

# 極域エアロゾルシステムの動態に関する観測的研究

—2019年度日本気象学会賞受賞記念講演—

原 圭一郎\*

## 1. はじめに

この度、2019年度の日本気象学会賞を頂けたことを非常に光栄に存じます。これまでの研究、特に極域大気の観測的研究は、私、個人の力だけでは遂行できません。これまでに多大な支援と協力を頂いた多くの共同研究者、研究協力者の方々に深く感謝いたします。

私が極域大気エアロゾルの研究を始めたきっかけは、大学3年生時に卒業研究の配属先を選ぶ時にまで遡ります。当時、たまたま古本屋で入手した「南極越冬記 (西堀 1958)」を読んでおり、こんなに面白い世界があるのだと感じていた頃でした。偶然にも分析化学系の研究室に所属していた1学年上の先輩から、南極エアロゾルサンプルが届くことを耳にし、その研究室に入ることにいたしました。当初は、他の方が採取した試料を分析するラボ屋でした。しかしながら、やるほどに現場に観測へ行きたくもなり、その後、名古屋大学、極地研究所などで、北極や南極域のエアロゾル観測に携わる多くの機会を得ることができ、その結果、何とか観測屋として、現在に至っています。今回、受賞の対象となった研究は、この間に進めてきた一連の研究です。

本稿では紙面の都合から、我々が南極域で行ってきた観測的研究の結果を中心に紹介いたします。南極・北極エアロゾルの詳細については、個別の論文や総説(原 2003, 2010, 2017, 2018)を参照していただくと幸いです。

## 2. 南極対流圏中のエアロゾル

### 2.1 昭和基地におけるエアロゾルの季節変化

地球で最も清浄と考えられている南極域においても、エアロゾル数濃度やエアロゾル成分濃度は明瞭な季節変化を示しています(第1図)。第1図aに示した様に、凝結核 (Condensation Nuclei (CN):  $D$  (直径)  $> 10\text{nm}$ ) の数濃度は夏に高く、冬に低い変化を示しています。また、夏季には海洋生物活動起源の寄与の高いメタンスルホン酸イオン ( $\text{CH}_3\text{SO}_3^-$ ) や非海塩性 (nss-) 硫酸イオン ( $\text{SO}_4^{2-}$ ) 濃度が高く、冬季～春季には海塩成分濃度が高くなる季節変化を示していました(第1図b～d)。これらの季節変化を理解し、エアロゾルによる気候影響を理解するためには、エアロゾルの供給や沈着に関係する過程をまず理解していかなければなりません。

### 2.2 南極沿岸部における新粒子生成

夏季にCN濃度が高濃度を示す要因として、海洋生物活動由来の硫化ジメチル (DMS) の光酸化により生成する硫酸 ( $\text{H}_2\text{SO}_4$ ) の様な蒸気圧の低いエアロゾル前駆気体から新粒子が生成していることが指摘されています (Ito 1993; Asmi *et al.* 2010; Hara *et al.* 2011a; Kyrö *et al.* 2013; Weller *et al.* 2015; Enami *et al.* 2016)。夏季に実施された先行研究の観測では、新粒子生成は(海洋)境界層中で起きていることが示されていました (Asmi *et al.* 2010; Kyrö *et al.* 2013; Weller *et al.* 2015)。しかしながら、一般に、新粒子生成は既存のエアロゾル数濃度が低い環境の方が起きやすく、CN濃度はエアロゾル中の  $\text{CH}_3\text{SO}_3^-$  や nss- $\text{SO}_4^{2-}$  濃度がまだ低い春季 (9月) に増加を始めていました (第1図c, d)。そのため、境界層だけではなく、エアロゾル数濃度が低い自由対流圏でも、新粒子生成が進行している可能性も指摘されていましたが (例えば、Ito

\* 福岡大学理学部。

harakei@fukuoka-u.ac.jp

—2020年2月4日受領—

—2020年7月1日受理—

1993). 直接的な証拠は得られておりませんでした.

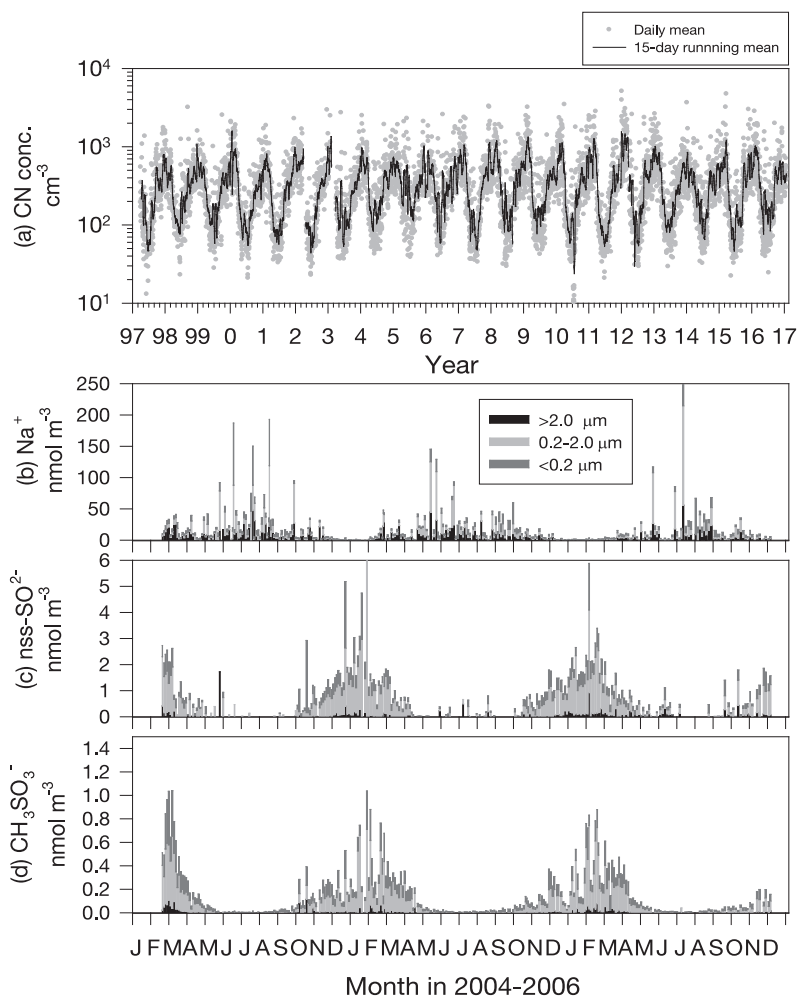
エアロゾルの鉛直分布とその季節変化を捉えるため、第45次南極地域観測隊 (Japanese Antarctic Research Expedition (JARE) 45) で有人航空機観測 (Osada *et al.* 2006) を、JARE46で、係留気球を用いたエアロゾル観測を通年で27回実施しました (第2図, Hara *et al.* 2011a). この観測から、9~3月においては、境界層内よりも自由対流圏下部でCN数濃度が高くなるのが頻繁に出現することがわかりました. さらに、CN数濃度が高くなる高度では、既存粒子数濃度も明瞭に低くなっており、自由対流圏でも新粒子生成が進行していることが示唆されました. 我々の実施

した観測が、南極の自由対流圏でも新粒子生成が進行していることの直接的な観測的証拠として認められ、近年、南極自由対流圏で進行する新粒子生成も議論されるようになってきています (例えば, Humphries *et al.* 2016).

## 2.3 極域の海塩・ハロゲンサイクル

### 2.3.1 海塩粒子の起源と海塩組成分別

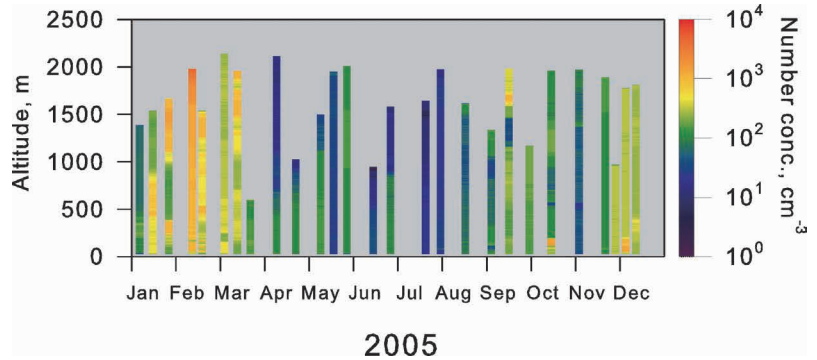
エアロゾル前駆気体は光化学反応により生成するため、日射量が小さくなる冬季~春季はCN数濃度が下がります. しかしながら、冬季~春季においても夏季と同程度のCN数濃度まで増加することがあります. 冬季~春季の高エアロゾル濃度は、主に地吹雪の発生



第1図 南極昭和基地で観測された凝結核 (CN:  $D > 10\text{nm}$ ) 数濃度の季節変化 (a), エアロゾル中の  $\text{Na}^+$  濃度 (b),  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  濃度 (c),  $\text{CH}_3\text{SO}_3^-$  濃度 (d) の季節変化.

する荒天時に対応していましたが、荒天ではなくてもエアロゾル数濃度が高くなる事例もありました。このような状況では、地吹雪や霧が発生していないにも関わらず、清浄な南極域で視程が5～6 km 程度まで下がっていました(第3図)。北極域には人為起源エアロゾルによる北極ヘイズが冬季～春季に出現することが知られていますが、清浄な南極域では南極ヘイズは出現しないと考えられていました(例えば, Shaw 1995)。我々がJARE45-47に実施した集中観測でこの現象を確認するまで、南極域では公式な報告はありませんでした。この現象を南極ヘイズとして、その詳細の解析を進め、すべての粒径域でエアロゾルの主成分は海塩粒子であることを報告いたしました(Hara *et al.* 2010)。

では、大気中に存在する海塩粒子の起源は何でしょうか？ 低～中緯度域では、海塩粒子は海水中の泡や波の破碎により大気へ放出されます(例えば, Lewis and Schwartz 2004)。しかし、昭和基地から海水縁までの距離は、夏季には約100km, 冬季～春季に



第2図 南極昭和基地上空で観測されたCN濃度鉛直分布とその季節変化。(Hara *et al.* 2011a を改訂)



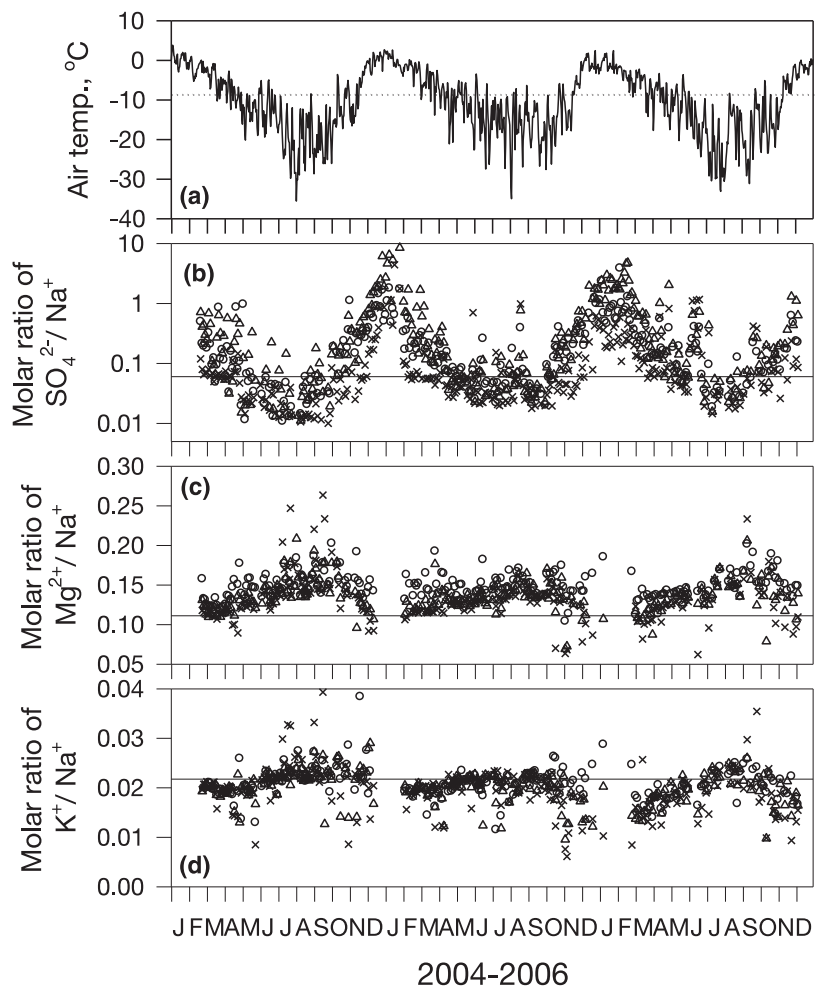
第3図 (上) 南極ヘイズ時の昭和基地周辺の様子(2005年8月11日), (下) 南極ヘイズ後の様子(2005年8月12日). 図中の赤印は昭和基地の北側に位置する岩島を示す。(Hara *et al.* 2010)

は約1000kmにまで達するため、輸送中の沈着過程も考慮すると開水域で放出された海塩粒子の輸送だけでは、昭和基地で観測された視程低下・南極ヘイズ（第3図）をもたらすような海塩粒子の濃度増加は説明できません。

昭和基地で採取されたエアロゾル成分の組成比（第4図）を見ると、4～10月の $\text{SO}_4^{2-}$ /ナトリウムイオン( $\text{Na}^+$ )比は海水組成比を大きく下回り、逆にマグネシウムイオン( $\text{Mg}^{2+}$ )/ $\text{Na}^+$ 比は海水比より高くなっていました。この変化は、冬季～春季にのみ形成される単年の海水（以下、季節海水）上で進行する海塩組成分別と関係しています。海塩組成分別は、各海塩成分の溶解度の違いによりブライン（Brine：濃縮海水）中の塩が析出し、海水に固定されることで進行していきます（Wagenbach *et al.* 1998；Marion *et al.* 1999；Koop *et al.* 2000；Osada *et al.* 2001；Hara *et al.* 2012, 2017）。また、我々の観測から、エアロゾル中の海塩成分濃度比には温度依存性があることも確認され、Mirabilite ( $\text{Na}_2\text{SO}_4 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$ )、Hydrohalite ( $\text{NaCl} \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ) が析出する約 $-9^\circ\text{C}$ 、 $-23^\circ\text{C}$ で、 $\text{Mg}^{2+}/\text{Na}^+$ 比などの海塩成分濃度比が大きく変化するという結果が得られています（Hara *et al.* 2012）。エアロゾル中の海塩成分濃度比は飛雪中の組成比とよく一致していました（Hara *et al.* 2018）。さらに、グリーンランド北西部の季節海水域で実施したエアロゾル、海水上に形成される氷の結晶（以下、フロスタフラワー）、積雪などの観測からも、同様の傾向が確認されました。季節海水上で実

施した観測から、季節海水上の海塩組成分別や海塩粒子放出に関する仮説を提案することができました（Hara *et al.* 2017）。これらの観測事実から、冬季～春季に南極沿岸部に存在する海塩粒子の多くは、開水域からではなく、海水域から大気へ供給されていることが示されました。

エアロゾル粒子の組成分析の結果、季節海水上の海塩組成分別により組成比（例、 $\text{Mg}/\text{Na}$ 比）が変化した海塩粒子が全粒径域で確認されました（Hara *et al.* 2005, 2010, 2012）。海塩粒子の粒径分布を確認するため、SMPS（Scanning mobility particle sizer）を用い



第4図 南極昭和基地の気温 (a) とエアロゾル中の濃度比 ((b)  $\text{SO}_4^{2-}/\text{Na}^+$ , (c)  $\text{Mg}^{2+}/\text{Na}^+$ , (d)  $\text{K}^+/\text{Na}^+$ ) の季節変化。(a) 中の点線は Mirabilite が析出する温度を示す。(b-d) において、実線は海水中の組成比を、 $\times$ は $D$  (直径) $>2.0\ \mu\text{m}$ 、 $\Delta$ は $D=2.0-0.2\ \mu\text{m}$ 、 $\circ$ は $D<0.2\ \mu\text{m}$ の粒径域を示す。(Hara *et al.* 2012を一部改訂)

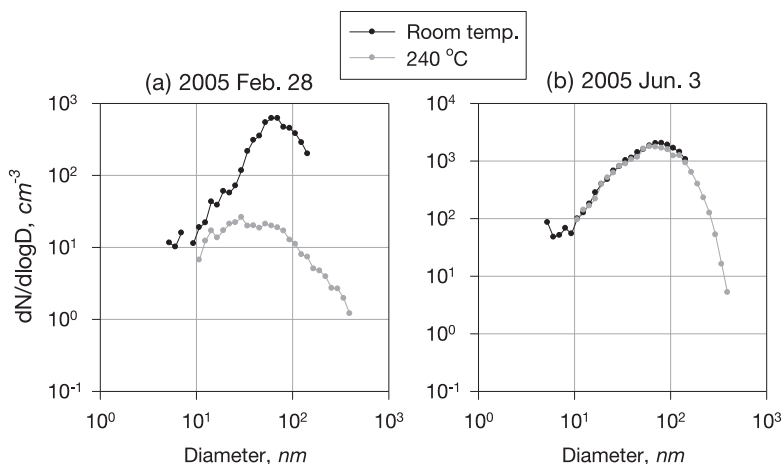
たエアロゾル粒径分布観測の結果と比較します。夏季には超微小域 ( $D$  (直径) $<100\text{nm}$ ) ~微小域 ( $D=100\text{nm}\sim 2\ \mu\text{m}$ ) では、硫酸粒子が主要となるため、大気を $240^\circ\text{C}$ に昇温するとほとんどの粒子が揮発してしまうのに対し、冬季～春季には非揮発性粒子が主になっていました (第5図: Hara *et al.* 2011b)。粒径分布から推定される冬季～春季の非揮発性粒子の質量濃度は、超微小粒子域に分布する海塩成分濃度に相当していました。このことから、数濃度や粒径分布のみで海水起源の海塩粒子は超微小～微小域にも多く分布していることがはっきりしました。海水域からの海塩粒子の放出過程としては、強風下の海氷上に形成するフロストフラワーの破碎や塩分の高い積雪の削剝が重要となります (例えば, Hara *et al.* 2017)。最近では、海水から大気へ放出された海塩成分を含む飛雪が大気中を拡散しながら昇華することにより海塩粒子化する過程も検討されていますが (Yang and Cox 2008; Yang *et al.* 2019)、飛雪の昇華のみで超微小域の海塩粒子が形成し得るか否かについては、まだはっきりしていません。海水域からの海塩粒子の放出過程については、今後の観測的・実験的研究が強く求められています。

バルクで見ると、海塩組成別によって、冬季～春季の海塩粒子中の成分比は、海水中の海塩組成比から大きく変わっていました (第4図)。個別粒子レベルで見ると海塩成分の組成比がより大きくばらついていることがわかります (第6図, Hara *et al.* 2013)。特に冬

季には、ナトリウム (Na) 塩というよりはマグネシウム (Mg) 塩に近い組成比を有する海塩成分も多数確認されています。この組成比変化は海塩粒子の吸湿特性に大きな影響を及ぼし得るため、海塩粒子上の不均一反応や、その大気化学過程への寄与を評価する際には、この組成比の不均一性も考慮しないと正確な評価が行えません。海水起源の海塩粒子の役割やその寄与を定量的に求める際には、この多様性も考慮していくことが重要になってくると考えられます。

### 2.3.2 海塩粒子の鉛直分布

南極沿岸域における海塩粒子の鉛直輸送・拡散を理解するために、これまでに紹介してきた様な地上観測に加え、Light Detection and Ranging (LIDAR) や気球を併用した集中観測を昭和基地で実施いたしました (第7図, Hara *et al.* 2014a)。2012年9月5～7日の事例では、9月5日の夕方頃に地上エアロゾル数濃度が南極ヘイズの条件に相当するレベルに達しました。地上のエアロゾル数濃度が増加する数時間前には昭和基地上空でもエアロゾル後方散乱比が増加しはじめていました。さらに、エアロゾル後方散乱比が高い層は、境界層だけではなく、自由対流圏である約 $4.5\text{km}$ の高度まで分布していました。この地上から $4\text{km}$ あたりまでのエアロゾル層の各高度から計算した120時間後方流跡線解析結果を見ると、海水域の境界層から1～3日以内に昭和基地上空の自由対流圏まで、エアロゾルが鉛直輸送されていることがはっきりしました。2012年の観測では、上空でエアロゾルの直接サンプリ



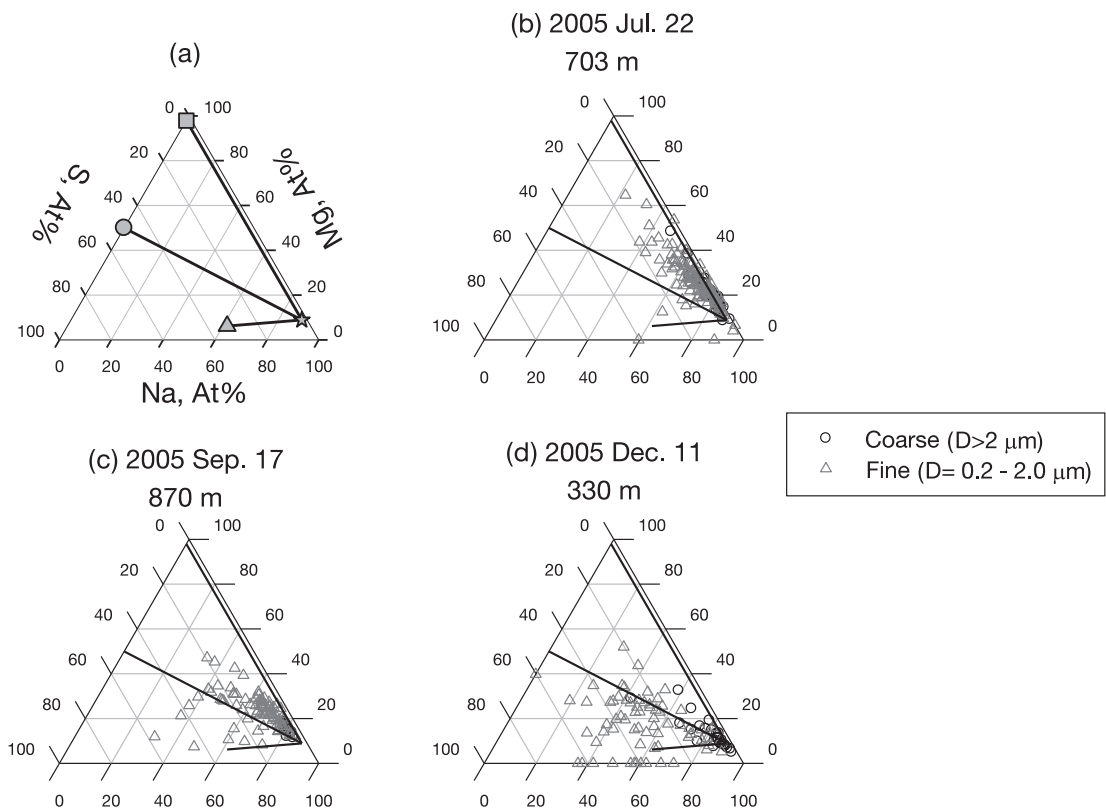
第5図 南極昭和基地で観測された非加熱 (室温: 約 $20^\circ\text{C}$ ) と加熱時 ( $240^\circ\text{C}$ ) のエアロゾル粒径分布: (a) 2005年2月28日, (b) 2005年6月3日. (Hara *et al.* 2011b を一部改訂)

ングは実施しておりませんが、昭和基地上空で実施した有人航空機観測 (Hara *et al.* 2006; 原ほか 2010) や 2005年に実施した係留気球観測で得られた結果では (Hara *et al.* 2011a, 2013), 自由対流圏にも海塩粒子が分布しているだけではなく、冬季～春季の海氷域から空気塊が輸送される時には、昭和基地上空でも海氷起源の海塩粒子が支配的になっていました。これらの観測的証拠を考慮すると、第7図の事例でも海氷域から放出された海塩粒子が自由対流圏へ大量に分散されていることが強く示唆されます。9月7～8日の様に (第7図), 自由対流圏のエアロゾル濃度はバックグラウンド状態では非常に低いため、海塩粒子の自由対流圏の鉛直輸送は、雲核 (Cloud Condensation Nuclei: CCN) や氷晶核 (Ice Nucleating Particles: INPs) の供給過程としても重要となります。また、海塩粒子上

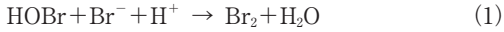
の不均一反応を介し、海塩・ハロゲンの関係する大気化学過程が南極の自由対流圏でも重要な役割を果たしていることも予想されます。しかしながら、現状では、海塩粒子の鉛直拡散の観測例は非常に限定されているだけではなく、モデルを用いた解析に含まれていないため、今後、研究を進め、海塩粒子の鉛直混合の寄与を評価していく必要があります。

### 2.3.3 海塩粒子とハロゲンサイクルの関係

大気中に分散された海塩粒子や海氷積雪表面・フロストフラワー中のハロゲン成分 (例、臭化物イオン ( $\text{Br}^-$ )) は、気相中に存在する次亜臭素酸 ( $\text{HOBr}$ ) や一塩化臭素 ( $\text{BrCl}$ ) と海塩表面で不均一反応をすることにより (式1～4), 臭素 ( $\text{Br}_2$ ) などの高反応性ハロゲン成分へ変換され、気相中に放出されることが知られています (例えば, Simpson *et al.* 2007)。



第6図 昭和基地上空で採取された海塩粒子のNa-Mg-Sの元素数組成比。(a)中の☆, □, △, ○印は各塩の組成比を示す: ☆印は海水比, □印は海塩中のNaが海塩組成別により完全にMgに置換した時の組成 (主成分は $\text{MgCl}_2$ ), △印は海塩粒子が不均一反応により $\text{Cl}^-$ と $\text{SO}_4^{2-}$ が完全に置換した時の組成比 (主成分は $\text{Na}_2\text{SO}_4$ ), ○印は上記の置換が同時に起きた時の組成比 (主成分は $\text{MgSO}_4$ )。 (b～d)中の○印は粗大粒子 ( $D > 2 \mu\text{m}$ ), △印は微小粒子 ( $D = 0.2 \sim 2.0 \mu\text{m}$ )の原子数比を示す。図中の太実線は成分の置換が化学量論的に進んだ際の組成比変化を示す。(Hara *et al.* 2013を一部改訂)

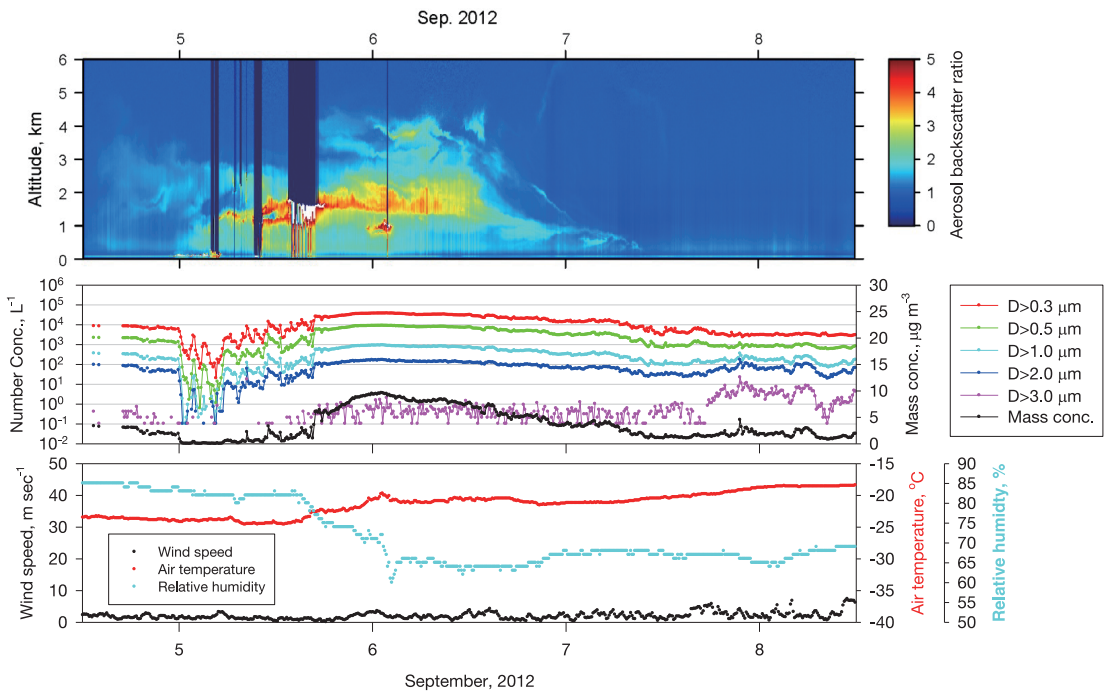


大気中に放出された高反応性ハロゲン成分（例， $\text{Br}_2$ ）は光解離し，ハロゲン原子（例，臭素原子（ $\text{Br}$ ））へ変換され，オゾン（ $\text{O}_3$ ）を消失させていくことになります（式5～6）。



反応（式5～6）による $\text{O}_3$ 消失現象は，春季北極域の地上近傍で観測され（Barrie *et al.* 1988），南極沿岸域や昭和基地でも観測されることがあります（Wessel *et al.* 1998；Hara *et al.* 2018）。上記の反応過程そのもの

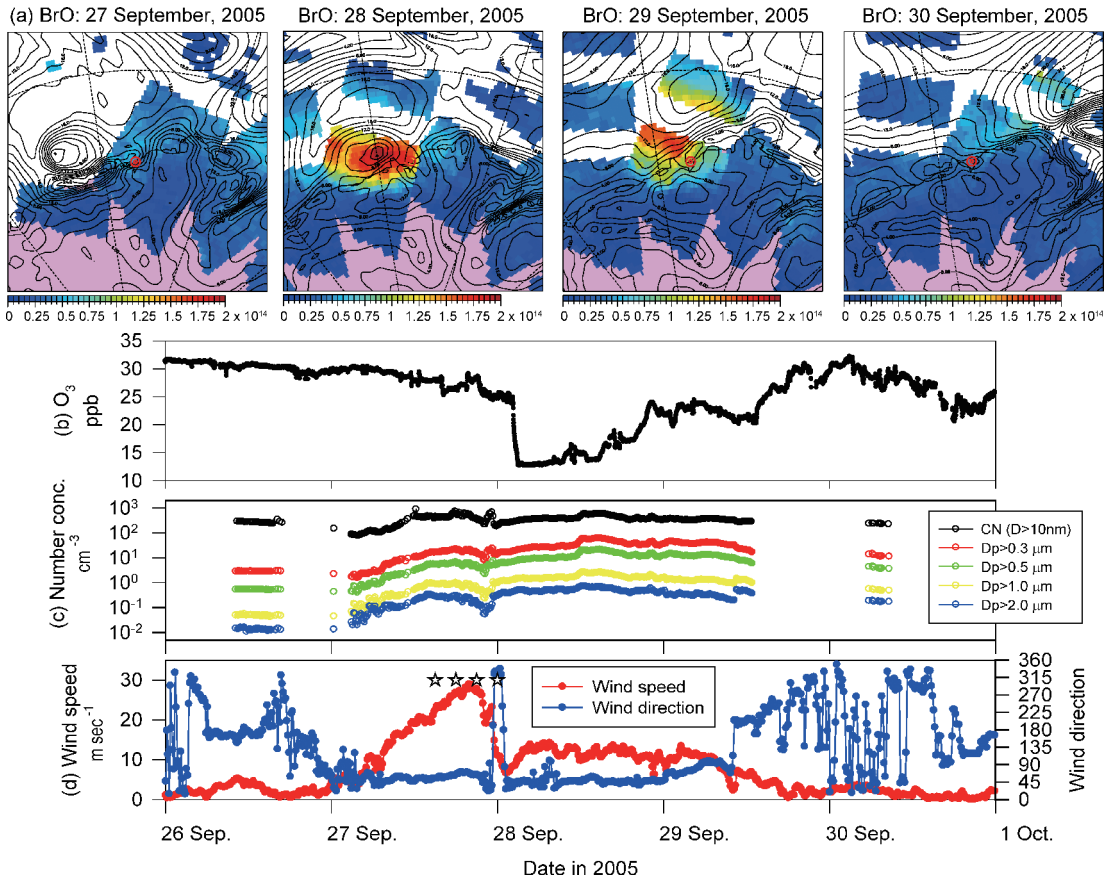
については，観測や室内実験などの先行研究でよく理解・検証がなされているものの（例えば，原 2017，2018），「どこに存在する海塩成分からのハロゲン放出が重要なのか？」が解明すべき課題となっていました。先行研究では，飛雪，フロストフラワー，海氷上の積雪中の海塩成分の不均一反応の寄与が指摘されています（例えば，Kaleschke *et al.* 2004；Sander *et al.* 2006；Yang *et al.* 2008；Jones *et al.* 2009；Lieb-Lap-pen and Obbard 2015）。第8図に2005年9月の観測例を示します（Hara *et al.* 2018）。低気圧の接近に伴い，2005年9月27日にブリザード（荒天）となり，地上風速は約 $30\text{m s}^{-1}$ に達し，大量の飛雪が観測されていました。強風による海氷上積雪の削剥に伴いエアロゾル数濃度の増加も確認されました。9月28日になると低気圧が急激に衰退し，風は急激に弱くなり，飛雪は観測されなくなりました。人工衛星（SCIAMACHY）で観測された昭和基地周辺の対流圏中の一酸化臭素（ $\text{BrO}$ ）量（Vertical column density:  $\text{VCD}_{\text{trop,BrO}}$ ）は，ほとんど増加しておりませんでした。人工衛星からの観測のため，雲が存在している際は， $\text{VCD}_{\text{trop,BrO}}$ 値の不確かさが高くなる恐れがありますが，地上 $\text{O}_3$ 濃度も



第7図 昭和基地上空のエアロゾル後方散乱比の鉛直分布変化（上段）と地上のエアロゾル数濃度・質量濃度（中段），気温・相対湿度・風速の変化（下段）。エアロゾル質量濃度はエアロゾル数濃度から球形を仮定し，粒子密度を $2.0\text{g cm}^{-3}$ として計算した。（Hara *et al.* 2014a を一部改訂）

ほとんど変化をしていませんでした。反応性ハロゲン濃度が高いときには、 $O_3$ 消失が進行し、 $O_3$ 濃度が減少するため、9月27日の荒天時には地上近傍のBrO濃度は高くなっていないことが伺えます。荒天後の9月28~29日午前中には、飛雪は全く観測されず、南極ヘイズに相当するほど、エアロゾル数濃度が高くなっていました。同時に $VCD_{trop, BrO}$ が昭和基地周辺の海水域で著しく増加していました。飛雪時にはBrO濃度は増加せずに、高エアロゾル濃度時に $VCD_{trop, BrO}$ が増加していたため、南極沿岸域では飛雪上の不均一反応の寄与は重要ではないことが強く示唆されます。この違いは、高反応性ハロゲンを放出させる反応(式1~2)は酸性条件で進むのに対し、飛雪の水素イオン指数(pH)は弱アルカリ性であることにも関係します(Hara *et al.* 2018)。

海塩エアロゾルの寄与を見積もるため、飛雪とエアロゾル中の海塩成分濃度と濃度比の比較を行いました(第9図, Hara *et al.* 2018)。飛雪とエアロゾル中の $SO_4^{2-}/Na^+$ 比を見ると、4~10月には、海水中の濃度比を大きく下回り、両者の濃度比とその季節変化がよく一致していることが分かります。この季節変化は、海水上でMirabiliteが析出する海塩組成分別に起因しています。この結果は4~10月の飛雪、エアロゾル中の海塩成分のほとんどは海水起源であることを意味します。MirabiliteやHydrohaliteの析出による海塩組成分別により、冬季~春季にかけての飛雪中の $Br^-/Na^+$ 比は海水比よりも高くなっていました。一方、エアロゾル中の海塩成分では、 $Br^-/Na^+$ 比は冬季に極大を示すものの、全体的に海水比よりも低く、 $Br^-$ が消失していることが示されました。さらに、海塩粒子上の不



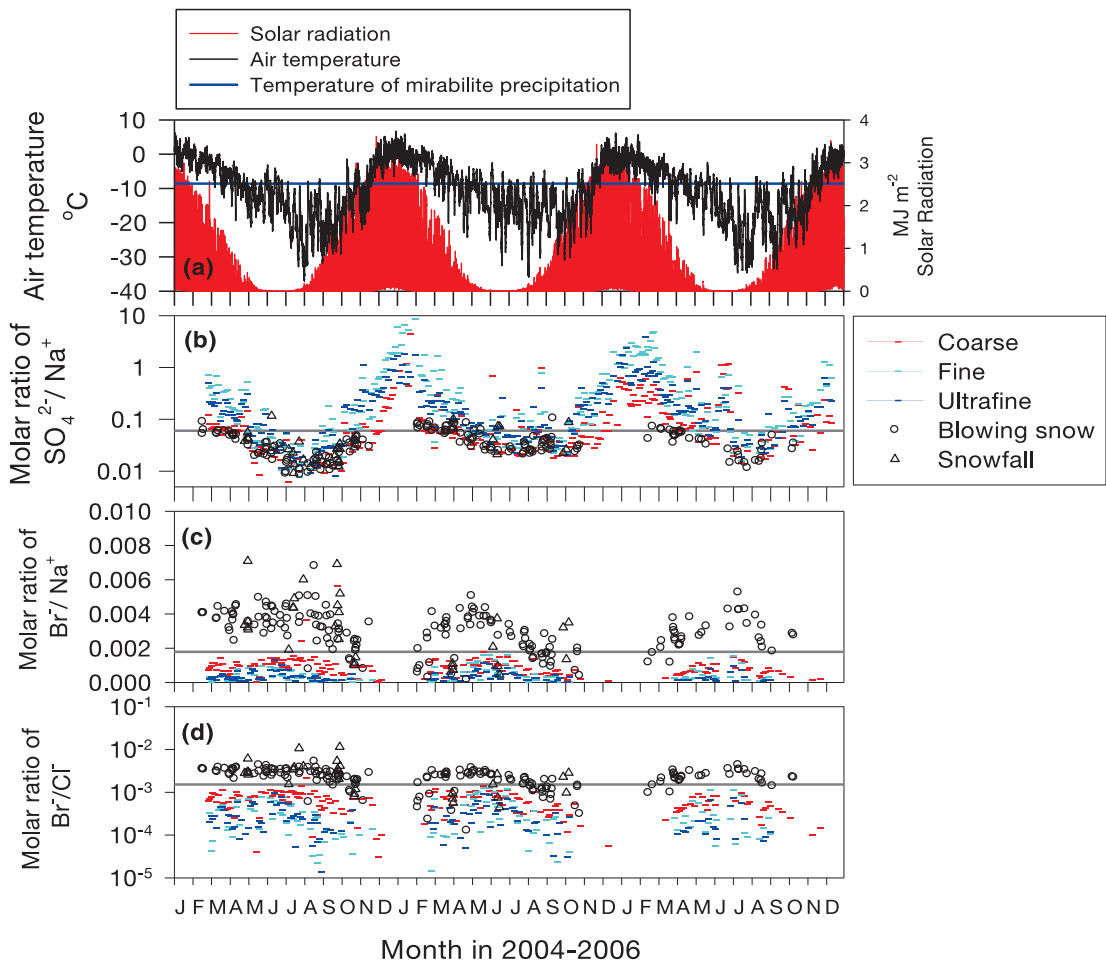
第8図 2005年9月27-30日のリュッツホルム湾周辺の対流圏BrO量の分布(a)と、昭和基地で観測された地上 $O_3$ 濃度(b)、エアロゾル数濃度(c)、風向、風速の変化(d)。(a)中の赤丸は昭和基地の位置を、黒実線は925hPa面の風速(the ERA-interim)を、カラーコンターはBrO対流圏カラム濃度(molecules  $cm^{-2}$ )を示す。(d)中の星印は目視観測で飛雪・地吹雪が確認されたことを示す。



均一反応により大気へ放出される高反応性臭素の量を、飛雪やエアロゾル中の  $\text{Br}^-/\text{Na}^+$  比を用いて推定したところ、人工衛星で観測された  $\text{VCD}_{\text{trop, BrO}}$  値や、先行研究で観測された  $\text{Br}_2$ 、 $\text{BrO}$  などの高反応性臭素濃度と同等の値となりました。以上から、南極沿岸域では、高反応性臭素成分の主要な起源は、海水域から大気へ放出された海塩粒子上の不均一反応であると結論付けられます。今後は、観測的に海水域からの海塩粒子放出過程を定量評価し、モデル研究などと併せて、大気中の海塩・ハロゲンサイクルが大気化学過程や雲過程に与える寄与を明らかにしていくことが求められます。

### 2.3.4 南極内陸域の海塩粒子と海塩組成分別

季節海水上のフロストフラワーや積雪、エアロゾル、飛雪中の  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  と  $\text{Na}^+$  濃度の関係を見ると、第10図の様に負の傾きを持つ関係が確認されます (Hara *et al.* 2004, 2017, 2018)。第9図でも触れたように、この関係は海水上の海塩組成分別 (Mirabilite 析出) に起因しています。そのため、この負の関係は、海氷起源の海塩粒子が供給されていることの直接的な証拠として認識されています (例えば, Wagenbach *et al.* 1998; Hara *et al.* 2004)。この関係は、内陸氷床上に位置するドーム F 基地 (77°19'S, 39°42'E, 3810m) で採取されたエアロゾルでも確認されました。この観測的事実は、冬季～春季にかけて、海水域から放出さ

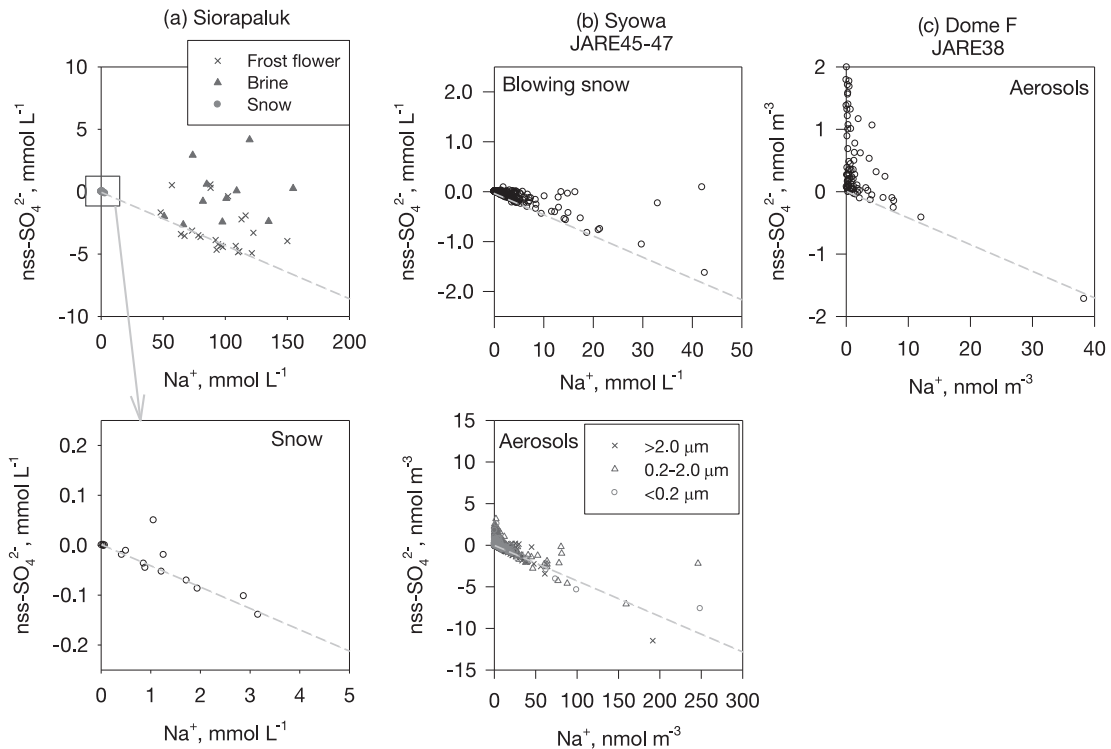


第9図 南極昭和基地における気温・全天日射量 (a)、エアロゾル・飛雪・降雪中の  $\text{SO}_4^{2-}/\text{Na}^+$  (b)、 $\text{Br}^-/\text{Na}^+$  (c)、 $\text{Br}^-/\text{Cl}^-$  (d) 比の季節変化。(a) 中の青線は Mirabilite 析出が進行する温度 (約  $-9^\circ\text{C}$ ) を、(b-d) 中の灰色線は海水組成比を示す。(Hara *et al.* 2018)

れた海塩粒子が南極内陸部まで長距離輸送されていることを意味します。Kohnen 基地 (75°00'S, 0°4'E, 2892m) で採取されたエアロゾル試料では、海洋起源の  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  濃度が高く、第10図の様な相関関係は確認されませんでした (Weller and Wagenbach 2007)。Concordia 基地 (75°05'S, 123°19'E, 3233m) で採取されたエアロゾル試料では、第10図と同様の相関関係が確認されました (Udisti *et al.* 2012)。海氷起源の海塩粒子が南極大陸内陸部まで長距離輸送されていることは、南極大気中の物質循環・輸送過程を理解する上で非常に重要な知見です。我々の論文発表以降 (Hara *et al.* 2004), アイスコア中の海塩成分 ( $\text{Na}^+$  濃度) は、海氷の張り出し面積の指標として解析が始められ (Wolff *et al.* 2006, 2007, 2010), アイスコアの解析・古環境復元へ大きく貢献することになりました。

夏季の沿岸部から内陸部までのエアロゾル存在状態を明らかにするため、JARE49で実施された日本スウェーデン合同トラバース隊 (Japanese Swedish Ant-

arctic Expedition: JASE トラバース) でエアロゾルのサンプリングを実施いたしました (Hara *et al.* 2014b)。第4図で示した様に、冬季～春季の季節海水域や沿岸部の海塩粒子には Mg が含まれ、かつ Mg/Na 比 (原子数比) が海水比より高くなっていました (第11図)。しかしながら、夏季に実施された JASE トラバースでは、Mg を含まない (検出されない, Mg-free) 海塩粒子が多数同定されました。海水には Mg が含まれているため、開水域から放出された海塩粒子には、Mg が含有しています。さらに、季節海氷上で進行する海塩組成別では、Mg は濃縮する傾向となるので、Mg-free 海塩粒子の存在を説明するためには、これまでの議論とは異なる過程が必要です。JASE トラバースでは、内陸、特に高緯度側 (76-78°S) の強風・地吹雪発生時に Mg-free 海塩粒子が顕著に増加していたため、海塩粒子が積雪表面へ沈着した後に、Mg 塩などの海塩成分が分離する海塩組成別が起きていると予想されます。積雪表面で海塩を含む塩成分が組成別を起



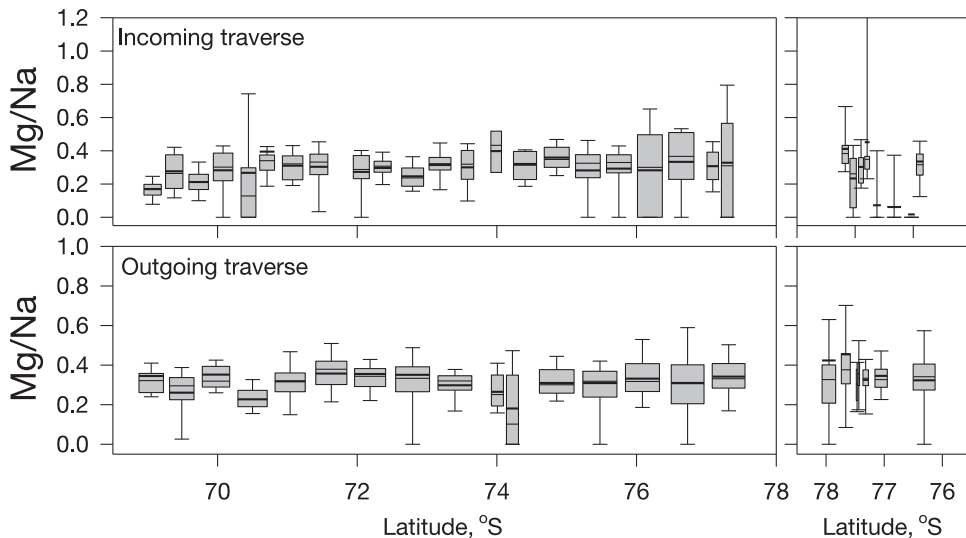
第10図 (a) グリーンランド北西部シオラパルク周辺の季節海水域で採取されたフロストフラワー、ブライン、(海氷上) 積雪、(b) 昭和基地で採取された飛雪とエアロゾル、(c) ドーム F 基地で採取されたエアロゾル中の  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  濃度と  $\text{Na}^+$  濃度の関係。  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  は海水組成比を基に算出している。図中の破線は、  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  濃度が負になる時の関係を示す。(Hara *et al.* 2004, 2017, 2018を改変)

こしていることは、積雪表層内の塩粒子の個別粒子分析からも示唆されています (Iizuka *et al.* 2012). 南極域、特に大陸・内陸上の物質循環やその寄与に関する理解を深化させるためには、南極内陸域での継続的な大気・エアロゾル観測が必要となります。現状では、内陸域、特に越冬観測の機会を得るのは極めて困難ではありますが、今後の観測に期待していききたいと思います。

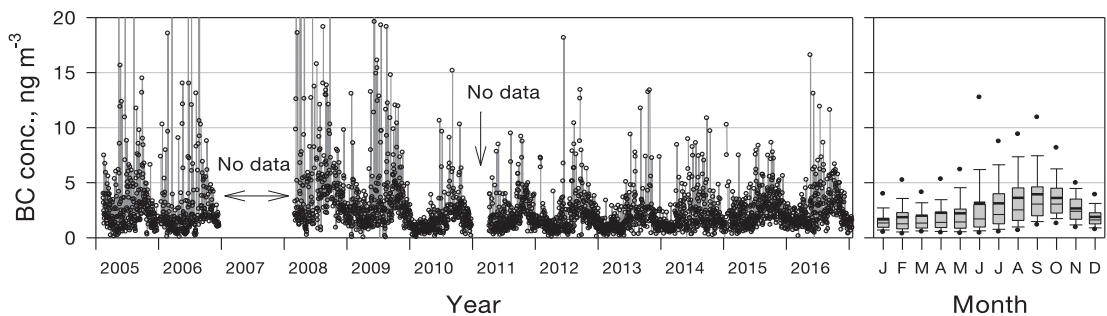
#### 2.4 低中緯度域から南極域へのエアロゾル長距離輸送

南極大気中のエアロゾルは南極圏内からの供給だけではなく、鉍物粒子や燃焼起源のエアロゾル粒子など

は低～中緯度域から長距離輸送によっても供給されています (例えば, Delmonte *et al.* 2004, 2008, 2010; Hara *et al.* 2010; 原 2018; Ueda *et al.* 2018). 南極域における燃焼起源物質の発生は観測基地、関係する船舶や航空機運用などに限定されており、そのソース強度は、他地域と比べると非常に小さいと言えます。そのため、燃焼過程から放出される BC (Black carbon) を低～中緯度域からの長距離輸送のトレーサーとして用いて、長距離輸送の影響を評価することを試みました。南極昭和基地での BC 連続観測は2005年2月から開始し、現在も継続しています (第12図: Hara *et al.* 2019). 第12図に示した期間内の BC 濃度の平均は



第11図 JASE トラバース中に採取された粗大海塩エアロゾル ( $D > 2.0 \mu\text{m}$ ) 中の Mg/Na 原子数比の分布。Box 図の上のバー、箱の上端、中央、下端、下のバーは、90%、75%、50% (median)、25%、10% 値を示す。Box 図中の黒太線は平均値を示す。



第12図 南極昭和基地における BC 濃度日中央値の季節変化。Box 図は2005-2016年の期間の BC データを月別に集計した。Box 図の上点、上のバー、箱の上端、中央、下端、下のバー、下点は、95%、90%、75%、50% (median)、25%、10%、5% 値を示す。Box 図中の黒太線は平均値を示す。

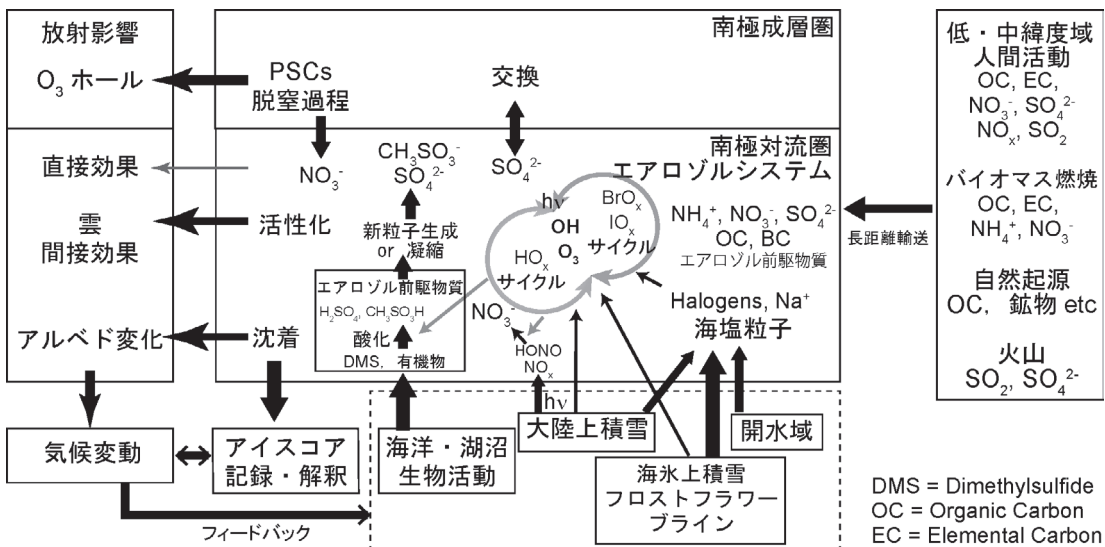
2.7ng m<sup>-3</sup>, 中央値は1.8ng m<sup>-3</sup>と非常に低いレベルでした。また, BC 濃度は低いながらも春季に極大を示す明瞭な季節変化を示していました。昭和基地で得られた BC 濃度は, 沿岸部に位置する Halley 基地 (75°34'S, 25°30'W, Wolff and Cachier 1998) や Neumayer 基地 (70°38'S, 8°15'W, Weller *et al.* 2013) で得られた結果とほぼ同程度で, 季節変化もよく一致していました。南米に近い南極半島に位置する Ferraz 基地 (62°05'S, 58°23'W, Pereira *et al.* 2006) では, BC 濃度は春季に極大を示していましたが, 夏季にも極大を示し, 南米からの輸送の影響も強く, 年平均値は8.3ng m<sup>-3</sup>で昭和基地, Halley, Neumayer 基地より高くなっていました。Amundsen-Scott 基地 (南極点, Bodhaine 1995) の BC 濃度の季節変化は沿岸基地の変化と似ているものの, 沿岸基地より BC 濃度は1桁程度低くなっていました。この BC 濃度緯度分布は, 低中緯度域から南極域へ供給されていることを強く示唆します。BC 濃度変化とトラジェクトリー解析の比較から, 南極沿岸域の大気中に存在する BC は, 南米やアフリカ南部のバイオマス燃焼から輸送されていることが指摘されていました (Fiebig *et al.* 2009; Hara *et al.* 2010)。昭和基地へ輸送される BC の発生源と地域を定量的に評価するため, 観測された BC 濃度と化学・気候結合モデル (CHASER モデル) で再現された結果の比較を行いました。その結果, 昭和基地に輸送される BC は, 南米やアフリカ南部のバイオマス燃焼

や化石燃料燃焼の寄与が高いことがわかりました。また, トラジェクトリー解析との比較から, 昭和基地の BC 季節変化は, 低〜中緯度域における BC のソース強度の季節変化に加え, 昭和基地への輸送強度も関係していました。

### 3. 今後の課題

我々がこれまでに極域で実施してきたエアロゾル観測や, 多くの先行研究から得られた知見をまとめると, 南極対流圏大気中のエアロゾルシステムの概要を第13図の様に描くことができます。現在でも, 南極地域は清浄 (Pristine) な環境として取り扱われておりますが, 地球温暖化に加え, 南半球諸国の経済発展や近年の著しい人口増加により, 南極地域にも人間活動の影響が表れてくることが懸念されています。また, 今後, オゾンホール回復期になっていくことも予想されています。これまでの観測的研究で進めてきた物質循環の理解だけではなく, 大気エアロゾルの気候との関係やその寄与を評価・予測していくことが重要となっていきます。そのためには, ①観測から大気エアロゾルと気象場との関係や応答を明らかにすること, ②エアロゾル・雲の関係を評価し放射影響との関係を理解すること, ③観測や室内実験などを進めて第13図の各過程を定量化し, モデルで再現できるようにしていくことなどが重要となっていきます。

本稿では, 南極対流圏中のエアロゾルシステムにつ



第13図 我々の研究やその他の先行研究から得られた南極対流圏エアロゾルシステムとその影響の概略図。

いて紹介してきました。南極域と異なり、北極域は海水減少が著しく、かつ人間活動の影響が強いため（例えば、Hara *et al.* 1999, 2002a, 2002b, 2002c, 2003; Yamanouchi *et al.* 2005）、気候変動のシグナルがより明確に表れていると予想されています。清浄な環境である南極で得られた定量的な知見を基にして、北極においても南極で行った観測と同様のアプローチで評価を進め、北極大気中のエアロゾルの役割の評価・予測、南北極比較も行っていくことが、大気エアロゾルと地球規模の気候変動の関係を理解する上で重要となっていくはずで、極域大気中のエアロゾルが関連する過程は多様で、今後進めるべき課題は非常に沢山あります。今後、多くの方との共同研究をより進め、極域大気中のエアロゾル科学だけではなく、極域科学の理解の深化に貢献していきたいと考えております。

## 謝 辞

今回、受賞対象となった「極域大気の観測的研究」を進める際には、非常に多くの方のお世話になりました。特に、古谷圭一名誉教授（東京理科大学）には試料分析・分析化学の基礎を、岩坂泰信名誉教授（名古屋大学）には観測的研究の重要性と現場観測の機会を、山内 恭名誉教授（国立極地研究所・総合研究大学院大学）には極域科学の重要性とその捉え方・観点、現場観測の機会をご教授・提供していただきました。また、極域観測において共同で研究していただき、共著で極域エアロゾル関係の論文発表をさせていただいた多くの共同研究者には、観測や研究の多くの方のご支援と多大なご協力を頂きました（林 政彦教授、長田和雄教授、(故) 菊地 正教授、(故) 松永捷司准教授、柴田 隆教授、塩原匡貴准教授、藤井理行名誉教授、和田 誠教授、森本真司教授、橋田 元教授、佐藤薫教授、矢吹正教助教、石井昌憲博士、酒井 哲博士、木戸瑞佳博士、猪股弥生准教授、西田千春博士、松木篤准教授、平沢尚彦助教、小林 拓准教授、山形 定助教、藤谷雄二博士、富川喜弘准教授、藤田秀二教授、福井幸太郎博士、中澤文男助教、的場澄人助教、平林幹啓博士、上田紗也子博士、須藤健悟教授、高島久洋准教授、江波進一博士、坂本陽介助教、山崎哲秀氏、大西貴都氏、A. Herber 博士、R. Treffeisen 博士、T. Garbrecht 博士、A. Rinke 博士、R. Neuber 博士、R. Schumacher 博士、M. Kriews (RIP) 博士、O. Schrems 博士、H. Gernandt 博士、N. Theys 博士、M. R. Hoffmann 博士、A. J. Colussi 博士)。さらに、南極地域の

エアロゾル観測においては、非常に多くの南極地域観測隊員の皆様のご協力により、観測の保守がなされ、継続的な観測がなされております。同様に北極域の観測においても、多くの方のご支援とご協力がありました。北極・南極での航空機観測においては、Alfred Wegener Institute や Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt の方々の多大なご協力がありました。紙面の都合ですべての方のお名前を明記できませんが、これまでの研究でお世話になりました共同研究者の皆様、研究協力者の皆様に深く感謝いたします。

## 参 考 文 献

- Asmi, E., A. Frey, A. Virkkula, M. Ehn, H. Manninen, H. Timonen, O. Tolonen-Kivimäki, M. Aurela, R. Hillamo and M. Kulmala, 2010: Hygroscopicity and chemical composition of Antarctic sub-micrometre aerosol particles and observations of new particle formation. *Atmos. Chem. Phys.*, **10**, doi:10.5194/acp-10-4253-2010.
- Barrie, L. A., J. W. Bottenheim, R. C. Schnell, P. J. Crutzen and R. A. Rasmussen, 1988: Ozone destruction and photochemical reactions at polar sunrise in the lower Arctic atmosphere. *Nature*, **334**, doi:10.1038/334138a0.
- Bodhaine, B. A., 1995: Aerosol absorption measurements at Barrow, Mauna Loa and the south pole. *J. Geophys. Res. Atmos.*, **100**, doi:10.1029/95JD00513.
- Delmonte, B., I. Basile-Doelsch, J.-R. Petit, V. Maggi, M. Revel-Rolland, A. Michard, E. Jagoutz and F. Grousset, 2004: Comparing the Epica and Vostok dust records during the last 220,000 years: stratigraphical correlation and provenance in glacial periods. *Earth-Sci. Rev.*, **66**, 63-87.
- Delmonte, B., P. S. Andersson, M. Hansson, H. Schöberg, J. R. Petit, I. Basile-Doelsch and V. Maggi, 2008: Aeolian dust in East Antarctica (EPICA-Dome C and Vostok): Provenance during glacial ages over the last 800 kyr. *Geophys. Res. Lett.*, **35**, doi:10.1029/2008GL033382.
- Delmonte, B., P. S. Andersson, H. Schöberg, M. Hansson, J. R. Petit, R. Delmas, D. M. Gaiero, V. Maggi and M. Frezzotti, 2010: Geographic provenance of aeolian dust in East Antarctica during Pleistocene glaciations: Preliminary results from Talos Dome and comparison with East Antarctic and new Andean ice core data. *Quat. Sci. Rev.*, **29**, doi:10.1016/j.quascirev.2009.05.010.
- Enami, S., Y. Sakamoto, K. Hara, K. Osada, M. R. Hoffmann and A. J. Colussi, 2016: "Sizing" heterogeneous chemistry in the conversion of gaseous dimethyl sulfide to atmospheric particles. *Environ. Sci. Technol.*, **50**,

- doi:10.1021/acs.est.5b05337.
- Fiebig, M., C. R. Lunder and A. Stohl, 2009: Tracing biomass burning aerosol from South America to Troll Research Station, Antarctica. *Geophys. Res. Lett.*, **36**, doi:10.1029/2009GL038531.
- 原 圭一郎, 2003: 南極対流圏のエアロゾル. *エアロゾル研究*, **18**, 200-213.
- 原 圭一郎, 2010: 極域対流圏の光学吸収性炭素質粒子の季節変化, 輸送過程, 発生源. *エアロゾル研究*, **25**, 226-233.
- 原 圭一郎, 2017: 南極対流圏大気中のエアロゾル: 空間分布と循環・輸送過程. *気象研究ノート*, (233), 77-111.
- 原 圭一郎, 2018: 南極大気中の海塩・ハロゲンサイクル. *大気化学研究*, **38**, 038A04.
- Hara, K., K. Osada, M. Hayashi, K. Matsunaga, T. Shibata, Y. Iwasaka and K. Furuya, 1999: Fractionation of inorganic nitrates in winter Arctic troposphere: Coarse aerosol particles containing inorganic nitrates. *J. Geophys. Res.*, **104**, doi:10.1029/1999JD900348.
- Hara, K., K. Osada, C. Nishita, S. Yamagata, T. Yamanouchi, A. Herber, K. Matsunaga, Y. Iwasaka, M. Nagatani and H. Nakata, 2002a: Vertical variations of sea-salt modification in the boundary layer of spring Arctic during the ASTAR 2000 campaign. *Tellus B*, **54**, doi:10.1034/j.1600-0889.2002.201253.x.
- Hara, K., K. Osada, K. Matsunaga, T. Sakai, Y. Iwasaka and K. Furuya, 2002b: Concentration trends and mixing states of particulate oxalate in Arctic boundary layer in winter/spring. *J. Geophys. Res.*, **107**, doi:10.1029/2001JD001584.
- Hara, K., K. Osada, K. Matsunaga, Y. Iwasaka, T. Shibata and K. Furuya, 2002c: Atmospheric inorganic chlorine and bromine species in Arctic boundary layer of the winter/spring. *J. Geophys. Res.*, **107**, doi:10.1029/2001JD001008.
- Hara, K., S. Yamagata, T. Yamanouchi, K. Sato, A. Herber, Y. Iwasaka, M. Nagatani and H. Nakata, 2003: Mixing states of individual aerosol particles in spring Arctic troposphere during ASTAR 2000 campaign. *J. Geophys. Res.*, **108**, doi:10.1029/2002JD002513.
- Hara, K., K. Osada, M. Kido, M. Hayashi, K. Matsunaga, Y. Iwasaka, T. Yamanouchi, G. Hashida and T. Fukatsu, 2004: Chemistry of sea-salt particles and inorganic halogen species in Antarctic regions: Compositional differences between coastal and inland stations. *J. Geophys. Res.*, **109**, doi:10.1029/2004JD004713.
- Hara, K., K. Osada, M. Kido, K. Matsunaga, Y. Iwasaka, G. Hashida, and T. Yamanouchi, 2005: Variations of constituents of individual sea-salt particles at Syowa station, Antarctica. *Tellus B*, **57**, doi:10.3402/tellusb.v57i3.16530.
- Hara, K., Y. Iwasaka, M. Wada, T. Ihara, H. Shiba, K. Osada and T. Yamanouchi, 2006: Aerosol constituents and their spatial distribution in the free troposphere of coastal Antarctic regions. *J. Geophys. Res.*, **111**, doi:10.1029/2005JD006591.
- Hara, K., K. Osada, M. Yabuki, G. Hashida, T. Yamanouchi, M. Hayashi, M. Shiobara, C. Nishita and M. Wada, 2010: Haze episodes at Syowa Station, coastal Antarctica: Where did they come from? *J. Geophys. Res.*, **115**, doi:10.1029/2009JD012582.
- 原 圭一郎, 平沢尚彦, 山内 恭, 和田 誠, A. Herber and ANTSYO-II members, 2010: 夏季南極対流圏中のエアロゾル粒子の分布と混合状態—ANTSYO-II (AGAMES) 観測—. *南極資料*, **54**, 704-730.
- Hara, K., K. Osada, C. Nishita-Hara and T. Yamanouchi, 2011a: Seasonal variations and vertical features of aerosol particles in the Antarctic troposphere. *Atmos. Chem. Phys.*, **11**, doi:10.5194/acp-11-5471-2011.
- Hara, K., K. Osada, C. Nishita-Hara, M. Yabuki, M. Hayashi, T. Yamanouchi, M. Wada and M. Shiobara, 2011b: Seasonal features of ultrafine particle volatility in the coastal Antarctic troposphere. *Atmos. Chem. Phys.*, **11**, doi:10.5194/acp-11-9803-2011.
- Hara, K., K. Osada, M. Yabuki and T. Yamanouchi, 2012: Seasonal variation of fractionated sea-salt particles on the Antarctic coast. *Geophys. Res. Lett.*, **39**, doi:10.1029/2012GL052761.
- Hara, K., K. Osada and T. Yamanouchi, 2013: Tethered balloon-borne aerosol measurements: seasonal and vertical variations of aerosol constituents over Syowa Station, Antarctica. *Atmos. Chem. Phys.*, **13**, doi:10.5194/acp-13-9119-2013.
- Hara, K., M. Hayashi, M. Yabuki, M. Shiobara and C. Nishita-Hara, 2014a: Simultaneous aerosol measurements of unusual aerosol enhancement in the troposphere over Syowa Station, Antarctica. *Atmos. Chem. Phys.*, **14**, doi:10.5194/acp-14-4169-2014.
- Hara, K., F. Nakazawa, S. Fujita, K. Fukui, H. Enomoto and S. Sugiyama, 2014b: Horizontal distributions of aerosol constituents and their mixing states in Antarctica during the JASE traverse. *Atmos. Chem. Phys.*, **14**, doi:10.5194/acp-14-10211-2014.
- Hara, K., S. Matoba, M. Hirabayashi and T. Yamasaki, 2017: Frost flowers and sea-salt aerosols over seasonal sea-ice areas in northwestern Greenland during winter-spring. *Atmos. Chem. Phys.*, **17**, doi:10.5194/acp-17-8577-2017.

- Hara, K., K. Osada, M. Yabuki, H. Takashima, N. Theys and T. Yamanouchi, 2018: Important contributions of sea-salt aerosols to atmospheric bromine cycle in the Antarctic coasts. *Sci. Rep.*, **8**, doi:10.1038/s41598-018-32287-4.
- Hara, K., K. Sudo, T. Ohnishi, K. Osada, M. Yabuki, M. Shiobara and T. Yamanouchi, 2019: Seasonal features and origins of carbonaceous aerosols at Syowa Station, coastal Antarctica. *Atmos. Chem. Phys.*, **19**, doi:10.5194/acp-19-7817-2019.
- Humphries, R. S., A. R. Klekociuk, R. Schofield, M. Keywood, J. Ward and S. R. Wilson, 2016: Unexpectedly high ultrafine aerosol concentrations above East Antarctic sea ice. *Atmos. Chem. Phys.*, **16**, doi:10.5194/acp-16-2185-2016.
- Iizuka, Y., A. Tsuchimoto, Y. Hoshina, T. Sakurai, M. Hansson, T. Karlin, K. Fujita, F. Nakazawa, H. Motoyama and S. Fujita, 2012: The rates of sea salt sulfatization in the atmosphere and surface snow of inland Antarctica. *J. Geophys. Res.*, **117**, doi:10.1029/2011JD016378.
- Ito, T., 1993: Size distribution of Antarctic submicron aerosols. *Tellus*, **45B**, doi:10.1034/j.1600-0889.1993.t01-1-00007.x.
- Jones, A. E., P. S. Anderson, M. Begoin, N. Brough, M. A. Hutterli, G. J. Marshall, A. Richter, H. K. Roscoe and E. W. Wolff, 2009: BrO, blizzards, and drivers of polar tropospheric ozone depletion events. *Atmos. Chem. Phys.*, **9**, doi:10.5194/acp-9-4639-2009.
- Kaleschke, L., A. Richter, J. Burrows, O. Afe, G. Heygster, J. Notholt, A. M. Rankin, H. K. Roscoe, J. Hollwedel, T. Wagner and H.-W. Jacobi, 2004: Frost flowers on sea ice as a source of sea salt and their influence on tropospheric halogen chemistry. *Geophys. Res. Lett.*, **31**, doi:10.1029/2004GL020655.
- Koop, T., A. Kapilashrami, L. T. Molina and M. J. Molina, 2000: Phase transitions of sea-salt/water mixtures at low temperatures: Implications for ozone chemistry in the polar marine boundary layer. *J. Geophys. Res.*, **105**, doi:10.1029/2000JD900413.
- Kyrö, E.-M., V.-M. Kerminen, A. Virkkula, M. Dal Maso, J. Parshintsev, J. Ruiz-Jimenez, L. Forsström, H. E. Manninen, M.-L. Riekkola, P. Heinonen and M. Kulmala, 2013: Antarctic new particle formation from continental biogenic precursors. *Atmos. Chem. Phys.*, **13**, doi:10.5194/acp-13-3527-2013.
- Lewis, E. R and S. E. Schwartz, 2004: Sea Salt Aerosol Production: Mechanisms, Methods, Measurements and Models. *Amer. Geophys. Union*, 413pp.
- Lieb-Lappen, R. M. and R. W. Obbard, 2015: The role of blowing snow in the activation of bromine over first-year Antarctic sea ice. *Atmos. Chem. Phys.*, **15**, doi:10.5194/acp-15-7537-2015.
- Marion, G. M., R. E. Farren and A. J. Komrowski, 1999: Alternative pathways for seawater freezing. *Cold Reg. Sci. Technol.*, **29**, doi:10.1016/S0165-232X(99)00033-6.
- 西堀栄三郎, 1958 : 南極越冬記. 岩波新書, 岩波書店, 269pp.
- Osada, K., K. Hara, M. Kido, H. Kai, T. Yamanouchi, G. Hashida, K. Matsunaga and Y. Iwasaka, 2001: Sulfate depletion in snow over sea ice near Syowa Station, Antarctica, in relation to the origin of sulfate depleted sea salt aerosol particles in winter. *Polar Meteor. Glaciol.*, **15**, 21-31.
- Osada, K., K. Hara, M. Wada, T. Yamanouchi and K. Matsunaga, 2006: Lower tropospheric vertical distribution of aerosol particles over Syowa Station, Antarctica from spring to summer 2004. *Polar Meteor. Glaciol.*, **20**, 16-27.
- Pereira, E. B., H. Evangelista, K. C. D. Pereira, I. F. A. Cavalcanti and A. W. Setzer, 2006: Apportionment of black carbon in the South Shetland Islands, Antarctic Peninsula. *J. Geophys. Res.*, **111**, doi:10.1029/2005JD006086.
- Sander, R., J. Burrows and L. Kaleschke, 2006: Carbonate precipitation in brine - a potential trigger for tropospheric ozone depletion events. *Atmos. Chem. Phys.*, **6**, doi:10.5194/acp-6-4653-2006.
- Shaw, G., 1995: The Arctic haze phenomenon. *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, **76**, 2403-2414.
- Simpson, W. R. *et al.*, 2007: Halogens and their role in polar boundary-layer ozone depletion. *Atmos. Chem. Phys.*, **7**, doi:10.5194/acp-7-4375-2007.
- Udisti, R., U. Dayan, S. Becagli, M. Busetto, D. Frosini, M. Legrand, F. Lucarelli, S. Preunkert, M. Severi, R. Traversi and V. Vitale, 2012: Sea spray aerosol in central Antarctica. Present atmospheric behaviour and implications for paleoclimatic reconstructions. *Atmos. Environ.*, **52**, doi:10.1016/j.atmosenv.2011.10.018.
- Ueda, S., K. Osada, K. Hara, M. Yabuki, F. Hashihama and J. Kanda, 2018: Morphological features and mixing states of soot-containing particles in the marine boundary layer over the Indian and Southern oceans. *Atmos. Chem. Phys.*, **18**, doi:10.5194/acp-18-9207-2018.
- Wagenbach, D., F. Ducroz, R. Mulvaney, L. Keck, A. Minikin, M. Legrand, J. S. Hall and E. W. Wolff, 1998: Sea-salt aerosol in coastal Antarctic regions. *J. Geophys. Res.*, **103**, doi:10.1029/97JD01804.
- Weller, R. and D. Wagenbach, 2007: Year-round chemical

- aerosol records in continental Antarctica obtained by automatic samplings. *Tellus B*, **59**, doi:10.1111/j.1600-0889.2007.00293.x.
- Weller, R., A. Minikin, A. Petzold, D. Wagenbach and G. König-Langlo, 2013: Characterization of long-term and seasonal variations of black carbon (BC) concentrations at Neumayer, Antarctica. *Atmos. Chem. Phys.*, **13**, doi:10.5194/acp-13-1579-2013.
- Weller, R., K. Schmidt, K. Teinilä and R. Hillamo, 2015: Natural new particle formation at the coastal Antarctic site Neumayer. *Atmos. Chem. Phys.*, **15**, doi:10.5194/acp-15-11399-2015.
- Wessel, S., S. Aoki, P. Winkler, R. Weller, A. Herber, H. Gernandt and O. Schrems, 1998: Tropospheric ozone depletion in polar regions - A comparison of observations in the Arctic and Antarctic. *Tellus B*, **50**, doi:10.1034/j.1600-0889.1998.00003.x.
- Wolff, E. W. and H. Cachier, 1998: Concentrations and seasonal cycle of black carbon in aerosol at a coastal Antarctic station. *J. Geophys. Res.*, **103**, doi:10.1029/97JD01363.
- Wolff, E. W. *et al.*, 2006: Southern Ocean sea-ice extent, productivity and iron flux over the past eight glacial cycles. *Nature*, **440**, doi:10.1038/nature04614.
- Wolff, E. W. *et al.*, 2007: Erratum: Southern Ocean sea-ice extent, productivity and iron flux over the past eight glacial cycles. *Nature*, **449**, 748.
- Wolff, E. W. *et al.*, 2010: Changes in environment over the last 800,000 years from chemical analysis of the EPICA Dome C ice core. *Quat. Sci. Rev.*, **29**, doi:10.1016/j.quascirev.2009.06.013.
- Yamanouchi, T. *et al.*, 2005: Arctic Study of Tropospheric Aerosol and Radiation (ASTAR) 2000: Arctic haze case study. *Tellus B*, **57**, doi:10.3402/tellusb.v57i2.16784.
- Yang, X., J. A. Pyle and R. A. Cox, 2008: Sea salt aerosol production and bromine release: Role of snow on sea ice. *Geophys. Res. Lett.*, **35**, doi:10.1029/2008GL034536.
- Yang, X., M. M. Frey, R. H. Rhodes, S. J. Norris, I. M. Brooks, P. S. Anderson, K. Nishimura, A. E. Jones and E. W. Wolff, 2019: Sea salt aerosol production via sublimating wind-blown saline snow particles over sea ice: parameterizations and relevant microphysical mechanisms. *Atmos. Chem. Phys.*, **19**, doi:10.5194/acp-19-8407-2019.

---

## Field Study of Atmospheric Aerosol System in Polar Troposphere

Keiichiro HARA\*

\* *Department of Earth System Science, Faculty of Science, Fukuoka University, 8-19-1, Nanakuma, Jyonan, Fukuoka 814-0180, Japan.*

(Received 4 February 2020; Accepted 1 July 2020)

---