 1000 m a.s.l., respectively. Squares in (a) show location in every 12 hours. Black circle marks in (b-e) indicate location of Syowa Station. The maps were drawn using “Visualize NCEP Data” (<http://www.cdc.noaa.gov/>).

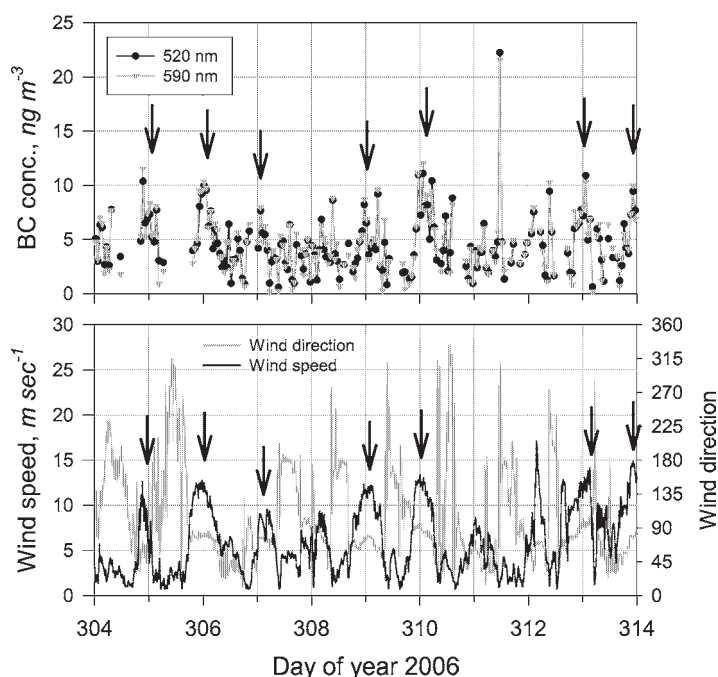


図 14 2006 年 1-10 日に昭和基地で観測された BC 濃度と地上風の変化

Fig. 14. Variations of BC concentration and surface wind data at Syowa Station 1-10 November 2006 (DOY = 304-314, 2006). The graph is plotted in Universal Time (UT; 3 hours difference to local time).

続した条件でも観測されていることから、局所汚染の影響は考えにくい。昭和基地での地上風速の日変化は、カタバ風の日変化に起因する (Sato and Hirasawa, 2007)。このカタバ風は、大陸内陸部から沿岸域に吹き下ろす強風であり (Parish and Bromwich, 1987; Parish, 1988)、流跡線解析からも、夏季 (11-2 月) の大陸から沿岸域へのカタバ風による輸送が重要な流れのパターンであることが示されている (Suzuki *et al.*, 2004; Suzuki, private communication)。カタバ風が内陸部から沿岸域へ吹き下りてくることを考慮すると、図 14 で示したような BC 濃度の日変化は、カタバ風中で BC 濃度が高い、言い換えれば、大陸上の空気塊で BC 濃度が高いことを示唆する。

夏季南極大陸上で可能性のある BC 発生源は、内陸基地 (例: Amundsen-Scott 基地, ドームふじ基地, Kohnen 基地) での人間活動と、雪上車によるトラバース活動である。昭和基地から最も近い内陸基地は、ドームふじ基地 (77.19°S, 39.42°E, 3810 m a.s.l.) である。本観測期間中も氷床コア深層掘削のため、夏季 (11-1 月) にのみドームふじ基地の運用が行われていた。ドームふじ基地は昭和基地からおよそ 1000 km 離れており、基地内の人間活動は極めて小さな規模である。Hagler *et al.* (2008) による BC の局所汚染の影響の推定を考慮すると、ドームふじ基地での人間活動 (例: ディーゼル発電機の排気) が昭和基地へ

輸送されてきたとしても、内陸域から沿岸域への長距離輸送中の拡散・沈着により、昭和基地で BC 濃度日変化として確認されるようなことはないだろう。

図 14 に示したように、カタバ風内の BC 濃度は  $> 10 \text{ ng m}^{-3}$  まで増加することもあった。この BC 濃度レベルは、Amundsen-Scott 基地で観測された夏季の BC 濃度範囲や (Bodhaine, 1995)、日本スウェーデン合同内陸トラバースで観測された BC 濃度範囲 (Ström *et al.*, 2010) と非常に良く一致していた。夏季の昭和基地で観測される夜間の BC 濃度は、夏季南極大陸大気中のバックグラウンド BC 濃度に対応していると考えられる。

昭和基地では、カタバ風の弱まる日中の BC 濃度は夜間より低かったため、昭和基地のある東南極の沿岸域の BC 濃度は、Amundsen-Scott 基地 (Bodhaine, 1995) のような大陸上の BC 濃度より低くなっていることを示唆している。一方、西南極に位置する Halley 基地 (Wolff and Cachier, 1998)、Neumayer 基地 (Weller, R., private communication)、Ferraz 基地 (Pereira *et al.*, 2006) で観測された夏季の BC 濃度は、昭和基地で観測された BC 濃度より高かった。この BC 濃度の空間分布は、南極域への BC の輸送過程を理解する上では非常に重要である。対流圏下層経由の輸送では、内陸部の BC 濃度が沿岸域より高いことを説明することはできない。大陸上で BC 濃度が高くなるためには、低中緯度域から自由対流圏経由で南極内陸域へ BC が輸送されてこなければならない。現時点では、南極自由対流圏中に BC が存在していたという決定的な証拠は確認されていないが、Dumont d'Urville 基地 ( $66.40^{\circ}\text{S}$ ,  $140.01^{\circ}\text{E}$ ) 上空では、境界層内よりも自由対流圏内でラドン濃度が高いことが示されていた (Polian *et al.*, 1986)。また、航空機によるエアロゾル観測でも、夏の南極沿岸域上空に土壌粒子や海塩粒子、燃焼過程起源と考えられるカリウムを含有する硫酸塩粒子が確認された (Hara *et al.*, 2006; 2009)。以上から、自由対流圏経由で地上起源・燃焼起源のエアロゾル粒子が南極沿岸～内陸上空にも輸送されていると考えてよいだろう。上空経由で南極内陸部に輸送された成分が、カタバ風経由で沿岸部へ輸送されるまでの過程を理解することは、今後の課題である。

## 4.2. 昭和基地での BC の季節変化

### 4.2.1. BC 濃度変化とバイオマス燃焼

図 15 に、BC 濃度の季節変化を示す。2004–2006 年の BC 観測結果では、BC 濃度のばらつきは冬～春 (5–10 月) に大きく、夏～秋 (11–4 月) には小さくなっていた。冬～春 (5–10 月) にかけては、低気圧接近やブロッキング現象に伴う荒天が頻繁に起き、中緯度大気の流れの頻度が多く、BC 濃度のピークが多数観測されることと対応している (図 8 参照)。一方、夏季には荒天 (ブリザード) の頻度が下がるため、BC 濃度のピークが少なくなり、ばらつきが小さいのだろう。BC 濃度は冬季～春季に極大 ( $10 \text{ ng m}^{-3}$ ) を示し、夏季～早秋に極小 (約  $2 \text{ ng m}^{-3}$ ) を示す明瞭な季節変化をしていた。

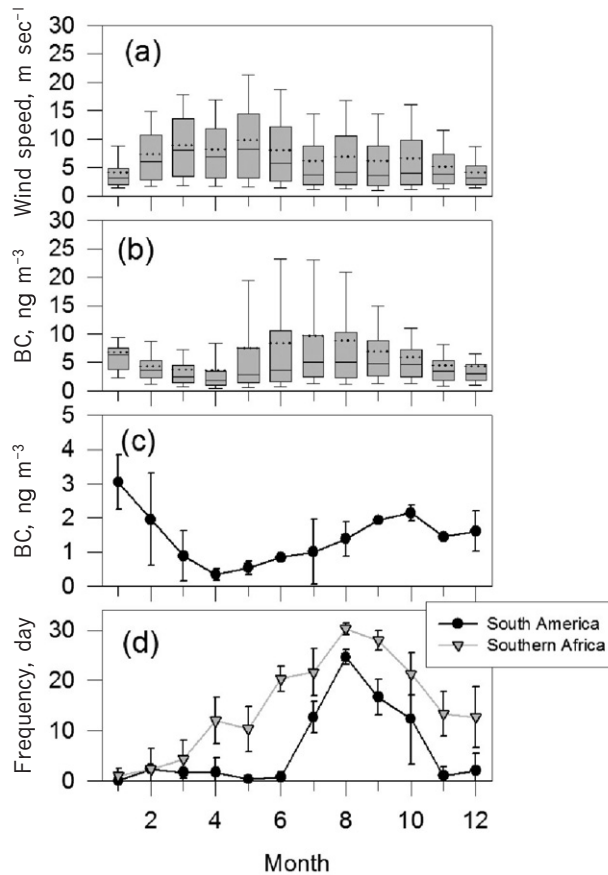


図 15 (a) 地上風速, (b) BC 濃度, (c) バックグラウンド BC 濃度, (d) 南米やアフリカからの大気流出頻度の季節変化. バーの上端は 95% 値, 下端は 5% 値を示し, 箱の上部は 75% 値, 中は 50% 値 (中間値), 下部は 25% 値を示す. 点線は月平均値を示す.

Fig. 15. Seasonal variations of (a) surface wind speed, (b) BC concentration, and (c) back-ground BC concentration at Syowa Station, and (d) frequency of the outflow from South America and southern Africa. Top and bottom of the bar in box plots indicate 95 and 5% values. Top, middle and bottom of the box indicate 75, 50 (median), and 25% values. Dotted lines indicate monthly mean.

4.1.1. 項や 4.1.2. 項で述べたように, 冬季~春季は大西洋やインド洋上に存在する BC が南極沿岸域 (昭和基地) へ流入している. Hara *et al.* (2010) や Fiebig *et al.* (2009) による観測・解析では, 南米やアフリカ大陸上のバイオマス燃焼由来の BC が大西洋やインド洋に流出し, 南極沿岸域へ輸送されていることが示唆されている. また, インド洋上 (アムステルダム島, 35.83°50'S, 77°35'E) で観測された BC 濃度 (Cachier *et al.*, 1996) や CO 濃度 (Gros *et al.*, 1998, 1999) の季節変化でも, アフリカ南部やマダガスカルバイオマス燃焼の影響を強く受けていることが示されている. 人工衛星観測から得られたエアロゾルやガスの分布も, アフリカ南部や南アメリカからインド洋や大西洋にかけてバイオマス



燃焼起源物質が広がっていくことが示されている (Edwards *et al.*, 2006a, 2006b)。

本研究では、南米やアフリカ大陸上のバイオマス燃焼の影響を比較するため、バイオマス燃焼の影響を受けた空気塊が、南米やアフリカ大陸から大西洋やインド洋へ流出する頻度と、BC 濃度季節変化とを比較することを試みる。Hara *et al.* (2010) で示したように、バイオマス燃焼の影響を受けたエアロゾル濃度の高い空気塊は、低緯度域 ( $<10^{\circ}\text{S}$ ) では大西洋へ、中緯度域 ( $>30^{\circ}\text{S}$ ) では大西洋とインド洋へ流出していた。後方流跡線解析の結果 (図 11) を考慮すると、中緯度域での海洋域への流出が、対流圏下層経由で昭和基地へ輸送される過程において重要だと考えられる。NAAPS モデル (<http://www.nrlmry.navy.mil.aerosol/>) で、エアロゾルの光学的厚さが 0.1 以上となる空気塊がアフリカや南米から流出していた時に、本研究では「流出発生」と判定した (Hara *et al.*, 2010)。

図 15d に、アフリカと南米からの「流出頻度」を示した。アフリカ南部からの流出頻度は、4 月から増加し、8-9 月には 30 日間も流出していた。南アメリカからの流出頻度は、7 月から増加し、8 月には 20 日間以上の頻度に達していた。図 15d に示した流出頻度の季節変化は、人工衛星観測より得られた “Fire spot” の数 (バイオマス燃焼面積) が大きい時期 (アフリカ: 5-10 月; 南米: 6-10 月) と良く一致していた (Edwards *et al.*, 2006a)。流出頻度の季節変化は、昭和基地で BC 濃度が増加する時期とよく対応していたため、南米やアフリカから流出したバイオマス燃焼由来の BC が、南極沿岸域 (昭和基地) まで流入していることが示唆される。バイオマス燃焼由来のエアロゾル濃度の高い空気塊が南米やアフリカから流出する経路は、南大洋のストームトラックと非常に近接していた (Hoskins and Hodge, 2005)。ほとんどの低気圧はストームトラックに沿って東進するため、バイオマス燃焼由来の大気成分はストームトラックに沿って輸送・拡散されているのだろう。そして、低気圧が昭和基地に接近する際の極域方向への大気輸送により、昭和基地の BC 濃度が増加すると考えられる。

#### 4.2.2. 昭和基地と他観測基地の BC 濃度比較

昭和基地や、インド洋上に位置するアムステルダム島 (Cahiner *et al.*, 1996) では 8 月に BC 濃度の極大が確認されたのに対し、他の南極基地 (Amundsen-Scott, Halley, Neumayer, Ferraz) では、10 月に極大が見られた (Bodhaine, 1995, Wolff and Cachier, 1998; Pereira *et al.*, 2006; Weller, R., private communication)。昭和基地では 8 月に確認された BC 濃度の極大が大きく、他の基地同様に 10 月にも BC の極大 (あるいは濃度増加) が存在するかについてははっきりしない。この季節変化の違いは、(1) BC の空間分布、(2) BC を含む空気塊の輸送経路、(3) BC 発生地域の寄与の違いを反映していると考えられる。

人工衛星による観測データ解析から、アフリカや南米上のバイオマス燃焼の影響を受けた空気塊は東向きに流出し、インド洋上でのエアロゾルの寿命は  $3.0 \pm 0.8$  日と見積もられていた (Edwards *et al.*, 2006a)。大西洋・インド洋セクターでは、ストームトラック内の

低気圧は主に東進していくため (Hoskins and Hodge, 2005), BC がアフリカ南部から西南極沿岸域へ直接 (西向きに) 輸送されることは考えにくく, 輸送中の沈着・拡散により BC 濃度が東に行くほど徐々に減少していく分布をしていることが予想される。昭和基地 (39°E) やアムステルダム島 (77°35'E) では, 8 月に BC 濃度極大が確認されていたが, Cape Grim (144°41'E) (Heintzenberg, 1990) では 8 月の BC 極大は確認されなかった点は, BC 濃度が東西方向に大きな濃度勾配のある分布を示していることを示唆する。以上から, 昭和基地では, アフリカ大陸上のバイオマス燃焼の影響は, 西南極沿岸部 (Halley 基地, Neumayer 基地, Ferraz 基地) と比べると大きいことが BC 濃度季節変化の違いとして表れている可能性がある。

#### 4.2.3. 昭和基地でのバックグラウンド BC の季節変化

前述のように, 昭和基地では低気圧接近やブロッキング現象による荒天時, 南極大陸からカタバ風が吹く時に BC 濃度が増加していた。強風時の BC ピークを取り除いた BC 濃度が, 昭和基地でのバックグラウンド BC 濃度に対応すると考えられる。バックグラウンド BC 濃度は, 荒天による強風下での BC ピークを除いた BC データを平均して求めた。図 15c に示したように, 昭和基地でのバックグラウンド BC 濃度は冬 (4-6 月) に極小を示し, 春 (8-10 月) や夏 (11-2 月) に極大を示しており, Amundsen-Scott 基地 (Bodhaine, 1995) や Halley 基地 (Wolff and Cachier, 1998) の季節変化とよく似ていた。この類似性は, 昭和基地の位置する東南極, Halley 基地の位置する西南極, 内陸 (Amundsen-Scott 基地) で共通の輸送過程が存在することを示唆する。夏季の昭和基地では BC の日変化が確認されているため, 自由対流圏経由の BC の輸送が, 夏にバックグラウンド BC 濃度が増加する上で重要な過程となっているようである。BC 発生地域別の寄与や, 南極域での BC の季節変化をより確実に理解していくには, 今後のさらなる観測やモデルとの比較が必要となるだろう。

## 5. 結 論

2004 年 2 月 (JARE-45)~2007 年 1 月 (JARE-47) にかけて, BC 観測を南極昭和基地で実施した。昭和基地での BC 濃度は BDL~170 ng m<sup>-3</sup> だった。BC 濃度は, 低気圧接近やブロッキング現象による荒天時に増加する傾向があった。冬季や春季には, BC を含む空気塊は, 主に対流圏下層経由で大西洋やインド洋から昭和基地へ輸送されていた。冬季~春季の昭和基地で観測される BC 濃度変化が大西洋やインド洋からの流入に起因していることを考慮すると, 昭和基地に輸送される BC は, Hara *et al.* (2010) や Fiebig *et al.* (2009) が示唆するように, 南アメリカやアフリカ南部のバイオマス燃焼に由来しているのだろう。

夏季 (11-2 月) の BC 濃度は地上風速と同期して, 夜間に高くなる日変化を示していた。昭和基地での地上風の日変化は, Sato and Hirasawa (2007) により示唆されているように,

カタバ風の日変化に起因する。カタバ風中の BC 濃度は、大きな BC 発生源のない南極大陸大気の BC 濃度レベル (Bodhaine, 1995) に相当することを考慮すると、低中緯度から自由対流圏経由で南極域へ輸送されていると考えられる。

昭和基地での BC 季節変化は 8 月に極大を示し、アムステルダム島での季節変化とよく似ていた (Cachier *et al.*, 1996)。一方、西南極に位置する Halley 基地 (Wolff and Cachier, 1998)、Ferraz 基地 (Pereira *et al.*, 2006)、Neumayer 基地 (Weller, R., private communication) や内陸部に位置する Amundsen-Scott 基地 (Bodhaine, 1995) では、10 月に BC 濃度が極大を示していた。アフリカ大陸上で起きるバイオマス燃焼由来の BC は低気圧活動により昭和基地まで輸送されるため、BC 濃度は 8 月に極大を示し、輸送距離が長くなる西南極地域や内陸部の観測では、8 月の BC 濃度極大が確認されていない可能性がある。

## 謝 辞

本研究観測に多大な支援をしていただいた、第 45-47 次日本南極地域観測隊の隊員の方々に感謝いたします。本研究は、プロジェクト研究経費、科学研究費 (山内代表: No. 16253001, 長田代表: No. 15310012) の助成を受けた。後方流跡線解析には、NOAA の HYSPLIT モデル (<http://www.arl.noaa.gov/ready.html>) を使用している。また、本研究で使用した 1 分値の気象データは、気象庁による定常気象観測データを提供していただいた。

## 文 献

- 青木周司・中澤高清 (1997): 昭和基地における大気中の二酸化炭素濃度の連続観測。南極資料, **41**, 161-176.
- Aoki, S., Nakazawa, T., Murayama, S. and Kawaguchi, S. (1992): Measurements of atmospheric methane at the Japanese Antarctic station, Syowa. *Tellus*, **44B**, 273-281.
- Aoki, T., Aoki, T., Fukabori, M., Tachibana, Y., Zaizen, Y., Nishio, F. and Oishi, T. (1998): Spectral albedo observation on the snow field at Barrow, Alaska. *Polar Meteorol. Glaciol.*, **12**, 1-9.
- Arnott, W.P., Hamasha, K., Moosmüller, H., Sheridan, P.J. and Ogren, J.A. (2005): Towards aerosol light-absorption measurements with a 7-wavelength aethalometer: evaluation with a photoacoustic instrument and 3-wavelength nephelometer. *Aerosol Sci. Technol.*, **39**, 17-29.
- Basile, I., Grousset, F.E., Revel, M., Petit, J.R., Biscaye, P.E. and Barkov, N.I. (1997): Patagonian origin of glacial dust deposited in East Antarctica (Vostok and Dome C) during glacial stages 2, 4 and 6. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **146**, 573-589.
- Bodhaine, B.A. (1995): Aerosol absorption measurements at Barrow, Mauna Loa and the South Pole. *J. Geophys. Res.*, **100** (D5), 8967-8975.
- Bond, T.C., Anderson, T.L. and Campbell, D. (1999): Calibration and intercomparison of filter-based measurements of visible light absorption by aerosols. *Aerosol Sci. Technol.*, **30**, 582-600.
- Cachier, H., Lioussé, C., Pertuisot, M.-H., Gaudichet, A., Echalar, F. and Lacaux, J.-P. (1996): African fire particulate emissions and atmospheric influence. Remote sensing, modeling and inventory development, and biomass burning in Africa, edited by J.S. Levine, Cambridge, Mass., MIT Press, 428-440. (Biomass burning and global change; **1**)
- Delmonte, B., Petit, J.R., Andersen, K.K., Basile-Doelsch, I., Maggi, V. and Lipenkov, V.Y. (2004): Dust size evidence for opposite regional atmospheric circulation changes over east Antarctica

- during the last climate transition. *Climate Dynamics*, **23**, 427–438.
- Draxler, R.R. and Rolph, G.D. (2003): HYSPLIT (HYbrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory) Model access via NOAA ARL READY Website (<http://www.arl.noaa.gov/ready/hysplit4.html>). NOAA Air Resources Laboratory, Silver Spring, MD.
- Edwards, D.P., Emmons, L.K., Gille, J.C., Chu, A., Attié, J.-L., Giglio, L., Wood, S.W., Haywood, J., Deeter, M.N., Massie, S.T., Ziskin, D.C. and Drummond, J.R. (2006a): Satellite-observed pollution from Southern Hemisphere biomass burning. *J. Geophys. Res.*, **111**, D14312, doi:10.1029/2005JD006655.
- Edwards D.P., Pétron, G., Novelli, P.C., Emmons, L.K., Gille, J.C. and Drummond J.R. (2006b): Southern Hemisphere carbon monoxide interannual variability observed by Terra/Measurement of Pollution in the Troposphere (MOPITT). *J. Geophys. Res.*, **111**, D16303, doi:10.1029/2006JD007079.
- Evangelista, H., Maldonado, J., Godoi, R.H.M., Pereira, E.B., Koch, D., Tanizaki-Fonseca, K., Van Grieken, R., Sampaio, M., Setzer, A., Alencar, A. and Gonçalves, S.C. (2007): Sources and transport of urban and biomass burning aerosol black carbon at the South-West Atlantic coast. *J. Atmos. Chem.*, **56**, 225–238.
- Fiebig, M., Lunder, C.R. and Stohl, A. (2009): Tracing biomass burning aerosol from South America to Troll Research Station, Antarctica. *Geophys. Res. Lett.*, **36**, L14815, doi:10.1029/2009GL038531.
- Gros, V., Poisson, N., Martin, D., Kanakidou, M. and Bonsang, B. (1998): Observations and modeling of the seasonal variation of surface ozone at Amsterdam Island: 1994–1996. *J. Geophys. Res.*, **103** (D21), 28103–28109.
- Gros, V., Bonsang, B., Martin, D., Novelli, P.C. and Kazan, V. (1999): Carbon monoxide short term measurements at Amsterdam island: estimations of biomass burning emission rates. *Chemosphere Global Change Sci.*, **1**, 163–172.
- Hagler, G.S.W., Bergin, M.H., Smith, E.A., Town, M. and Dibb, J.E. (2008): Local anthropogenic impact on particulate elemental carbon concentrations at summit, Greenland. *Atmos. Chem. Phys.*, **8**, 2485–2491.
- Hansen, A.D.A. (2003): The aethalometer manual. Berkeley, C.A., Magee Scientific. <<http://www.mageesci.com>>
- Hansen, A.D.A., Bodhaine, B.A., Dutton, E.G. and Schnell, R.C. (1988): Aerosol black carbon measurements at the South Pole: initial results, 1986–1987. *Geophys. Res. Lett.*, **15**, 1193–1196.
- Hansen, A.D.A., Lowenthal, D.H., Chow, J.C. and Watson, J.G. (2001): Black carbon aerosol at McMurdo station, Antarctica. *J. Air Waste Manage. Assoc.*, **51**, 593–600.
- Hansen, J. and Nazarenko, L. (2004): Soot climate forcing via snow and ice albedos. *Proc. Natl Acad. Sci.*, **101**, 423–428.
- Hansen, J., Sato, M., Ruedy, R., Nazarenko, L., Lacis, A., Schmidt, G.A., Russell, G., Aleinov, I., Bauer, M., Bauer, S., Bell, N., Cairns, B., Canuto, V., Chandler, M., Cheng, Y., Del Genio, A., Faluvegi, G., Fleming, E., Friend, A., Hall, T., Jackman, C., Kelley, M., Kiang, N., Koch, D., Lean, J., Lerner, J., Lo, K., Menon, S., Miller, R., Minnis, P., Novakov, T., Oinas, V., Perlwitz, J., Perlwitz, Ju., Rind, D., Romanou, A., Shindell, D., Stone, P., Sun, S., Tausnev, N., Thresher, D., Wielicki, B., Wong, T., Yao, M. and Zhang, S. (2005): Efficacy of climate forcings. *J. Geophys. Res.*, **110**, D18104, doi:10.1029/2005JD005776.
- Hara, K., Kikuchi, T., Furuya, K., Hayashi, M. and Fujii, Y. (1996): Characterization of Antarctic aerosol particles using laser microprobe mass spectrometry. *Environ. Sci. Technol.*, **30**, 385–391.
- Hara, K., Yamagata, S., Yamanouchi, T., Sato, K., Herber, A., Iwasaka, Y., Nagatani, M. and Nakata, H. (2003): Mixing states of individual aerosol particles in spring Arctic troposphere during ASTAR 2000 campaign. *J. Geophys. Res.*, **108** (D7), 4209, doi:10.1029/2002JD002513.
- 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 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., Hirasawa, N., Yamanouchi, T., Wada, M., Herber, A. and ANTSYO members and Hayashi, M. (2009): Vertical distributions of aerosol constituents and their mixing states over Neumayer and Kohnen Stations during the summer. 第32回極域気水圏シンポジウムプログラム・講演要旨. 東京, 2009–11, 国立極地研究所, 95–96.
- 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:10.1029/2009JD012582.
- Heintzenberg, J. (1990): Tropospheric transport of trace substances in the southern hemisphere. *Tellus*, **42B**, 355–363.
- Hirasawa, N., Nakamura, H. and Yamanouchi, T. (2000): Abrupt changes in meteorological conditions observed at an inland Antarctic station in association with wintertime blocking. *Geophys. Res. Lett.*, **27**, 1911–1914.
- Hoskins, B.J. and Hodges, K.I. (2005): A new perspective on Southern Hemisphere storm tracks. *J. Climate*, **18**, 4108–4129.
- IPCC: Intergovernmental Panel on Climate change (2007): Climate change 2007: the physical science basis. edited by S. Solomon *et al.*, Cambridge, Cambridge Univ. Press, 996 p.
- Ito, T. (1989): Antarctic submicron aerosols and long-range transport of pollutants. *Ambio*, **18**, 34–41.
- Li, J., Pósfai, M., Hobbs, P.V. and Buseck, P.R. (2003): Individual aerosol particles from biomass burning in southern Africa 2: compositions and aging of inorganic particles. *J. Geophys. Res.*, **108** (D13), 8484, doi:10.1029/2002JD002310.
- van Lipzig, N.P.M. and van den Broeke, M.R. (2002): A model study on the relation between atmospheric boundary-layer dynamics and poleward atmospheric moisture transport in Antarctica. *Tellus*, **54A**, 497–511.
- Maricq, M.M. (2007): Chemical characterization of particulate emissions from diesel engines: a review. *J. Aerosol Sci.*, **38**, 1079–1118.
- Massom, R.A., Pook, M.J., Comiso, J.C., Adams, N., Turner, J., Lachlan-Cope, T. and Gibson, T. (2004): Precipitation over the interior East Antarctic ice sheet related to midlatitude blocking-high activity. *J. Climate*, **17**, 1914–1928.
- McConnell, J.R., Edwards, R., Kok, G.L., Flanner, M.G., Zender, C.S., Saltzman, E.S., Banta, J.R., Pasteris, D.R., Carter, M.M. and Kahl, J.D.W. (2007): 20th-century industrial black carbon emissions altered Arctic climate forcing. *Science*, **317**, 1381–1384.
- Moorthy, K.K., Satheesh, S.K., Babu, S.S. and Saha, A. (2005): Large latitudinal gradients and temporal heterogeneity in aerosol black carbon and its mass mixing ratio over southern and northern oceans observed during a trans-continental cruise experiment. *Geophys. Res. Lett.*, **32**, L14818, doi:10.1029/2005GL023267.
- Murayama, S., Nakazawa, T., Yamazaki, K., Aoki, S., Makino, Y., Shiobara, M., Fukabori, M., Yamanouchi, T., Shimizu, A., Hayashi, M., Kawaguchi, S. and Tanaka, M. (1995): Concentration variations of atmospheric CO<sub>2</sub> over Syowa Station, Antarctica and their interpretation. *Tellus*, **47B**, 375–390.
- Murphey, B.B. and Hogan, A.W. (1992): Meteorological transport of continental soot to Antarctica? *Geophys. Res. Lett.*, **19**, 33–36.
- Osada, K., Hayashi, M., Ui, H. and Iwasaka, Y. (1998): Ionic constituents in aerosol particles at Syowa Station, East Antarctica, during 1996. *Polar Meteorol. Glaciol.*, **12**, 49–57.
- Osada, K., Hara, K., Kido, M., Kai, H., Yamanouchi, T., Hashida, G., Matsunaga, K. and Iwasaka,



- Y. (2001): Surface depletion in snow over sea ice near Syowa Station, Antarctica, in relation to the origin of sulfate depleted sea-salt aerosol particles in winter. *Polar Meteorol. Glaciol.*, **15**, 21–31.
- 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.
- Parish, T.R. and Bromwich, D.H. (1987): The surface windfield over the Antarctic ice sheets. *Nature*, **328**, 51–54.
- Parish, T.R. (1988): Surface winds over the Antarctic continent: a review. *Rev. Geophys.*, **26**, 169–180.
- Pereira, K.C.D., Evangelista, H., Pereira, E.B., Simões, J.C., Johnson, E. and Melo, L.R. (2004): Transport of crustal microparticles from Chilean Patagonia to the Antarctic Peninsula by SEM-EDS analysis. *Tellus*, **56B**, 262–275.
- Pereira E.B., Evangelista, H., Pereira, K.C.D., Cavalcanti, I.F.A. and Setzer, A.W. (2006): Apportionment of black carbon in the South Shetland Islands, Antarctic Peninsula. *J. Geophys. Res.*, **111**, D03303, doi:10.1029/2005JD006086.
- Planchon, F.A.M., Boutron, C.F., Barbante, C., Cozzi, G., Gaspari, V., Wolff, E.W., Ferrari, C.P. and Cescon, P. (2002a): Changes in heavy metals in Antarctic snow from Coats Land since the mid-19th to the late-20th century. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **200**, 207–222.
- Planchon, F.A.M., Boutron, C.F., Barbante, C., Cozzi, G., Gaspari, V., Wolff, E.W., Ferrari, C.P. and Cescon, P. (2002b): Short-term variations in the occurrence of heavy metals in Antarctic snow from Coats Land since the 1920s. *Sci. Total Environ.*, **300**, 129–142.
- Polian, G., Lambert, G., Ardouin, B. and Jegou, A. (1986): Long-range transport of continental radon in subantarctic and Antarctic areas. *Tellus*, **38B**, 178–189.
- 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.
- Revel-Rolland, M., De Deckker, P., Delmonte, B., Hesse, P.P., Magee, J.W., Basile-Doelsch, I., Grousset, F. and Bosch, D. (2006): Eastern Australia: a possible source of dust in East Antarctica interglacial ice. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **249**, 1–13.
- Rinke, A., Dethloff, K. and Fortmann, M. (2004): Regional climate effects of Arctic haze. *Geophys. Res. Lett.*, **31**, L16202, doi:10.1029/2004GL020318.
- Sakerin S.M., Smirnov, A., Kabanov, D.M., Pol'kin, V.V., Panchenko, M.V., Holben, B.N. and Kopelevich, O.V. (2007): Aerosol optical and microphysical properties over the Atlantic Ocean during the 19th cruise of the Research Vessel *Akademik Sergey Vavilov*. *J. Geophys. Res.*, **112**, D10220, doi:10.1029/2006JD007947.
- 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.
- Stohl A. (2006): Characteristics of atmospheric transport into the Arctic troposphere. *J. Geophys. Res.*, **111**, D11306, doi:10.1029/2005JD006888.
- Ström, J., Hansson, M., Fujita, S. and Holmlund, P. (2010): Black carbon observations in air and surface snow: measurements from the JASE-traverse and Norwegian-US-traverse. Theme 1–7 (Poster session P52-Section A), International Polar Year, Oslo, 2010–06 (online) <<http://ipy-osc.no/abstract/385563>>.
- Suzuki, K., Yamanouchi, T., Hirasawa, N. and Yasunari, T. (2004): Seasonal variations of air transport in the Antarctic and atmospheric circulation in 1997. *Polar Meteorol. Glaciol.*, **18**, 96–113.
- Suzuki, K., Yamanouchi, T. and Motoyama, H. (2008): Moisture transport to Syowa and Dome Fuji Stations in Antarctica. *J. Geophys. Res.*, **113**, D24114, doi:10.1029/2008JD009794.
- Vallalonga, P., van de Velde, K., Candelone, J.-P., Morgan, V.I., Boutron, C.F. and Rosman, K.J. R. (2002): The lead pollution history of Law dome, Antarctica, from isotopic measurements on ice cores: 1500 AD to 1989 AD. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **204**, 291–306.
- Wagenbach, D. (1996): Coastal Antarctica: atmospheric chemical composition and atmospheric



- transport. Chemical exchange between the atmosphere and polar snow, ed. by E.W. Wolff and R.C. Bales. Berlin, Springer, 173–199 (NATO ASI ser.; Ser. I, v. **43**).
- Warren, S.G. and Clarke, A.D. (1990): Soot in the atmosphere and snow surface of Antarctica. *J. Geophys. Res.*, **95** (D2), 1811–1816.
- Wolff, E.W. and Cachier, H. (1998): Concentrations and seasonal cycle of black carbon in aerosol at a coastal Antarctic station. *J. Geophys. Res.*, **103** (D9), 11033–11041, doi:10.1029/97JD01363.
- Yamanouchi, T., Treffeisen, R., Herber, A., Shiobara, M., Yamagata, S., Hara, K., Sato, K., Yabuki, M., Tomikawa, Y., Rinke, A., Neuber, R., Schumacher, R., Kriews, M., Ström, J., Schrems, O. and Gernandt, H. (2005): Arctic Study of Tropospheric Aerosol and Radiation (ASTAR) 2000: Arctic haze case study. *Tellus*, **57B**, 141–152.
- Yamato, M., Iwasaka, Y., Okada, K., Ono, A., Nishio, F. and Fukabori, M. (1987): Evidence for the presence of submicron sulfuric acid particles in summer Antarctic atmosphere: preliminary results. *Proc. NIPR Symp. Polar Meteorol. Glaciol.*, **1**, 74–81.