

成層圏エアロゾルの粒径分布

Size Distribution of Stratospheric Aerosols

岩坂 泰信、小林 愛樹智

Yasunobu IWASAKA, Aikichi KOBAYASHI

名古屋大学・水圏科学研究所

Water Research Institute, Nagoya University

I. 序論

成層圏エアロゾルの研究は1970年代に入って急速に進み、理論・観測・室内実験等から得られた結果をもとにして、不十分とは言え全体的なイメージが掴める所まで来ている。それ故、今後解決して行かぬばならぬ問題もかなり整理出来る状態にあると考えられる。成層圏エアロゾルのライダー観測のあり方も、この辺りで再検討を加え、新たな局面に向かう準備をするよい機会と考える所以である。

観測面ではJungeとその共同研究者によって始められた一連の直接採集を主体とした研究の流れがある^{1)~6)}。これらの研究ではエアロゾルの粒径分布や化学組成、構造に関する情報が得られたが、とりわけ化学組成や構造に関する情報は現在のところ、直接採集方式を通じてしか得られないものであり、今後リモートセンシングと並んでこの方面の研究では不可欠な手法であろう。エアロゾルの化学組成として考えられている濃硫酸液滴、硫酸アンモニウム粒子等のモデルは殆どこの方面の情報から得られたものであり、更にこれをもとに硫黄化合物のグローバルなサイクルやエアロゾルの生成等を考えることが可能になった点でも測り知れない程の価値ある情報を提供してきた。また、optical counterによって成層圏で直接エアロゾルを調べるという手法もある⁷⁾⁸⁾。この手法によれば直

接採集方式のサンプルが地上に持ち帰る間に変質する可能性があるのを克服することが出来る。こうした *in situ measurements* とは別にライダーによるリモートセンシングがある。エアロゾル層の動態を見ることによって、定常状態のイメージから時間変化をイメージするレベルへ、成層圏エアロゾル層の捉え方を変えさせた点でライダー観測の果たした役割は極めて大きいものである。更にはエアロゾルの層構造の実体を身近なものにしたのも矢張りライダー観測に負うところが大きいであろう^{9)~14)}。今日ではこれらの研究を通じて新たに解決すべき問題も大分整理されてきたように思われる。我々が考えているものはおおむね次のようなものである。

- 1) エアロゾル層の地球規模の分布、及びその時間的・空間的変動
- 2) エアロゾルが地球大気組成(気体成分)に与える影響
- 3) 地球大気の熱収支に与える影響
- 4) Nucleation 理論の精密化
- 5) イオン化学に与えるエアロゾルの影響

これらの問題は必然的に多点同時観測と多項目の同時観測を要請すると同時に、エアロゾルに関する種々の室内実験が必要になって来るように思われる。そして理論面では、よりミクロな視点と輸送現象を十分記述出来る力学像が要求されるようになる。ライダー観測も不十分とは言え、そのような方向を指向しつつあり、

SAGEといったプログラムも現在、進行中である¹⁵⁾。

ここでは火山を一つ取りあげ、その成層圏エアロゾル層へ及ぼす影響を考えたい。火山噴火は時として圏界面を破り、強いPerturbationを成層圏に与える。幸い、1974年に強力な火山噴火があり、“火山爆発を入力とした系(エアロゾル層)がどのように応答するか?”を吟味する。即ち、火山爆発を用いて成層圏エアロゾル層を支配している物理化学的プロセスを明らかにしようという訳である。特に我々はこの際、エアロゾル層の形態に加えて粒径分布関数についても併せて議論の対象とした。粒径分布関数は、今後ライダー観測によって十分リモートセンシング可能な物理量であることと、エアロゾルの物理化学的なプロセスを議論する上で大きな役割を果たすという点で我々は注目しているのである¹⁶⁾¹⁷⁾。

II. モデリングとその問題点

成層圏エアロゾル層の理論的研究としてのモデリングはその発見の最初期から簡単にはあるが行なわれて来たし¹⁸⁾、また所謂large particle($0.1 < r < 1.0 \mu\text{m}$)が成層圏起源であることも示唆されていた¹⁹⁾。その後、成層圏エアロゾルがgas-to-particle conversionによって生成されていることが²⁰⁾の測定などから確認された¹⁹⁾。そこでそのことを考慮に入れて SO_2 の酸化から成層圏エアロゾルの主成分であるsulfateを計算したモデルが作られた²⁰⁾²¹⁾²²⁾。しかしこれらのモデルは何れも粒子自身についてはその粒径分布も含めて、あまり情報を提供しているとは言えない。最近ではNASAのgroupによって、sulfur gasとしてCOSや、また粒径分布も充分考慮出来るようなモデルが提出されている¹⁶⁾¹⁷⁾。

成層圏エアロゾルに関する種々の話題の中で我々が特にその粒径分布を取り上げるのは、序論でも述べたように成層圏エアロゾルの粒径分布がリモートセンシングで測定可能な物理量であること以外にも、成層圏でのnucleationの問題、所謂homogeneous nucleationかheterogeneous nucleationかという問いに答える鍵に

もなっているからである。但し、この後者の方は特に粒径の小さな領域に関する問題であって、現在のところAitken particle($0.01 < r < 0.1 \mu\text{m}$)かそれ以下の粒径については測定が難しい或いは不可能に近いという状況なので、この辺の議論に関しては未だ推論の域を出ないと言える。この問題については最近のモデル¹⁶⁾¹⁷⁾²³⁾は何れも通常の成層圏の条件ではheterogeneous nucleationが卓越する²⁴⁾として計算を行なっている。

以上、成層圏エアロゾル層のモデリングの大概な歴史と粒径分布にまつる話題を挙げた。リモートセンシング可能な粒径の大きな方での分布関数は地球大気の熱収支にエアロゾルが及ぼす影響を知る上で重要であるうし、nucleation云々に関する小さな粒径では成層圏エアロゾル層それ自体の形成の問題やnucleation理論の精密化という点から見て興味あるところである。

現在行なわれているモデルでは上に述べた事柄と幾分重複する所もあるが、エアロゾルの生成に関しての地球物理化学的なプロセスとして、次のような問題点がまだ残っていると思われる。

1. 硫黄を含んだ大気化学システムが十分解明されたとは言えないこと。例えば最近問題にされ始めたCOSについても測定例がまだ少ないことなどがそうであるし、また H_2SO_4 蒸気の成層圏での分圧が測定出来ないということがある。

その他にも、 $\text{SO}_2 \rightarrow \text{SO}_4$ の変換がgas phaseで行なわれるのかdroplet中で行なわれるのかも興味ある問題である。

2. 窒素化合物と硫黄化合物との反応系に関する諸問題。

NO_x に関する問題としては H_2SO_4 と NO_x の反応²⁵⁾²⁶⁾や H_2SO_4 - HNO_3 - H_2O 系の問題²⁷⁾²⁸⁾が挙げられる。

NH_3 については、 NH_3 又は $(\text{NH}_4)_n(\text{H}_2\text{O})_m$ と H_2SO_4 、 SO_2 等の反応とそれに続くchemical nucleationの問題がある。

3. H_2SO_4 - H_2O 系でも特別な条件下ではhomogeneous nucleationの可能性が示唆されている。例えば十分に H_2SO_4 濃度が高ければ、homogeneous nucleation($10^5 \text{H}_2\text{SO}_4$ 分子/cc)や、ion-induced nucleation($10^6 \text{H}_2\text{SO}_4$ 分子/cc)が起こ

るとされている。

4. 宇宙塵、SST、Space ShuttleによるPerturbation については9)で取り扱われているが、火山によるPerturbationについては成層圏へinputされる SO_2 、 COS 、火山によって一次的及び二次的に生成される粒子の量や分布についての情報が十分であるとは言えない。

5. 輸送の問題については古くから云々されているが、結局現在のところ満足のいくような二次元モデルはない。これは成層圏での多次元的な拡散についてのモデルが不十分なことや、成層圏エアロゾルの空間的に次元の高い観測がやっと報告され始めたばかり¹⁰⁾であることなどがあるためである。しかし何れは地上からのライダー観測や、SAGE等によって成層圏エアロゾルのglobalな分布や輸送の問題がより確実なものになっていくであろう。

III. Case Study

この節では火山爆発による成層圏エアロゾル層へのPerturbation及びそのdecayについて、我々のモデル計算をもとにして話を進める。

我々のモデルでは重力沈降及び渦拡散による垂直輸送、凝集、凝結の4つの物理過程を考えている⁹⁾。 H_2SO_4 蒸気の分圧はPerturbationを受ける高度を除いては各高度で一様とした。平常の成層圏での値は $10^4 \sim 10^5$ H_2SO_4 分子/cc、Perturbationを受ける領域では $10^6 \sim 10^7$ H_2SO_4 分子/ccとおいた。

一例を図1に示す。実線は半径 $0.163 \mu\text{m}$ 以上の粒子を考え $16 \sim 20 \text{ km}$ に H_2SO_4 の分圧を 10^6 H_2SO_4 分子/ccとして与え、15日後の場合を計算したもので、その他の線はその状態から全領域を 10^5 H_2SO_4 分子/ccに下げた時、エアロゾル層の推移していく有様を示す。丁度360日後にはエアロゾル層は殆ど消失していて、これは成層圏エアロゾル層のlife timeが1年あまりであることと対応していると思われる。また粒径分布も変化するか(図2)、ここではhomogeneous nucleationの可能性や火山爆発によって噴き上げられたsilicate dust等については考慮せず、火山によらないで輸送されてきた粒子に H_2SO_4 蒸気

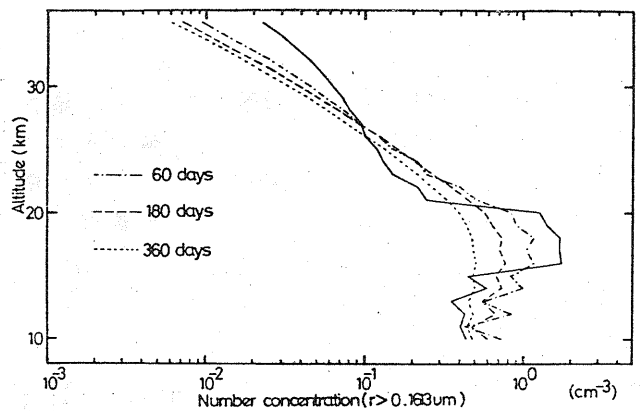


図1. 火山爆発後15日(実線)からのエアロゾル層のdecay

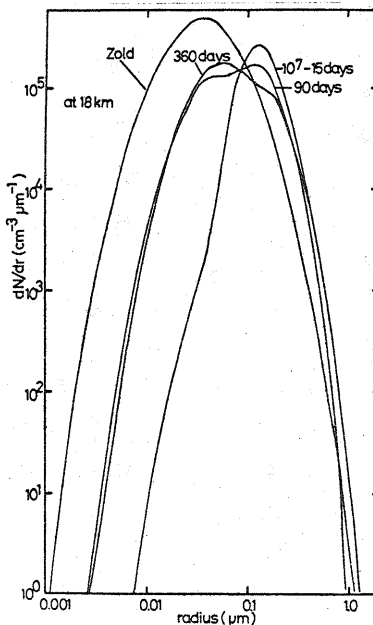


図2. 初期分布(Zold) 火山爆発後15日 ($10^7 \sim 15$ days) とそれからの粒径分布関数の変化

が凝結をおこすとして計算しているの、火山爆発の影響が残っている期間は現実との間に幾分ズレがあるかも知れない。実際は、火山爆発によって成層圏に注入されたsilicate dustの量や COS 、 SO_2 等の硫黄を含んだgasの量が或る地点、ある高度でどのくらいに見積ってよいかわからないが、これらの量が分かれば成層圏でのsulfate particleの収支や到達したエアロゾル層の持続期間もよりよく評価出来るようになると思う。そのためにはより充実した観測と室内実験による基礎的なデータが要求される。

IV. 結い

以上、火山爆発による成層圏エアロゾル層の Perturbation の問題を中心として議論を進めて来た。火山爆発によって成層圏へ注入された粒子、或いは注入された gas によって成層圏で二次的に生成された粒子は注入直後には heating の効果を持つが、その後は大粒径の粒子(主に silicate dust)が沈降するにつれ cooling へと転じ、結果としては火山の影響が現われる期間を通してみれば地球表面の気温を下げる効果がある³⁰⁾という研究もあり、気候変動の立場からこの問題は関心を持たれているところである。また、実際に火山爆発が地球表面の気温を下げたという報告もなされている³¹⁾。

成層圏エアロゾル層に関連するリモートセンシング可能な要素としては、エアロゾルそれ自体と等つかの gas 成分がある³²⁾。特に成層圏の水蒸気量は地球大気の熱収支に影響を与える因子でもある³³⁾、エアロゾルの生長にも少し関与する。その他の gas 成分としては、エアロゾルに関連して SO₂ (COS は可能か?)、熱収支に依り O₃ とオゾン層破壊の元凶とみられている NO_x (その他にも CFM など) なども併せての多成分同時観測が今後必要となつてこよう。

Reference

1. Junge, C.E. et al. (1961) J. Meteor., 18, 81-108
2. Mossop, S.C. (1965) Geochem. Cosmochem. Acta, 29, 201-207
3. Bigg, E.K. et al. (1970) Tellus, 22, 550-563
4. Lazrus, A.L. (1971) J.G.R., 76, 8083-8088
5. Friend, J.P. (1966) Tellus, 18, 465-473
6. Farlow, N.H. & Ferry, G.V. (1979) J.G.R., 84, 733-743
7. Hofmann, D.J. et al. (1975) J.A.S., 32, 1446-1456
8. Gras, J.L. & Michael, C.G. (1979) J.A.M., 18, 855-860
9. Grams, G. & Fiocco, G. (1967) J.G.R., 72, 3523-3542
10. Kent, G.S. et al. (1967) J. Atmos. Terr. Phys., 29, 169-181
11. Russell, P.B. (1976) Quart. J. Roy. Met. Soc., 102, 675-695
12. Hirono, M. et al. (1975) Can. J. Chem., 52, 1560-1568
13. Iwasaka, Y. (1977) J. Meteor. Soc. Japan, 55, 457-463
14. Clemensha, B.R. & Simonich, D.M. (1978) J.G.R., 83, 2403-2408
15. SAGE GROUND TRUTH PLAN (1979) Russell, P.B. (ed.) SRI Project 6590
16. Turco, R.P. et al. (1979) J.A.S., 36, 699-717
17. Toon, O.B. et al. (1979) J.A.S., 36, 718-736
18. Friedlander, S.K. (1961) J. Meteor., 18, 753-759

19. Castleman, A.W., Jr. et al. (1974) Tellus, 26, 222-234
20. Harker, A.B. (1975) J.G.R., 80, 3391-3401
21. Harrison, H. & Larson, T. (1974) J.G.R., 79, 3095-3097
22. Junge, C.E. (1974) Proceedings of International Conference on Structure, Compositions and General Circulation of the Upper and Lower Atmosphere and Possible Anthropogenic Perturbations, Jan. 14-25, Melbourne, Australia Vol. I, 85-100
23. Rosen, J.M. et al. (1978) J.A.S., 35, 1304-1313
24. Hamill, P. et al. (1977) J.A.S., 34, 150-162
25. Farlow, N.H. et al. (1978) J.G.R., 83, 6207-6211
26. Castleman, A.W., Jr. et al. (1975) 4th Conference on CIAP
27. Kiang, C.S. et al. (1975) Geophys. Res. Lett., 2, 41-44
28. Mohnen, V.A. (1975) 4th Conference on CIAP
29. Hamill, P. et al. (1977) J.A.S., 34, 1104-1119
30. Pollack, J.B. et al. (1976) J.G.R., 81, 1071-1083
31. Yamamoto, R. et al. (1977) Arch., Met. Geophys. Biokl., B, 25, 105-115
32. Manabe, S. & Wetherald, T. (1967) J.A.S., 24, 241-259