

北部北太平洋における海霧の化学組成と粒径分布

吉田 健太郎*・成田 祥*・フランク グリースバウム**
岩本 洋子*・近藤 雅輝*・植松 光夫*

(2007年6月1日受付, 2007年10月13日受理)

Chemical composition and size distribution of sea fog over the northern North Pacific

Kentaro YOSHIDA*, Yasushi NARITA*, Frank GRIESSBAUM**,
Yoko IWAMOTO*, Masaki KONDO* and Mitsuo UEMATSU*

* Center for International Cooperation, Ocean Research Institute,
The University of Tokyo
1-15-1 Minamidai, Nakano-ku, Tokyo 164-8639, Japan

** Present address: Institute of Landscape Ecology, University of Muenster, Germany

To clarify the variation of chemical composition of fog water and size distribution of fog droplets, investigation was conducted over the northern North Pacific, where sea fog appears frequently in summer, during the KH-04-3 cruise of R/V Hakuho-maru in 2004.

The sea salt composition is governed 65% of total concentration of inorganic ions and the non-sea-salt sulfate occupied 10% in the 90 sea fog water samples. The average size distribution of liquid water content (LWC) of sea fog showed a bimodal pattern with peaks of 7.0 and 27.5 μm in diameter, while its distribution on land fog commonly showed a monomodal pattern.

LWC, number concentrations of fog droplets and concentrations of sea salt composition were high at the edge of the fog area, and decreased toward the center of the fog area. The peak of LWC was shifted from 17.0 μm at the edge to 36.5 μm in the center area. Based on the relationship of chemical composition between aerosols and fog droplets, the fog droplets are expected to deposit with growing of its droplet size with coagulation and adsorbing reactive gases as a function of the distance from the edge of the sea fog area.

In the northern North Pacific region, frequent sea fog appearance is important as one of scavenge processes of natural and anthropogenic substances from lands as well as marine biogenic substances.

Key words: Sea fog, Aerosol, Major ionic concentration, Size distribution of fog droplets, Liquid water content, Scavenging by fog, North Pacific

1. はじめに

近年, 大気エアロゾル放出量や生成量の増加は, 地球温暖化を抑制しているといわれている。直接的な冷

* 東京大学海洋研究所海洋科学国際共同研究センター
〒164-8639 東京都中野区南台1-15-1

** 現在, ドイツ, ミュンスター大学 景観生態学研究所

却効果は, エアロゾルが太陽放射を散乱・吸収することによって地球の放射強制力を負にするものである。間接的な効果は, エアロゾルが凝結核として働き, 雲粒の物理的特性や光学的特性を変化させることで, 放射強制力に負の影響を与えるものである (IPCC 第4次報告, 2007)。

この間接効果は大きく2つの効果に分類できる。第1の間接効果は凝結核の個数濃度が増加したときに,

雲粒の個数が増加し、粒径が小さくなることによって、アルベドが増加するという効果である (Twomey, 1977)。Hudson and Yum (2001) は、フロリダ半島で航空機観測を行い、海洋起源の空気塊は、多くの凝結核を含む陸起源の空気塊に比べ、積雲の雲粒の平均粒径が大きく、雲水量も大きいことを示した。Adhikari *et al.* (2005) は、日本の南西諸島付近における航空機観測によって、アジア大陸の人為起源物質の影響を受けた海洋起源の空気塊の雲粒の個数濃度は、清浄な海洋大気に比べ2倍以上の高い値を観測している。

第2の間接効果は、凝結核の個数が増加し、雲粒の粒径が小さくなることにより、降水が抑制され、雲の滞留時間が長くなることで、雲の被覆率が増加する効果である。陸起源の空気塊中での雲形成では、雲粒の粒子が小さいままで、霧雨を起こすまで粒子は大きくならなかった (Hudson and Svensson, 1995; Hudson and Yum, 1997; 2001)。しかし、これらの間接効果に関しては、IPCC 第4次報告 (2007) の中においても、依然として科学的理解が低いと評価されている。

このような報告を通じて、エアロゾルと雲粒の相互作用に関して、不均一な混合状態、拡散、凝集、除去という雲の微物理過程や、降水過程を評価する必要があることが指摘されてきた。

本研究の対象は下層雲である霧である。気象学的定義によると、霧は直径数10 μm 以下の小さい水滴 (または氷晶) が光を散乱・反射・吸収し、地表付近の水平方向の視程1 km 未満になる現象である。霧の化学的な視点による研究は、今まで山岳域や都市域を中心に陸上の霧について取り組まれてきた (村野, 1993)。南カリフォルニアで高い酸性度を示す霧水の存在 (Munger *et al.*, 1983) や、霧水中に高濃度の無機イオンや有機物が存在すること (Munger *et al.*, 1990; Richartz *et al.*, 1990; Matsumoto *et al.*, 2005) が報告されている。霧水は降水に比べて化学成分が高濃度のため、人体への影響が懸念されるばかりでなく、地球上の生態系や物質循環にも影響を与える。

海上に発生する霧 (海霧) の研究例は陸上の霧に比べて限られている。海霧は海表面上に発生するため、航空機観測は難しく、船舶を用いた観測が中心となる。しかしながら、船舶を用いた研究は、Sasakawa and Uematsu (2002; 2005) や Sasakawa *et al.* (2003) の北太平洋での観測以外ほとんど報告がない。海洋上ではコンタミネーションコントロールを

行った船舶をプラットフォームとすることにより、定点観測だけではなく、陸のような地形や移動路などの制約を受けず、航走しながら霧の発生状況を時空間的に観測し、解析することが可能である。

北部北太平洋は夏季に高い頻度で海霧が発生し、霧の研究に適した海域である。特に、北海道から千島列島周辺の海域にかけては、7月の海霧の出現頻度は50%を越える (Wang, 1985)。この海霧は、主に北太平洋高気圧から吹き出す暖湿な空気塊が、北海道の太平洋沿岸部を流れる寒冷な親潮の上を通過する際、下層から冷やされて水蒸気が飽和し引き起こされる典型的な移流霧である。

Sasakawa and Uematsu (2002) は、夏季 (1998~2001年) に海霧が頻発する北西部北太平洋・オホーツク海・日本海において船上で霧水を採取し、以下の結果を得た。(1)霧水中の硝酸イオン・非海塩性 (nss-) SO_4^{2-} 濃度は、アジア大陸起源の人為起源物質が取り込まれたため、日本海では他の海域より高い傾向を示す。(2)オホーツク海では、生物起源硫黄化合物の寄与が大きく、日本海より nss- SO_4^{2-} 濃度が高い場合がある。(3)エアロゾルと霧水の化学成分濃度の比較から、 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ のような微小粒子よりも海塩粒子のような粗大粒子のほうが、霧粒の凝結核になりやすい。さらに、Sasakawa *et al.* (2003) は、2001年初夏、霧発生時に連続したエアロゾルと霧水の採取を行い、北西部北太平洋における霧の化学成分変化と発生メカニズムを見出した。(1)エアロゾルの粒子数観測により、0.5 μm 以下の粒子よりも0.5 μm 以上の粒子のほうが霧粒の凝結核として働き、優先的に霧粒に成長する。(2)霧水中の化学成分時間変化から、人為起源物質濃度は発生時間とともに霧水から減少している。(3)特に NO_3^- の減少量が大きく、 NO_3^- を含む粗大粒子が霧粒へ成長する。

本研究の目的は、エアロゾルと下層雲である霧の挙動と、エアロゾルと霧の関係に対する知見を、エアロゾルと霧の粒子数、粒径分布、そして化学成分から得ることである。このため、北太平洋で最も霧が発生する海域上で船舶大気観測を行い、霧発生域の霧水の粒径別粒子数と化学成分を連続的に測定し、両者の変化を捉える。また、霧発生時と非発生時のエアロゾルと霧水の化学成分濃度を比較し、霧の凝結核になるエアロゾルの挙動を明らかにする。特に霧のような巨大粒子を高い時間分解能で粒径別に粒子数を計測するのは、船舶を用いてでは初めての試みである。

2. 観測と分析

エアロゾルと霧水を中心とした海洋大気観測は、2004年7月13日～8月27日に北部北太平洋を調査海域とした学術研究船白鳳丸 KH-04-3次航海で行われた (Fig. 1)。Leg 1 (7月13日～8月5日) は、東京港を出港し、観測定点 (48.5°N, 165°E) で観測後、釧路港に入港するまでであった。Leg 2 (8月9日～27日) は、釧路港から出港し、観測定点 (48.5°N, 165°E) で観測、一度、観測定点と釧路港を往復した後、東京港に入港するまでであった。

大気エアロゾルの採取には、HVDVI (High Volume Dichotomous Virtual Impactor, 紀本電子工業, AS-9) を用いた。霧水試料の採取は、線式霧水捕集装置 (臼井工業, FWG-400) を用いた。霧粒と呼ばれる1～100 μm の粒子を衝突捕獲した。また、粒径別の霧粒子数計測用のフォグモニター (Droplet Measurement Technologies, FM-100) により粒径2～50 μm の粒子を19段階 (2～4 μm 間隔) に分け、霧の粒子数を10秒毎に測定した。これらの装置は、

船の最上甲板の最前部 (海面から約13 m) に設置した。

HVDVI は、エアロゾルを一枚のフィルター上に微小粒子 ($d < 2.5 \mu\text{m}$) と粗大粒子 ($d > 2.5 \mu\text{m}$) に分級して採取することができる (Matsumoto *et al.*, 2003)。エアロゾルを採取するフィルターには、ポリフロンフィルター (東洋濾紙, PF040, 直径90 mm) を使用した。エアロゾルの採取は、吸引流量約12 $\text{m}^3 \text{h}^{-1}$ 、試料採取時間は12時間とし、観測期間を通じて、毎日09:00と21:00 (JST) を開始時刻とした。船舶自体からの排気などの影響を避けるため、風向風速制御装置によって、相対風向が船首方向に対して $-100 \sim 100$ 度、相対風速が3 m s^{-1} 以上のときだけ、エアロゾル採取を行うよう設定した。

細線式霧水捕集装置は、直径500 μm のテフロン糸への衝突を利用したものである。霧水は化学分析に必要な50 mL以上を目安に500 mL テフロンビンで採取した。霧採取時は風向風速制御装置によって制御されたエアロゾル採取装置も稼働しており、船首から風を受け、船舶からの汚染の影響はないと考えられた。霧水試料ごとに、採取した霧水量を測定した。試料の一部を pH (ORION model 290A)・電気伝導度 (ORION model 115) の測定に用いた。それぞれの機器の分析精度は、0.01と0.1 $\mu\text{S cm}^{-1}$ であった。残りの試料溶液は、ヌクレポアフィルター (Whatman, 孔径0.4 μm , 直径47 mm) で濾過した。大気エアロゾル試料と霧水試料は、化学分析に供するまで冷蔵保存した。

大気エアロゾル試料は、純水にて抽出し、溶液試料とした。この溶液試料と霧水試料中の主要水溶性イオン成分 (Na^+ , NH_4^+ , K^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+} , Cl^- , NO_3^- , SO_4^{2-}) とメタンスルホン酸 (MSA) をイオンクロマトグラフ (Dionex, DX320) で定量した。カチオン分析には、分離カラム CS16 (Dionex) を使用し、溶離液には33 mM MSA を1.0 mL min^{-1} で使用した。また、アニオン分析はグラジエントモードで行い、分離カラムは AS 16 (Dionex) を使用し、溶離液には最大で KOH 濃度20 mM を1.5 mL min^{-1} で使用した。nss- SO_4^{2-} と nss- Ca^{2+} の濃度は、 Na^+ が全て海塩起源であるとして計算した。検量限界は、 NH_4^+ が0.02 $\mu\text{g mL}^{-1}$ 、他のイオンは0.01 $\mu\text{g mL}^{-1}$ であった。

霧粒を中心とする巨大粒子の粒径計測は、その計測損失を最小限にするためにホーン型インレット (口径7 cm, 長さ19 cm) を船首に向け設置し、霧を直接検

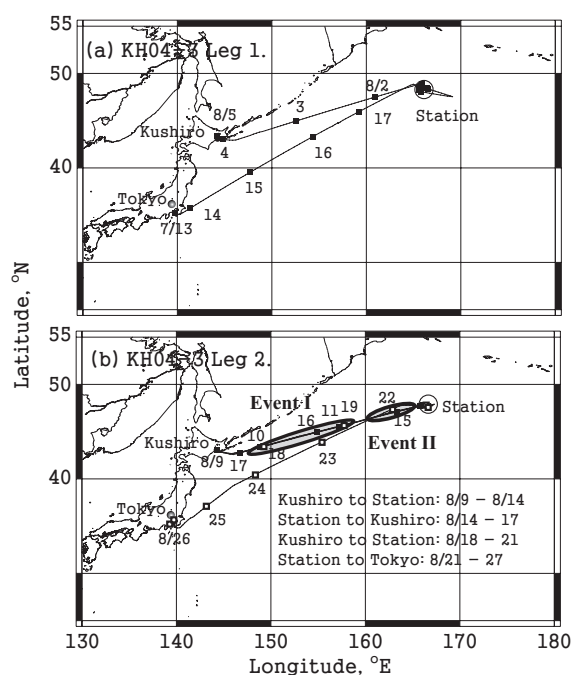


Fig. 1 Cruise track of R/V Hakuho-maru, KH-04-3. (a) Leg 1: Tokyo to Kushiro (13 July-5 August 2004); (b) Leg 2: Kushiro to Tokyo via Kushiro (9-27 August 2004). Locations of fog sampling for event I and II were displayed in the cruise track. Day indicates 0 : 00 JST of the day.

出部に導入した。霧水量 (Liquid water content: LWC) の粒径分布は、フォグモニターから得た粒径範囲ごとの霧の個数濃度に、粒径の上限と下限の算術平均粒径を持つ球体積を乗じ、比重を1.0として算出した。

3. 結果と考察

3.1 海霧の化学成分と粒径分布の平均的特徴

観測期間中に、霧水90試料を得た。霧出現時の採取時間は1~3時間程度であり、最大の採取速度は320 mL h⁻¹、平均 pH は3.9±0.4であった。

霧水中化学成分の全イオン量は、平均で1700 neq mL⁻¹であった。Na⁺が480 neq mL⁻¹、Cl⁻が530 neq mL⁻¹と全体の61%を占めており、他の海塩成分 (海塩性 (ss-)SO₄²⁻, ss-Ca²⁺) を含めると65%であった (Fig. 2, Table 1)。非海塩成分では nss-SO₄²⁻が170 neq mL⁻¹となり、全イオン濃度の10%を占めた。海洋生物起源物質の指標である MSA は7.7 neq mL⁻¹であり、全イオン量に占める割合は0.46%であった。海洋上で採取した霧のイオン成分濃度から、海洋大気で最も多く存在する海塩粒子が霧の凝結核として働く割合が高いが、非海塩性成分が35%を占めていることが明らかになった。

一般的に、陸上の霧水中化学組成では、海塩成分の割合が低い (Bator and Collett, 1997; Collett *et al.*, 1999)。ドイツ山岳部の霧水では、海塩成分である

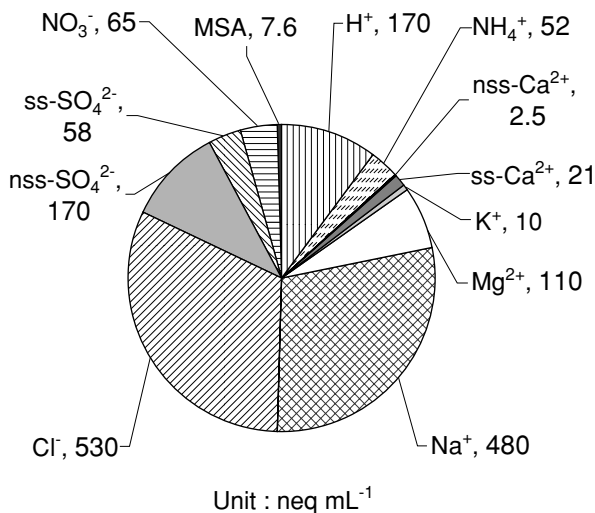


Fig. 2 Contribution of sea salt and non-sea-salt ions to total ions in fog water during the KH-04-3 cruise (13 July-27 August 2004). Unit is neq mL⁻¹.

Na⁺やCl⁻濃度は、それぞれ65, 54 neq mL⁻¹であり、非海塩成分であるNH₄⁺, SO₄²⁻, NO₃⁻濃度の669, 479, 481 neq mL⁻¹と比べて低い (Wrzesinsky and Klemm, 2000)。

Fig. 3に、霧水採取の全期間について平均した個数粒径分布とLWCの粒径分布を示す。LWCの粒径分布は、7.0 μmと27.5 μmにピークを持つ二山型であった。また、総LWCは、29.6 mg m⁻³であった。Burkard *et al.* (2003) によるスイスの山岳斜面で測定した放射霧のLWCは、14 μmに一山型ピークを持ち、視程500 m以下で160.5 mg m⁻³、視程500 m以上で143.5 mg m⁻³であった。また、前線の通過時に斜面を上昇してきた霧のLWCは、10 μmでピークを示し、視程500 m以下で73.0 mg m⁻³、視程500 m以上で63.0 mg m⁻³であった。本研究での海霧と比較して、陸上の霧はLWCの粒径ピークが小さく、粒径

Table 1 Mean ion concentrations, conductivity and pH during the KH-04-3 cruise (13 July-27 August 2004).

	Na ⁺	Mg ²⁺	ss-Ca ²⁺	K ⁺	NH ₄ ⁺	nss-Ca ²⁺	H ⁺
Mean	479	109	21	10	52	2.8	170
S.D.	994	230	43	21	49	6.2	136
Max.	7160	1654	312	153	291	49	640
Min.	6.9	1.9	0.3	0.2	1.5	N.A.	15.6
n	90	90	90	90	90	80	90

	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	ss-SO ₄ ²⁻	nss-SO ₄ ²⁻	MSA	Conductivity	pH
Mean	534	65	58	167	7.7	147	3.9
S.D.	1140	62	119	141	11.9	165	0.4
Max.	8339	243	860	746	70.7	1208	4.8
Min.	10.2	1.0	0.8	N.A.	N.D.	17.0	3.2
n	90	90	90	89	89	90	90

Unit is neq mL⁻¹ except for conductivity (μS cm⁻¹) and pH. Sea salt (ss) was calculated from the concentration ratio of ion to Na⁺ in sea water and Na⁺ concentration.

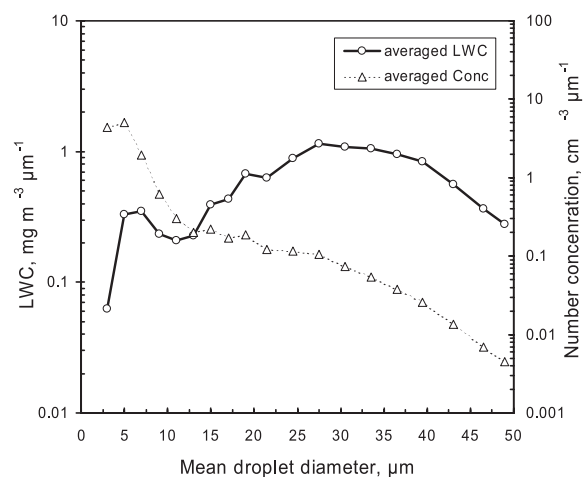


Fig. 3 Averaged size distributions of liquid water content (LWC) and number concentration during the KH-04-3 cruise (13 July-27 August 2004).

分布は一山型であることが示された。これは陸上大気
の凝結核粒子数が多いことによる雲粒の小粒子化傾向
と矛盾しない。

3.2 海霧の化学成分・霧水量の距離による変化

釧路から観測定点 (48.5°N, 165°E) へ向けて航走
中 (Fig. 1b) に、連続して海霧が観測された8月9日19
時45分～11日4時20分を事例1とした。事例1の期間、
太平洋高気圧が南の海上にあったため、観測領域に
は、太平洋高気圧から吹き出す暖湿な空気塊が到達し
ていた。気圧配置や風向風速の変化が小さく、風向は
南寄りで、風速も約8 m s⁻¹であり、気象場は安定し
ていた。海霧の船舶観測は、空気塊の進んだ方向とほ
ぼ同方向に南端から行った。このため、霧発生から消
滅までを観測した事例1の霧発生海域では、発生・消
滅などが定常的に維持されているとみなされ、霧発生
海域の空気塊の末端からの距離によって物理・化学的
変化が生じていると仮定した。このように霧発生海域
は、発生から消滅まで約470 kmの規模であった。

Sasakawa and Uematsu (2002) は時間による霧水
中イオン濃度の減衰を示していたが、本事例1におい
ては霧が発生した末端からの距離によって霧水中イオ
ン濃度が減衰する傾向にあった。霧中海塩成分
(Cl⁻, Na⁺, K⁺, Mg²⁺) と非海塩成分 (NO₃⁻, nss-
SO₄²⁻, NH₄⁺, MSA) の発生した末端からの距離に
対する濃度変化を Fig. 4に示す。また、霧水中イオン
成分の減衰曲線 ($y = a \exp(bx)$, 定数: a, b, 始点
からの距離: x km, 濃度: y neq mL⁻¹) の定数は海
塩成分である Na⁺は $y = 1700 \exp(-9.20 \times 10^{-3}x)$
で決定係数 (r²) が0.70であるのに対して nss-SO₄²⁻
は $y = 170 \exp(-0.91 \times 10^{-3}x)$ で r²は0.07であった。

海塩成分濃度は、距離に対して減少する傾向を示し
た。特に、霧発生域の末端部である始点付近での濃度
減少は大きく、指数関数的に減少していた。Na⁺濃度
でみると、始点付近では、1700 neq mL⁻¹であり、中
央部では約30 neq mL⁻¹にまで減少し、距離に対して
高い相関 (r²=0.70) を示した。一方、非海塩成分の
イオン濃度は距離による指数関数的な減少が見られな
かった。このことから、末端部近傍では粗大粒子であ
る海塩粒子が優先的に霧の凝結核になり、その霧粒は
非海塩成分から成る霧粒よりも大きいために、選択的
に重力沈降と慣性衝突により海面へ沈着除去され、霧
水中の海塩成分濃度が減少したと考えられた。

次に、LWC を7つの粒径範囲 (2.0～8.0, 8.0～14.0,
14.0～20.0, 20.0～29.0, 29.0～38.0, 38.0～48.0,

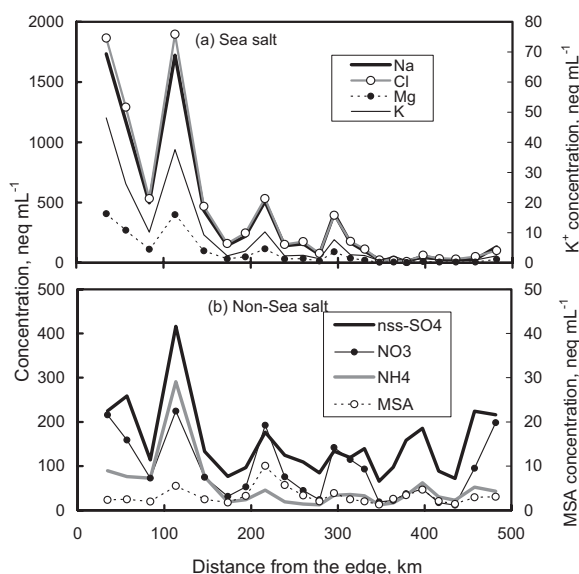


Fig. 4 Behaviors of (a) sea salt ions and (b) non-sea-salt ions in fog water as a function of distance from the edge for the event I.

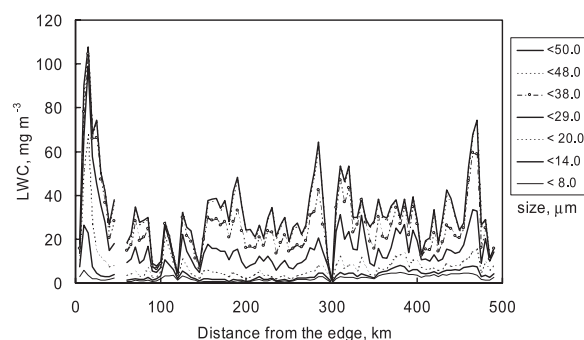


Fig. 5 Liquid water content (LWC) changing in distance from the edge. The lines indicate accumulated LWC with size from 2.0 μm.

48.0～50.0 μm) に分類した。各粒径範囲の LWC に
対する距離の変化を Fig. 5に示す。ここでは5 km 平
均値を用いた。霧発生域の末端部である始点付近で
LWCが100 mg m⁻³以上を示した。LWCのピーク
は、始点から15 kmであった。その後、大きく減少
し、始点から60 km以降は約30 mg m⁻³で推移した。
始点付近では、南寄りの風で定常的に供給される凝結
核が霧粒に成長するため、LWCが高くなったと考え
られた。

Fig. 6に、LWCのピーク時 (始点から約15 km)
と霧発生海域の中央部 (始点から約235 km) の霧粒

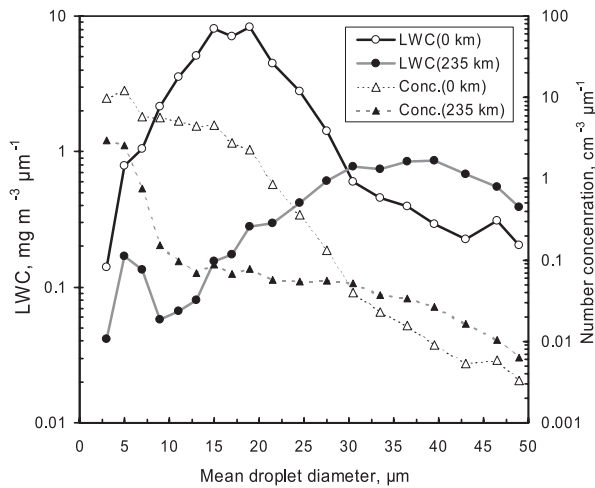


Fig. 6 Averaged size distributions of liquid water content (LWC) and number concentration. Bold lines indicate LWC in the edge (0 km) and the central area (235 km) in fog generation zone. Dot lines indicate number concentration.

を含めた粒子個数濃度とLWCの粒径分布を示す。霧発生海域の始点付近では粒子個数濃度も高く、17.0 μmにピークを持つLWCの粒径分布になっていた。一方、中央部ではLWCは主に36.5 μm付近に大きなピークと5 μmに小さなピークを持つ二山型を示し、個数濃度は大きく減少していた。霧粒のピーク粒径は、個数濃度の低い時に比べて、個数濃度が高い時に小さい傾向を示し、第2の間接効果と調和的であった。5 μmのピークを持つ粒子は、海塩粒子そのものか、微小粒子であった非海塩性粒子が成長したものか、今後、粒径別に採取した霧水試料について化学分析する必要がある。

3.3 霧粒とエアロゾルの関係

霧粒とエアロゾルの相互作用を霧が発生していない期間と霧が発生した期間に分けて、化学成分から考察した。解析対象期間は、8月18日9時～8月19日21時とした。

この期間は、風向は南よりで、風速は平均で5 m s⁻¹であり、霧未発生時と霧発生時ではほぼ変化がなかった。海霧の船舶観測は霧発生海域の南側から行った。そのため、霧未発生時の空気塊が霧発生海域に移動し、霧が生成され、維持されていると考えた。エアロゾル中化学成分濃度の測定時間と合わせるため、霧発生海域の風上側で霧が12時間連続して発生していない期間(8月18日9時～21時)を霧未発生時(Non-fog

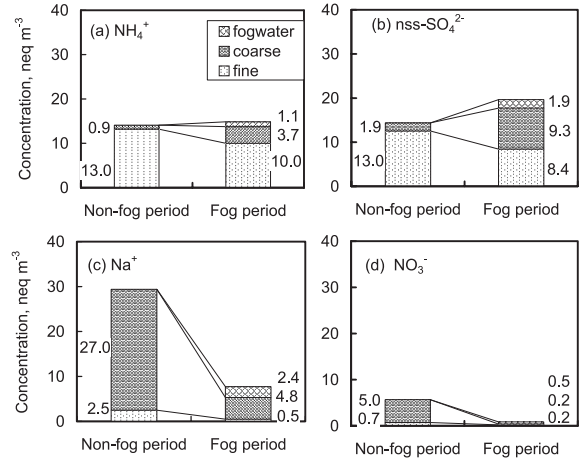


Fig. 7 Behavior of ions, (a) NH_4^+ , (b) nss-SO_4^{2-} , (c) Na^+ , and (d) NO_3^- , in the phase of fine mode aerosol, coarse mode aerosol and fog droplet for the non-fog and fog periods.

period) とし、霧が12時間連続して発生した期間(8月19日9時～21時)を霧発生時(fog period)とし、これを事例2とした(Fig. 1b)。

Fig. 7に、事例2の霧未発生時と霧発生時におけるエアロゾルと霧水中の NH_4^+ 、 nss-SO_4^{2-} 、 Na^+ 、 NO_3^- の濃度を示す。霧水中単位体積あたりの化学成分濃度(neq m⁻³)は、霧水中化学成分濃度(neq mL⁻¹)とLWC(mg m⁻³)の積から求めた。

霧未発生時には NH_4^+ と nss-SO_4^{2-} は微小粒子に、 Na^+ と NO_3^- は粗大粒子に主に存在した。霧発生時には、 NH_4^+ の微小粒子中濃度が減少し、代わって粗大粒子中濃度が増加した。微小粒子中 NH_4^+ の減少量は、3.2 neq m⁻³であり、粗大粒子中 NH_4^+ の増加量は2.9 neq m⁻³であった。また、霧水中の NH_4^+ 濃度は1.1 neq m⁻³であった。大気中に存在する NH_4^+ の微小粒子、粗大粒子、霧粒中の積算濃度は、霧発生時と霧未発生時でほとんど変化しなかった。この NH_4^+ の挙動から、霧発生に伴い、微小粒子は主に粗大粒子に移行したが、沈着を起こすほど大きな霧粒には成長しなかったといえる。

nss-SO_4^{2-} も霧発生に伴い、微小粒子中濃度は減少し、粗大粒子中濃度は増加していた。しかし、海洋における霧水中の nss-SO_4^{2-} の起源は、ジメチルスルフィド(DMS)を起源とする生物起源 SO_2 ガスの霧粒への溶解込み過程などが存在する。そのため、大気中の全粒子と霧の濃度和は、霧発生に伴い、ガス状物

質が粒子や霧に取り込まれたために増加していたと考えられる。

一方、 Na^+ と NO_3^- の粗大粒子中濃度は、霧発生時に大きく減少した。 Na^+ の粗大粒子からの減少量は、 24 neq m^{-3} であり、霧水中の濃度は、 2.4 neq m^{-3} であった。霧水中 Na^+ 濃度の上昇に比べて、この粗大粒子からの減少量は大きかった。粗大粒子が霧粒へ成長することにより霧粒中へ移行し、同時に一部が沈着により失われたと考えた。 NO_3^- も海上では粗大粒子である海塩粒子と共存する (Matsumoto *et al.*, 2003)。事例1では、海塩より早く取り除かれていたが、12時間という除去に十分な時間がたったため (Sasakawa and Uematsu, 2002)、 NO_3^- は Na^+ と同様の挙動を示し、霧発生に伴い大気中から除去されたと考えられた。この Na^+ と NO_3^- の挙動は、粗大粒子が霧発生に伴い、沈着を起こす大きな霧粒に成長したためであると説明できる。

沈着によって減少した濃度は、粗大粒子の粒径範囲から微小粒子 ($<2.5 \mu\text{m}$) にも存在する。このため、霧未発生時と霧発生時の全粒子 (微小粒子と粗大粒子) 中濃度の差分から、霧粒中の濃度を差し引いて沈着によって減少した濃度を求めた。 Na^+ は 22 neq m^{-3} 、 NO_3^- は 4.8 neq m^{-3} となった。これから、霧未発生時に存在した Na^+ 濃度の74%、 NO_3^- 濃度の85%が霧粒として沈着除去されたと見積られた。

4. ま と め

北部北太平洋において、海霧の出現海域を航走観測し、海霧の化学成分とLWCの変化からエアロゾルと霧粒の関係や成長過程を以下のように明らかにした。

霧水中平均化学イオン成分の65%が海塩成分であり、非海塩成分では nss-SO_4^{2-} が10%を占めていた。また、全期間を通じて平均したLWCの粒径分布は、 $7.0 \mu\text{m}$ と $27.5 \mu\text{m}$ にピークを持つ二山型であり、陸上の霧と異なる粒径分布型を持つことがわかった。

エアロゾルが霧粒へと成長が始まる海霧発生海域の末端部で、LWCや霧水中の海塩成分濃度は、最大値を示し、LWCの粒径分布は、 $17.0 \mu\text{m}$ にピークを示した。中心部に向けて凝結核となった海塩粒子は減少し、霧水中の海塩成分は指数的に減少した。粒子個数の低い中心部では、LWCの粒径分布は $5 \mu\text{m}$ と $36.5 \mu\text{m}$ にピークをもつ二山型であった。

エアロゾルと海霧の化学成分から、微小粒子は霧発生時に粗大粒子にまで成長するが、沈着を起こすほど

大きな霧粒には成長しなかったことが明らかになった。一方、海塩成分や硝酸イオンを含む粗大粒子は霧発生に伴い霧粒の凝結核として大きく寄与し、霧生成とともに沈着がおこるため、70%以上が霧発生中に大気中から除去されたと見積った。

このように霧多発海域では、人為起源物質を含む陸起源や大気に放出された海洋生物起源の気体やエアロゾル物質を大気中から海洋へ除去している。今後、エアロゾル個数、発生する霧粒の粒径と化学成分などの相関から、下層雲としての雲粒の粒径変化の実証や、霧粒の生成・沈着フラックスの直接測定を通して、生物地球化学的循環への影響評価などを確立していく必要がある。

謝 辞

白鳳丸 KH-04-3次航海において藤田潮船長をはじめとする乗組員の支援や、乗船研究者の協力によって本研究を遂行することができた。関係者の皆様に感謝する。また、本研究は科学研究費補助金基盤研究 (16204044) の助成を受けたものである。

引用文献

- Adhikari, M., Ishizaka, Y., Minda, H., Kazaoka, R., Jensen, J. B., Gras, J. L. and Nakajima, T. (2005) Vertical distribution of cloud condensation nuclei concentrations and their effect on microphysical properties of clouds over the sea near the southwest islands of Japan. *Journal of Geophysical Research* **110** (D10), D10203 doi: 10.1029/2004 JD004758.
- Bator, A. and Collett, J. L. (1997) Cloud chemistry varies with drop size. *Journal of Geophysical Research* **102**, 28071–28078.
- Burkard, R., Butzberger, P. and Eugster, W. (2003) Vertical fogwater flux measurements above an elevated forest canopy at the Lageren research site, Switzerland. *Atmospheric Environment* **37**, 2979–2990.
- Collett, J. L., Hoag, K. J., Sherman, D. E., Bator, A. and Richards, L. W. (1999) Spatial and temporal variations in San Joaquin Valley fog chemistry. *Atmospheric Environment* **33**, 129–140.
- Hudson, J. G. and Svensson, G. (1995) Cloud microphysical relationships in California marine

- stratus. *Journal of Applied Meteorology* **34**, 2655–2666.
- Hudson, J. G. and Yum, S. S. (1997) Droplet spectral broadening in marine stratus. *Journal of the Atmospheric Science* **54**, 2642–2654.
- Hudson, J. G. and Yum, S. S. (2001) Maritime-continental drizzle contrasts in small cumuli. *Journal of the Atmospheric Science* **58**, 915–926.
- IPCC. (2007) Climate Change 2007: The Physical Scientific Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change. <http://www.ipcc.ch> (21 May 2007).
- Matsumoto, K., Uyama, Y., Hayano, T., Tanimoto, H., Uno, I. and Uematsu, M. (2003) Chemical properties and outflow patterns of anthropogenic and dust particles on Rishiri Island during the Asian Pacific Regional Aerosol Characterization Experiment (ACE-Asia). *Journal of Geophysical Research* **108** (D23), 8666, doi: 10.1029/2003 JD003426.
- Matsumoto, K., Kawai, S. and Igawa, M. (2005) Dominant factors controlling concentrations of aldehydes in rain, fog, dew water, and in the gas phase. *Atmospheric Environment* **39**, 7321–7329.
- Munger, J. W., Jacob, D. J., Waldman, J. M. and Hoffman, M. R. (1983) Fogwater chemistry in an urban atmosphere. *Journal of Geophysical Research* **88**, 5109–5121.
- Munger, J. W., Collet, J., Daube Jr., B. and Hoffmann, M. R. (1990) Fogwater chemistry at Riverside, California. *Atmospheric Environment* **24B**, 185–205.
- 村野健太郎 (1993) 酸性雨と酸性霧. 村野健太郎著, 裳華房, pp.179.
- Richartz, H., Reischl, A., Trautner, F. and Hutzinger, O. (1990) Nitrated phenols in fog. *Atmospheric Environment* **24A**, 3067–3071.
- Sasakawa, M. and Uematsu, M. (2002) Chemical composition of aerosol, sea fog and rainwater in the marine boundary layer of the northwestern North Pacific and its marginal seas. *Journal of Geophysical Research* **107** (D24), 4783, doi: 10.1029/2001 JD001004.
- Sasakawa, M., Ooki, A. and Uematsu, M. (2003) Aerosol size distribution during sea fog and its scavenge process of chemical substances over the northwestern North Pacific. *Journal of Geophysical Research* **108** (D3), 4120, doi:10.1029/2002 JD002329.
- Sasakawa, M. and Uematsu, M. (2005) Relative contribution of chemical composition to acidification of sea fog (stratus) over the northern North Pacific and its marginal seas. *Atmospheric Environment* **39**, 1357–1362.
- Twomey, S. (1977) Influence of pollution on the short-wave albedo of cloud. *Journal of the Atmospheric Science* **34**, 1149–1152.
- Wang, B. H. (1985) Distributions and variations of sea fog in the world, In: Sea Fog. (B. H. Wang), China Ocean Press, Beijing, pp. 51–90.
- Wrzesinsky, T. and Klemm, O. (2000) Summertime fog chemistry at a mountainous site in central Europe. *Atmospheric Environment* **34**, 1487–1496.