

昭和基地で観測されたヘイズ現象

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

Haze episodes at Syowa Station, Antarctica

Keiichiro Hara^{1,4*}, Kazuo Osada², Masanori Yabuki^{3,4}, Gen Hashida^{4,5}, Takashi Yamanouchi^{4,5},
Masahiko Hayashi⁶, Masataka Shiobara⁴, Chiharu Nishita-Hara² and Makoto Wada^{4,5}

(2010年2月2日受付; 2010年4月20日受理)

Abstract: During our aerosol measurement program at Syowa Station, Antarctica in 2004–2007, some low visibility (haze) phenomena were observed under conditions with weak wind and without drifting snow and fog in winter–spring. In the “Antarctic haze” phenomenon, the number concentration of aerosol particles and black carbon concentration increased by one–two orders higher relative to background conditions at Syowa Station, while surface O₃ concentration simultaneously dropped especially after polar sunrise. Major aerosol constituents in the haze phenomenon were sea-salts (e.g., Na⁺ and Cl[−]). From the trajectory analysis and NAAPS model, the plumes from biomass burning in South America and southern Africa were transported to Syowa Station, Antarctic coast, during eastward (occasionally westward) approach of cyclones in the Southern Ocean. Thus, poleward flow of the plume from mid-latitudes and injection of sea-salt particles during the transport may lead to the Antarctic haze phenomenon at Syowa Station. The difference of O₃ concentration between the background and the haze conditions tended to be larger in spring (polar sunrise) relative to that in winter. Because enhancement

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 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.

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.

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: harakei@fukuoka-u.ac.jp

of sea-salt particles can play an important role as an additional source of reactive halogen species, the haze episodes might make a significant contribution to surface O_3 depletion during the polar sunrise on the Antarctic coast.

要旨: 2004–2007 年に行ったエアロゾル重点観測中に、昭和基地でヘイズ現象が観測された。ヘイズ現象時は風が比較的弱く、降雪・地吹雪は観測されず、冬～春にヘイズが出現していた。「南極ヘイズ」時には、バックグラウンド状態と比べてエアロゾル数濃度が 1–2 桁ほど増加していた。エアロゾル成分のバルク分析から、ヘイズ現象中のエアロゾル主成分は海塩成分 (e.g., Na^+ , Cl^-) と判明した。流跡線解析と NAAPS モデルから、南アメリカやアフリカ南部でのバイオマス燃焼の影響を受けた空気塊が、南大洋上の低気圧活動に伴って昭和基地まで輸送されていることが示唆された。中低緯度域から極域方向への空気塊流入と、輸送中の海塩粒子の発生と混合とにより、「南極ヘイズ」が出現しているのだろう。バックグラウンド時とヘイズ時の O_3 濃度の差は、冬よりも極夜明け後の春に大きくなる傾向が確認された。不均一反応により海塩粒子から高反応性ハロゲン化合物が放出されることがあるため、極夜明け後の南極沿岸域でのヘイズ現象は、地上 O_3 消失現象にも密接に関連している可能性がある。

1. はじめに

北極域では、冬～春にヘイズ現象が観測されており、「北極ヘイズ」と呼ばれている。数十年間にわたり北極ヘイズに関連する様々な観測が行われ、北極ヘイズ中のエアロゾル主成分は、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- や黒色炭素 (Black carbon; 以下, BC) のような人為起源物質であることが示されている (e.g. Quinn *et al.*, 2007; Law and Stohl, 2007)。北極ヘイズをもたらす人為起源物質は、主にユーラシア大陸上の工業地域から北極圏へ輸送される (Shaw, 1991, 1995; Heintzenberg and Leck, 1994; Law and Stohl, 2007)。北極ヘイズ現象は大気エアロゾルにより日射が散乱・吸収されるため、視程や放射収支に影響を与える (Hansen and Nazarenko, 2004)。また、BC が積雪表面に沈着することで、積雪表面のアルベドが変化する (Hansen and Nazarenko, 2004)。例えば、AGASP-II (Valero *et al.*, 1989) や ASTAR2000 (Treffleisen *et al.*, 2005) での北極ヘイズ観測から、ヘイズ現象での昇温率 (0.1–0.2 K/day) が推定されている。

北極ヘイズに対し、南極域は燃焼起源 (人為活動・バイオマス燃焼) や砂漠などの乾燥域から隔てられているため、南極域ではヘイズ現象は存在しないと考えられていた。アイスコアデータでも、北極域では産業革命以降、人為起源物質 (SO_4^{2-} 、 NO_3^-) が増加する傾向が得られているが、南極域でのアイスコアでは人為起源物質の影響はほとんど得られていない (Legrand and Mayewski, 1997)。最近の研究では、アイスコア中の土壌粒子がパタゴニア域 (e.g., Gaiero, 2007; Delmonte *et al.*, 2008) やオーストラリア (Revel-Rolland *et al.*, 2006) を起源としていることが示唆されているが、土壌起源物質濃度もそれほど高くなっていない。大規模な燃焼過程や砂漠から隔離されているにもかかわらず、2004–2006 年に昭和基地で行ったエアロゾル重点観測では、冬～春にかけて視程が下がる現象が確認さ

れた。一般にヘイズ現象(視程低下)は、高エアロゾル濃度による日射の散乱・吸収によって起こる(Hyslop, 2009)。極域では地吹雪、降水、霧が出現すると視程低下が起こるが、「南極ヘイズ」のような低視程現象は、地吹雪、降水、霧が確認されない時に発生していた。弱風時のエアロゾル数濃度増加は、1997年8月にも昭和基地で確認されており、地上 O_3 濃度が <5 ppbまで減少していた(江崎ほか, 1998)。さらに、昭和基地の定常気象観測によるサンフォトメータによる光学的厚さの観測でも、春先に比較的高い値となる例が観測されている(例えば、江崎ほか, 2000)。しかしながら、他の南極観測基地でヘイズ現象の報告はない。本研究は、(1) 南極ヘイズの物理・化学的特性、(2) ヘイズの起源、(3) ヘイズ出現に伴う影響について理解することを目的とする。

2. 観 測

2.1. エアロゾル観測

エアロゾル重点観測は日本南極地域観測隊(JARE)の一部として、南極昭和基地($69^{\circ}00'S$, $39^{\circ}00'E$)で2004年2月から2007年1月(JARE-45~47)まで実施した。エアロゾル観測は基地主要部の風上に建てられた「清浄大気観測室」で行った。清浄大気観測室やエアロゾル観測に使用したインレットの詳細については、Hara *et al.* (2008)、長田ほか(2006)にまとめられているので、ここでは割愛する。

表1に、本研究で使用したエアロゾル測器、サンプリングした項目をまとめた。エアロゾル粒子の粒径分布、数濃度計測には、2台のOptical particle counters(OPCs), Scanning

表1 本研究で使用したエアロゾル観測機器の一覧
Table 1. List of aerosol measurements in this study.

Instrument or Sampling	Type Manufacturer	Data or analytical method	Data range Or unit	Operation period
OPC	TD-100, YGK	Size distribution	>0.3 , >0.5 , >1.0 , >2.0 , $>5.0 \mu m$	Monitoring since 1998
OPC	KC22B, RION	Size distribution	>0.08 , >0.1 , >0.2 , >0.3 , $>0.5 \mu m$	Feb. 2005–Jan. 2007
CPC	CPC-3010, TSI	Number concentration	>10 nm	Monitoring since 1998
SMPS	3936-N-25, TSI	Size distribution	3–143 nm	Feb. 2004–Jan. 2007
TSMPS	3934, TSI	Size distribution	10–392 nm	Feb. 2005–Jul. 2006*
PSAP	Radiance Research	Absorption coefficient	m^{-1} or ng/m^3	Feb. 2004–Jan. 2005
Aethalometer	AE-31, Magee science	Black carbon concentration	ng/m^3	Feb. 2005–Jan. 2007
Bulk aerosol analysis**	MVI	Soluble constituents by ion chromatography	Continuousn mol/m^3	Feb. 2004–Jan. 2007
Single particle analysis	LVI	TEM and SEM-EDX	Once a week	Feb. 2004–Jan. 2007
O_3	Model 1100, Tokyo Dylec	Concentration	ppb	Monitoring since 1988

*: TSMPS measurements were stopped in July 2006 because of mechanical trouble.

** : Additional aerosol samples were taken in haze events and lower O_3 episodes in addition to routine sampling.

mobility particle sizer (SMPS), Condensation particle counter (CPC) を使用した。揮発性粒子, 非揮発性粒子を計測するために, 昇温デニューダーを取り付けた SMPS (TSMPS) による観測を 2005 年 2 月~2006 年 12 月まで行った。TSMPS 観測の詳細は, 原ほか (2010a) にまとめた。BC 濃度を計測するために, JARE-45 では Particle soot absorption photometer (PSAP) を, JARE-46~47 では 7 波長型エサロメータを使用した。BC 観測の詳細については, Hara *et al.* (2008), 原ほか (2010b) にまとめた。エアロゾルの化学成分や混合状態に関する情報を得るために, 2 段式 Mid-volume impactor (MVI) とバックアップフィルターによりバルク分析用試料を, 2 段式 Low-volume impactor (LVI) により個別粒子分析用試料を採取した。エアロゾル使用サンプリングの手順は, Hara *et al.* (2003, 2004) に準拠した。局所汚染大気を吸引しないように, MVI, LVI サンプリングは, 汚染源のない清浄大気側 (卓越風向側) から風が吹いてくる時のみ大気吸引をするようにした。清浄大気観測室での O_3 濃度観測は, 紫外線吸収型の O_3 計 (Model 1100, Dylec) を使用した。 O_3 観測の手順は, Aoki (1997) にまとめられている。局所汚染データを取り除くため, 風向風速データと 10 分平均した CN 濃度の標準偏差を使用した。汚染データの除外方法は, Hara *et al.* (2008), 原ほか (2010b) に従った。

2.2. 気象データとトラジェクトリー解析

本研究では気象庁による定常気象観測データ (1 分値) を使用した。気象棟は基地主要部に位置し, 清浄大気観測室からおおよそ 500 m 離れている。空気塊の履歴を検討するために, HYSPLIT model (Draxler and Rolph, 2003) を使用してトラジェクトリー解析を行った。トラジェクトリーの計算には, NCEP の再解析データ (Reanalysis) を使用し, 等温位モードで 160 時間的前方トラジェクトリーを計算した。

2.3. サンプル分析

個別粒子分析には, 走査型電子顕微鏡—エネルギー分散型 X 線分析装置 (SEM-EDX; Quanta FEG-200F, FEI; XL30, EDAX) を使用した。分析条件・手順は Hara *et al.* (2003, 2004) に従った。水溶性エアロゾル成分の定量には, 超純水 (18.2 M Ω) 14 ml で抽出した後イオンクロマトグラフ (DX-120, Dionex) を使用した。分析条件・手順は, Hara *et al.* (2004) に従った。

3. 結果と考察

3.1. 昭和基地でのヘイズ現象

観測期間中に, 昭和基地で「ヘイズ」のように視程の低い状況が時々観測されることがあった。極域では地吹雪, 降水, 霧が出現した時に視程が下がるが, ヘイズ現象時には地

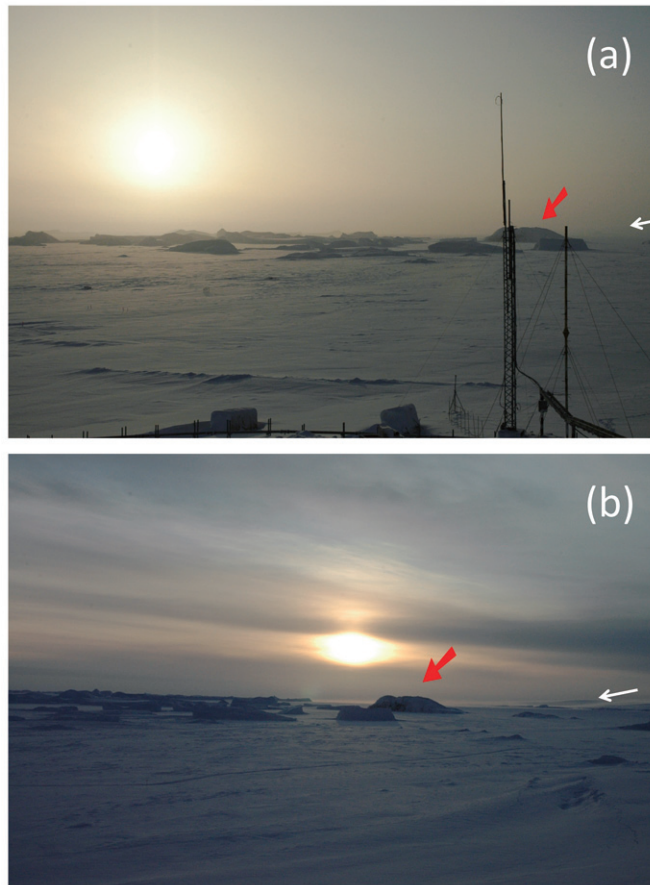


図1 ヘイズ現象時 (a: 2005年8月11日撮影) とヘイズ現象後 (b: 2005年8月12日撮影) の写真, 赤矢印は「岩島」を示す, 白矢印は大陸の稜線見える位置を示す (Hara *et al.*, JGR, 2010).
Fig. 1. Photographs of the haze phenomenon (11 August, 2005) (a) and after the haze phenomenon (12 August, 2005). Red and white arrows indicate “Iwajima” Island and the ridge line of the continent, respectively (Hara *et al.*, JGR, 2010).

吹雪, 降水, 霧は観測されていなかった。図1に, 2005年8月10-12日に観測されたヘイズ現象の例を示す。ヘイズ時(2005年8月11日, 図1a)では, 昭和基地近傍の氷山のみが視認され, 遠方の氷山や大陸の沿岸や大陸上の氷床の稜線(白矢印)は見えなかった。図1aの写真を撮影した時には, 霧や地吹雪は確認されなかった。8月11日には降水が記録される時間帯もあったが, 図1aの写真を撮影した時には降雪は見られなかった。さらにヘイズ現象時にはわずかに空が茶色から黄色を帯びていた。このようなヘイズ現象は, 昭和基地からの局所汚染時には全く観測されない。地上の風は局所汚染源のない卓越風向側から吹いていたため, ヘイズ現象は局所汚染では説明することができない。

ヘイズ後となる8月12日には, 対照的に比較的遠い氷山, 大陸沿岸線, 大陸上の稜線ま

で明瞭に確認された(図 1b)。氷山や沿岸線までの距離を考慮すると、8 月 10-12 日のヘイズ現象中の視程は 6-7 km、ヘイズ後の視程は >15 km と推定される。3 時間ごとの定常視程観測でも、8 月 11 日の視程は約 10 km まで下がっていた(気象庁, 2007)。同様のヘイズ現象時(例えば 2004 年 6 月の事例)でも、地吹雪、降水、霧は観測されていなかった。そのため、ヘイズ現象時の低視程は、エアロゾル数濃度の増加が原因であろう。

観測期間中(2004 年 2 月~2007 年 1 月)のヘイズ現象を抽出するため、風速のデータとエアロゾル数濃度データを使用して、ヘイズ現象の抽出を試みた。本研究では、ヘイズ現象、ヘイズ様現象を以下の基準で分類した。

ヘイズ現象: 霧や地吹雪がない、風速 5 m s^{-1} 以下、 $D_p > 0.3 \mu\text{m}$ の数濃度が 10^4 L^{-1} 以上、数時間以上現象が継続する。

ヘイズ様現象: 霧や地吹雪がない、風速 $5-15 \text{ m s}^{-1}$ 、 $D_p > 0.3 \mu\text{m}$ の数濃度が 10^4 L^{-1} 以上、数時間以上現象が継続する。

2005 年の OPC データでは、ヘイズ現象やヘイズ様現象に分類されるデータはわずかに 0.73% であり、ヘイズ現象やヘイズ様現象は非常に特異な現象と言える。表 2 に、ヘイズ現象とヘイズ様現象の日付をまとめる。これらの現象は冬季~春季にあたる 5 月下旬から 9 月下旬までに観測され、夏季には確認されなかった。

表 2 エアロゾル重点観測期間中に昭和基地で観測されたヘイズ、ヘイズ様現象の日付と気象データ

Table 2. Dates and meteorological conditions of haze and haze-like episodes at Syowa Station during the aerosol measurement program.

	Start time/date (UT)	End time/date (UT)	Mean wind speed ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$)	Mean air temperature ($^{\circ}\text{C}$)	Mean relative humidity (%)	Minimum Visibility (km)
2004						
1**	Jun. 17 1050	Jun. 18 2000	5.4	-16.1	59.5	10
2**	Jul. 10 1300	Jul. 12 0430	5.0	-22.7	58.8	5
3**	Jul. 27 1038	Jul. 29 0130	1.4	-26.0	70.8	<20
4*	Aug. 7 0430	Aug. 8 0450	5.5	-13.4	84.2	8
2005						
5*	May. 24 2300	May. 27 2350	6.9	-15.9	55.2	8
6*	Jul. 20 0000	Jul. 21 1000	10.2	-15.0	64.6	5
7**	Aug. 10 1600	Aug. 12 0030	3.7	-16.5	84.3	5
8*	Sep. 28 0000	Oct. 1 1805	10.9	-17.1	82.5	5
2006						
9*	Aug. 9 1030	Aug. 10 0500	8.3	-8.4	87.9	5
10*	Sep. 4 0830	Sep. 5 0730	7.2	-21.0	78.4	10

*: haze-like events

** : haze events

3.2. 昭和基地でのヘイズ現象のエアロゾル特性

3.2.1. 2005 年 8 月のヘイズ時: エアロゾルの物理特性

図 2 に、8 月 10 日～12 日に観測されたヘイズ現象時のエアロゾル数濃度、BC 濃度の時間変化を示す。この事例は、観測期間中のヘイズ現象の中でエアロゾル数濃度が極めて高かった事例の一つである。ヘイズ現象は、荒天（8 月 9–10 日）の直後に観測された。8 月 10 日夕方頃に風速が 20 m s^{-1} から $<10 \text{ m s}^{-1}$ へ急激に変化した。風速の変化に合わせて、 $D_p > 10 \text{ nm}$ と $D_p > 0.3 \mu\text{m}$ のエアロゾル数濃度が、それぞれ、 $\leq 100 \text{ cm}^{-3}$ 、 $5 \sim 6 \times 10^3 \text{ L}^{-1}$ から 717 cm^{-3} 、 $6.5 \times 10^4 \text{ L}^{-1}$ へ急に増加した。また、粗大粒子 ($D_p > 2.0 \mu\text{m}$) のエアロゾル数濃度も約 900 L^{-1} まで増加した。BC 濃度も $<10 \text{ ng m}^{-3}$ から約 60 ng m^{-3} まで増加した。8 月のバックグラウンド濃度 (CN, $\leq 100 \text{ cm}^{-3}$; BC, $<5 \text{ ng m}^{-3}$) と比べると、ヘイズ現象時のエアロゾル数濃度や BC 濃度が際立って高いことが分かる。地上 O_3 濃度はヘイズ現象時に 35.0 ppb から 28.0 ppb まで減少していた。ヘイズ現象（高エアロゾル数濃度）は、8 月 11 日の夜まで継続していた。8 月 11 日にエアロゾル数濃度と BC 濃度は再びバックグラウンドレベルまで減少した。この事例では、ヘイズ現象は 32 時間継続していた。

ヘイズ現象中、相対湿度は約 90% から 80% 以下へ徐々に減少していた（図 2c）。霧が発生するには相対湿度が低いいため、霧はヘイズ現象の原因ではない。図 2d に示したように、ヘイズ期間中の風は主に $0\text{--}90^\circ$ の風向だった。この方角は卓越風向に対応し、局所汚染源は存在しないため、昭和基地での人間活動はヘイズ現象の原因となり得ないだろう。昭和基地に最も近い基地（Molodezhnaya, $67^\circ 41'\text{S}$, $45^\circ 51'\text{E}$ ）は約 400 km も離れている。Hagler *et al.* (2008) によれば、極域では BC 発生源（発電機）から 30 km 離れると、大気中の BC 濃度は $<1 \text{ ng m}^{-3}$ になると報告されている。そのため、昭和基地でのヘイズ現象には他の観測基地からの影響はないと考えられる。図 2 で見られたようなヘイズ現象は、エアロゾル数濃度の高い空気塊の昭和基地への流入が原因だろう。空気塊の輸送経路や履歴については、3.4.1. 項で詳細を考察する。

図 3 にヘイズ中、ヘイズ後のエアロゾル粒子の粒径分布を示す。SMPS 計測から、超微小粒子域（特に $D_p > 20 \text{ nm}$ ）でヘイズ中に粒子数濃度が増加していることが明瞭に示された。さらに、TSMPS で 240°C に昇温した時の粒径分布は、SMPS で計測（室温: 約 20°C ）した粒径分布から若干低めとなる程度でよく一致していた。 240°C の昇温では硫酸塩や硫酸は揮発してしまうこと（原ほか, 2010a）を考慮すると、ヘイズ中の超微小粒子～微小粒子は硫酸塩ではなく、非揮発性粒子で構成されていると考えられる。 240°C 昇温で残存し得るエアロゾル粒子としては、海塩粒子、BC、土壌粒子などがある。BC 濃度はヘイズ期間中に増加していたものの、ヘイズ現象中の超微小粒子～微小粒子の数濃度増加を説明するほどの濃度増加ではなかった。同様に土壌粒子の発生量は、冬季南極圏内では無視できるため、南極圏外から輸送されなければならない。そのため、超微小粒子～微小粒子の非揮発性粒子

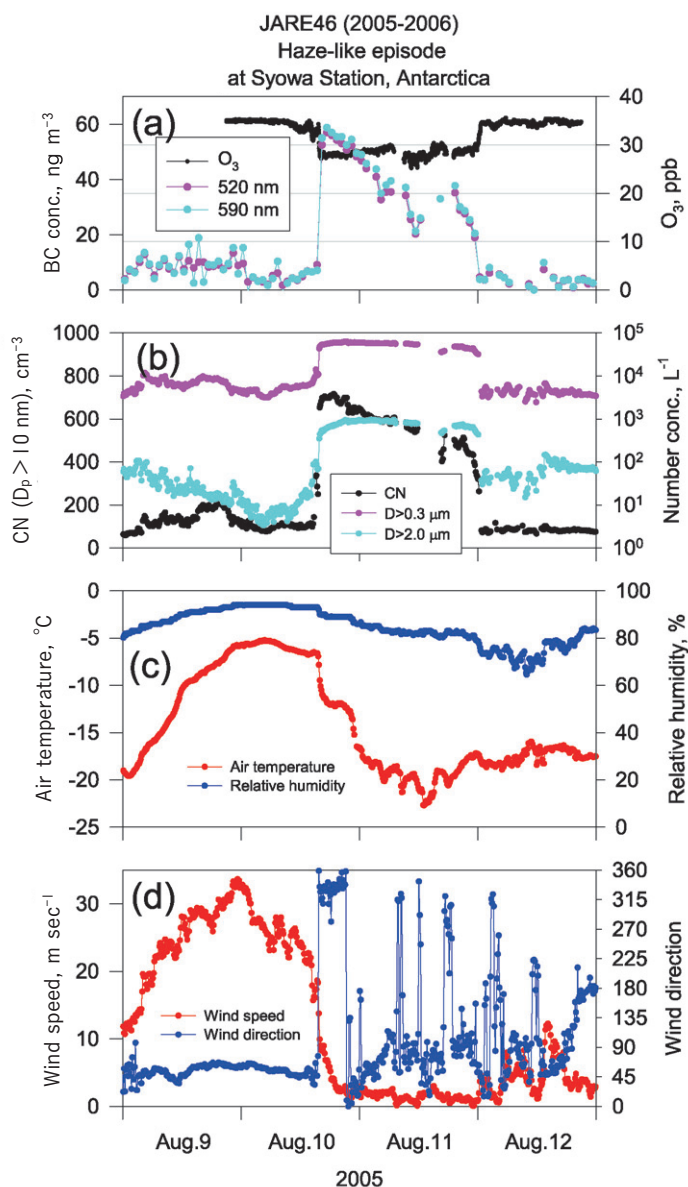


図2 2005年8月9-12日に昭和基地で得られた (a) BC濃度, O₃濃度, (b) CN濃度, 粗大粒子・微小粒子の数濃度, (c) 気温, 相対湿度, (d) 風向風速の変化 (Hara *et al.*, JGR, 2010).

Fig. 2. Short-term variations of (a) the concentrations of BC and surface O₃, (b) the concentrations of CN (D_p > 10 nm) and aerosol particles in fine and coarse modes, (c) air temperature and relative humidity, and (d) wind direction and speed during 9-12 August 2005 (Hara *et al.*, JGR, 2010).

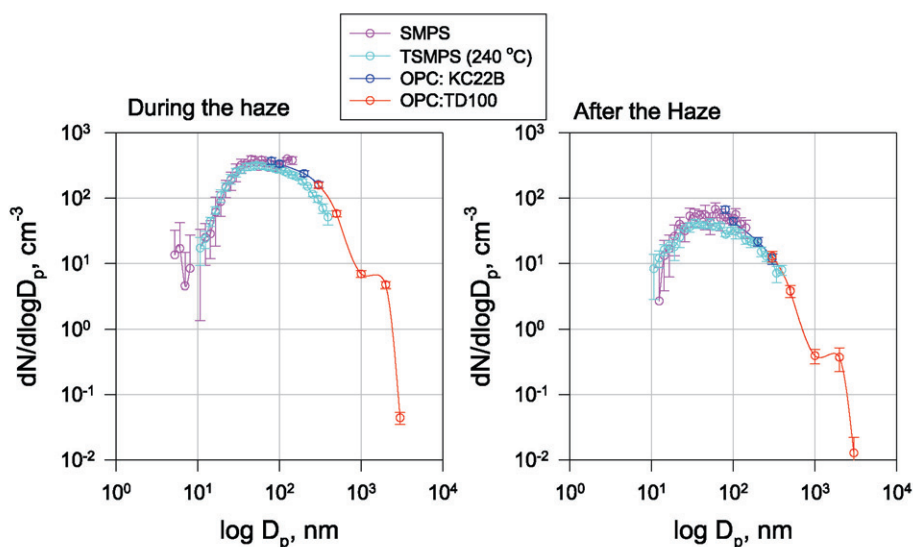


図3 エアロゾルの粒径分布: (a) ヘイズ現象時: 2005年8月10日1600–1700 UT, (b) ヘイズ現象後: 2005年8月12日0600–0700 UT (Hara *et al.*, JGR, 2010).

Fig. 3. Size distributions of aerosols in the haze (a) at 1600–1700 UT on 10 August 2005 and after the haze (b) at 0600–0700 UT on 12 August 2005 (Hara *et al.*, JGR, 2010).

に存在し得る成分としては、海塩粒子が期待される。

3.2.2. 2004年6月のヘイズ時: エアロゾルの物理特性

図4に2004年6月16日～19日のエアロゾル数濃度、BC濃度変化を示す。CN濃度変化から、ヘイズ現象は6月17日午後に始まり、18日夕方に風が強くなるまで継続していたと考えられる。2005年8月の事例と異なり、降雪は全く観測されていなかった。降水がなく弱風であるにもかかわらず、視程が10 kmまで減少していた(気象庁, 2006)。6月のバックグラウンド時の視程は>30 kmであるため、10 kmの視程は極めて低い状態といえるだろう。2004年6月のヘイズ現象の継続時間はおよそ33時間だった。図4dに示したように、ヘイズ現象時の風向は45–90°で変化しており、局所汚染では説明できない。この事例も相対湿度が70%以下であり、霧が発生する条件ではなかった。

2005年8月の事例同様に、エアロゾル数濃度は6月のバックグラウンド状態(CN, <70 cm⁻³; D_p>0.3 μm, <10³ L⁻¹)から、836 cm⁻³ (CN), 9.1×10⁴ L⁻¹ (D_p>0.3 μm)まで明らかに増加していた。BC濃度も<5 ng m⁻³から60.6 ng m⁻³まで変化していた。地上O₃濃度は、34.2 ppbから33.3 ppbに減少していた。オゾン濃度の差はわずか0.9 ppbだった。2005年8月の事例では、ヘイズの直前は荒天状態だったが、2004年6月の事例ではヘイズ現象の直前は荒天ではなく、ヘイズ現象終了時に荒天となっていた。

幸いにもエアロゾル観測プログラムの一部として、気球搭載型OPCを使用したエアロ

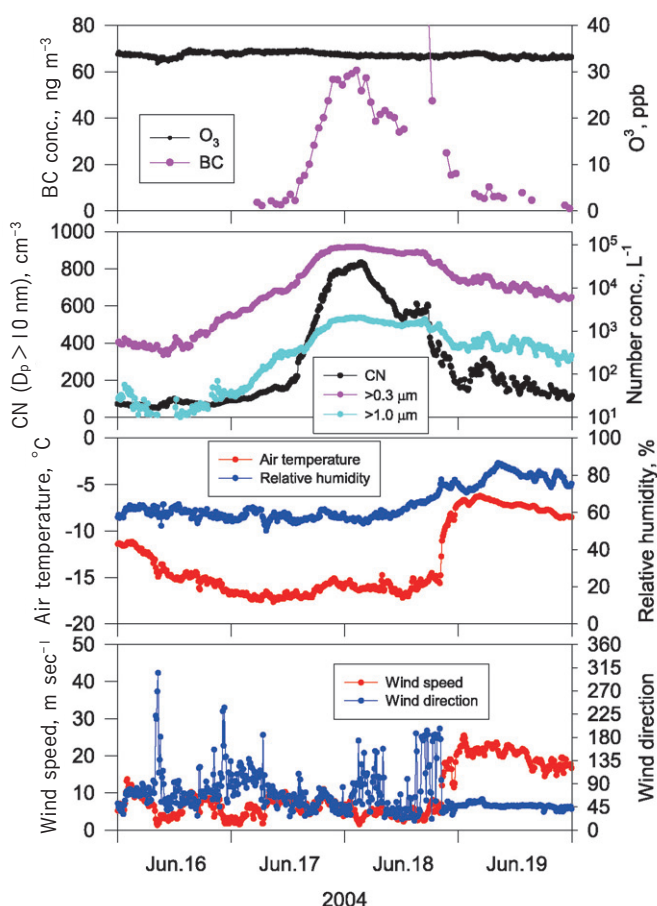


図4 2004年6月16–19日に昭和基地で得られた (a) BC濃度, O_3 濃度, (b) CN濃度, 粗大粒子・微小粒子の数濃度, (c) 気温, 相対湿度, (d) 風向・風速の変化(Hara *et al.*, JGR, 2010).

Fig. 4. Short-term variations of (a) concentrations of BC and surface O_3 , (b) concentrations of CN ($D_p > 10$ nm) and aerosol particles in fine and coarse modes, (c) air temperature and relative humidity, and (d) wind direction and speed from 16 until 19 June 2004 (Hara *et al.*, JGR, 2010).

ゾル鉛直分布観測が、昭和基地で2004年6月18日に実施されていた(気象庁, 2006)。地上から約2200 mの高度まで、 $D_p > 0.3 \mu\text{m}$ のエアロゾル数濃度が高濃度($> 10^4 \text{L}^{-1}$)となっていた。1997年8月30日の航空機を用いたエアロゾル観測(Yamanouchi *et al.*, 1999)でも、地上から約2300 mの高度までエアロゾル数濃度が高い層があった。ヘイズ層の厚みは2200–2300 mまで達することがあるようだ。

3.3. ヘイズ現象のエアロゾル化学特性

3.3.1. 2004 年 6 月, 2005 年 8 月のヘイズ時のエアロゾルのバルク組成

図 5 に, 2004 年 6 月, 2005 年 8 月のヘイズ時のエアロゾル水溶性成分の割合を示す. 海塩成分 (Na^+ , Cl^-) は, アニオンとカチオンの両方において, Sample A (2004 年 6 月) では 97% 以上を, Sample B (2005 年 8 月) では 95% 以上を占めていた. ヘイズ期間中, Na^+ 濃度は $187.7 \text{ nmol m}^{-3}$ (2004 年 6 月), $176.7 \text{ nmol m}^{-3}$ (2005 年 8 月) まで増加していた. 海塩成分濃度は荒天時に増加する傾向がある (Hara *et al.*, 2004) が, このような高 Na^+ 濃度は 2003–2007 年のエアロゾル観測期間中, 年 2–3 回程度だった (Hara *et al.*, unpublished data). Sample A–C ではアニオンで SO_4^{2-} が定量されていたが, SO_4^{2-} 濃度は海塩性 SO_4^{2-} 濃度に相等していた. 海塩成分 (Na^+ , Cl^-) に加え, 2005 年 8 月のヘイズでは, NO_3^- , CH_3COO^- , HCOO^- の濃度も増加していた. 昭和基地での 8 月頃の平均濃度 (NO_3^- , mean: 0.66 nmol m^{-3} , median: 0.62 nmol m^{-3} ; HCOO^- , mean: 0.14 nmol m^{-3} , median: 0.09 nmol m^{-3} ; CH_3COO^- , mean: 0.14 nmol m^{-3} , median: 0.09 nmol m^{-3}) と比べると (Hara *et al.*, unpublished data), NO_3^- , CH_3COO^- , HCOO^- の濃度は, Sample B でそれぞれ 2.03, 0.47, 0.19 nmol m^{-3} まで増加していた. NO_3^- 濃度は 2005 年 8 月の事例では値が高くなっ

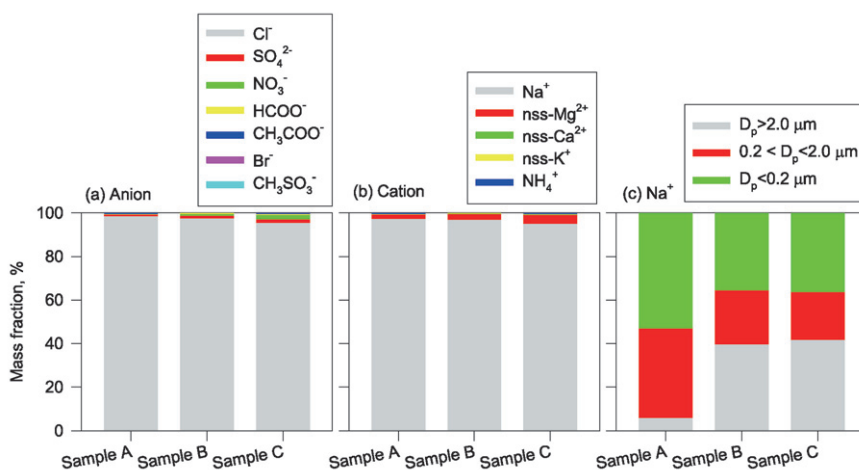


図 5 エアロゾル成分の割合 ((a) アニオン, (b) カチオン) と (c) Na^+ 濃度の粒径分布
 Sample A: 2004 年 6 月 18 日 0720–1220 UT に試料採取
 Sample B: 2005 年 8 月 10 日 1412 UT~8 月 11 日 1321 UT に試料採取
 Sample C: 2005 年 8 月 11 日 1336 UT~8 月 12 日 0703 UT に試料採取
 (Hara *et al.*, JGR, 2010)

Fig. 5. Mass fractions of each aerosol constituent in (a) anions and (b) cations, and (c) Na^+ in each size range. Sample A was collected from 0720 UT until 1220 UT on 18 June 2004, Sample B from 1412 UT, 10 August 2005 until 1321 UT, 11 August 2005, and Sample C from 1336 UT, 11 August 2005 until 0703 UT, 12 August 2005 (Hara *et al.*, JGR, 2010).

ていたが、2004年6月のヘイズ時の NO_3^- 濃度 (0.12 nmol m^{-3}) は6月の平均 NO_3^- 濃度 (ca. 0.20 nmol m^{-3} , Hara *et al.*, unpublished data) 程度だった。アニオンでは、海水起源と考えられる Br^- も定量されたが、 Na^+ を指標として見積もられる海塩性 Br^- 濃度と比べると Br^- 濃度は低かった。不均一反応により、ほとんどの Br^- は海塩粒子から揮発していたと考えられる。

図5cに示したように、海塩粒子(Na^+)は、微小粒子域(D_p : $0.2\text{--}2.0 \mu\text{m}$)、超微小粒子域(D_p : $<0.2 \mu\text{m}$)にも分布していた。ヘイズ現象中では、超微小粒子~微小粒子域に分布する海塩粒子の割合は、2004年6月では90%、2005年8月では60%に達していた。超微小粒子域に分布する海塩成分の割合は、2004年6月(Sample A)で53%、2005年8月(Sample B)で35%だった。以上から、ヘイズ現象時の超微小粒子~微小粒子のほとんどは海塩粒子であると考えられる。この結果は、TSMPSの観測結果(図3)と非常によく一致する。ヘイズ現象時には海塩粒子以外の NO_3^- やBCなどの成分も濃度が増加していたが、主に海塩粒子が視程低下に大きく寄与していたことがうかがえる。最近の海洋境界層内での観測(Clarke *et al.*, 2006)やモデル計算(Mårtensson *et al.*, 2003; Massel, 2007)では、海氷表面から超微小海塩粒子が発生していることが示されている。極域では海水上の海塩成分も海塩粒子の発生源として重要であるが、海水域からの超微小海塩粒子の発生過程についてはまだはっきりしていない。

3.3.2. 2004年6月、2005年8月のヘイズ時の個々のエアロゾル粒子の組成

SEM-EDXによる個別粒子分析では、多くのエアロゾル粒子がNa, Cl, Mgを含んでいた。これらの粒子は海塩粒子と同定できる。EDX分析では、原子番号11以上(Na)の元素の特性X線が全く得られない粒子も若干数確認された。本研究ではエアロゾル粒子捕集面として、カーボン蒸着を施したコロジオン薄膜(ニッケル製TEMグリッドで支持)を使用しているため、エアロゾル粒子中の炭素成分の同定を行うことはできない。外部混合状態の炭素質の同定は、独特な形態と原子番号11以上(Na)の元素からの特性X線が検出されないことを確認して行うことにした。

図6に、2004年6月と2005年8月のヘイズ現象中に捕集されたエアロゾル粒子のEDXスペクトルの一例を示す。図6aでは、S, Ca, Si, Feが検出された。相対原子数比をみると、Caは44.8%、Sは44.1%だったため、この粒子の主成分はgypsum (CaSO_4)で構成されていると考えられる。この粒子は土壌粒子と判定できる。ほとんどの粒子は海塩粒子であり、EDX分析からNa, Mg, Clが検出された(図6b)。図6cに示したように、一部の海塩粒子は土壌粒子と内部混合をしていた。図6d、図7の粒子では、原子番号11(Na)以上の元素由来の特性X線は得られていなかった。図7のような特徴的な形態も考慮すると、炭素質粒子と同定できるだろう。

定量的な評価のため、EDX分析結果から存在割合(relative abundance)を求めた(表3)。

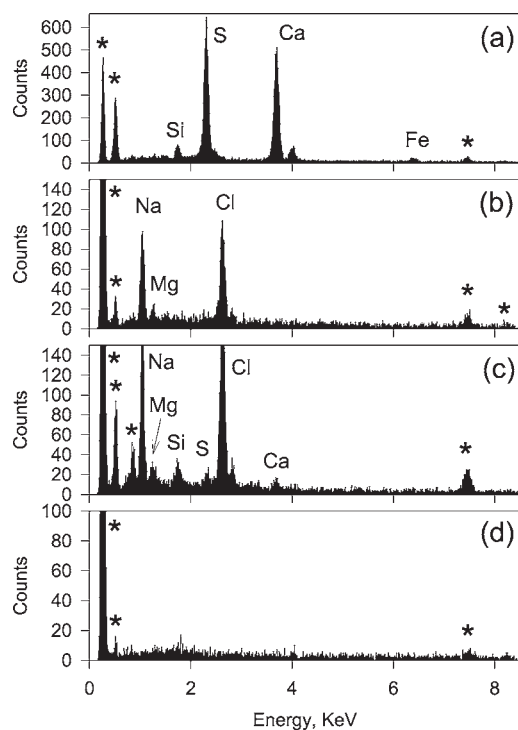


図6 2004年6月18日に捕集されたエアロゾル粒子のEDXスペクトルの一例

図中、*印は捕集面に起因するバックグラウンドピークを示す。(Hara *et al.*, JGR, 2010)

Fig. 6. Typical examples of EDX spectra of aerosol particles collected on 18 June 2004. Asterisks signify background peaks from the sample substrate (Hara *et al.*, JGR, 2010).

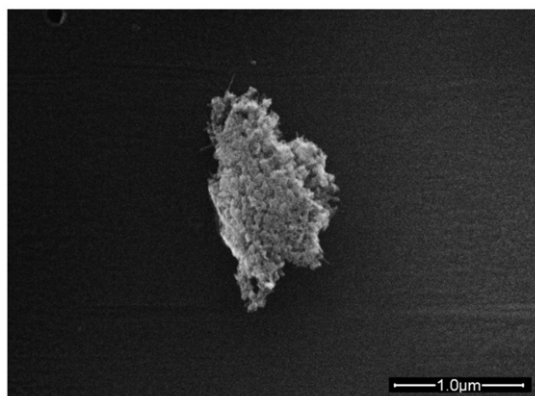


図7 2004年6月18日に捕集された炭素質粒子のSEM像 (Hara *et al.*, JGR, 2010)

Fig. 7. Example of SEM image of carbonaceous particle collected on 18 June 2004 (Hara *et al.*, JGR, 2010).

表3 ヘイズ現象時に捕集されたエアロゾル粒子の存在割合

Table 3. Relative abundance of aerosol particles collected during the haze (June 2004 and August 2005).

	18 June 2004		10 August 2005	
	Coarse*	Fine**	Coarse	Fine
	<i>N</i> = 115	<i>N</i> = 116	<i>N</i> = 96	<i>N</i> = 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%
		(not observed)	(not observed)	(not observed)
Sulfate	0.0%	0.0%	0.0%	3.8%
	(not observed)	(not observed)	(not observed)	
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 μm

表3に示したように、ヘイズ現象時には海塩粒子が主成分だった。また、炭素質粒子もヘイズ現象時には確認された。土壌粒子は2005年8月のヘイズ現象時には確認されなかったが、2004年6月の事例では確認された。冬季の南極圏内での土壌粒子や炭素質粒子の発生強度は極めて低いため、土壌粒子や炭素質粒子の存在は、中緯度域や他大陸から極域へ大気長距離輸送されていることを示唆するだろう。

Hara *et al.* (2005)と同様に、海塩粒子中のMgは海水組成比(Wilson, 1975)と比べて濃縮した状態だった。図8にSEM-EDX分析から得られた海塩粒子の3成分プロットを示す。不均一反応により海塩粒子中のClが揮発する際には、海水組成比(黒星印)から完全にClが揮発した組成比(白星印)まで変化する。化学量論的に反応が進む時には、図中の破線に沿って組成が変化することになる。粗大海塩粒子のほとんどは、化学量論線付近の40% (Cl)あたりに分布しており(図8b, 8d)、若干Mgが濃縮した状態だったが、一部の海塩粒子ではMgが顕著に濃縮し、Mgの割合が50%を超す例もあった(図8d)。粗大海塩粒子と対照的に、微小粒子域ではMgが濃縮した海塩粒子が多数確認された。Hara *et al.* (2005)によれば、海塩粒子中のMgの濃縮は、海氷上での海塩組成分別過程に起因する。Mgが濃縮した海塩粒子の存在は、ヘイズ現象中の海塩粒子が海洋表面(開水域)からだけでなく、海氷上からも放出されていることを示唆する。しかしながら、海洋域や海氷表面からの海塩粒子の放出だけでは、ヘイズ現象時にBCや NO_3^- の濃度も増加することまでは説明できない。Hara *et al.* (2008)が示すように、BC濃度が増加するには低中緯度域から南極(昭和基地)まで輸送されていなければならない。空気塊の輸送経路と履歴について、以下の章で考察する。

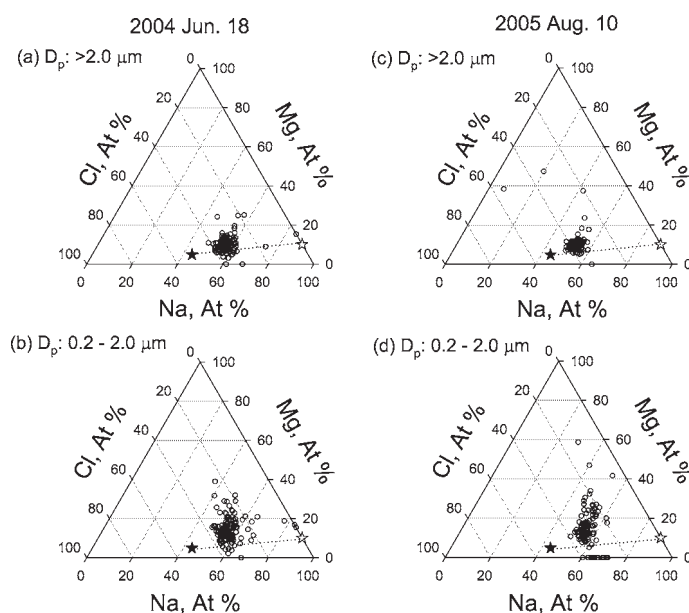


図8 2004年6月18日、2005年8月10日に捕集されたエアロゾル粒子中の3成分(Na, Cl, Mg)の関係。黒星印はバルク海水組成比を示し、白星印は酸性成分との反応で海塩粒子中からClが完全に損失した時の組成比を示す。破線は化学量論的にClロス反応が進行した時の組成変化を示す (Hara *et al.*, JGR, 2010)。

Fig. 8. Ternary plots of atomic number ratio (At-%) of Na, Cl and Mg in individual aerosol particles collected on 18 June 2004 and 10 August 2005. Black stars represent the bulk seawater ratio of aerosol particles. White stars represent the ratio of aerosol particles when Cl is replaced completely by other acidic species such as NO_3^- and SO_4^{2-} from sea salt particles with the same bulk seawater ratio. The dashed line represents stoichiometric features from the sea salt particles with bulk seawater ratio to the Cl-depleted sea salt particles (Hara *et al.*, JGR, 2010).

3.4. ヘイズ現象時の気象状況と空気塊の履歴

3.4.1. 2005年8月のヘイズの例

Hara *et al.* (2008) が示すように、BC 濃度は低気圧の移動に伴う中緯度域から南極沿岸域への輸送によって増加する。8月の事例ではヘイズ現象の直前に荒天状態だったため、低気圧の移動がヘイズ現象と関係していることが期待される。図9に、2005年8月9日~12日のジオポテンシャル高度を示す。8月9日には大きな低気圧が20°E, 65°Sに位置し、昭和基地付近は荒天状態となっていた。8月10日に低気圧は25°E, 67°Sに移動し、昭和基地付近にまだ大きな影響を与えていた。8月11日には低気圧がさらに東進することなく、急に衰退していった。また、8月10日には寒冷前線が昭和基地近くに存在していた。8月10日の地上風速の急激な減少、エアロゾル数濃度の急激な増加は、寒冷前線の通過と低気圧の衰退と対応しているのだろう。

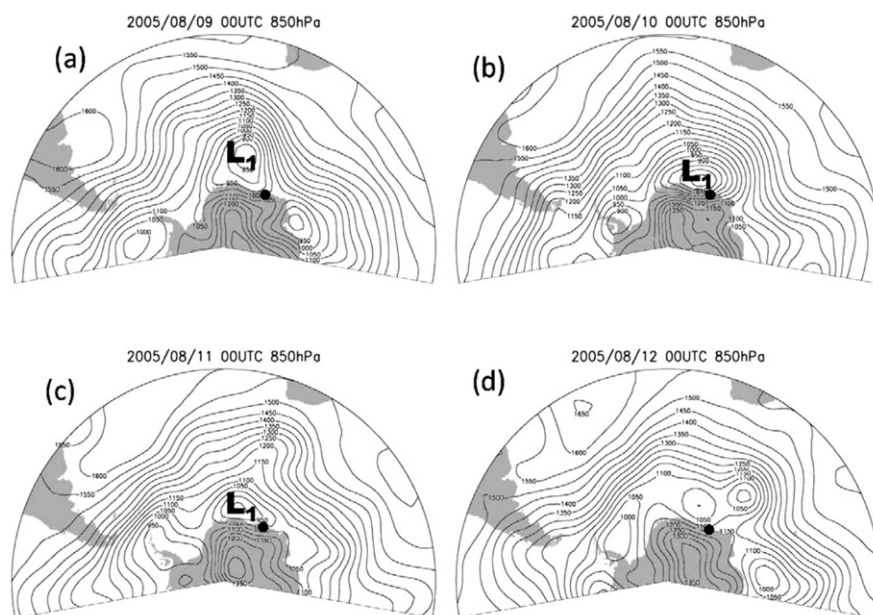


図9 2005年8月9日~12日の850 hPa ジオポテンシャル高度分布

黒丸は昭和基地の位置を示す。ジオポテンシャル高度分布はNCEPのReanalysis-2データを使用して作図した<<http://www.cdc.noaa.gov/>> (Hara *et al.*, JGR, 2010)。

Fig. 9. Distributions of geopotential height on 850 hPa during 9–12 August 2005. Black circles represent the locations of Syowa Station. Geopotential height maps were drawn using NCEP Reanalysis 2 data provided by NOAA/OAR/ESRL PSD, Boulder, Colorado, USA, from their Web site at <http://www.cdc.noaa.gov/> (Hara *et al.*, JGR, 2010).

NAAPS モデル (<http://www.nrlmry.navy.mil/aerosol/>) では、昭和基地でヘイズが確認される数日前の8月6日~7日に、南米やアフリカ南部でのバイオマス燃焼由来の煙が大西洋やインド洋に流出していた(図10)。MODIS(The Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer)により得られた画像でも、南米やアフリカからの煙の流出が明瞭に確認することができる(図10a)。大陸上のバイオマス燃焼からの煙流出とヘイズ現象との関係を考察するために、南米やアフリカからの煙流出海域からの前方トラジェクトリー(160時間)を計算した。

南米では、ブラジルの低中緯度域に多くのバイオマス燃焼(Fire spot)が確認された(図10b, c)。バイオマス燃焼からの煙は、8月1日~2日以降、ブラジル南部~アルゼンチン北部~パタゴニアへと広がり、大西洋に流出していた。南米からの前方トラジェクトリーでは、煙を含む空気塊は対流圏下層を経由して、8月10日0000 UTには、20–40°Eあたりの南極沿岸域に到達していた(図11)。この輸送経路は、南大洋上のストームトラックと重なっており(Hoskins and Hodges, 2005)、冬季の昭和基地への水蒸気輸送経路(Suzuki *et al.*, 2008)ともよく一致していた。アフリカ南部から流出した煙を含む空気塊はインド洋を

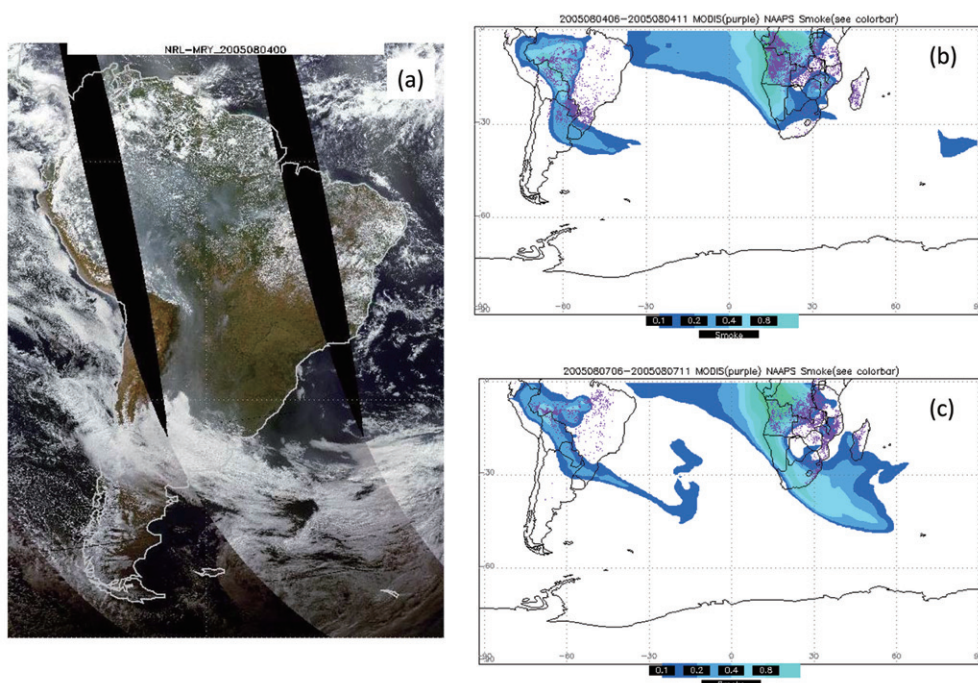


図 10 MODIS 衛星画像 (a: 2005 年 8 月 4 日) と南米およびアフリカ南部からのバイオマス燃焼の煙の流出 (エアロゾル光学的厚さの分布) (b: 2005 年 8 月 4 日, c: 2005 年 8 月 7 日) 図中紫色の点は、バイオマス燃焼が起きている地点を示す。MODIS 画像と NAAPS モデル結果は、Naval Research Laboratory<<http://www.nrlmry.navy.mil/aerosol/>>より提供されたデータを使用した (Hara *et al.*, JGR, 2010)。

Fig. 10. MODIS satellite image (a) on 4 August 2005, and plume distributions from South America and southern Africa on (b) 4 August 2005 and (c) 7 August 2005 drawn by NAAPS model. Purple dots represent fire spots. A MODIS image and NAAPS model were provided by the Naval Research Laboratory from the Web site at <http://www.nrlmry.navy.mil/aerosol/> (Hara *et al.*, JGR, 2010).

東進して太平洋まで輸送されており、8 月 10 日 0000 UT の空気塊の位置は、昭和基地から大きく離れていた。以上から、2005 年 8 月のヘイズ現象の事例では、南米でのバイオマス燃焼の影響を受けていると考えられる。NAAPS モデルとトラジェクトリー解析から、南米低緯度域のバイオマス燃焼から昭和基地へ輸送されるまでに約 1 週間かかっていることがわかる。BC や NO_3^- はバイオマス燃焼から放出されるため (e.g., Maenhaut *et al.*, 1996; Andreae and Merlet, 2001), ヘイズ期間中の BC や NO_3^- などの濃度増加とこの結果は良く対応するだろう。バイオマス燃焼由来の成分を含む空気塊が、ストームトラックや海氷域を経由して昭和基地まで長距離輸送される間に海塩粒子が混合していると考えられる。

3.4.2. 2004 年 6 月のヘイズの例

図 12 に、2004 年 6 月 16 日～19 日のジオポテンシャル高度の分布を示す。6 月 16 日には

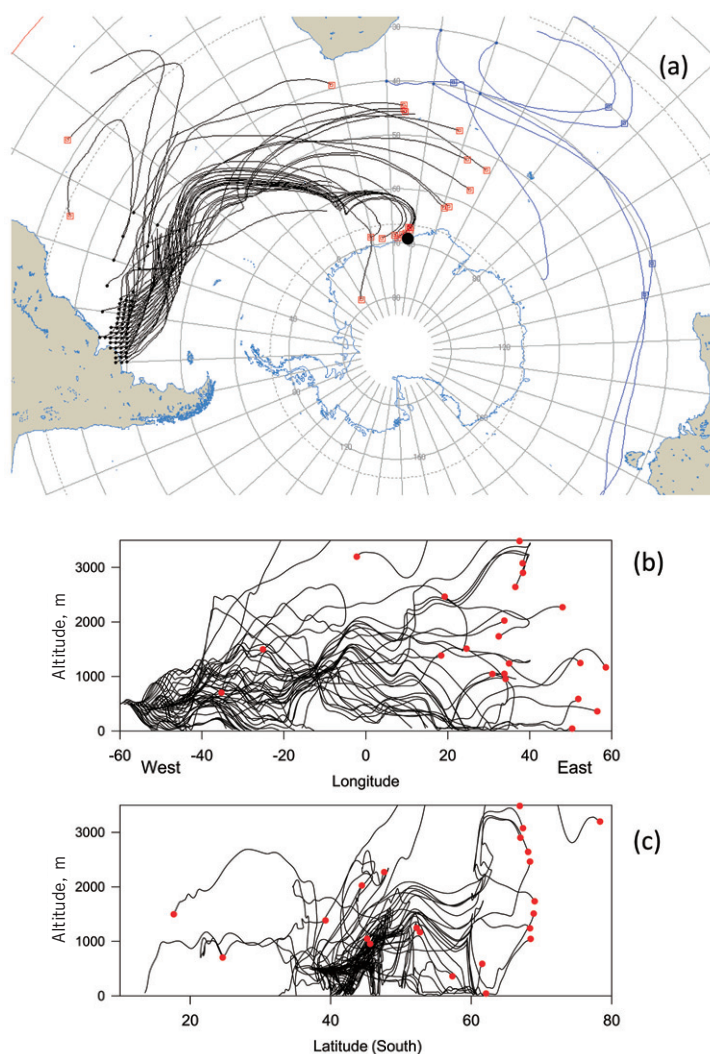


図 11 バイオマス燃焼の影響を受けた空気塊の流出域からの前方流跡線: (a) 流跡線の分布, (b) 流跡線の経度分布, (c) 流跡線の緯度分布。
赤四角, 青四角は 2005 年 8 月 10 日 0000 UT の空気塊の位置を示す。黒丸は昭和基地の位置を示す。赤丸は 2005 年 8 月 10 日 0000 UT の空気塊の高度を示す (Hara *et al.*, JGR, 2010)。

Fig. 11. Forward trajectories from the location of the plume outflow: (a) distribution of trajectories, (b) longitudinal and (c) latitudinal features of trajectories. Red and blue squares in (a) portrays locations at 0000 UT, 10 August 2005. The black circle in (a) portrays the location of Syowa Station. Red circles in (b) and (c) portray heights at 0000 UT, 10 August 2005 (Hara *et al.*, JGR, 2010).

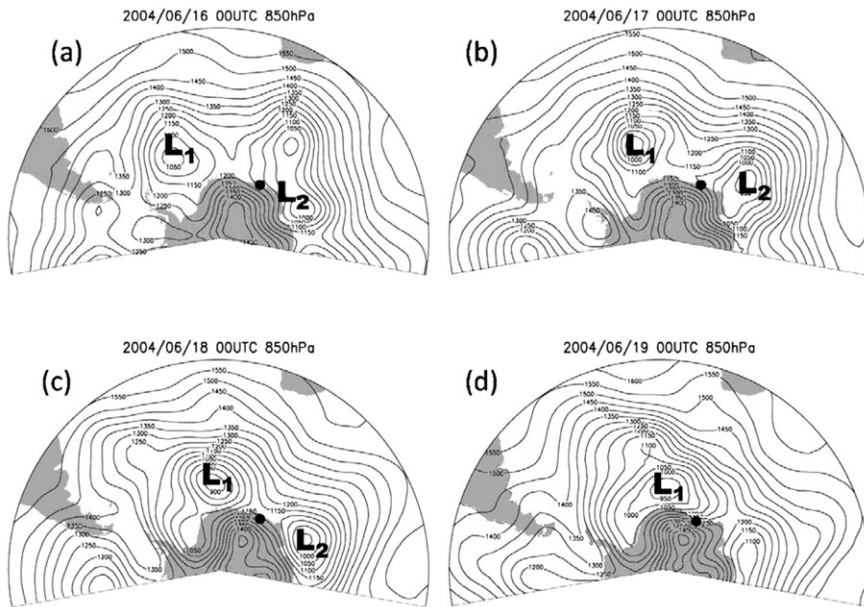


図 12 2005 年 6 月 16-19 日の 850 hPa ジオポテンシャル高度分布
黒丸は昭和基地の位置を示す。ジオポテンシャル高度分布の作図は図 9 と同様である。
(Hara *et al.*, JGR, 2010)

Fig. 12. Distributions of (a-d) geopotential height on 850 hPa during 16-19 June 2004. Black circles in (a-d) portray the location of Syowa Station. Data sources are identical to those for Fig. 9 (Hara *et al.*, JGR, 2010).

比較的大きな低気圧が昭和基地の西側 (70°E , 65°S) に位置していたにもかかわらず、昭和基地の地上風速はほとんど影響を受けていなかった。6 月 18 日の昭和基地は徐々に高気圧場となっていた。2005 年 8 月の事例と同様に、ヘイズ現象直前に低気圧の勢力が急激に衰えていた。

図 13 に示すように、バイオマス燃焼からの煙は 6 月 13 日にはアフリカ南部(アンゴラ、ザンビア、ザイル) からインド洋へ流出していた。図示はしていないが、アフリカ南部からの流出は衛星画像でも明瞭に確認できた。2005 年 8 月の事例と同様に、煙流出海域から前方トラジェクトリーを計算した(図 14)。アフリカ南部より流出した空気塊は、南東方向へ 80°E あたりまで輸送された後に西向きに南極沿岸～内陸部へ輸送されていた。トラジェクトリーのほとんどはドームふじ基地に近い内陸部へ侵入していたが、一部はヘイズの確認された 6 月 18 日～19 日に昭和基地近傍まで輸送されていた(図 14)。6 月 18, 19 日の 0000 UT の空気塊の高度も、気球搭載型 OPC で計測されたエアロゾル層とよく対応していた。以上から、2004 年 6 月のヘイズ現象には、アフリカ南部のバイオマス燃焼由来の大気成分が混合していることが示唆される。アフリカから流出した空気塊は南大洋上の強風域を通過しているため(図 12)、海塩粒子は輸送中に海洋域や南極大陸沿岸域で混合して

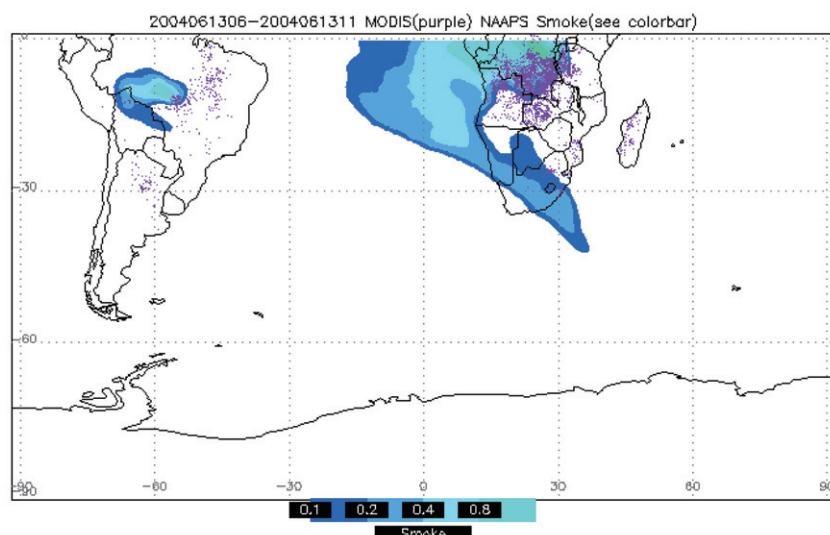


図 13 2004 年 6 月 13 日のエアロゾル光学的厚さの分布

図中紫色の点は、バイオマス燃焼が起きている地点を示す。(Hara *et al.*, JGR, 2010)

Fig. 13. Distribution of air mass with high aerosol optical depth on 13 June 2004. This map was drawn using the NAAPS model. Purple dots represent fire spots (Hara *et al.*, JGR, 2010).

いるのだろう。2004 年 6 月の事例では、アフリカから昭和基地までの輸送時間はおおよそ 5 日間と推定される。

4.4. 他の南極ヘイズ現象の特徴

前述のように、2004 年 6 月、2005 年 8 月のヘイズ現象の事例では、空気塊は海塩粒子の混合とアフリカや南米でのバイオマス燃焼からの長距離輸送の影響を受けていた。ヘイズ現象をより理解するために、他のヘイズ現象でのエアロゾル特性、空気塊の履歴を同様の手順で解析した(表 4)。エアロゾル数濃度、BC 濃度の急激な増加現象は、他のヘイズ現象でも明瞭に確認された。CN 濃度や BC 濃度の濃度変化に基づいて推定したヘイズ現象の継続時間は、19-73 時間(平均 35 時間)だった。今回の観測期間中には 74 時間以上のヘイズ現象は確認されなかった。これは、冬季~春季には頻繁に低気圧が接近・通過している事から、長時間ヘイズ現象として昭和基地周辺(南極沿岸部)に滞留できないためであろう。地上風速からヘイズ現象の水平方向のスケールを推定した(表 4)。水平スケールは、ヘイズ現象(平均風速 $\leq 5 \text{ m sec}^{-1}$)で 159-659 km、ヘイズ様現象(平均風速 $5-15 \text{ m sec}^{-1}$)で 1328-1770 km だった。BC 濃度は、 $7-61 \text{ ng m}^{-3}$ (平均: 41.9 ng m^{-3})まで増加していた。BC 濃度は低気圧活動やブロッキング現象による中緯度域から極域への大気輸送が起こる時に増加する(Hara *et al.*, 2008)。荒天時には BC の極域方向への輸送だけでなく、海洋や海水

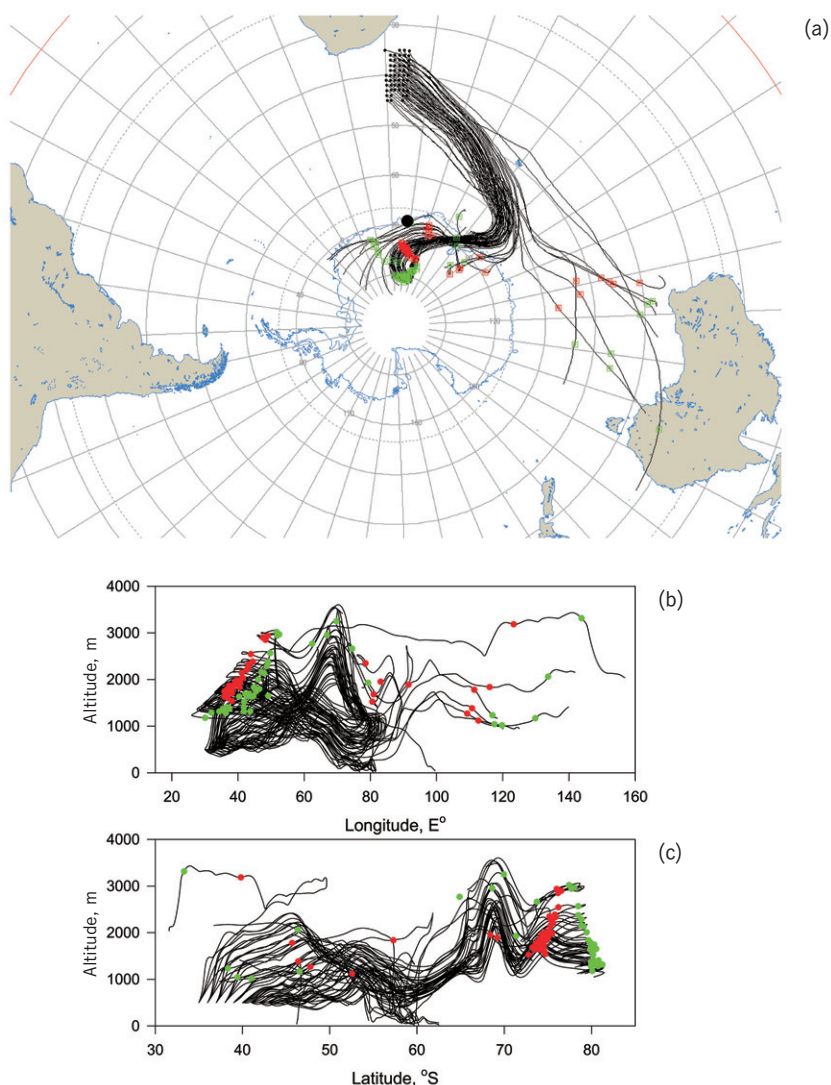


図 14 アフリカ上空のバイオマス燃焼の影響を受けた空気塊の流出域からの前方流跡線: (a) 流跡線の分布, (b) 流跡線の経度分布, (c) 流跡線の緯度分布.
 (a) の赤四角, 緑四角は 2004 年 6 月 18 日 0000 UT, 6 月 19 日 0000 UT の空気塊の位置を示す. 黒丸は昭和基地の位置を示す. (b), (c) の赤丸, 緑丸は, 2004 年 6 月 10 日 0000 UT, 6 月 19 日 0000 UT の空気塊の高度を示す. (Hara *et al.*, JGR, 2010)

Fig. 14. Forward trajectories from the location of the plume outflow from southern Africa: (a) distribution of trajectories, longitudinal (b) and latitudinal features of trajectories. Red and green squares in (a) respectively represent locations at 0000 UT, 18 and 19 June 2004. The black circle in (a) portrays the Syowa Station location. Red and green circles in (b) and (c) respectively represent heights at 0000 UT on 18 and 19 June 2004 (Hara *et al.*, JGR, 2010).

表 4 昭和基地で観測されたヘイズ現象時のエアロゾル物理特性

Table 4. Summary of aerosol properties during haze and haze-like events at Syowa Station.

Year/Date	Duration, hr		Maximum CN concentration, cm ⁻³	Maximum concentration of $D_p > 0.3 \mu\text{m}$, cm ⁻³	Maximum BC concentration, ng m ⁻³	Air mass origin	Traveling time to Syowa, days	ΔO_3 , ppb	Horizontal scale, km
2004									
Jun. 16–	18**	33	836	91	120	southern Africa	4–5	0.9	659
Jul. 11–	12**	28	293	17	34	southern Africa	4–5	1.3	212
Jul. 27–	28**	39	498	31	35	South America	3–4	2.4	191
Aug. 7–	8*	24	638	52	61	South America	5–6	28.0	482
2005									
May. 26–	28*	73	257	29	7	southern Africa	4–5	<1	1770
Jul. 20–	21*	34	197	11	22	South America	6–7	15.1	1328
Aug. 10–	12**	32	717	65	57	South America	6–7	7.0	243
Sep. 28–Oct. 1*		42	665	64	38	southern Africa	5–6	17.2	1495
2006									
Aug. 9–	10*	19	450	35	12	southern Africa	5–6	12.5	558
Sep. 4–	5*	23	298	26	33	South America	7–8	4.1	599

*: haze-like events

**: haze events

表面から海塩粒子が放出され、徐々に混合していくのだろう。荒天時には、ヘイズの判定ができないだけでなく、強風により直ちに昭和基地から流出していってしまう。低気圧の急な衰退により、海塩粒子や BC の濃度の高い状況が南極沿岸域で維持されていると考えられる。低気圧の接近と急激な低気圧の衰退が、昭和基地で観測されたヘイズ現象をもたらすための重要な過程である。

SMPS, TSMPS による観測でも、2005 年 8 月の事例同様に、2005–2006 年のヘイズ現象では非揮発性粒子が卓越していた。また、エアロゾル組成分析でも前述のように、ヘイズ現象時には海塩成分 (Na^+ , Cl^-) が主成分だった。NO₃⁻, CH₃COO⁻, HCOO⁻ もヘイズ時に濃度が増加することが多かった。

3 年間のエアロゾル重点観測期間中、ヘイズまたはヘイズ様現象は 5 月～9 月下旬に観測されていた。前述のように、ヘイズ現象は南米やアフリカ南部のバイオマス燃焼からの流出や、急激な低気圧の衰退と関連している。NAAPS モデル (図 10, 13) では、昭和基地まで到達し得る流出は、アフリカ南部や南米で起きていた。バイオマス燃焼の影響を受けた空気塊の流出とヘイズ現象の関係を理解するために、ここではアフリカ南部および南米からの流出頻度の季節変化を比較する。本研究では図 10, 図 13 に示したように、NAAPS モデルでエアロゾル光学的厚さが 0.1 より大きくなる空気塊が大陸部から海洋上へ拡散していた時に、「流出」が起きていると判定した。図 15 に示したように、アフリカ南部からの流出は、6–10 月に高頻度で確認され、南米からの流出は 7–10 月に高頻度で確認された。この流出頻度の季節変化は、バイオマス燃焼 (Fire spot) 数の季節変化とよく一致していた (Edwards *et al.*, 2006)。また、7–8 月には非常に高い頻度で流出が起きていた。6–10 月

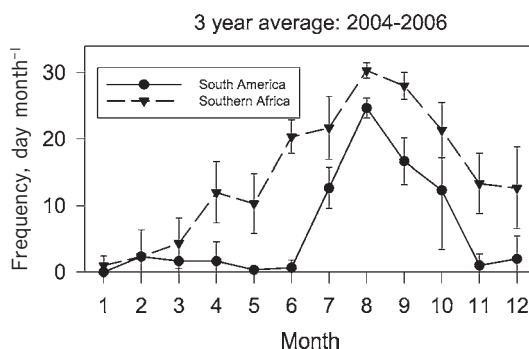


図 15 南米およびアフリカからのバイオマス燃焼起源の空気塊の流出頻度季節変化 (Hara *et al.*, JGR, 2010)

Fig. 15. Seasonal variations of the number of days with plume outflow from South America and southern Africa during our measurements in 2004–2006 (Hara *et al.*, JGR, 2010).

にはバイオマス燃焼からの空気塊が絶え間なく南米から大西洋へ、アフリカ南部からインド洋へ流出していた。この結果は、低気圧接近による昭和基地での BC 濃度の増加が冬～春に観測されたことに対応しているのだろう (Hara *et al.*, 2008)。しかしながら、ヘイズやヘイズ様現象は、2004–2006 年の間は年に 2–4 回の頻度でしか確認されていなかった。ヘイズ現象の前には低気圧の衰退が確認されているため、南米およびアフリカからの流出に加えて、低気圧の衰退が「南極ヘイズ」出現には重要な要素になっている。昭和基地の夏季には、ヘイズやヘイズ様現象は得られていなかった。夏季にはブリザード（荒天）の頻度が下がること (Sato and Hirasawa, 2007) と、南米およびアフリカからの流出頻度が下がることと関連していると考えられる。

南米およびアフリカからの流出から昭和基地まで輸送されるまでの所要時間を、トラジェクトリーデータから推定した。南米からの流出では、最速の例では 3–4 日だったが、ほとんどの場合は 6–7 日かかっていた。一方、アフリカからの流出では、ほとんどの場合 4–5 日だった。他大陸から南極沿岸域への輸送時間は、モデルにより見積もられた日数 (Krinner and Genthon, 2003) やトラジェクトリー解析 (Suzuki *et al.*, 2008) とよく一致していた。平均的にはアフリカ南部からの輸送の方が、南米からの輸送よりも所用時間は短かった。輸送時間の違いは、2004 年 6 月と 2005 年 8 月の事例での、土壌粒子の存在する割合の違いと対応しているのだろう (表 3)。

4.5. 南極ヘイズの大気化学や気候への影響

4.5.1. ヘイズ現象と O₃ 消失の関係

図 2 に示したように、2005 年 8 月のヘイズ現象時には、エアロゾル数濃度増加に合わせて O₃ 濃度が減少していた。ヘイズ現象時には、O₃ 濃度はバックグラウンド値 (35.0 ppb)

から 28.0 ppb まで減少していた。バックグラウンド値と消失時の O_3 濃度の差 (ΔO_3) は、7.0 ppb だった。2004 年 6 月のヘイズ現象時 (図 4) にもエアロゾル数濃度増加は確認されたものの、 ΔO_3 はわずか 0.9 ppb だった。この ΔO_3 の違いは、ヘイズ現象とオゾン消失(あるいは低 O_3 濃度)との関係を理解する上で非常に興味深い違いである。表 4 に、観測期間中のヘイズ現象時の ΔO_3 を示す。 O_3 濃度は 2005 年 5 月の事例を除き、ほとんどのヘイズ現象時に減少していた。さらに、8-9 月に ΔO_3 が大きくなる傾向もあった。1997 年 8 月 28-29 日の地上 O_3 消失現象時には、「ヘイズ現象」と分類できるほどエアロゾル数濃度が増加しており、 ΔO_3 は 32 ppb となっていた(江崎ほか, 1998)。対照的に 5-7 月の ΔO_3 は 2.4 ppb 以下だった。昭和基地では 6 月~7 月中旬頃までは極夜期間であるため、 ΔO_3 の変化は光化学過程と関連しているのだろう。ヘイズ現象時に O_3 濃度が減少する要因として、(1) 低 O_3 濃度の空気塊が中緯度域から輸送されていること、(2) ハロゲンサイクルによる O_3 消失が考えられる。

荒天時には、対流圏下層経由で中緯度大気が昭和基地へ輸送されてくる (Hara *et al.*, 2004, 2008)。2005 年 8 月の事例では、ヘイズ直前の荒天時の O_3 濃度は 35.0 ppb だった。ヘイズ前の O_3 濃度は、 O_3 消失のない 8 月のバックグラウンド O_3 濃度に相当していた (Murayama *et al.*, 1992; 青木, 1997)。他のヘイズ現象では、荒天前後の ΔO_3 は 0-5.4 ppb だった。例えば、2005 年 9 月下旬の事例では、ヘイズ現象時の ΔO_3 は 17.2 ppb だったが、荒天時にはわずか 5.4 ppb だった。既に述べたように、ヘイズ現象時にはバイオマス燃焼の影響を受けた空気塊が昭和基地まで到達している。しかし、バイオマス燃焼由来の大気成分は、光化学過程により O_3 生成を引き起こし得る (Kondo *et al.*, 2004; Boian and Kirchhoff, 2005)。以上から、ヘイズ現象時の O_3 濃度減少は、中緯度域からの輸送よりも O_3 消失によると考えられる。

5-7 月のヘイズ時の ΔO_3 と比較すると、8-9 月のヘイズ時の ΔO_3 は 7-28.0 ppb と高めになる傾向があった。昭和基地の 8-9 月頃は、極夜明け (Polar sunrise) の時期にあたる。そのため、 O_3 濃度の減少はハロゲンサイクルと関連した O_3 消失により起きていることが期待される (青木, 1997; Wessell *et al.*, 1998; 江崎ほか, 1998; Ebinghaus *et al.*, 2002; Hara *et al.*, 2004; Frieß *et al.*, 2004; Steffen *et al.*, 2008; Simpson *et al.*, 2007; Helmig *et al.*, 2007)。南極域での地上 O_3 消失に関する研究は、BrO などのハロゲン種の化学過程に注目しているが (Frieß *et al.*, 2004; Simpson *et al.*, 2007)、 O_3 消失現象とエアロゾル数濃度増加の関係については、ほとんど報告されていない。

前述したようにヘイズ現象時には海塩粒子が主成分であり、海氷起源の組成分別をした海塩粒子も多く混合していた (図 8)。海氷表面での組成分別は、海水起源の Br が濃縮することもある (Piot and von Glasow, 2008, and references therein)。強風により、海氷から Br が濃縮した海塩粒子が、また海洋域から新鮮な海塩粒子が大気中へ放出された時には、

不均一反応により海塩粒子から高反応性ハロゲン化合物が放出され、日射を受けて O_3 消失を起こす可能性がある。

極域での地上 O_3 消失とハロゲンサイクルの関連は、海氷上のフロストフラワーや炭酸塩析出と合わせて議論されることがあるが (e.g., Sander *et al.*, 2006; Piot and von Glasow, 2008, and references therein), O_3 消失時の海塩粒子の際立った高濃度は、これまで全く検討されたことがなかった。ハロゲンサイクルと海塩粒子の関連した大気化学過程と南極ヘイズ現象との関係をより理解するためには、今後の観測および解析やモデルによる計算が必要となる。

4.5.2. 南極ヘイズの気候への影響

エアロゾル濃度が非常に高い時には、エアロゾルは放射収支を介して気候変動に影響を及ぼす (IPCC, 2007)。北極ヘイズでのエアロゾル観測から、エアロゾルによる直接効果があることが確認されている (Valero *et al.*, 1989, Treffeisen *et al.*, 2005)。北極圏内を広範囲かつ長時間にわたって広がる北極ヘイズとは異なり、南極ヘイズの継続時間は 19–73 時間であり、水平スケールは 191–1770 km 程度である。南極ヘイズ現象は、南米およびアフリカでのバイオマス燃焼からの大気流出後、数日~1 週間かけて長距離輸送され、海洋・海水表面から海塩粒子が発生して輸送中に混合された時にのみ確認されるため、北極ヘイズと比べると規模は小さく、一時的な現象であると考えられる。南極ヘイズ中に、BC 濃度は 120 ng m^{-3} まで増加し、 $D_p > 0.3 \mu\text{m}$ の粒子数濃度は $9.1 \times 10^4 \text{ L}^{-1}$ にまで増加していた。南極ヘイズ時のエアロゾル数濃度は、北極ヘイズ時の濃度レベル (10^4 L^{-1} 台) と同等だった (Dreiling, and Freiderich, 1997, Yamanouchi *et al.*, 2005)。一方、北極ヘイズでの BC 濃度は 1000 ng m^{-3} を超えることもあり (Sharma *et al.*, 2006; Quinn *et al.*, 2007)、南極ヘイズ時の BC 濃度より 1–2 桁濃度が高かった。北極ヘイズでは BC のような吸収性粒子の数濃度が極めて高いため、昇温効果 ($0.1\text{--}0.2 \text{ K day}^{-1}$) をもたらしめているが (Valero *et al.*, 1989; Pueschel and Kinne, 1995; Treffisen *et al.*, 2005)、南極ヘイズでは BC 濃度が低いため昇温効果をもたらすことはないだろう。実際、南極ヘイズ中の単一散乱アルベド (Single scattering albedo; 以下, SSA) は >0.98 であり (Yabuki *et al.*, private communication)、北極ヘイズで観測された SSA は 0.77–0.93 (平均 0.88; Clarke *et al.*, 1984), 0.75–0.95 だった (Yamanouchi *et al.*, 2005)。北極ヘイズでは硫酸塩、BC などの人為起源物質が主成分だった (Heintzenberg and Leck, 1994; Hara *et al.*, 2003; Quinn *et al.*, 2007) 点と異なり、南極ヘイズでの主成分は海塩粒子だった。南極ヘイズでの SSA は >0.98 だったことを考慮すると (Yabuki *et al.*, private communication)、南極ヘイズでは温暖化効果よりも冷却効果をわずかにもたらしめている可能性もある。表 4 に示したように、ヘイズ現象の継続時間は短く、水平スケールは小さいため、南極ヘイズによる直接的な気候影響は現時点では大きくないだろう。

最近の研究では、積雪表面に沈着した BC が表面アルベドを下げ、放射収支に影響を及ぼすことが指摘されている (Aoki *et al.*, 1998; Hansen and Nazarenko, 2004; IPCC, 2007)。南極域での大気中の BC 濃度は低い (Bodohaine, 1995; Wolff and Cachier, 1998; Pereira *et al.*, 2006; Hara *et al.*, 2008)、BC の沈着によるアルベドの変化は、現時点ではまだ無視できる程度だろう。しかし、南半球でのバイオマス燃焼や人間活動から放出される BC 量が今後増加していくことがあれば、南極域でも BC の影響が重要となっていくかもしれない。今後は、大気中や積雪中の BC 濃度の観測を継続することが必要となる。

バイオマス燃焼の影響を受けた空気塊が、南極大陸内陸部まで侵入することがある (図 14)。南極ヘイズ現象と、バイオマス燃焼由来の大気成分が南極内陸部まで長距離輸送した結果は、大陸積雪および氷床内に記録されていることが期待される。アイスコア中のバイオマス燃焼起源物質 (例えば BC) を分析することにより、他大陸からの長距離輸送、南米およびアフリカ上空のバイオマス燃焼由来のエアロゾルがもたらす気候影響の理解を深化させることができるだろう。

5. ま と め

昭和基地で行った 2004 年 2 月～2007 年 1 月までのエアロゾル重点観測中に、降雪・霧・地吹雪のない状況下で視程が下がる現象が確認された。視程低下現象は、5 月下旬～9 月下旬に観測されていた。ヘイズ現象時には、視程が ≤ 5 km まで下がるがあった。ヘイズ現象の継続時間は、19-73 時間であり、水平スケールは 191-1770 km だった。ヘイズ現象は低気圧の移動と低気圧の急激な衰退によって引き起こされていた。

ヘイズおよびヘイズ様現象時には、エアロゾル数濃度や BC 濃度はバックグラウンドレベルから 1-2 桁程度増加していた。また、極夜明け時期のヘイズ現象では、 O_3 濃度が減少していた。エアロゾル成分の分析、TSMPS 観測から、超微小粒子～粗大粒子は主に海塩粒子で構成されていた。SEM-EDX による個別粒子分析では、Mg が濃縮した海塩粒子が確認された (図 8)。海塩組成分別は海水凍結時や海氷上で進行するため (Hara *et al.*, 2004)、海洋表面からだけでなく、海氷表面も起源となっていることが期待される。

ヘイズ期間中には地上 O_3 濃度が減少していた。バックグラウンド時とヘイズ時のオゾン濃度の差 (ΔO_3) は、極夜明けとなる 8-9 月に高くなる傾向が得られ、極夜～日射量が低い時期 (5-7 月) の ΔO_3 は < 2.4 ppb だった。 ΔO_3 の変化は極夜後のハロゲンサイクルの光化学過程が関連しているのだろう。ヘイズ期間中には海塩粒子がエアロゾルの主成分であり、不均一反応によりほとんどの Br^- は海塩粒子から揮発していた。極夜明けの南極沿岸域では、ヘイズ現象下で不均一反応により海塩粒子からの反応性臭素化合物の放出が起き、地上 O_3 消失を引き起こしていると考えられる。

MODIS の衛星画像や NAAPS モデルでは、昭和基地でのヘイズ現象前に、南米やアフリ

カ南部のバイオマス燃焼からの煙が大西洋やインド洋に流出していることを明瞭に示していた。前方トラジェクトリー解析から、南米およびアフリカからの流出した空気塊は、昭和基地近傍まで輸送されていることがわかった。この輸送経路は、南極周辺海域の低気圧活動と密接に関連していた。以上から、BCなどの燃焼起源由来のエアロゾル成分は、南米およびアフリカでのバイオマス燃焼を起源とし、輸送中に海洋・海氷表面から放出された海塩粒子が混合していると考えられる。昭和基地までの輸送所用時間は、南米からは約6-7日、アフリカからは約4-5日だった。図14に示したように、南米およびアフリカ起源の大気成分を含んだ空気塊は、南極大陸内陸部まで侵入していた。エアロゾル粒子は輸送中徐々に積雪表面に沈着していくため、南極ヘイズあるいはバイオマス燃焼起源物質のシグナルが、積雪やアイスコア内に記録されているかもしれない。

謝 辞

昭和基地でのエアロゾル観測に協力していただいた、第45-47次隊の皆様に感謝いたします。本研究で使用した気象データ(1分値)は、気象庁の定常気象観測データを提供していただいた。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. 16253001, 山内代表; No. 15310012 長田代表)の支援を受けた。トラジェクトリー計算には、NOAAのHYSPLITモデル(<http://www.arl.noaa.gov/ready.html>)を使用した。本論文は、American Geophysical Unionの学術論文誌に掲載された“Hara, K., Osada, K., Yabuki, M., Hashida, G., Yamanouchi, T., Hayashi, M., Shiobara, M., Nishita, C. and Wada, M. (2009): Haze episodes at Syowa Station, coastal Antarctica: Where did they come from? *J. Geophys. Res.*, doi:10.1029/2009JD012582”を翻訳し、一部加筆したものである。

文 献

- Andreae, M.O. and Merlet, P. (2001): Emission of trace gases and aerosols from biomass burning. *Global Biogeochem. Cy.*, **15**, 955-966.
- 青木周司 (1997): 昭和基地および「しらせ」船上における地上オゾン濃度の連続観測。南極資料, **41**, 231-247.
- 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.
- Bodhaine, B.A. (1995): Aerosol absorption measurements at Barrow, Mauna Loa and the south pole. *J. Geophys. Res.*, **100** (D5), 8967-8975.
- Boian, C. and Kirchhoff, V.W.J.H. (2005): Surface ozone enhancements in the south of Brazil owing to large-scale air mass transport. *Atmos. Environ.*, **39**, 6140-6146.
- Clarke, A.D., Charlson, R.J. and Radke, L.F. (1984): Airborne observations of arctic aerosol, IV: optical properties of Arctic haze. *Geophys. Res. Lett.*, **11**, 405-408.
- Clarke A.D., Owens, S.R. and Zhou, J. (2006): An ultrafine sea-salt flux from breaking waves: implications for cloud condensation nuclei in the remote marine atmosphere. *J. Geophys. Res.*,

- 111**, D06202, doi:10.1029/2005JD006565.
- Delmonte B., Andersson, P.S., Hansson, M., Schöberg, H., Petit, J.R., Basile-Doelsch, I. and Maggi, V. (2008): Aeolian dust in East Antarctica (EPICA-Dome C and Vostok): provenance during glacial ages over the last 800 kyr. *Geophys. Res. Lett.*, **35**, L07703, doi:10.1029/2008GL033382.
- 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.
- Dreiling, V. and Freiderich, B. (1997): Spatial distribution of the Arctic haze aerosol size distribution in western and eastern Arctic. *Atmos. Res.*, **44**, 133–152.
- Ebinghaus, R., Kock, H.H., Temme, C., Einax, J.W., Löwe, A.G., Richter, A., Burrows, J.P. and Schroeder, W.H. (2002): Antarctic springtime depletion of atmospheric mercury. *Environ. Sci. Technol.*, **36**, 1238–1244.
- 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. (2006): Satellite-observed pollution from Southern Hemisphere biomass burning. *J. Geophys. Res.*, **111**, D14312, doi:10.1029/2005JD006655.
- 江崎雄治・林 政彦・山内 恭 (1998): 昭和基地における地上オゾン急減現象 (SOD) とそのバックトラジェクトリー解析—1977 年 8 月 28 日~29 日の SOD の事例解析—. 第 21 回極域気水圏シンポジウム プログラム・講演要旨. 東京, 1998–11, 国立極地研究所, 129–130.
- 江崎雄治・栗田邦明・松島 功・木津暢彦・中嶋哲二・金戸 進 (2000): 第 38 次南極地域観測隊 気象部門報告 1997. 南極資料, **44**, 125–204.
- Frieß, U., Hollwedel, J., König-Langlo, G., Wagner, T. and Platt, U. (2004): Dynamics and chemistry of tropospheric bromine explosion events in the Antarctic coastal region. *J. Geophys. Res.*, **109**, D06305, doi:10.1029/2003JD004133.
- Gaiero D.M. (2007): Dust provenance in Antarctic ice during glacial periods: from where in southern South America? *Geophys. Res. Lett.*, **34**, L17707, doi:10.1029/2007GL030520.
- 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, J. and Nazarenko, L. (2004): Soot climate forcing via snow and ice albedos. *Proc. Natl Acad. Sci.*, **101**, 423–428.
- 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 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., Osada, K., Yabuki, M., Hayashi, M., Yamanouchi, T., Shiobara, M. and Wada, M. (2008): Measurement of black carbon at Syowa station, Antarctica: seasonal variation, transport processes and pathways. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, **8**, 9883–9929.
- 原圭一郎・長田和雄・西田千春・矢吹正教・林 政彦・山内 恭・和田 誠・塩原匡貴 (2010a): 南極対流圏中の超微小粒子の揮発特性とその季節変化. 南極資料, **54**, 541–553.
- 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 (2010b): 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.
- Heintzenberg, J. and Leck, C. (1994): Seasonal variation of the atmospheric aerosol near the top of the marine boundary layer over Spitsbergen related to the Arctic sulphur cycle. *Tellus*, **46B**, 52–67.
- Helmig, D., Oltmans, S.J., Carlson, D., Lamarque, J.-F., Jones, A., Labuschagne, C., Anlauf, K. and

- Hayden, K. (2007): A review of surface ozone in the polar regions. *Atmos. Environ.*, **41**, 5138–5161.
- Hoskins, B.J. and Hodges, K.I. (2005): A new perspective on Southern Hemisphere storm tracks. *J. Climate.*, **18**, 4108–4129.
- Hyslop, N.P. (2009): Impaired visibility: the air pollution people see. *Atmos. Environ.*, **43**, 182–195.
- 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.
- 気象庁 (2006): 南極気象資料 2004 年—第 45 次日本南極地域観測隊 昭和基地及びドームふじ基地—. 東京 (CD-ROM).
- 気象庁 (2007): 南極気象資料 2005 年—第 46 次日本南極地域観測隊 昭和基地及びドームふじ基地—. 東京 (CD-ROM).
- Kondo, Y., Morino, Y., Takegawa, N., Koike, M., Kita, K., Miyazaki, Y., Sachse, G.W., Vay, S. A., Avery, M.A., Flocke, F., Weinheimer, A.J., Eisele, F.L., Zondlo, M.A., Weber, R.J., Singh, H.B., Chen, G., Crawford, J., Blake, D.R., Fuelberg, H.E., Clarke, A.D., Talbot, R.W., Sandholm, S.T., Browell, E.V., Streets, D.G. and Liley, B. (2004): Impacts of biomass burning in Southeast Asia on ozone and reactive nitrogen over the western Pacific in spring. *J. Geophys. Res.*, **109**, D15S12, doi:10.1029/2003JD004203.
- Krinner, G. and Genthon, C. (2003): Tropospheric transport of continental tracers towards Antarctica under varying climatic conditions. *Tellus*, **55B**, 54–70.
- Law, K.S. and Stohl, A. (2007): Arctic air pollution: origins and impacts. *Science*, **315**, 1537–1540.
- Legrand, M. and Mayewski, P. (1997): Glaciochemistry of polar ice cores: a review. *Rev. Geophys.*, **35**, 219–243.
- Maenhaut, W., Koppen, G. and Artaxo, P. (1996): 61. Long-term atmospheric aerosol study in Cuiabá, Brazil: multielemental composition, sources, and impact of biomass burning. Biomass burning in South America, Southeast Asia, and temperate and boreal ecosystems, and the oil fires of Kuwait, ed. by J.S. Levine, Cambridge, Mass., MIT press, 637–652 (Biomass burning and global change ; **2**).
- Mårtensson, E.M., Nilsson, E.D., de Leeuw, G., Cohen, L.H. and Hansson, H.-C. (2003): Laboratory simulations and parameterization of the primary marine aerosol production. *J. Geophys. Res.*, **108** (D9), 4297, doi:10.1029/2002JD002263.
- Massel, S.R. (2007): 8. Fundamentals of marine aerosols. Ocean waves breaking and marine aerosol fluxes, [edited by] L.A. Mysak *et al.*, [New York], Springer, 207–228 (Atmospheric and oceanographic sciences library ; **38**).
- Murayama, S., Nakazawa, T., Tanaka, M., Aoki, S. and Kawaguchi, S. (1992): Variations of tropospheric ozone concentration over Syowa Station, Antarctica. *Tellus*, **44B**, 262–272.
- 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.
- 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.
- Piot, M. and von Glasow, R. (2008): The potential importance of frost flowers, recycling on snow, and open leads for ozone depletion events. *Atmos. Chem. Phys.*, **8**, 2437–2467.
- Pueschel R.F. and Kinne, S.A. (1995): Physical and radiative properties of Arctic atmospheric aerosols. *Sci. Total Environ.*, **160/161**, 811–824.
- Quinn, P.K., Shaw, G., Andrews, E., Dutton, E.G., Ruoho-Airola, T. and Gong, S.L. (2007): Arctic haze: current trends and knowledge gaps. *Tellus*, **59B**, 99–114.
- 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.
- Sander, R., Burrows, J. and Kaleschke, L. (2006): Carbonate precipitation in brine: a potential trigger for tropospheric ozone depletion events. *Atmos. Chem. Phys.*, **6**, 4653–4658.
- 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.
- Sharma, S., Andrews, E., Barrie, L.A., Ogren, J.A. and Lavoué, D. (2006): Variations and sources of the equivalent black carbon in the high Arctic revealed by long-term observations at Alert and Barrow: 1989–2003. *J. Geophys. Res.*, **111**, D14208, doi:10.1029/2005JD006581.
- Shaw, G.E. (1991): 5. Physical properties and physical chemistry of arctic aerosols. Pollution of the Arctic Atmosphere, ed. by W.T. Sturges, London, Elsevier Science, 123–155. (Environmental management series)
- Shaw, G.E. (1995): The Arctic haze phenomenon. *B. Am. Meteorol. Soc.*, **76**, 2403–2413.
- Simpson, W.R., von Glasow, R., Riedel, K., Anderson, P., Ariya, P., Bottenheim, J., Burrows, J., Carpenter, L.J., Frieß, U., Goodsite, M.E., Heard, D., Hutterli, M., Jacobi, H.-W., Kaleschke, L., Neff, B., Plane, J., Platt, U., Richter, A., Roscoe, H., Sander, R., Shepson, P., Sodeau, J., Steffen, A., Wagner, T. and Wolff, E. (2007): Halogens and their role in polar boundary-layer ozone depletion. *Atmos. Chem. Phys.*, **7**, 4375–4418.
- Steffen, A., Douglas, T., Amyot, M., Ariya, P., Aspmo, K., Berg, T., Bottenheim, J., Brooks, S., Cobbett, F., Dastoor, A., Dommergue, A., Ebinghaus, R., Ferrari, C., Gardfeldt, K., Goodsite, M.E., Lean, D., Poulain, A.J., Scherz, C., Skov, H., Sommar, J. and Temme, C. (2008): A synthesis of atmospheric mercury depletion event chemistry in the atmosphere and snow. *Atmos. Chem. Phys.*, **8**, 1445–1482.
- 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.
- Treffeisen, R., Rinke, A., Fortmann, M., Dethloff, K., Herber, A. and Yamanouchi, T. (2005): A case study of the radiative effects of Arctic aerosols in March 2000. *Atmos. Environ.*, **39**, 899–911.
- Valero, F.P.J., Ackerman, T.P. and Gore, W.J.Y. (1989): The effects of the Arctic haze as determined from airborne radiometric measurements during AGASP II. *J. Atmos. Chem.*, **9**, 225–244.
- Wessel, S., Herber, A., Gernandt, H., Aoki, S., Winkler, P., Weller, R. and Schrems, O. (1998): Irregular ozone depletion events in the Antarctic troposphere recorded at Neumayer Station in 1992 and 1993. *Mem. Natl. Inst. Polar Res. Spec. Issue*, **52**, 89–101.
- Wilson, T.R.S. (1975): Salinity and the major elements of sea water. *Chemical Oceanography*, edited by J.P. Riley and G. Skirrow, 2nd. ed. San Diego, California, Academic Press, 365–413.
- 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.
- Yamanouchi, T., Wada, M., Fukatsu, T., Hayashi, M., Osada, K., Nagatani, M., Nakata, A. and Iwasaka, Y. (1999): Airborne observation of water vapor and aerosols along Mizuho route, Antarctica. *Polar Meteorol. Glaciol.*, **13**, 22–37.
- 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.