



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ア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	https://hdl.handle.net/2115/37124
Type	departmental bulletin paper
File Information	4(2)_191-196.pdf



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ア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, Division 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アロゾルが、将来、地球上のエア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、エアロゾルの消滅過程を明らかにする必要がある。大気中のエアロゾルは、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。

海上へ流出したエア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アロゾルの濃度境界層の上面まで運ばれ、その後はエア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。海塩粒子は他のエア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ア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出され、エア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、エア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。

モデル

海塩粒子がエア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、海塩粒子とエア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アロゾルは拡散することなく海上へ流出し、陸起源のエアロゾル同志の凝集と、陸起源のエアロゾルの海塩粒子への付着によってエア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 ミクロン以上のエア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、エア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、陸起源のエア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アロゾルは、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。

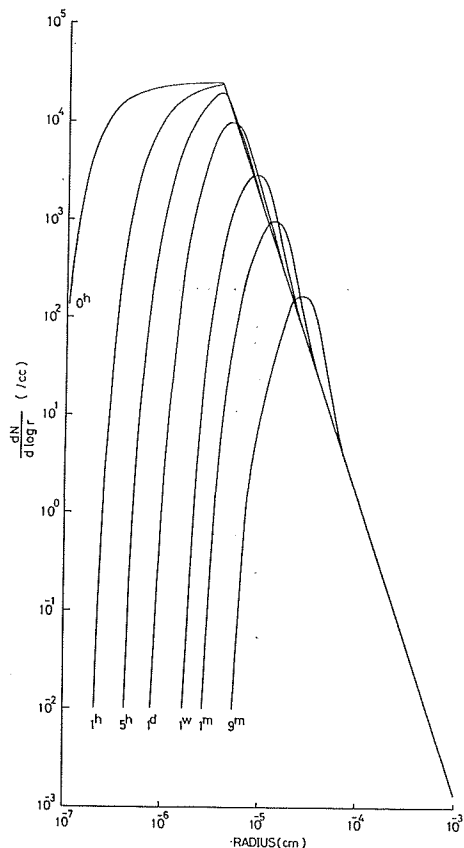


Fig. 1. Calculated change in the size distribution of aerosols due to coagulation without sea-salt particles. h: hours, d: days, w: weeks, m: months.

このモデルでは、陸起源のエアロゾルの粒径分布を Fig. 1 の $0h$ の曲線と与えた。このときのエアロゾルの数濃度は 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/

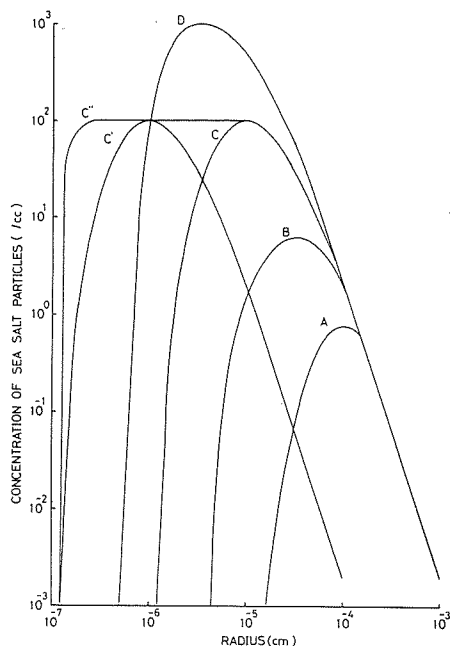


Fig. 2. Size distributions of sea-salt particles used in the numerical experiments.

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。

$$\begin{aligned}\frac{dn(r_i, r_j)}{dt} &= -4\pi(d_i + d_j)(r_i + r_j)n(r_i)n(r_j)dr_i dr_j \\ &= -\frac{2}{3} \frac{kT}{\eta} \left[\frac{1}{r_i} + \frac{1}{r_j} + l \left(\frac{\beta_i}{r_i^2} + \frac{\beta_j}{r_j^2} \right) \right] (r_i + r_j) n(r_i) n(r_j) dr_i dr_j\end{aligned}$$

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

$$\begin{aligned}\frac{dn(r_i, r_l)}{dt} &= -4\pi(d_i + d_l)(r_i + r_l)n(r_i)n_0(r_l)dr_i dr_l \\ &= -\frac{2}{3} \frac{kT}{\eta} \left[r_i + r_l + l \left(\frac{\beta_i}{r_i^2} + \frac{\beta_l}{r_l^2} \right) \right] (r_i + r_l) n(r_i) n_0(r_l) dr_i dr_l\end{aligned}$$

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 dt (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

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

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。

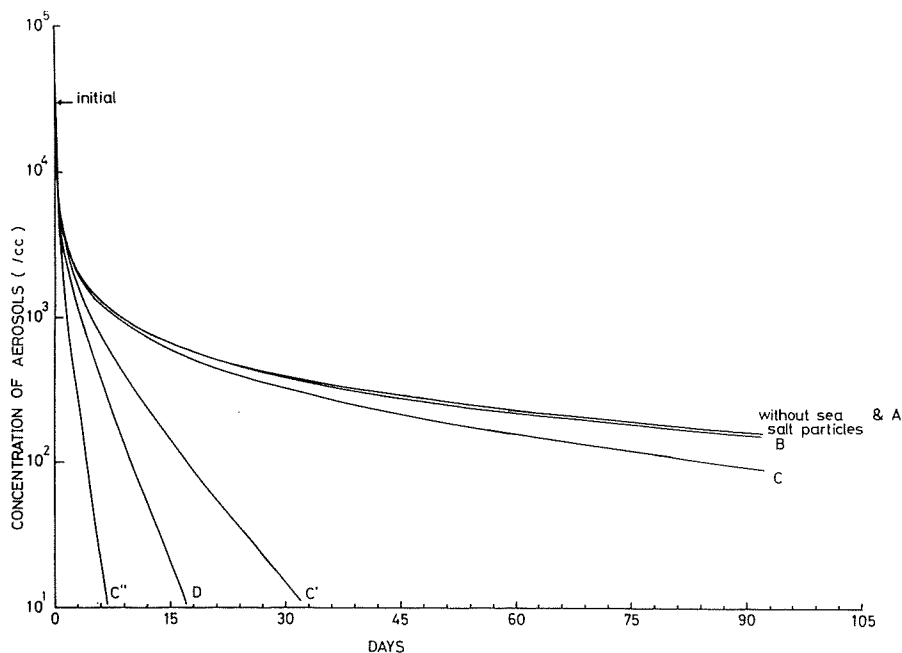


Fig. 3. Calculated changes in the concentrations of aerosols due to coagulation without sea-salt particles and with sea-salt particles of different size distributions.

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上に短縮されることが期待される。又、Fig. 3 よりエロゾル濃度が 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ため、エ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ロゾル濃度の高度による差がないため、エロゾルの鉛直上方への拡散も、エ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ロゾルは、まずエ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としているが、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、陸起源のエロゾル濃度の減少には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上の日数で、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、拡散やエロゾル同志の凝集の方が効くと考えられる。しかし、エロゾル濃度が 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、浅井富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). 一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一, 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ア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.