HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	大気汚染物質の海洋への輸送 (そのIII) : 海洋上へ流出したエーロゾルの除去過程に及ぼす海塩粒子の効果に関する数値実験
Author(s)	村上, 正隆; 遠藤, 辰雄
Citation	環境科学 : 北海道大学大学院環境科学研究科紀要, 4(2), 191-196
Issue Date	1982-03-25
Doc URL	http://hdl.handle.net/2115/37124
Type	bulletin (article)
File Information	4(2)_191-196.pdf

Instructions for use

Hokkaido University Collection of Scholarly and Academic Papers : HUSCAP

環境科学（北海道大学）	4 (2)	191～196	1981・9月

大気汚染物質の海洋への輸送（その III）

——海洋上へ流出したエーロゾルの除去過程に及ぼす海塩粒子の効果に関する数値実験——

村上正隆・遠藤辰雄
北海道大学大学院環境科学研究科気象学研究室

Transport of Air Pollutant to the Ocean: Part III

— Numerical Experiment of the Effect of Sea-salt Particles on the Removal Processes of Aerosols Spreading over the Ocean —

Masataka Murakami and Tatsuo Endoh
Laboratory of Meteorology, Divison of Environmental Structure, Graduate School of Environmental Science, Hokkaido University, Sapporo, Japan, 060

はじめに

人間活動に伴って大気中に放出されるエーロゾルが，将来，地球上のエーロゾル濃度にどのような変化をもたらし，ひいては気候変動をもたらすかを研究する上で，エーロゾルの消滅過程を明らかにする必要がある。大気中のエーロゾルは，最終的には地球表面に沈着することによって消滅するので，地球表面の約7割を占める海洋での消滅過程を抜きにしては地球全体での消滅過程を論ずることが出来ない。

海上へ流出したエーロゾルは拡散により希釈され，同時に凝集により数濃度を減少させながら粒径を増大していく。最終的には，大きな粒子は重力沈降により海面へ，重力沈降が有効でない小さな粒子は渦拡散によりエーロゾルの濃度境界層の上面まで運ばれ，その後はエーロゾル自身の持つ拡散係数に従ってゆっくりと海面へ沈着，消滅する。又，降水現象に伴う wash-out 或は rain-out も消滅過程の1つである。これらの過程は陸上でも起こっており，海上に特有なものではないが，海上ではこれらの他に，海塩粒子との相互作用による消滅過程が期待される。海塩粒子は他のエーロゾルと較べて湿度変化に非常に敏感であり，湿度が80％を越えると急激に粒径が増大することが知られている (Junge, 1963)。このような性質から，一度，海塩粒子に付着したエーロゾルは湿度変化に伴い容易に海面へ沈降，消滅すると考えられる。

実際に，遠藤・村上 (1981) の海上での観測によれば，汚染大気中で採集した巨大海塩粒子によって作られる試薬フィルム上のハローの中心付近には，しばしば不透明な残留物が見い出され，エーロゾルの海塩粒子への付着併合が示唆された。

この論文では，エーロゾルの消滅過程に及ぼす海塩粒子の影響を評価するために簡単な数値実験を行ない，それから得た2, 3の知見を報告する。

1981年7月17日受理
Received 17 Jul. 1981

モ　デ　ル

海塩粒子がエーロゾルの消滅過程に及ぼす影響を明瞭にする為に，モデルを単純化し，海塩粒子とエーロゾルの間で起こる凝集作用を正確に見積るように努めた。このモデルでは陸上で発生したエーロゾルは拡散することなく海上へ流出し，陸起源のエーロゾル同志の凝集と，陸起源のエーロゾルの海塩粒子への付着によってエーロゾルは数濃度と粒径分布を変えながら海上を吹走していくものとした。又，10 ミクロン以上のエーロゾルは重力沈降の効果が顕著であることが知られているので，エーロゾル同志の凝集により成長し，10 ミクロンよりも大きくなったものは速やかに海面へ沈降し，消滅するものとした。海塩粒子は湿度変化に敏感で，湿度の高いところでは急速に粒径が増大し重力沈降により海面に消滅する為，陸起源のエーロゾルと較べてその lifetime は遥かに短いものと考えられる。このように lifetime の短かい海塩粒子は，絶えず発生，消滅を繰り返しており，これらの量がバランスして時間的に定常な粒径分布であるものとした。従って，一度，海塩粒子に付着したエーロゾルは，いずれ海塩粒子とともに海面へ運ばれるので，付着した時から消滅したものと扱うことができる。

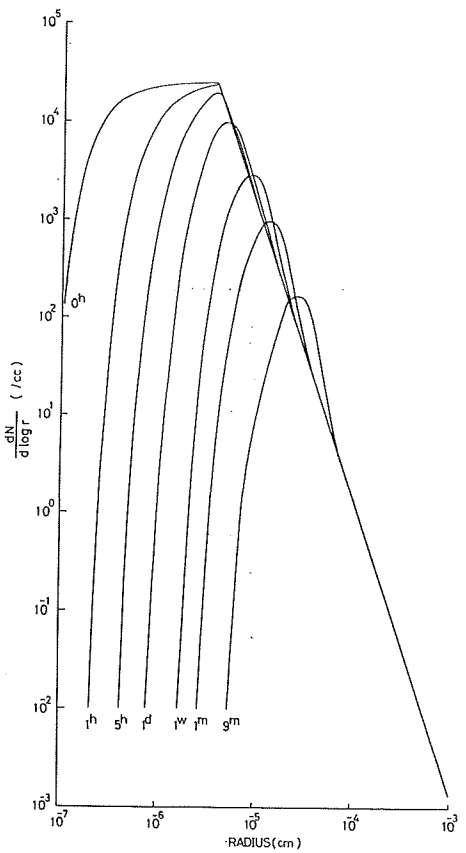

Fig. 1. Calculated change in the size distribution of aerosols due to coagulation without sea-salt particles. h: hours, d: days, w: weeks, m: months.

このモデルでは，陸起源のエーロゾルの粒径分布を Fig. 1 の 0_h の曲線で与えた。このときのエーロゾルの数濃度は 30,000 個/cc と陸上でよく見られる値を用いた。又，海塩粒子の粒径分布としては，Fig. 2 の曲線 A, B, C, D, C′, C″ の六通りを考えて数値実験を行なった。A は半分以上が半径1ミクロン以上の粒径範囲に存在し，その数濃度も 0.4 個/

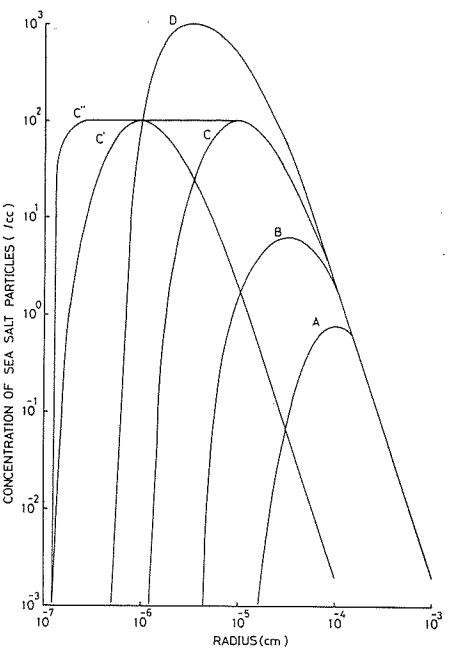

Fig. 2. Size distributions of sea-salt particles used in the numerical experiments.

cc と低い巨大海塩粒子の分布を想定したものである。近年，小野 (1976) や Radke *et al.* (1976) によって，これよりも小さな粒径でも海塩粒子の存在が報告されているので，それらに対応するものとして粒径分布 B, C を考えた。それぞれの数濃度は 5.2 個/cc と 68 個/cc である。残りの D, C′, C″ の分布は非現実的ではあるが，エーロゾルと海塩粒子の相互作用の性質を知る為の試行として，これらの分布を使った計算も行なった。D の数濃度は 830 個/cc で，C′ は C を粒径の小さい方へ 1 桁ずらせたもので，数濃度は C と同じである。C″ は C よりも粒径の小さい方へ幅広い分布を持ち，数濃度は 310 個/cc である。

計 算 手 順

エーロゾルの粒径分布は，半径 10^{-3} ミクロンから 10^{1} ミクロンまでを対数目盛で 100 等分し，100 の半径のエーロゾル数によって表現した。一方，海塩粒子の粒径分布は時間的に定常であると仮定しているので，それほど細く分割する必要がなく，10 の半径の粒子数で表現した。

半径 r_i と r_j のエーロゾル同志の凝集速度は次式より求めた。

$$\frac{dn(r_i, r_j)}{dt} = -4\pi(d_i+d_j)(r_i+r_j)\,n(r_i)\,n(r_j)\,dr_i\,dr_j$$

$$= -\frac{2}{3}\frac{kT}{\eta}\left[\frac{1}{r_i}+\frac{1}{r_j}+l\left(\frac{\beta_i}{r_i^2}+\frac{\beta_j}{r_j^2}\right)\right](r_i+r_j)\,n(r_i)\,n(r_j)\,dr_i\,dr_j$$

ここで d_i, d_j は，それぞれ半径 r_i, r_j の粒子の拡散係数，$n(r_i)\,dr_i$, $n(r_j)\,dr_j$ はそれぞれの粒径区分の中に含まれる粒子数である。k はボルツマン定数，T は絶対温度，η は空気の粘性係数，l は空気分子の平均自由行程，β はカニンガムの補正係数で

$$\beta_i = 1.26+0.40\exp(-1.10\,r_i/l)$$

で表わされる。

半径 r_i のエーロゾルと半径 r_l の海塩粒子の凝集 (付着) 速度は

$$\frac{dn(r_i, r_l)}{dt} = -4\pi(d_i+d_l)(r_i+r_l)\,n(r_i)\,n_0(r_l)\,dr_i\,dr_l$$

$$= -\frac{2}{3}\frac{kT}{\eta}\left[r_i+r_l+l\left(\frac{\beta_i}{r_i^2}+\frac{\beta_l}{r_l^2}\right)\right](r_i+r_l)\,n(r_i)\,n_0(r_l)\,dr_i\,dr_l$$

で与えられた。エーロゾル同志の場合の式とほとんど同じであるが，海塩粒子の粒径分布が時間的に定常を仮定しているので，粒子数を半径だけの関数 $n_0(r_l)$ とおいた。

半径 r_i のエーロゾルと半径 r_j のエーロゾルの間で 1 回凝集が起こると，半径 r_i と r_j の粒径区分からそれぞれ 1 個ずつエーロゾル粒子が減り，新たに 1 個のエーロゾル粒子ができるものとする。そして，その半径は

$$r = \sqrt[3]{r_i^3+r_j^3}$$

で与えられるものとする。しかし，エーロゾルと海塩粒子間の凝集では新たな粒子の生成はなく，凝集に関与したエーロゾル粒子が一方的に減るものとした。従って，半径 r_i のエーロゾルの濃度の変化率は

$$\frac{dn(r_i)}{dt} = \sum_{j=1}^{100}\frac{dn(r_i, r_j)}{dt} - \sum_{k=1}^{100}\frac{dn(r_k, \sqrt[3]{r_i^3-r_k^3})}{dt} + \sum_{l=1}^{10}\frac{dn(r_i, r_l)}{dt}$$

で表わされる。第一項は半径 r_i のエーロゾル粒子が他のエーロゾル粒子と凝集することによる減少率で，第二項は凝集によって半径 r_i の粒径が新たに生成されることによる増加率を示し，また第三項は半径 r_i のエーロゾル粒子が海塩粒子に付着することによる減少率を表わす。各粒径のエーロゾル濃度の時間的変化は前進差分を用いて計算した。又，限られた計算時間で粒径分布の長期間の変化を調べる為に，時間間隔 Δt (秒) は，粒径

分布の時間変化が最初に急激で，次第にゆるやかになることを考慮して

$$\Delta t = 10 \times 1.05^{N-1} \qquad (N=1, 2, 3, \cdots)$$

で与えた。

結　　果

まず最初に，海塩粒子が存在せず，陸起源のエーロゾルだけの場合の凝集作用による粒径分布の変化を示したのが Fig. 1 である。この図から半径が 10^{-2} ミクロン以下の小さなエーロゾルは，凝集により1日程度で急激に減少し，ほとんど存在しなくなる。しかし，それ以上の粒径のエーロゾルの減少は極めてゆっくりである。又，凝集作用は，1年程度ではミクロンサイズまで及ばないことが分かる。この時のエーロゾルの数濃度の時間変化を示したのが，Fig. 3 の一番右上の曲線である。これから，数濃度は最初の2～3日で急激に減少し，2日で初期濃度の10分の1の約3,000個/cc となり，それ以後は数濃度の減少は次第にゆるやかになってくることがわかる。海塩粒子が存在しない場合には，海洋上で観測された (Hogan, 1968; Kojima and Sekikawa, 1974) 代表的な値の300個/cc にまで減少するには，45日も要している。

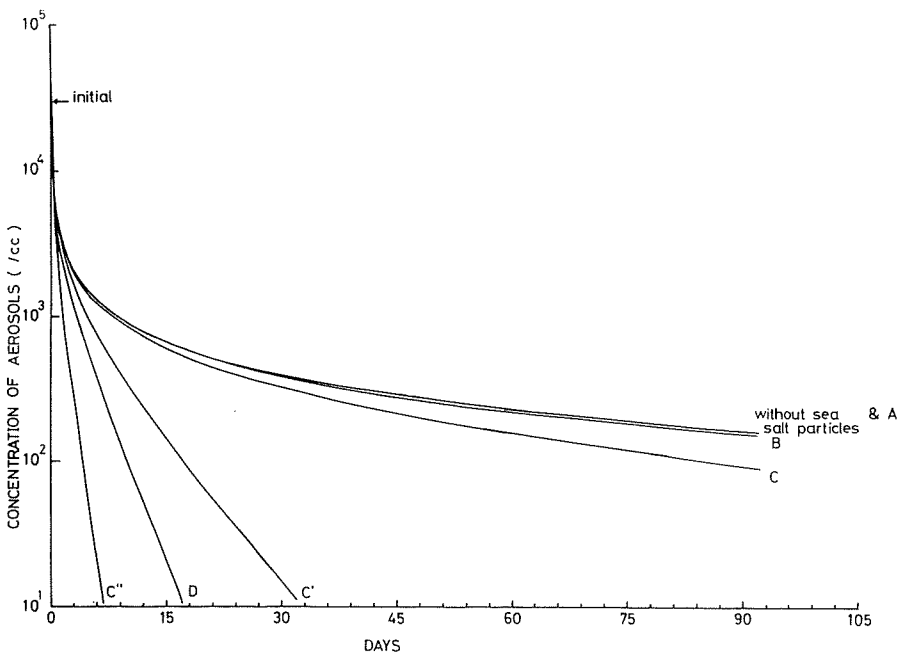

Fig. 3. Calculated changes in the concentrations of aerosols due to coagulation without sea-salt particles and with sea-salt particles of different size distributions.

次に海塩粒子が存在する場合について見てみる。海塩粒子の粒径分布が曲線 A で，ほとんどが巨大海塩粒子から成っていて，数濃度が0.4個/cc の場合は，ほとんど陸起源のエーロゾルだけの場合と同じで，図の上でも区別出来ないほどである。海塩粒子の粒径分布が曲線 B では，エーロゾル濃度が多少速く減少するが大きな差はない。曲線 C では，海塩粒子を含まない場合よりもかなりエーロゾル濃度の減少が速まり，海洋上での代表的濃度まで減少するには30日程度でよく，15日間短縮されることになる。海塩粒子の粒径分布が C′, D, C″ となるほどエーロゾルの減少は速められる。曲線 D の場合は，海洋上での代表的濃度に到達するのに7日

程度で十分である。

このようなことから，数濃度が 100～200 個/cc で粒径がサブミクロン領域にまで及ぶような海塩粒子の存在を仮定すると，初期濃度 30,000 個/cc の陸起源のエーロゾルが海洋上での代表的濃度 300 個/cc まで減少するのに要する時間は，海塩粒子が存在しない場合の半分以下に短縮されることが期待される。又，Fig. 3 よりエーロゾル濃度が 2,000～3,000 個/cc より低濃度で，海塩粒子の効果が顕著になることがわかる。

考　　察

この計算では，陸起源のエーロゾルと海塩粒子の相互作用を調べることに主眼をおき，渦拡散による希釈の効果を考慮しなかったので，エーロゾル数濃度の減少速度が過小評価されていることが考えられる。しかし，海上に流出するエーロゾルの発生源は全体的には太平洋沿岸の line source と考えられるので，横方向への拡散はそれほど効かないと思われる。又，海洋上では陸上ほどエーロゾル濃度の高度による差がない為，エーロゾルの鉛直上方への拡散も，エーロゾルの海上流出の初期以外はそれほど有効でないと思われる。これらと計算結果を考え合せると，初期濃度 30,000 個/cc 程度で海上へ流出するエーロゾルは，まずエーロゾル同志の凝集と拡散希釈によって 2,000～3,000 個/cc の濃度まで減少するが，更に海洋上での代表的濃度 300 個/cc 程度まで減少するには，海塩粒子が重要な役割をはたすものと考えられる。

渦拡散や凝集作用では直接にエーロゾルを大気中から消滅させることは出来ない。見掛け上，数濃度や粒径分布が変化するだけで，エーロゾルの大部分は依然として大気中に存在するのである。従って，エーロゾルを地球表面に沈着させる過程を考えるならば，海塩粒子の役割の有効性が重要視されねばならない。

今回仮定した海塩粒子の粒径分布は海面上数メートル，或は，それより上方で測定された値を参考にしているが，もっと海面に近い所では半径 10 ミクロンを越えるようなものも含めて，より数多くの海塩粒子の存在が期待される。特に海が荒れて白波が立つような状況では，海塩粒子濃度が急増し，これまで述べてきたようなエーロゾルと海塩粒子間の凝集が促進されるばかりでなく，沈降速度の大きな巨大海塩粒子によってエーロゾルが wash-out され，ここで計算した海塩粒子との相互作用よりも，更に大きな効果が期待される。

ま　と　め

海洋上に流出した陸起源のエーロゾルの消滅過程に及ぼす海塩粒子の効果を調べる為に，簡単な数値実験を行なった。

計算結果より，数濃度が 0.4 個/cc 程度の巨大海塩粒子の存在だけでは，陸起源のエーロゾル濃度の減少にほとんど効果がない。しかし，数濃度が数 10 個/cc を越え，その粒径分布がサブミクロン領域に及ぶようになると，効果が現われ始めることがわかった。海塩粒子が存在しない場合，初期濃度 30,000 個/cc の陸起源のエーロゾルが海洋上での代表的濃度 300 個/cc に減少するのに 45 日を要するが，100～200 個/cc の海塩粒子が存在する場合には半分以下の日数で，この濃度に到達することがわかった。

最初，陸起源のエーロゾルが高濃度で局在する時には，その濃度の減少には，拡散やエーロゾル同志の凝集の方が効くと考えられる。しかし，エーロゾル濃度が 2,000～3,000 個/cc まで減少すると，これら 2 つの効果は鈍り，代わりに海塩粒子との相互作用の方が有効となり，更に海洋上での代表的濃度まで減少させるものと思われる。

最後に，これらの海塩粒子の効果をより正確に評価する為にも幅広い粒径範囲にわたる海塩粒子の粒径分布と，それの海面上での鉛直分布の測定が望まれる。

謝　　辞

この数値実験のプログラム作成の際に，北海道大学理学部地球物理学科，今　久博士から有益な助言を戴いた。また，研究費は文部省科学研究費補助金（特定研究「海洋環境保全の基礎的研究」課題番号 210504）によった。研究代表者の東京大学海洋研究所，浅井冨雄教授の御指導と御援助を戴いた。これらに対して，著者らは心からの感謝の意を表す。

文　　献

遠藤辰雄・村上正隆 (1981): 大気汚染物質の海洋への輸送（その I). —日本列島北東部太平洋沿岸海上の凝結核と巨大海塩粒子の測定—, 環境科学, **4**, 173–183,

Hogan, A. W. (1968): Experiments with Aitken counters in maritime atmospheres. J. Rech. Atmos., **3**, 53–57.

Junge, C. E. (1963): Air Chemistry and Radioactivity. Academic Press, 382 pp.

Kojima, H. and T. Sekikawa, (1974): Some characteristics of background aerosols over the Pacific Ocean. J. Meteor. Soc. Japan, **52**, 449–505.

小野　晃 (1976): 南鳥島におけるサブミクロンエーロゾルの性状について. 日本気象学会講演予稿集, **30**, p. 154.

Radke, L. F., P. V. Hobbs and J. E. Pinnos (1976): Observations of cloud condensation nuclei, sodium containing particles, ice nuclei and the light-scattering coefficient near Barrow, Alaska. J. Appl. Meteor., **15**, 982–995.

Summary

In order to estimate the effect of sea-salt particles on the removal processes of the continental aerosols which spread over the sea, the following numerical experiments were carried out.

On the sea, the coagulation between the continental aerosols and sea-salt particles is expected to be an important removal process. Therefore only the coagulation and the sedimentation were considered in the present study. The following results were obtained from numerical experiments.

If the concentration of sea-salt particles is lower than several particles/cc, they hardly have the effect on the removal of the continental aerosols. However they begin to exert the effect if the concentration of sea-salt particles is higher than several tens particles/cc. Without sea-salt particles, it takes 45 days to reach the representative concentration over the ocean (that is, 300 particles/cc) if the initial concentration of the continental aerosols is assumed to be 30,000 particles/cc. On the other hand, with sea-salt particles whose concentration is a few hundreds particles/cc, 20 days are sufficient to reach the representative concentration over the ocean.