

# 極－中緯度間のエアロゾル変動システム解析と 地球生物系観測への発展

大気組成変動研究チーム（課題番号：177003）

研究期間：平成29年7月25日～令和2年3月31日

研究代表者：林 政彦 研究員：原圭一郎、白石浩一

## 「研究概要」

南極地域は、周囲を海で囲まれ、人類の経済活動域から大きく離れているために、大気中の微粒子（エアロゾル）濃度は非常に低い。南極対流圏の自然起源の主要なエアロゾルは、海塩、鉱物、海洋微生物活動を起源とする硫酸化合物などであり、他の地域のエアロゾルの起源と概ね類似している。一方、大規模な火山噴火によって成層圏へ流入した物質は全地球規模で拡散し、南極や北極などでもその影響が見られることが知られている。近年、中緯度の森林火災を起源とするスス粒子の輸送など可能性が観測的に明らかになりつつある。この輸送には、対流圏全層におよぶ大規模な擾乱が関与している可能性が高い。また、大規模な擾乱は、極域の成層圏最下部の大気と対流圏大気の混合や交換を引き起こしている可能性も高い。また、地表、海水付近ではなく、境界層上部や自由対流圏などで新粒子生成が起きている可能性も指摘されている。化学組成的には、生物が関与するプロセスから発生するものも多く、地球生物圏としてとらえる必要がある。

このような現象は、南極域だけでなく北極域でも起きている。同時に、南極域と北極域の大きな違いの一つが経済活動地域との距離にあり、北極域の対流圏エアロゾルには人為起源汚染物質の影響が強く現れる。

地球大気物質循環システムを理解するため、これまで、南極地域、北極圏で観測を中心とした研究を行ってきた。本研究では、これまで取得したデータの解析を行い、特に、中緯度から極域への物質輸送システムの理解を深めるとともに、南極域における観測の実施、今後の観測の展開のためのシステム開発などを行った。

## 「研究成果」

### 1. 夏季南極成層圏エアロゾル中の硝酸イオンの存在

第56次南極地域観測隊が、南極昭和基地近傍の南極大陸上 S17 航空拠点（図1）において 第5章でも紹介する気球浮揚無人航空機システム（BalGliP-PX）を用い成層圏エアロゾル観測に成功した（図8, 図9）。観測装置を搭載した重量約11kgの固定翼グライダー型無人航空機を、気球により高度23kmまで浮揚させ、気球破裂後パラシュートで降下、高度12kmでパラシュートを切り離して帰還させた。

搭載した観測装置は、直径0.3～10.4 $\mu\text{m}$ の粒子数濃度を計測する光学粒子計数装置と電子顕微鏡（SEM）による形態と組成の分析用のサンプラーである。サンプル効率の粒径依存が生じにくい上昇中の粒子数濃度データを取得するとともに、鉛直速度の均一性が高い上昇中

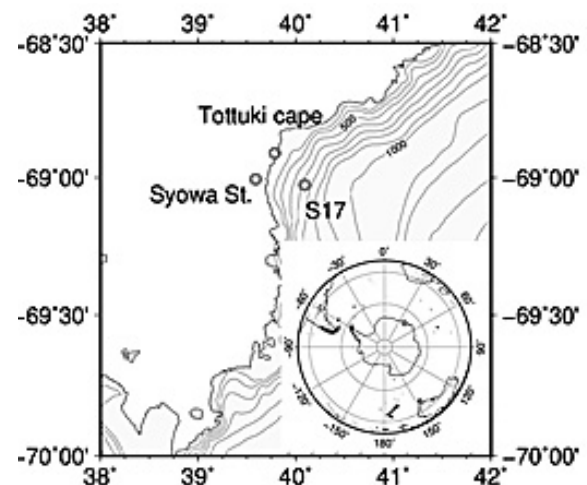


図1 S17航空拠点、昭和基地（Syowa Station）、とつぎ岬（Tottuki cape）

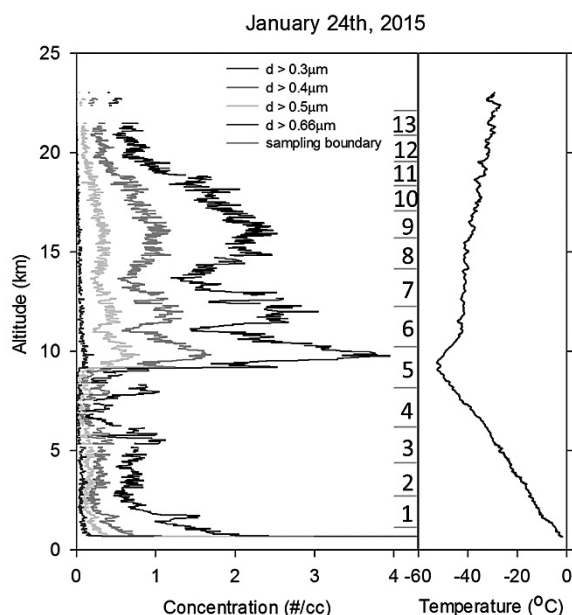


図2 2015年1月25日にS17から飛揚された気球浮揚無人航空機により観測されたエアロゾル鉛直分布

に、分析用サンプルを採取している。サンプリング流量は、約2 liter/分、4分間サンプリングを行い、サンプルシートを順次変えて13サンプルを取得した。図2にエアロゾル数濃度の鉛直分布とを示す。気温の極小高度（約9 km）が対流圏界面である。図2の横線はサンプリング高度領域の上下境界、数字はサンプル番号を示している。

成層圏に3つの極大を有するエアロゾル層が形成されている。その濃度は通常より高い。全球的な火山噴火の記録からは、熱帯のKelut火山（7° 55′ 48″ S, 112° 18′ 29″ E, 1731m）の2014年2月13日の噴火など、低緯度、中緯度の成層圏への火山性物質が注入が報告されており、南極成層圏エアロゾル層の濃度増大の原因と考えられる。

図3および図4に、ニトロン薄膜上に採取されたエアロゾルの電子顕微鏡画像を示す。図3は高度10.2～12.2 kmのサンプルである。液滴上の粒子は硫酸粒子であり、結晶を形成している粒子は硝酸イオンを含んでいたものと考えられる。高度14.2～15.7 kmのサンプル（図4）では、ほとんどの粒子が結晶を形成している。この高度では、通常の成層圏に形成される硫酸粒子よりも硝酸イオンを含む粒子が卓越して存在していた可能性がある。

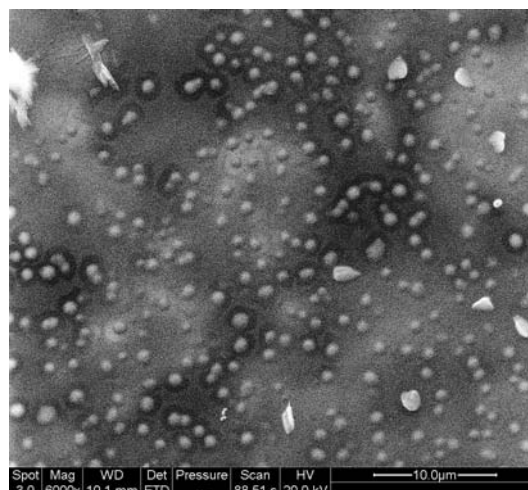


図3 2015年1月25日に南極成層圏（No.6 高度10.2～12.2km -40℃）で採取されたエアロゾルの走査電子顕微鏡画像

ニトロン薄膜上に結晶を形成しなかった硫酸を主成分とする粒子と結晶を形成した硝酸を含むとみられる粒子

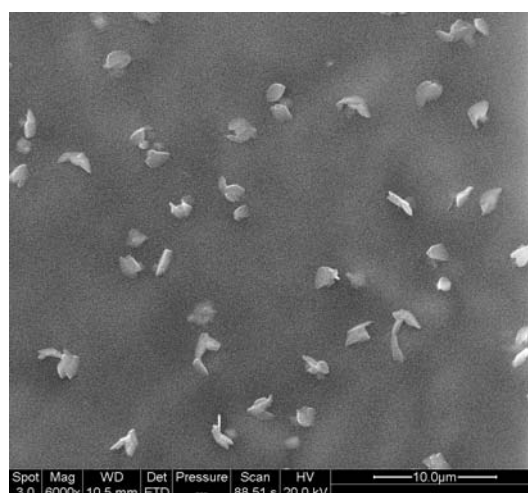


図4 2015年1月25日に南極成層圏（No.8 高度14.2～15.7km -40℃）で採取されたエアロゾルの走査電子顕微鏡画像

ニトロン薄膜上に結晶を形成した硝酸を含むとみられる粒子が多い

気温が-80℃以下となる冬の南極成層圏では、硝酸を含む粒子が形成されることが知られているが、この観測で硝酸粒子が検出された高度の温度は約-40℃である。通常想定される水/硝酸/硫酸の3成分熱力学平衡系の理論計算では、硝酸が粒子（液相）内に取り込まれることはない結論付けられる。図4のように夏の南極成層圏に硝酸粒子が存在するとすれば、これまでの理論の枠組みを超えた検討が必要になる。一つの可能性は、火山噴火等により直接注入される塩化水素や多量の水蒸気存在の可能性である。もう一つは、冬季の間に形成される極成層圏雲の組成変化のヒステリシス効果である。

これらの原因のうちの特にヒステリシス効果の影響については、冬季の観測による組成変化の確認が最も有効

な手段である。組成の確認は、本研究でも行われたサンプル回収によるものが、最も有効な手段であり、2022年に越冬期間中のサンプリングを含めた観測を実施することを計画している。越冬期間中の気球浮揚無人航空機観測の実施には、無人航空機システム、特に、航空機の飛行制御の高度化が不可欠である。この点に関する取り組みについては、第5章で述べる。

## 2. 南極周辺海域の境界層内における超微小粒子生成

第58次南極地域観測隊および第60次南極地域観測隊において、南極昭和基地近傍のS17航空拠点からエンジン式無人航空機（カイトプレーン）を飛行させ、直径 $0.3\text{ }\mu\text{m}$ 以上の粒子の粒径分布と直径 $10\text{nm}$ 以上の総粒子数濃度の計測を行った。第58次南極地域観測隊は、2017年1月に往路高度約700m、帰路高度約1200mで片道18kmの往復飛行を11回行った。第60次観測隊は、2019年1月に海拔高度600mのS17上空で海拔高度3000mまでの鉛直分布観測を1回行った。

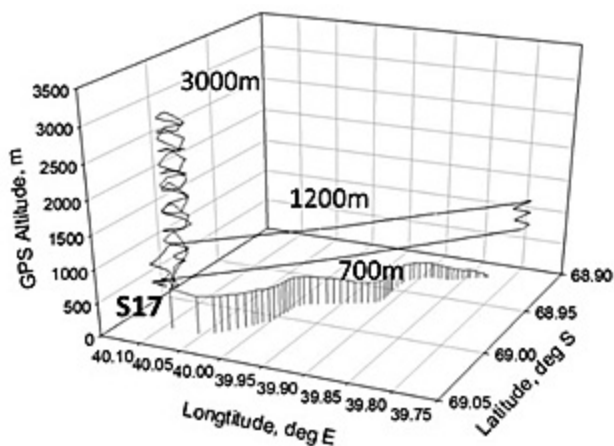


図5 2017年1月に行った往S17ーとつき岬間の往復飛行の典型的飛行軌跡および2019年1月に行った鉛直飛行の飛行軌跡  
水平飛行ルート下の標高分布（縦線入り）を併せて示している。

これらの観測により、夏の南極下部対流圏の主要な粒子である硫酸とメタンスルホン酸の混合エアロゾルの生成過程について検討した。硫酸及びメタンスルホン酸の主要な起源は南極大陸周辺海域の海洋生物起源のDMSである。硫酸やメタンスルホン酸からの粒子生成の条件として、 $0.1\text{ }\mu\text{m}$ 以上の粒径の既存粒子の濃度が低いことが挙げられている。既存粒子濃度が高いと、既存粒子の表面へのソースガスの凝結による核生成速度の低下による核生成の抑制、生成したばかりの $1\sim 10\text{nm}$ の核生成粒子の既存粒子への凝集損失により、超微小粒子（ $10\text{nm}$ より大きいサイズまで成長して、凝集損失効果がやや小さくなった粒子）へ成長できる粒子数が減少するためである。このプロセスの重要性は確かである。しかし、既存粒子の数濃度が高い境界層内でも超微小粒

子の濃度増大がみられることから、新粒子生成に関する活性化要因や、他の制限要因の影響を検討することとした。

検討にあたって、相対湿度が上昇するにしたがって核生成率が大きくなる点に注目した。図6のように水蒸気混合比と超微小粒子の相関関係は、超微小粒子数濃度と水蒸気混合比の間に逆相関的な境界を含む関係があることを示した。

このような関係があらわれる原因を検討するために、気相からの核生成、既存粒子へ凝縮成分の凝結損失、核生成粒子、超微小粒子の既存粒子への凝集損失を考慮した数値モデルを構築し、それぞれのプロセスが、超微小粒子（ $10\text{nm}$ 以上の粒子）濃度に与える影響について検討した。その結果、相対湿度が上昇するにつれて核生成率は上がるものの、相対湿度が80%を超えると既存粒子の並行粒径が大きくなるために既存粒子表面積が増大し、気相の硫酸等が既存粒子表面への凝縮率が早くなること、生成したばかりの核生成粒子の凝集損失が大きくなることにより、 $10\text{nm}$ を超える超微小粒子の濃度が低下することなどが分かった。

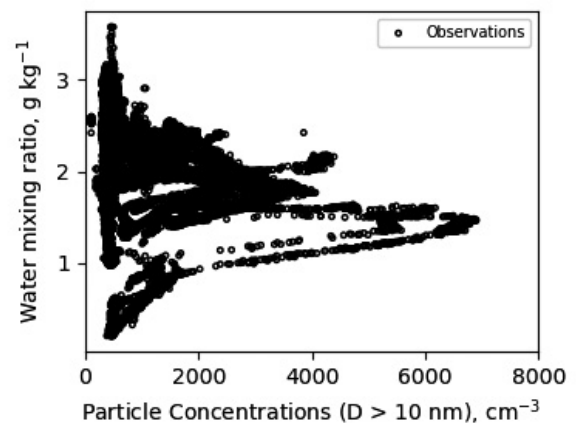


図6 2017年1月、2019年1月に観測された南極大陸上空の地表面近くの水蒸気と超微小粒子数濃度の相関

相対湿度が約80%で超微小粒子の生成効率が最も高くなることに着目して、モデルによる超微小粒子濃度の時間変化を計算した。超微小粒子濃度は核生成、凝縮成長により次第に高くなるが、半日程度で核生成率が落ちるため凝集損失が卓越するようになる。このため、 $10\text{nm}$ を超える超微小粒子の濃度は粒子生成後1日程度で最大となり、その後低下してゆくことが示された。図6に示される逆相関的な境界は、この最高数濃度が水蒸気混合比が小さい気塊、すなわち、相対湿度が80%になる粒子生成が活性化する温度が低い気塊において、（別の視点から見たとき、より高い高度で粒子化する気塊において、） $10\text{nm}$ より大きい超微小粒子まで成長できる粒子が多くなることを示している。

この結果は、海洋混合層において、鉛直運動に伴う混



合層上部あるいは混合層（境界層上端領域）で断熱膨張に伴って高湿度、低温になる領域において新粒子生成と成長が活発になっている可能性を示している。境界層内での数日スケールの数濃度増加領域の形成や自由対流圏と境界層の境界領域からの新粒子の自由対流圏への供給により、長期的な粒子生成とその逐次的蓄積に寄与している可能性を示すものである。

### 3. 南極昭和基地付近への南極海域、中緯度からのエアロゾル輸送

南極昭和基地では、1996年から地上エアロゾルの連続観測を継続している。当初は、粒子カウンターのみの観測をはじめ、その後黒色炭素濃度の連続観測を開始し継続している。間欠的にはあるがエアロゾル化学組成の観測も実施している。これらの観測により、黒色炭素濃度は極めて低く、中緯度で活発な地表付近を起源とする人間活動や、森林火災の影響が非常に小さいことが明らかになっていった。このことは、湿性沈着により除去されやすい物質は対流圏を経て南極まで輸送されにくいことを示している。しかし、濃度は低いものの輸送されていることは明らかであり、その輸送システムの検討を行った。

その結果、対流圏の気象力学的擾乱に伴い中緯度から南極域へ短時間で輸送されることがあり、冬季に活発になることが明らかになった。

また、海水起源の海塩粒子が開水面からだけではなく、より南極大陸に近い海水の割れ目に染み出す高濃度海水（ブライン）の飛散によって輸送されてくることなども明らかになった。さらに、このような海塩粒子が南極表層大気中の気体状臭素化合物の供給源となっていることを示した。

### 4. 北極域自由対流圏への人為起源物質の輸送

ノルウェー領スバル諸島スピッツベルゲン島北西部に位置するニーオルスンに整備された国立極地研究所の北極基地に、2014年に24時間連続観測用ミー散乱エアロゾル雲ライダーを設置し、ライダーによる北極対流圏エアロゾルの連続観測を実施してきた。

24時間自動観測ライダーによる連続観測によるもので、後方散乱係数は、エアロゾルの質量と正相関、後方散乱係数波長比は、平均的な粒子の大きさと逆相関性、偏光解消度粒子形状の非球形性と正の相関を示すパラメータである。

図7に示すように、2014年から2017年の4年間の観測結果から、対流圏全高度域で、エアロゾル混合比は春から夏にかけ極大、秋から冬にかけ極小をとり、主成分は液相の硫酸塩や有機物で、太陽光をより強く散乱すること、冬から春にかけ太陽光を吸収するブラックカーボンの割合が大きくなることなど、対流圏エアロゾルの詳細な季節変動を明らかにした。さらに、このような自由対流圏のエアロゾル混合比は経年的に減少傾向であること等が明らかになった。

### 5. 成層圏観測用気球浮揚無人航空機システムの開発

#### 5.1 気球浮揚無人航空機システムの高度化：BalGIP-PX

本報告の第1章のデータ、および、サンプルの取得に用いた気球浮揚無人航空機システムのオペレーションシーケンスを図8に示す。シーケンスの詳細は、第1章で述べている。

観測上端高度は、指定高度における気球分離あるいは、気球の破裂により決まる。気球分離後はパラシュートで降下するが、この間は、自由飛揚状態であり、風に

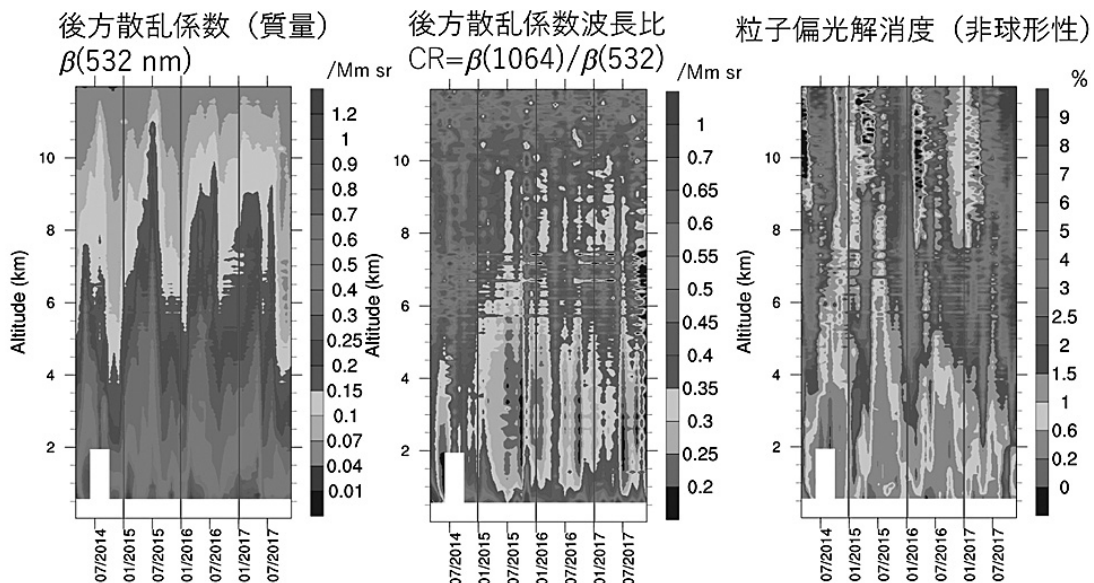


図7 ニーオルスン上空の4年間の対流圏エアロゾルの光学特性季節変動

流される。上空の風が強いと期待は遠方に流されてしまい、滑空(無動力)による機関が困難になる。このため、パラシュート分離高度を高くする方が、観測リスクを低減させ、観測機会を増すことにつながる。また、異なる条件下での観測を実現することができるようになる。

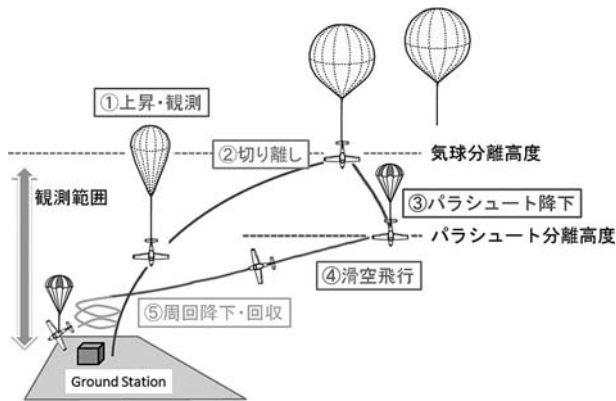


図8 BalGliP のオペレーションシーケンス

しかし、上空の大気密度は、地上の10分の1以下にもなり、航空機の制御を可能にするためには、空気力学特性を把握して制御則を確立しなければならない。図9に示すのは、2015年1月24日の飛行軌跡である。S17上空に帰還してから、ボックス状の飛行を繰り返しながら、高度を下げていく。制御上のウェイポイントは同一であるが、高度が高いところで、急速に飛行領域が大きくなっている(大きな四角形を描いている)ことが分かる。これは空気力学的な特性が異なるためにおこるものである。本研究期間中に数値シミュレーション、風洞実験、低硬度による実フライトを繰り返して、上空における飛行制御に必要な空力特性データの取得と制御設計を行ってきた。引き続き、第63次南極地域観測隊における越冬観測の実現へ向けて準備を行っているところである。

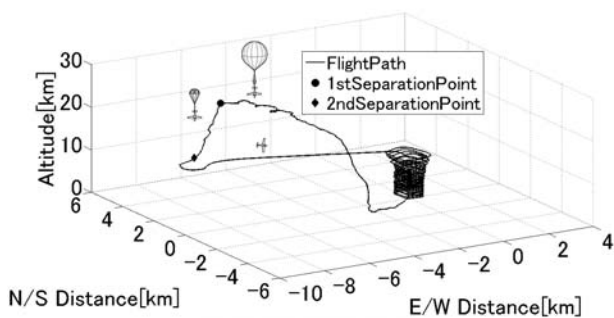


図9 2015年1月24日にS17上空で実施したBalGliP-KPの飛行軌跡  
図2, 図3, 図4のデータを取得したフライトの飛行軌跡

## 5.2 第60次南極地域観測隊による気球浮揚無人航空機システム試験: BalGliP-KP

成層圏および自由対流圏の地球科学的観測の高度化を目的とした、もう一つの観測プラットフォームとして、電動カイトを用いた気球浮揚カイトプレーン (BalGliP-

KP) の開発を行っている。BalGliP-PXとは異なるデルタカイトで知られるロゴロ翼を揚力装置とした航空機を用いたシステムの開発を行っている。観測方法はBalGliP-PXと同じである。より観測オペレーションの負荷を少なくするように小型化を図り、観測装置は、光学粒子計数装置のみを搭載している。BalGliP-KPによる観測は、第58次南極地域観測隊において高度5 kmまでのエアロゾル観測に成功した。地球科学的見地からは、より高高度の成層圏上部までの観測とサンプル採取を目標としている。

第60次南極地域観測隊では、2019年の夏(1月)および冬(4月~11月)にBalGliP-KPによる、①白夜のオーロラ観測、②成層圏エアロゾル観測、③自由対流圏乱流観測を計画した。夏季のオーロラ観測、冬季の乱流観測を実施した(図10)が、観測データサンプルの取得に至らなかった。いずれも飛行制御、飛行姿勢の確保等に問題があった。観測には成功しなかったが、昭和基地における小型無人航空機の気球浮揚方法が確立するとともに、昭和基地をプラットフォームとした際、北の浦が無人飛行機の機体回収フィールドとして使えることを確認した。

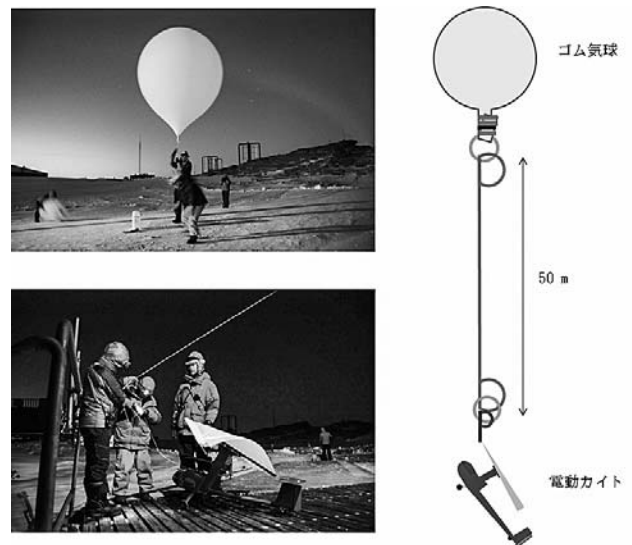


図10 BalGliP-KPによる大気乱流観測実施時(冬季)の飛揚風景  
空が暗いのは、薄明時の観測のためである。

謝辞: 第2章は、福岡大学大学院理学研究科博士課程前期2年(2020年3月現在)原口諒平氏の研究に基づくものである。また、原口諒平氏は第60次南極地域観測隊に参加し、2019年1月の無人航空機観測を実施した。

## 「研究業績」

Kinase, T., Adachi, K., Oshima, N., Goto-Azuma, K.,

- Ogawa-Tsukagawa, Y., Kondo, Y., Moteki, N., Ohata, S. Mori, T., Hayashi, M., Hara, K., Kawashima, H., and Kita, K. (2020). Concentrations and size distributions of black carbon in the surface snow of eastern Antarctica in 2011. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 125, e 2019 JD 030737. <https://doi.org/10.1029/2019JD030737>
- Hara, K., K. Sudo, T. Ohnishi, K. Osada, M. Yabuki, M. Shiobara, T. Yamanouchi, Seasonal features and origins of carbonaceous aerosols at Syowa Station, Antarctica, *Atmos. Chem. Phys.*, 19, 7817-7837, <https://doi.org/10.5194/acp-19-7817-2019>, 2019.
- Hara, K., K. Osada, M. Yabuki, H. Takashima, N. Theys, and T. Yamanouchi, Important contribution of sea-salt aerosols to atmospheric bromine cycle in the Antarctic coasts, *Scientific Reports*, 8, 13852, DOI: 10.1038/s41598-018-32287-4 (2018).
- Hara, K., Matoba, S., Hirabayashi, M., and Yamasaki, T.: Frost flowers and sea-salt aerosols over seasonal sea-ice areas in northwestern Greenland during winter-spring, *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 8577-8598, <https://doi.org/10.5194/acp-17-8577-2017>, 2017
- Phosri A, Ueda K, Tasmin S, Kishikawa R, Hayashi M, Hara K, Uehara Y, Phung VLH, Yasukouchi S, Konishi S, Honda A, and Takano H., Interactive effects of specific fine particulate matter compositions and airborne pollen on frequency of clinic visits for pollinosis in Fukuoka, Japan, *Environmental Research*, 156, 411-419, <http://doi.org/10.1016/j.envres.2017.04.008>.
- Shibata, T., Shiraishi, K., Shiobara, M., Iwasaki, S., Takano, , Seasonal variations in high Arctic free tropospheric aerosols over Ny-Ålesund, Svalbard, observed by ground-based lidar, *J. Geophys. Res.*, doi: 10.1029/2018JD028973 (2018).
- Shiraishi, K., 他2名, Seasonal variation of lower stratospheric aerosols observed by lidar above Svalbard, Norway, Fifth international Symposium on Arctic Research, Tokyo, Jan. 2018.