

課題名 5B-1202 PM2.5規制に影響する汚染混合型黄砂の組成的特徴と飛来量／降下量に関する研究

課題代表者名 杉本 伸夫（独立行政法人国立環境研究所環境計測研究センターフェロー）  
研究実施期間 平成24～26年度  
累計予算額 115,102千円（うち26年度39,017千円）  
予算額は、間接経費を含む。

本研究のキーワード 黄砂、エアロゾル、内部混合、外部混合、PM2.5黄砂、汚染された黄砂、ライダーネットワーク、黄砂予報モデル、飛来量、沈着量

## 研究体制

- (1)メガシティにおけるPM2.5黄砂の複合汚染に関する三次元的実態解明とその越境飛来観測（独立行政法人国立環境研究所）
- (2)メガシティにおけるPM2.5黄砂と人為汚染物質による複合汚染の化学的特徴の解明（東京都環境公社 東京都環境科学研究所）
- (3)汚染混合型の黄砂沈着フラックス量を推計する黄砂予報モデルの応用研究（国土交通省気象庁気象研究所）
- (4)黄砂沈着のネットワーク観測と組成変化に関する研究－海洋に沈着する黄砂－（国立大学法人東京大学大気海洋研究所）
- (5)黄砂沈着のネットワーク観測と組成変化に関する研究－陸地に沈着する黄砂－（国立大学法人名古屋大学）

## 研究概要

### 1. はじめに(研究背景等)

ゴビ砂漠で発生した黄砂はしばしば大気汚染地域を通過し、大気汚染粒子と混合して韓国や日本に輸送される。このような黄砂を本研究では汚染混合型黄砂と呼ぶ。黄砂の疫学研究において、汚染混合型黄砂は純粋な黄砂よりも影響が大きいことを示唆する結果も報告されている。汚染混合型黄砂には、黄砂と汚染粒子が単に共存する外部混合と、黄砂表面に大気汚染粒子が付着した内部混合が考えられ、環境や健康への影響はそれぞれ異なると考えられる。従って、黄砂と大気汚染粒子の混合状態の特徴を明らかにすることは非常に重要な課題である。

また、PM2.5規制においては、黄砂がPM2.5にどれくらい含まれるかを把握することが対策を考える上で不可欠である。現在、多くのモニタリング局でPM2.5とSPMが同時に測定されている。また、ライダーネットワークによる常時観測も行われている。これらのデータを利用してPM2.5に含まれる黄砂の濃度を準リアルタイムで推定する手法の開発が望まれる。一方、黄砂飛来予測モデルにおいても、黄砂だけではなく大気汚染粒子の予測を同時に行うとともに、黄砂のついてはPM2.5に該当する黄砂の重量濃度の予測も行うことが必要とされる。粒径分布を含んだ黄砂の飛来予測を行う上で、沈着過程の精緻化が極めて重要であるが、これまでには観測に基づく研究があまり行われていなかった。

以上のような背景のもとで、本研究では汚染混合型黄砂の三次元的な輸送の動態、混合状態の光学特性および化学組成、汚染混合型黄砂の海洋上および陸上への輸送と沈着を明らかにするための観測研究を行うとともに、黄砂と大気汚染の両方の発生輸送を含む化学輸送モデルの開発、黄砂の飛来量、沈着量の評価、観測に基づくモデルの精緻化に関する研究を行った。また、PM2.5、PM10(SPM)のモニタリングデータからPM2.5に含まれる黄砂濃度を推定する手法、ライダーデータからリアルタイムで黄砂と大気汚染粒子との混合状態を推定する手法を開発した。

### 2. 研究開発目的

微小黄砂(PM2.5黄砂と呼ぶ)は、大気汚染物質とよく混合することが定性的に判ってきた。そのような汚染混合型黄砂は黄砂そのものに比べ健康影響が大きいと指摘されている。黄砂発生源に近いアジア大陸のメガシティでは、汚染混合型黄砂が新たな都市大気環境問題となり、日本でもPM2.5規制値を超える汚染混合型黄砂の飛来が目立ってきた。PM2.5領域に存在する汚染混合型黄砂の日本への飛来・沈着に関する科学的知見は非常に少なく、対応する数値モデルの開発も遅れている。本プロジェクトは、ライダーネットワーク観測や沈着量観

測ネットワークなど各分野において先行する観測手法を基に新たな独創的研究手法を加え、今まで未解明のPM2.5黄砂と沈着量の実態解明と国際貢献的研究の両方を実行する。

本研究サブ課題(1)では、ライダーネットワークを中心とする観測によりPM2.5に含まれる黄砂量および大気汚染性エアロゾルとの混合状態(内部混合、外部混合)を明らかにする。(2)では発生源に近いメガシティにおけるPM2.5の化学組成と混合状態を明らかにする。(3)では黄砂予報モデルを、大気汚染物質を含む予測システムへと高度化するとともに、黄砂の沈着量推定のための手法を開発し日本周辺域を対象に飛来量及び沈着量分布を明らかにする。また、観測データと組み合わせたデータ同化、逆解析といった数値解析手法を有機的に結ぶることによって、黄砂予報モデルおよび予報精度を改良する。これによって、環境省・気象庁が共同運用する黄砂ホームページの質的向上等に貢献する。(4)では、海洋大気を通して日本へ、また日本を越えて飛来・沈着する汚染混合型黄砂に関する科学的知見を得ること目的とし、黄砂および人為起源物質の海洋上における観測を行う。(5)では、沈着量観測ネットワークを再構築し、今まで未解明のPM2.5黄砂と沈着量分布の実態解明を行い、沈着量の地理的分布や時系列変化を明らかにする。

### 3. 研究開発の方法

#### (1)メガシティにおけるPM2.5黄砂の複合汚染に関する三次元的実態解明とその越境飛来観測

汚染混合型黄砂の分布および輸送の三次元的動態を把握するために先行研究等で開発された東アジアの2波長偏光ライダーネットワーク(AD-Net)による継続的観測と化学輸送モデルを用いて、汚染混合型黄砂の分布、発生源からの輸送の三次元的な動態を明らかにした。

ライダーネットワークの2波長偏光ライダーと同時に、地上で粒子毎の粒径と非球形性を計測できる偏光パーティクルカウンター(偏光OPC)を新たに導入し、2波長偏光ライダーとの同時観測を行った。観測はライダーネットワーク観測地点であるソウル大学において2013年3月から連続して行った。偏光OPCによって黄砂の混合状態(外部混合、内部混合)を明確に捉えると同時に、ライダーで捉えた光学特性と比較して整合性を検証した。これによって、ライダーのみでも混合状態の推定が可能であることも確認された。さらに偏光OPCのデータから、内部混合した黄砂(汚染された黄砂)の光学モデルを決定するためのデータを得た。

モニタリング局のPM2.5およびPM10(あるいはSPM)データを用いて、PM2.5に含まれる黄砂量を推定する手法を開発した。本研究では、PM2.5/PM10をパラメーターとしてPM2.5黄砂を定式化した。一方、2波長偏光ライダーで得られる黄砂消散係数からPM2.5黄砂を推定する変換係数を求めた。変換係数は、ライダーで得られる黄砂および大気汚染粒子(球形粒子)の消散係数を近傍のモニタリング局のPM2.5と比較することによって求めた。黄砂事例についてPM2.5/PM10を用いる手法とライダーを用いた手法の比較を行ない、整合性を評価した。

#### (2)メガシティにおけるPM2.5黄砂と人為汚染物質による複合汚染の化学的特徴の解明

黄砂発生源に近いメガシティの一つであるウランバートルにおいて化学成分の測定を行った。試料採取はウランバートル市内のNational Agency of Meteorology and Environment Monitoring(NAMEM)の屋上(4階)で行った。NAMEMの北～北東側にはゲルと住宅が多いが、石炭、薪を使用した家庭用ストーブが大気汚染物質の大きな発源地域であると想定される。試料の採取は以下の期間で行った。

- ① 2012年1月～2月(1試料あたりの捕集時間:12時間もしくは23時間)
- ② 2012年11月～2013年3月(1試料あたりの捕集時間:48時間)
- ③ 2013年8月～9月(1試料あたりの捕集時間:168時間)

採取した試料を用いて、①の期間ではPM10、PM2.5の質量濃度の他、炭素成分、イオン成分、金属成分の分析を行った。試料の採取はローボリュームエアサンプラー(FRM, Thermo Scientific)を用いて行い、石英繊維フィルター(2500QAT-UP, Pallflex)を装着して採取した。また、分粒器付光散乱式装置(KOSA Monitor, TOA-DKK)を用いて測定を行い、PM2.5及びPM10の連続測定を行った。

②及び③の期間で採取した試料についてはダイオキシン類の測定を行った。測定に先立ち、異性体組成が発生源解明の手がかりになると考えられる都市大気粉じん中のダイオキシン類を分析するための試料捕集法を検討した。一般的に、環境大気中のダイオキシン類の調査では、ガス態と粒子態を同時に捕集し、両者を合算した値で評価するが、ウランバートルには同時捕集可能なサンプラーがなかったため、既存のサンプラーを改造して試料を捕集した。採取は石英繊維ろ紙とポリウレタンフォーム(PUF)を用いた。採取試料はトルエンで抽出後、精製、分画し、高分解能ガスクロマトグラフ質量分析計(HRGC-HRMS)で分析した。試料の抽出・分析はダイオキシン類に係る大気環境調査マニュアル(環境省(2008))に従って行った。

#### (3)汚染混合型の黄砂沈着フラックス量を推計する黄砂予報モデルの応用研究

気象庁の黄砂予測システムMASINGAR(Model of Aerosol Species in the global atmosphere)を汚染混合型黄砂の監視と予測に適用できる数値モデルとするための改良を行った。改良したモデルMASINGAR mk-2では、

土壌ダスト・硫酸塩・黒色炭素・有機炭素・海塩の5種類を取り扱い、土壌ダスト粒子外のエアロゾル粒子も予測の対象とした。各エアロゾル粒子は外部混合していると仮定し、発生・移流・拡散・沈着の過程を計算する。また、水平解像度を約50km(TL319,全球640×320格子)に向上させ、鉛直解像度も気象庁の黄砂予報モデルの20層に対して40層(対流圏ではそれぞれ数十～数百mの厚み)とした。気象場(風向・風速等)は気象庁全球解析値データを参照値として大気大循環モデルMRI-AGCM3にナッジング手法を用いることで、現実大気の状態を精度良く表現している。

本研究では、まずエアロゾルの放出プロセスを改良した。次に、沈着パラメーターの調整によるエアロゾル分布の気候値を改良したほか、サブテーマ(5)の乾性・湿性別沈着観測ネットワークのデータとの比較により、ダストの粒径分布パラメーターを最適化した。汚染混合型黄砂のシミュレーション結果は環境省の大気汚染物質広域監視システム(そらまめ君)の一般局によるPM2.5濃度測定値(1時間平均値)を用いて検証した。

化学輸送モデルによる長期間(30年以上)にわたる数値実験を行ない、近年のいくつかの黄砂イベントについて、逆解析という手法で観測データと化学輸送モデルを組み合わせた解析を実施した。長期間のモデル実験では計算負荷を考慮し、水平解像度1.875°(約200km)、鉛直層数48の全球エアロゾル輸送モデル(MASINGAR mk-2)を用いた。気象データには気象庁の再解析データ(JRA-55)をナッジング参照値とした。また、気象場に大きな影響を与える海面水温についても解析値を与えた。黄砂の放出量等の解析は、1980～2010年について実施した。黄砂の年毎の放出量をゴビ砂漠とタクラマカン砂漠を含む領域に関して積算し、日本付近への湿性・乾性沈着量を求めた。

逆解析を用いた黄砂放出量解析では、2008～2009年の顕著な黄砂事例を4例抽出し、それぞれについてMASINGARで低解像度(水平解像度2.8°:約300km)の輸送実験を実施した。観測データとしては日中韓黄砂共同研究第一作業部会で共有された日本、中国、韓国の地上黄砂観測データを用いた。逆解析の手法としては、炭素循環逆解析などで実績のあるベイズ統合逆解析を用いた。

#### (4)黄砂沈着のネットワーク観測と組成変化に関する研究－海洋に沈着する黄砂－

大気中エアロゾルと降水中の不溶性粒子の粒径分布測定の基礎研究のために東京大学柏キャンパス大気海洋研究所屋上(地上高31 m)においてフィルターによるエアロゾルと降水試料を採取した。同時に大気中の粒径分布をパーティクルカウンターにより、計測した。全沈着採取器と降水採取器、エアロゾルサンプラーで得られた試料中の不溶性粒子について、コールターカウンター(液中パーティクルカウンター)を用い、粒径の差異を測定した。本研究では、3.5ミクロンから60ミクロンまでの粒子を256チャンネルに分割して測定した。

2012年1月29日から3月7日の学術研究船白鳳丸KH-12-1次航海(EqPOS)において、太平洋東部赤道海域および西部北太平洋での大気エアロゾル観測を行った。観測期間中、黄砂粒子が飛来し、フィルターサンプリングにより、その黄砂イベントの試料を得た。観測で得られたデータに加えて、後方流跡線、地上天気図、SPRINTARS地表面黄砂濃度画像を用いて、黄砂の輸送に関わる気象要素、黄砂を含むエアマスの粒径分布の特徴、海洋大気中での物質間の相互作用とその物理化学的変化を明らかにするための解析を行った。エアロゾルサンプルは、High Volume Dichotomous Virtual Impactor(紀本電子工業、AS9)により、粗大粒子( $D > 2.5 \mu\text{m}$ )と微小粒子( $D < 2.5 \mu\text{m}$ )に分けてテフロンフィルターに捕集した。得られたサンプルから試料溶液を調製し、イオンクロマトグラフ(DIONEX, DX320)により主要無機イオン成分等の分析を行った。また粒子の捕集と同時に、走査型移動度粒径測定器(TSI, SMPS3034)と光散乱式粒子計数器(RION, KC01D)によるエアロゾル粒径-個数濃度分布の測定、凝結粒子計数器(TSI, WCPC Model 3786)を用いた粒子数濃度の計測、雲凝結核計数器(DMT, CCN Counter)による雲凝結核粒子の計測、そして単一微粒子質量分析器(TSI, ATOFMS)による個別粒子の粒径-質量分析を行った。また、黄砂予報モデル(サブテーマ(3))を使って、西部北太平洋上で観測された黄砂と硫酸塩濃度の輸送と分布の再現を試みた。

#### (5)黄砂沈着のネットワーク観測と組成変化に関する研究－陸地に沈着する黄砂－

酸性雨調査に用いられている自動雨水採取装置(小笠原計器製作所、US-330)を利用し、湿性過程と乾性過程とを区別してダスト沈着物を採取した。採取は1週間毎とし、黄砂イベント時には日単位で追加の試料交換を随時行った。その際、サブテーマ(3)による現業黄砂予報と、サブテーマ(1)のリアルタイムモニタリングの情報を共有して試料交換のタイミングを決定した。試料採取地点は、日本海・東シナ海に面した沿岸部に位置する秋田、鳥取、福岡、沖縄とした。冬季降水が雪である可能性の高い(秋田と鳥取)の装置は内部の保温と湿性沈着捕集時の加温装置を備えた寒冷地仕様とした。観測地点はいずれも国内ダストの混入リスクは低い、秋田、鳥取は砂防林に近く、4～5月に大量の花粉(松など)も沈着する。その影響は分析時に除去した。

採取試料は名古屋に輸送し、予め秤量した孔径1  $\mu\text{m}$ のヌクレポアフィルターでろ過し、残渣重量を求め、開口面積と採取時間から沈着フラックスを得た。鉍物質ダストの他、花粉その他の非鉍物質(多くは有機物)重量が含まれている。黄砂期間中の鉍物質ダスト中には平均的にFeが3.7%含まれていることを利用して、残渣物の鉍

光X線分析により、鉱物質ダスト量を見積もった。花粉など生物由来粒子の量が著しく多く、蛍光X線分析装置での元素分析が不可能な試料については、強熱後の残渣重量を元に沈着フラックスを見積もった。残渣重量の多い試料を中心に、鉱物質ダストの粒径分布を測定した。目開きが $20\mu\text{m}$ のナイロンフィルターと、孔径が $10\mu\text{m}$ 、 $5\mu\text{m}$ 、 $1\mu\text{m}$ のヌクレポフィルターを用いた4段ろ過による手法と、遮光方式による粒径分布測定の手通りの手法を用いた。また、ダスト沈着量と大気中に浮遊する粗大粒子濃度との関係を知るために、鳥取サイトにおいては、PM10・PM2.5の自動計測(紀本電子工業のPM712)とテーパー紙によるサンプリングを行った。

#### 4. 結果及び考察

##### (1) メガシティにおけるPM2.5黄砂の複合汚染に関する三次元的実態解明とその越境飛来観測

ウランバートル、ソウルを含む東アジアの20地点で構成されるライダーネットワークによる観測を継続的に実施した。ライダーでは、2波長(532nm, 1064nm)の後方散乱と(532nm)の偏光解消度を昼夜連続して測定し、データを準リアルタイムで国立環境研に転送しデータ処理を行った。データ処理では、基本的なデータである532nmと1064nmの減衰後方散乱係数と532nmの体積偏光解消度の他、独自の解析プロダクトである非球形粒子(黄砂)と球形粒子(大気汚染粒子)の消散係数を導出した。黄砂と大気汚染粒子の消散係数は、粒子偏光解消度の異なる2種類の粒子(黄砂と大気汚染粒子)の混合(外部混合)を仮定し、観測された偏光解消度から混合比を求めて算出する。この手法は、黄砂と大気汚染粒子の分布を分離して可視化できるため有用で、黄砂のデータ同化研究や疫学研究にも利用されている。本研究では、この解析データをもとに黄砂と大気汚染粒子の輸送の動態を解析した。本研究期間(2012年4月から2015年3月)は黄砂の少ない期間であったが、2012年3月27-4月2日、4月20-5月2日、11月25-30日、2013年は3月5-22日、2013年12月26日-2014年1月6日などに黄砂が観測された。2014年は5月25日から6月4日にかけて長期間持続する黄砂現象が西日本で観測された。

ライダーによる黄砂と大気汚染粒子の消散係数は外部混合を仮定して解析されるため混合状態は判定できないが、2波長偏光ライダーで得られる偏光解消度と後方散乱の波長依存性を同時に利用すれば外部混合、内部混合の判別が可能である。しかし、これまで観測による検証はされていなかった。本研究では、新たに個々の粒子の大きさと非球形性を同時に測定できる地上測器である偏光OPCを導入してソウルでライダーと同時観測を行い、黄砂と大気汚染粒子の混合状態の特徴を明らかにするとともに、2波長偏光ライダーから混合状態を推定する手法を検証した。

偏光OPCでは、前方散乱強度(粒径に対応)と後方散乱偏光解消度を粒子毎に測定する。前方散乱強度と偏光解消度の散布図を作成し分布を解析することで、粒径分布と粒径毎の偏光解消度が求められる。本研究では、1時間毎に約十万点のデータを含む散布図を作成して解析し、典型的な事例について混合状態の特徴を捉えた。純粋な黄砂の散布図は大粒子で大きな偏光解消度を持つひと山の分布を示す。外部混合状態では純粋な黄砂の分布に加えて小粒子で偏光解消度の小さい大気汚染粒子のピークが現れる。内部混合状態(汚染黄砂)では大粒子の分布のピークの偏光解消度が純粋な黄砂よりも小さくなるとともに、大粒子が純粋な黄砂に比べて減少する。NOAAのHYSPLITモデルによる後方流跡線から、純粋な黄砂では発生源から黄砂が直接ソウルに輸送されているのに対して、内部混合した黄砂では北京周辺の低高度を、時間をかけて通過した後にソウルに飛来していることが分かった。また、理論的検討から汚染黄砂の光学特性は形状の変化よりも複素屈折率の虚数部の増加(光吸収性の増加)によると考えるのが妥当であることも分かった。ソウルにおける偏光OPCの継続観測から、黄砂シーズン以外も濃度は低い非球形の大粒子が存在することが明らかになった。4月と7月を比較すると大粒子のモードの偏光解消度が7月の方が低く、内部混合が進んでいるものと推定された。

ライダーは多数の粒子からの散乱を同時に測定するので、混合状態に関する情報量は少ないが、偏光解消度と後方散乱係数の波長比の散布図から純粋な黄砂、汚染された黄砂、外部混合状態の特徴を判別することができた。この結果は、ライダーデータのみでも黄砂と大気汚染粒子の混合状態を推定できることを示している。

PM2.5に含まれる黄砂量を推定するために、本研究ではPM2.5とPM10(あるいはSPM)の比を用いる手法と、ライダーで得られる黄砂および球形エアロゾル(大気汚染エアロゾル)の消散係数から換算する手法のふたつを考察した。PM2.5/PM10比は大粒子モードが卓越する黄砂では小さく、微小粒子モードが卓越する大気汚染粒子では大きい。これを利用して、PM2.5/PM10からPM2.5に占める黄砂の割合を推定する手法を定式化した。あらかじめ、黄砂のPM2.5/PM10の値と大気汚染粒子のPM2.5/PM10の値が分かれば、測定された

PM2.5/PM10から2種類の粒子の混合比が計算される。一方、ライダーによる消散係数を、黄砂時および越境大気汚染時に近傍のモニタリング局のPM2.5と比較することによって、黄砂消散係数からPM2.5黄砂への変換係数と球形粒子消散係数から大気汚染PM2.5への変換係数を求めた。後者の変換係数は相対湿度の関数となる。

2013年3月のつくばのPM2.5、PM10データ、ライダーデータを用いて、両者の手法で見積もったPM2.5黄砂を比較し、ほぼ整合する結果を得た。この結果に基づき、PM2.5/PM10比を使った黄砂量の推定手法を三国環境大臣会合の黄砂に関する研究第一作業分科会で共有された2012年の黄砂事例のPM2.5、PM10データ(EANETの隠岐、利尻、落石の3地点)に適用して解析を行った。松江および札幌のライダーデータとよく整合する結果が得

られた。現在、多くのモニタリング局でPM2.5とPM10(あるいはSPM)が同時に測定されているので、本研究で定式化した方法は、黄砂の定性的な検知手法あるいは半定量的な黄砂濃度の推定手法として有用である。

## (2) メガシティにおけるPM2.5黄砂と人為汚染物質による複合汚染の化学的特徴の解明

ウランバートルで観測されたPM濃度はPM2.5、PM10とも高く、2011年度の東京都内平均( $15.7 \mu\text{g m}^{-3}$ )の3~15倍程度であった。2012年1月10日から2月1日までのPM10とPM2.5濃度の平均値は、それぞれ $270 \mu\text{g m}^{-3}$ 、 $200 \mu\text{g m}^{-3}$ であった。PM10の平均値はモンゴルの環境基準値( $150 \mu\text{g m}^{-3}$ )を超過していた。また、PM2.5の平均値もWHOのガイドラインの年平均値( $10 \mu\text{g m}^{-3}$ )の10倍以上であった。PM2.5/PM10は平均値で0.76となり、一般的な都市大気の大粉じんの比と同様であった。PM10、PM2.5ともに、夜間と午前の2回のピークをもつ変動を示した。ライダーによるエアロゾルの高度分布は、冬季のウランバートルにおいて夜間に低い逆転層が形成されることを示し、これが、夜間のPM高濃度をもたらす要因と考えられる。

2012年1月19日から27日にかけてウランバートルで捕集したPM10の炭素成分の濃度範囲は $93 \sim 130 \mu\text{g m}^{-3}$ (平均値: $110 \mu\text{g m}^{-3}$ )であった。これはPM10濃度の42%に相当した。同時期に捕集されたPM2.5中の炭素成分は $74 \sim 110 \mu\text{g m}^{-3}$ (平均値: $89 \mu\text{g m}^{-3}$ )で、2008~2009年度に東京都内で捕集されたPM2.5中の炭素成分の約10倍であった。PM2.5中に含まれる炭素成分濃度のPM10中の炭素成分濃度に対する比の値の平均値は0.82で、PM2.5/PM10(0.80)とほぼ同値であった。ウランバートルのPM2.5中の炭素成分の割合は43%で、東京の約30%より高かった。各炭素フラクションの割合はPM10、PM2.5ともに、OC1が最も高く、次いでOCPyro、OC2、EC1-OCPyro、OC3の順であり、東京の炭素成分フラクションとは異なっていた。また、PM10中の全炭素濃度は、PM10濃度と同様に、昼間低く、夜間に高い傾向を示していた。気温との関係を解析した結果、PM2.5、PM10ともに、質量濃度、OC1、OCPyroなどで気温と逆相関が見られた。 $-20^{\circ}\text{C}$ 以下の気温となるウランバートルでは、東京に比べ、OC1の割合が大きく増加し、組成が異なるものと考えられる。

同期間のPM2.5の質量濃度は $171 \sim 272 \mu\text{g m}^{-3}$ 、PM2.5-10の質量濃度は $17 \sim 88 \mu\text{g m}^{-3}$ であった。PM2.5中の $\text{SO}_4^{2-}$ は $11 \sim 18 \mu\text{g m}^{-3}$ 、 $\text{NO}_3^-$ は $2.7 \sim 6.5 \mu\text{g m}^{-3}$ 、 $\text{NH}_4^+$ は $6.2 \sim 10 \mu\text{g m}^{-3}$ であった。PM2.5-10中の $\text{SO}_4^{2-}$ は $2.9 \sim 6.7 \mu\text{g m}^{-3}$ 、 $\text{NO}_3^-$ は $0.51 \sim 2.3 \mu\text{g m}^{-3}$ 、 $\text{NH}_4^+$ は $1.0 \sim 3.6 \mu\text{g m}^{-3}$ であった。PM2.5中の各成分の濃度を2009年2月に東京都内9か所で測定したPM2.5成分濃度(平均値)と比較すると、PM2.5質量濃度で8.2~13倍、OCで16~25倍、 $\text{SO}_4^{2-}$ で2.8~4.4倍、 $\text{NH}_4^+$ で2.7~4.4倍と多くの成分で高濃度となった。一方、 $\text{NO}_3^-$ は都内の0.83~2.0倍と比較的近い値となった。PM2.5-10とPM2.5の成分濃度を比較すると、総量ではPM2.5-10がPM2.5の1/4程度になっており、主要成分であるEC、OC、 $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ も概ね1/4程度となった。一方、Ca、Fe、F<sup>-</sup>ではPM2.5-10中の濃度がPM2.5中の濃度の2倍程度になっていた。ウランバートルでは $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、Al、Ca、F<sup>-</sup>などはPM2.5に比べPM2.5-10中の構成比が大きくなっており、粗大粒子側に配分されやすい特徴がみられた。東京で測定されたPM2.5中の構成比と比較すると、OCの割合はウランバートルの方が高く、 $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{NH}_4^+$ は東京の方が高くなっていた。これは発生源の違いや一次粒子と二次粒子の寄与割合の違いなどが反映していると考えられる。

ウランバートルの大気大粉じんの化学成分分析結果を用いて、黄砂と汚染物質の混合状態について解析した。黄砂粒子の主成分のひとつはAlである。また、黄砂エアロゾルの粒径分布は粗大粒子領域にピークを持つ。そこで、粗大粒子に相当するPM2.5-10に含まれるAl(粗大Al)を黄砂エアロゾルの指標とし、粗大Al濃度に対してPM2.5-10に含まれる化学成分濃度をプロットした。その結果、Al濃度とEC、OC及びCl<sup>-</sup>濃度の間に相関は認められなかったが、Al濃度と $\text{SO}_4^{2-}$ は5%有意水準、 $\text{NO}_3^-$ 、F<sup>-</sup>は1%の有意水準で相関が認められた。この結果は、EC、OC及びCl<sup>-</sup>は黄砂粒子と別の粒子として存在、すなわち外部混合状態であることを示唆する。一方、 $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、及びF<sup>-</sup>はAlと同じ粒子中に存在、すなわち内部混合状態であったことを示唆する。東京ではAlと他の化学成分との間に相関は見られず、外部混合状態であったと推察される。ウランバートルのような非常に寒い地域では、排出されたガス状の汚染物質が大気中で輸送中に二次生成粒子となるのではなく、大気に排出されるとすぐに大気中の土壌粒子に吸着されて輸送されることが考えられる。

ダイオキシン類の測定をウランバートルで行うために、現地に既存のローボリウムエアサンプラー(FRM、Thermo)に、PUF装着のためのチューブ及び大粉じん採取用のインパクター(石英繊維ろ紙を装着)を接続し、ガス態と粒子態の同時捕集を可能とした。これを用いてPM2.5およびガスを捕集した。捕集された大気中のダイオキシン類濃度は $46 \text{ pg m}^{-3}$ で、2011年11月に東京都環境科学研究所で捕集された大気中のダイオキシン類濃度の5倍以上であった。このときのウランバートルの大気中のダイオキシン類の83%がCo-PCBsであり、35%の東京とは異なる特徴を持っていた。毒性等量に換算すると、ウランバートルが $0.017 \text{ pg-TEQ m}^{-3}$ 、東京が $0.066 \text{ pg-TEQ m}^{-3}$ となった。毒性等量への寄与が最も大きかったのはPCDFsで、この傾向は東京と同じであった。分析値が定量下限値以上であった異性体についてガス・粒子分配比を計算した。ガス態のPCDDsとPCDFsの各異性体は定量下限値以下であった。Co-PCBsの各異性体は50~90%がガス態であり、塩素数が少ない異性体ほどガス態の割合が大きかった。ウランバートルの大気中の総ダイオキシン類濃度に占めるガス態のCo-PCBs濃度の割合は59%であったが、総ダイオキシン類の毒性等量に占めるガス態のCo-PCBsの毒性等量の割合は6.5%であっ

た。

ダイオキシン類の同族体組成は燃焼パターンを示した。ウランバートルの大気汚染物質排出源は、火力発電所、暖房ボイラ施設、小型石炭焚き温水ヒーター、ゲルストーブと考えられており、大気中のダイオキシン類もこれらの排出源の影響を受けていることが考えられる。一方、2013年8月は他と異なる組成となった。8月は平均気温が14.4℃と、他の月に比べ高くなっていたため、低塩素のPCDDsとPCDFsが粒子態でなくガス態で存在しており、同族体パターンが異なった可能性もある。

### (3) 汚染混合型の黄砂沈着フラックス量を推計する黄砂予報モデルの応用研究

汚染混合型黄砂予報モデルシミュレーションにより2013年1月のPM2.5汚染混合型黄砂の地表付近濃度分布を計算した結果、1月11日～14日には、人為起源の硫酸塩や炭素系エアロゾルとともにダストの濃度が高く、PM2.5濃度上昇にダスト粒子が寄与している可能性が示唆された。しかしながら、1月11日前後には中国・モンゴルでのダスト現象の観測報告は少なく、このイベントに対してはダスト濃度が過大評価である可能性が高い。また、非常に高濃度のPM2.5汚染が報告されているにもかかわらず硫酸塩の濃度が低めである。一方、国立環境研究所による福江島でのPM1.0相当の粒子状物質の成分別濃度観測によると、硫酸塩は約48%、有機物が約35%を占めており、二酸化硫黄から硫酸塩エアロゾルを生成する等の化学過程プロセスに改良が必要であることが示唆された。

汚染混合型黄砂予報システムによってシミュレートされる粒子濃度を、日本国内の大気汚染物質広域監視システム(そらまめ君)により検証し、組成的特徴とその発生起源について考察した。検証対象地域としては黄砂および越境汚染の影響を受けやすい山陰地方を選んだ。検証対象時期は黄砂および硫酸塩の発生が多い春から夏までを選んだ。汚染混合型黄砂予報システムは鳥取県内のPM2.5濃度を精度良く定量的に再現した。特に数日間にわたって大規模な濃度上昇が観測された期間(すなわち総観規模の現象が起きている期間)には、その濃度上昇および下降のタイミングを非常に良く再現した。このことは数値モデルを用いてPM2.5濃度を予測することが可能であることを示している。山陰地方におけるPM2.5濃度変動は気象条件、黄砂の飛来、日本国内の人為大気汚染、海外からの越境汚染、自然起源の環境変動などが複雑に組み合わさっているが、黄砂と大気汚染エアロゾルを同時に計算する汚染混合型黄砂予報システムによって再現し理解できることが示された。

一方、長期間の黄砂予報モデルシミュレーションにより黄砂の放出量、沈着量の推定を行った。黄砂の放出量自体には大きなトレンドは見られないが、年毎の黄砂放出量の変動に着目すると1990年代後半から変動が大きくなっている。大陸における黄砂の発生量と日本付近への黄砂の沈着量には正の相関(相関係数=0.68)があり、黄砂発生量が多くなると日本付近への沈着も多くなる。日本付近への黄砂沈着量の大陸における黄砂発生量の割合は概ね5%程度であった。なお、沈着の大部分は湿性沈着によるものであった。

観測データにもとづく逆解析によって黄砂放出量を推定した結果、モデルでは中国東北部における黄砂放出量が過少で、ゴビ砂漠では過大であったことが分かった。これは、中国東北部に於ける植生の取り扱い等に問題がある可能性を示唆している。なお、黄砂の総放出量は2008年5月が8.2Tg(先験情報では14.6Tg、以下同様)、2009年3月が3.1Tg(8.0Tg)、2009年10月が9.6Tg(38.9Tg)、2009年12月が8.1Tg(0.8Tg)となり、2009年12月の事例を除いて逆解析は総放出量を減少させている。このことは、モデルの黄砂放出過程にまだ改良の余地が残されていることを示している。

### (4) 黄砂沈着のネットワーク観測と組成変化に関する研究—海洋に沈着する黄砂—

柏キャンパスにおいて、エアロゾル試料、全降下物試料、降水試料中の不溶性粒子の数濃度測定を行った。個数粒径分布は、エアロゾルと全降下物質では3.5ミクロンから20ミクロンまで、粒径が大きくなるに伴い、ほぼ直線的に数濃度が減少するのに対して、降水試料中の不溶性粒子の粒径分布では、10ミクロン以上、50ミクロン程度までの粒子が同程度の数濃度で存在した。乾性沈着、湿性沈着する不溶性粒子は、エアロゾル粒子がそのまま同じ粒径分布で沈着するのではなく、粒径による沈着速度の違いが反映されることが確かめられた。降水による除去には、雲核に取込まれた粒子が除去される雲内除去と雲下に存在する粒子が雨滴と衝突して除去される雲下除去の2つの過程が考えられる。降水中に大粒径の不溶性粒子が多いのは、降水時の雲下除去が重要な過程になっているためと考えられる。

2012年1月29日から3月7日の学術研究船白鳳丸KH-12-1次航海(EqPOS)において、太平洋上で汚染混合型黄砂を捉えた。黄砂成分であるnss-Ca<sup>2+</sup>の濃度は、2月29日、北緯28度、西経170度付近で、他の地点に比べ非常に高い値(10 nM m<sup>-3</sup>)を示した。また、大気汚染起源である硝酸塩、非海塩性硫酸塩もこの前後の期間に高濃度であった。過去7日間の後方流跡線解析は、29日3:00(UTC)を境に、エアマスが大陸由来に変化したことを示した。同時刻に粒径60 nm以上の粒子数濃度の増加が見られ、特に粒径5.0 μm以上の粗大粒子の数濃度が上昇した。粒子数濃度の高い状態は29日3:00(UTC)から7時間以上続き、この時間に黄砂が飛来していた可能性が高い。天気図では、エアマスの変化とほぼ同時刻に寒冷前線が通過していた。

黄砂イベント中のエアロゾル粒径-個数濃度分布は、160-170 nmに450-800 dN/d(logdp)、 $\text{cm}^{-3}$ のピークを持つひと山分布であった。およそ40 nm以下の極微小粒子は比較的低濃度で、遠隔海洋上でよく見られるふた山分布ではなかった。極微小粒子が少なかったのは、その前駆体ガスや粒子がより大きな粒子と混合し凝集して数が減少したためか、発生源で比較的大きな粒子のみが発生して輸送されたためと考えられる。また、黄砂イベント中の総粒子数濃度に対する雲凝結核濃度の割合は、過飽和度0.1%と0.2%においてそれぞれ40%程度、80%程度と、比較的高い値になった。これは、極微小粒子が少ない特徴を反映している。

ATOFMSを用いた個別粒子の粒径-化学組成分析では、殆どの粒子が硫酸塩や硝酸塩、有機炭素成分と内部混合していることが分かった。また粒子を組成タイプ別に分類すると、およそ700 nmを境に粒子の組成タイプが異なっていた。700 nm以下の粒子のほとんどが燃焼起源のOCやECを含む粒子で占められていた。一方、700 nm以上では海塩粒子が大部分を占めていた。ATOFMSで得られたnss-Ca<sup>2+</sup>を含む粒子全体のうち、粒径700 nm以下のおよそ約20%が海塩と混合状態にある事が分かった。これに対し700 nm以上では約50%であり、海塩タイプ粒子の多い700 nm以上の大きさでは、黄砂と海塩がより内部混合していると判明した。粒径が増加することにより、乾性沈着が促進されることが予想される。また、黄砂が海塩と内部混合し、より大きく吸湿性のある粒子へと変化することで、海上を輸送される黄砂粒子の湿性沈着が促進されている可能性がある。

黄砂予測モデル(サブテマ(3))によってシミュレートされた黄砂と硫酸エアロゾルの濃度分布は、本研究で観測された黄砂と硫酸エアロゾルの相対的な時間変化を明瞭に再現した。

#### (5) 黄砂沈着のネットワーク観測と組成変化に関する研究 - 陸地に沈着する黄砂 -

表(5)-1に掲げたのは、各地点における沈着過程別の鉱物質ダスト沈着量と、湿性/乾性沈着量比である。2012年12月から2013年4月にかけては装置の不調で沈着過程分別が不確実であるため、表内に括弧書きで示した。

表(5)-1 黄砂沈着観測ネットワークで観測された鉱物質ダスト沈着量 ( $\text{g}/\text{m}^2\text{yr}$ )

	Wet			Dry			Total		wet/ dry
	2012秋	2013	2014	2012秋	2013	2014	2013	2014	2014
秋田	(0.95)	(5.45)	5.12	(0.47)	(5.86)	2.28	(11.32)	7.40	2.2
鳥取	(0.97)	(3.40)	3.45	(0.80)	(4.53)	2.94	(7.94)	6.39	1.2
福岡	(1.83)	(2.50)	2.63	(1.42)	(3.81)	3.36	(6.31)	5.99	0.8
辺戸岬	0.35	1.43	2.36	0.39	1.54	1.43	2.97	3.79	1.7

先気象庁による黄砂観測記録によれば、2012年秋から2014年12月は黄砂の飛来が少なかったが、黄砂の不活発な年でも鉱物質ダストは少量ながら常に沈着していることが示された。地理的には、南方の沖縄よりも北方の秋田の方が、沈着量(湿性と乾性の和)は倍近く多かった。年間の乾性沈着量は、最大が福岡の $3.36\text{g}/\text{m}^2\text{yr}$ 、最小が辺戸岬の $1.43\text{g}/\text{m}^2\text{yr}$ であった。湿性/乾性の比を見ると、秋田で2.2に対し、福岡では0.8と、黄砂発生源にもっとも近い福岡で乾性沈着の割合が高かった。

湿性沈着の時系列データを見ると、2012年11月30日頃や2014年3月17日頃に値が高かったが、該当時期に地上では黄砂の報告はなかった。松江のライダーデータでは、同時期には地表よりも上空でダスト濃度が高く、その一部が降水で沈着したと考えられる。湿性沈着したダストの粒径分布は、 $5\mu\text{m}$ 付近の肩と $10\sim 15\mu\text{m}$ のモード径をもつ特徴があった。鳥取、福岡では $>20\mu\text{m}$ にも肩が見られた。福岡では $>20\mu\text{m}$ の割合が高く、黄砂発生源に近いところほど大きな粒子が沈着すると考えられる。乾性沈着では $10\sim 15\mu\text{m}$ 付近と $>20\mu\text{m}$ をモード径とする二峰の重ね合わせが多くみられ、 $5\mu\text{m}$ 付近の肩は目立たなかった。

ダストの飛来は、太平洋高気圧に覆われ南方からの空気塊の移流が卓越する夏には少ない。しかし上空の中上部対流圏では、夏も中緯度大気の影響を受けており、ダスト粒子が飛来する可能性がある。汚染大気と混合した黄砂がゆっくりと日本を被うような場合には、PM<sub>10</sub>とPM<sub>2.5</sub>の両方が連続して高くなる可能性がある。2013年の夏季にはそのようなイベントが2回見られた。鳥取で採取したPMのイオン成分は、PM<sub>2.5</sub>濃度の高い7月26日前後と8月12日前後に、非海塩硫酸イオン濃度が高かった。鳥取ではこの少し前から、PM<sub>c</sub>(PM<sub>10</sub>-PM<sub>2.5</sub>)濃度が高く、PM<sub>c</sub>とPM<sub>2.5</sub>粒子中の非海塩Caイオン濃度(黄砂粒子の指標)も7月25日や8月12日頃に高かった。非海塩Caイオン濃度の絶対値は、春の黄砂イベントに比べればずっと低い、夏に観測されたことは注目される。粒径別のイオンバランスは、PM<sub>2.5</sub>粒子中では硫酸アンモニウム粒子が支配的で、PM<sub>c</sub>粒子中では海塩や炭酸カルシウムが硝酸イオンと反応して生成される硝酸ナトリウムや硝酸カルシウムが支配的であった。この期間にゴビ砂漠周辺ではダストイベントの報告がなく、非海塩カルシウムをもたらしたダスト粒子の起源は現時点で不明であるが、夏の高PM<sub>2.5</sub>イベントの際に、PM<sub>2.5</sub>黄砂がわずかながらでも飛来していることは注目される。

## 5. 本研究により得られた主な成果

### (1) 科学的意義

内部混合状態の黄砂(汚染された黄砂)の光学特性を偏光OPCによって初めて観測した。また、汚染された黄砂の光学モデル構築のための方法を示した。さらに、2波長偏光ライダーにより汚染された黄砂の分布を遠隔計測する手法を検証した。汚染された黄砂をリアルタイムで測定する手法の開発により、黄砂と大気汚染粒子の濃度に加えて黄砂の汚染度のデータを疫学研究等へ応用研究に提供することが可能となった。

黄砂発生源に近いウランバートルと東京の大気粉じん中の化学成分の特徴を把握し、土壌粒子と汚染物質の混合状態がウランバートルでは東京とは異なる特徴を持つことを明らかにした。

汚染混合型黄砂予測システムの開発によりPM2.5汚染混合型黄砂の飛来予測が可能となった。また、黄砂発生源や大気汚染(火山噴火なども含む)の組成と発生源の推定を行うことが可能となった。MASINGARを用いた30年以上における長期シミュレーションの結果、大陸における黄砂発生量の変動や日本付近への沈着量が推定された。さらに、逆解析によりMASINGARの改善すべき領域に関する知見が得られた他、PM2.5汚染混合型黄砂のデータ同化計算を行うための環境を整えることができた。

洋上を輸送される黄砂粒子が海洋大気中で海塩タイプ粒子と内部混合し、粒径が増加し、乾性沈着が促進されること、より吸湿性の高い粒子となって湿性沈着が促進されることが示された。

陸上のネットワーク観測により、湿性・乾性沈着する黄砂量と粒径分布を週毎、イベント毎に調べることで、黄砂の輸送・沈着現象の全体像を明らかにした。特に、黄砂の報告が少ない年においても年間4~7g/m<sup>2</sup>も沈着しており、沈着ダストの体積粒径分布は10~15μmにモード径があることがわかった。さらに、PM2.5黄砂が、夏にも飛来していたことを明らかにした。

### (2) 環境政策への貢献

#### <行政が既に活用した成果>

ライダーネットワーク観測で捉えた黄砂の動態を、準リアルタイムで環境省黄砂飛来情報ホームページに提供した。

本研究で開発し検証した気象研究所の汚染混合型黄砂予測システムに基づいて気象庁の黄砂予報モデルが更新された(2014年11月)。

三国環境大臣会合の黄砂に関する研究第1ワーキンググループにおいて、ライダーネットワーク観測データを共有するとともに、黄砂予測モデル結果や観測結果など本研究の成果を含む研究情報を提供した。

#### <行政が活用することが見込まれる成果>

PM2.5に含まれる黄砂量の推定手法(PM2.5/PM10比を用いる手法およびライダーで得られる黄砂消散係数、大気汚染粒子消散係数から変換する手法)を開発し、PM2.5における黄砂の影響を準リアルタイムで推定可能となった。これはPM2.5規制に有用な情報となると期待される。また、ライダーおよび偏光OPCによる汚染された黄砂の検出手法は、黄砂および大気汚染粒子の飛来状況に加えて、黄砂の汚染度の情報を(純粋な黄砂、大気汚染粒子と共存、汚染された黄砂の3レベル程度で)影響研究や一般に準リアルタイムで発信するための手法として活用できると期待される。

汚染混合型黄砂予測システムの開発により、PM2.5汚染混合型黄砂の飛来を予測することが可能となった。また、黄砂発生源や大気汚染(火山噴火なども含む)の組成と発生源の推定を行うことが可能となった。本研究で改良したモデルは黄砂の飛来の監視、影響評価、対策などの面で環境施策に貢献できる。

黄砂の沈着量の地理的分布や粒径分布が観測研究により明らかにされた。これは、黄砂予測モデルによる沈着量の検証、改良に役立つ。また、黄砂の環境影響評価に(従来は黄砂の濃度のみが用いられてきたが)沈着量を用いることが可能となる。

## 6. 研究成果の主な発表状況

### (1) 主な誌上発表

#### <査読付き論文>

- 1) N. Sugimoto, Y. Hara, A. Shimizu, T. Nishizawa, I. Matsui, and M. Nishikawa: Asia-Pacific J. Atmos. Sci., 49(1), 27-39, (2013).  
“Analysis of Dust Events in 2008 and 2009 Using the Lidar Network, Surface Observations and the CFORS Model”
- 2) N. Sugimoto, T. Nishizawa, A. Shimizu, I. Matsui, H. Kobayashi: Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer 150, 107-113, (2015) <http://dx.doi.org/10.1016/j.jqsrt.2014.08.003>.  
“Detection of internally mixed Asian dust with air pollution aerosols using a polarization optical particle



- counter and a polarization-sensitive two-wavelength lidar”
- 3) 杉本伸夫、西澤智明、松井一郎、清水厚、日暮明子: Journal of The Remote Sensing Society of Japan, 34(4) 286-292, (2014).  
「地上ライダーおよび放射計ネットワークによる EarthCARE搭載 ATLIDの検証手法の開発」
  - 4) 杉本伸夫、西澤智明、清水厚、松井一郎: Earozoru Kenkyu 29(3) 166-173, (2014).  
「エアロゾルライダー :データ品質保証と観測の整合性の確保」
  - 5) M. Nishikawa, M., D. Batdorj, M. Ukachi, K. Onishi, K. Nagano, I. Mori, I. Matsui, T. Sano: Analytical Methods (2013) DOI: 10.1039/c3ay40435h.  
“Prepartaion and chemical characterization of an Asian mineral dust certified reference material”
  - 6) M. Nishikawa, I. Matsui, I. Mori, D. Batdorj, E. Sarangerel, K. Ohnishi, A. Shimizu, N. Sugimoto: accepted for publication in Earozoru Kenkyu (2015).  
“Chemical characteristics of airborne particulate matter during the winter season in Ulaanbaatar”
  - 7) J.-Y. Kang, T. Y. Tanaka and M. Mikami: Atmos. Environ., 86, 35-46 (2014).  
“Effect of dead leaves on early spring dust emission in East Asia”
  - 8) W.R. Sessions, J.S. Reid, A. Benedetti, P.R. Colarco, A. da Silva, S. Lu, T. Sekiyama, T.Y. Tanaka, J.M. Baldasano, S. Basart, M.E. Brooks, T.F. Eck, M. Iredell, J.A. Hansen, O.C. Jorba, H.-M.H. Juang, P. Lynch, J.-J. Morcrette, S. Moorthi, J. Mulcahy, Y. Pradhan, M. Razinger, C.B. Sampson, J. Wang and D.L. Westphal: Atmospheric Chemistry and Physics, 15, 335-362 (2015).  
“Development towards a global operational aerosol consensus: basic climatological characteristics of the International Cooperative for Aerosol Prediction Multi-Model Ensemble (ICAP-MME)”
  - 9) K. Osada,: Atmospheric Research, 124, 101-108 (2013)  
“Water soluble fraction of Asian dust particles,”
  - 10) K. Osada, S. Ura, M. Kagawa, M. Mikami, T. Y. Tanaka, S. Matoba, K. Aoki, M. Shinoda, Y. Kurosaki, M. Hayashi, A. Shimizu, and M. Uematsu: Atmospheric Chemistry and Physics, 14, 1107-1121 (2014)  
“Wet and dry deposition of mineral dust particles in Japan: factors related to temporal variation and spatial distribution,”

## (2) 主な口頭発表(学会等)

- 1) 杉本伸夫、清水厚、松井一郎、西澤智明: 第31回レーザセンシングシンポジウム, (2013)同予稿集  
「ライダーネットワークと偏光OPCによる汚染混合型黄砂の観測」
- 2) T. Nishizawa, N. Sugimoto, I. Matsui, A. Shimizu, H. Kobayashi: 3rd international symposium on atmospheric light scatterin and remote sensing (2013)  
“Aerosol observation by polarization optical particle counter (POPC) at Seoul, Korea”
- 3) 杉本伸夫、西澤智明、清水厚、松井一郎、小林拓: 第31回エアロゾル科学・技術研究討論会, つくば, 8月8日(2014)  
「偏光パーティクルカウンターとライダーによる黄砂の内部混合状態の推定」
- 4) N. Sugimoto, T. Nishizawa, A. Shimizu, I. Matsui, Y. Jin: SPIE Asia-Pacific Remote Sensing, Lidar RS Environ. Monitoring, Beijing, Oct 14-15, (2014)  
“Characterization of aerosols in East Asia with the Asian Dust and aerosol lidar observation network (AD-Net)”
- 5) 森育子、山崎正夫、Dashdondog Batdorj、高橋明宏、西川雅高、松井一郎、清水厚、高橋克行: 第53回大気環境学会年会(2012)  
「冬季ウランバートルの大気粉じん濃度変動の特徴」
- 6) 森育子、山崎正夫、Dashdondog Batdorj、西川雅高: 第22回環境化学討論会(2013)  
「ウランバートルの環境大気中のダイオキシン類分析の試み」
- 7) 森育子、山崎正夫、Dashdondog Batdorj、西川雅高、松井一郎、高橋克行、板谷庸平、田淵浩司: 第54回大気環境学会年会(2013)  
「冬季ウランバートルの大気粉じん中炭素成分の特徴」
- 8) 星純也、森育子、山崎正夫、Dashdondog Batdorj: 第55回大気環境学会年会(2014)  
「ウランバートルの大気粉じん中の化学成分濃度」
- 9) T.Y. Tanaka, T.T. Sekiyama, T. Maki, M. Kajino and K. Yamada: 4th International Cooperative for Aerosol Prediction (ICAP) Workshop, ESRIN, Frascati, Italy, 2012  
“Current status and updates of the aerosol forecast in Japan Meteorological Agency”

- 10) 眞木貴史, 田中泰宙, 関山剛, 三上正男: 日本気象学会2012年度秋季大会, 札幌 (2012)  
「逆解析を用いた2008、2009年における黄砂放出量解析」
- 11) 田中泰宙, 関山剛, 眞木貴史, 三上正男: 日本気象学会2013年春季大会, 東京 (2013)  
「汚染混合黄砂の数値モデル研究: 2013年1月の大気汚染事例」.
- 12) T. Maki, T. Y. Tanaka, K. Yumimoto, T. T. Sekiyama and M. Mikami: AGU Fall Meeting 2014, San Francisco, USA, 15-19 December, 2014  
“Dust emission analysis of multi-year dust events by inverse model”
- 13) 植松光夫、古谷浩志、河田綾、中山寛康、上田紗也子、三木裕介、三浦和彦: 砂漠学会分科会/風送ダスト研究会 (2014)  
「北太平洋上に飛来した黄砂」
- 14) M. Uematsu, H. Furutani, R. Kawata, Y. Nakayama, S. Ueda, Y. Miki, K. Miura: International Conference on Atmospheric Dust-DUST 2014, Castellaneta Marina, Italy, 2014  
“Chemical Composition of Asian dust particles over the central North Pacific”
- 15) M. Uematsu: The 7th International Workshop on Asian Dust and Ocean EcoSystem (ADOES), Yinchuan, China, 2014  
“Transformation of Asian Dust Particles Over the Central North Pacific”
- 16) M. Uematsu, H. Furutani, R. Kawata, H. Nakayama: 13th Quadrennial iCACGP Symposium/ 13th IGAC Science Conference on Atmospheric Chemistry, Natal, Brazil, 2014  
“Transformation of Asian dust particles over the central North Pacific”
- 17) 長田和雄・DRAEMONグループ: 第30回エアロゾル科学・技術研究討論会 (2013年)  
「通過する黄砂と沈着する黄砂」
- 18) K. Osada: International conference on Atmospheric dust 2014, Castellaneta Marina (TA), Italy (2014)  
“Water soluble fraction of Asian dust particles”
- 19) K. Osada, S. Ura, M. Kagawa, M. Mikami, T. Y. Tanaka, S. Matoba, K. Aoki, M. Shinoda, Y. Kurosaki, M. Hayashi, A. Shimizu, and M. Uematsu: International conference on Atmospheric dust 2014, Castellaneta Marina (TA), Italy (2014)  
“Wet and dry deposition of mineral dust particles in Japan: Factors related to temporal variation and spatial distribution”
- 20) 長田和雄・黒崎泰典: 第31回エアロゾル科学・技術研究討論会 (2014)  
「鳥取における2013年夏期のエアロゾル高濃度イベントについて」

## 7. 研究者略歴

課題代表者: 杉本 伸夫 (平成25~26年度)

大阪大学大学院基礎工学研究科修了、理学博士、  
現在独立行政法人国立環境研究所環境計測研究センター、フェロー  
西川 雅高 (平成24年度)

東京理科大学大学院工学研究科修了、理学博士、  
独立行政法人国立環境研究所環境計測研究センター環境計測化学研究室、室長  
現在東京理科大学環境安全センター、センター長

### 研究分担者

- 1) 山崎 正夫  
東京都立大学理学部卒業、理学修士、現在東京都環境科学研究所主任研究員
- 2) 三上 正男  
気象大学校卒業、理学博士、現在気象研究所研究総務官
- 3) 植松 光夫  
北海道大学水産学部卒業、水産学博士、現在東京大学大気海洋研究所教授
- 4) 長田 和雄  
弘前大学理学部卒業、名古屋大学大学院理学研究科博士後期課程単位取得後退学、  
博士(理学)、現在名古屋大学大学院環境学研究科准教授

5B-1202 PM2.5規制に影響する汚染混合型黄砂の組成的特徴と飛来量／降下量  
に関する研究

(1) メガシティにおけるPM2.5黄砂の複合汚染に関する三次元的実態解明とその越境飛来観測

独立行政法人国立環境研究所

環境計測研究センター

杉本伸夫

環境計測研究センター 遠隔計測研究室

松井一郎・西澤智明

地域環境研究センター 広域大気環境研究室

清水 厚

平成24(開始年度)～26年度累計予算額：72,053千円

(うち、平成26年度予算額：24,556千円)

予算額は、間接経費を含む。

[要旨]

ゴビ砂漠で発生した黄砂はしばしば大気汚染地域を通過し、大気汚染粒子と混合して韓国や日本に輸送される。このような黄砂を本研究では汚染混合型黄砂と呼ぶ。黄砂の疫学研究において、汚染混合型黄砂は純粋な黄砂よりも影響が大きいことを示唆する報告もされており、汚染混合型黄砂の特徴を明らかにすることが重要である。汚染混合型黄砂には、黄砂と汚染粒子が単に共存する外部混合状態と、黄砂表面に大気汚染粒子が付着した内部混合状態のものが考えられ、それぞれ環境や健康への影響は異なると考えられる。

本研究では、2波長偏光ライダーおよび偏光パーティクルカウンター（偏光OPC）を用いて、外部混合および内部混合状態の汚染混合型黄砂を捉える手法を開発した。2013年からソウルにおいてライダーと偏光OPCの連続同時観測を行い、純粋な黄砂と外部混合および内部混合の汚染混合型黄砂の光学的な特徴を捉えた。さらに、ライダーネットワーク観測により、日本に輸送される汚染混合型黄砂の三次元的な分布と輸送を解析した。本研究期間中には大規模な黄砂現象は見られなかったが、2014年5月末から6月初めには長期間持続する黄砂現象が西日本で観測され、大気汚染粒子との混合も観測された。また、2015年3月には関東地方でも黄砂の飛来が観測された。

一方、PM2.5規制において、PM2.5に含まれる黄砂量を把握することが重要である。多くのモニタリング局でPM2.5とPM10（あるいはSPM）が同時に測定されているので、本研究では、これらを組み合わせてPM2.5中の黄砂量(PM2.5黄砂)を推定する方法を検討し、PM2.5とPM10の比とPM2.5黄砂の関係を定式化した。また、偏光ライダーで得られる黄砂および球形粒子の消散係数から推定したPM2.5中の黄砂および大気汚染粒子の量と比較して整合性を検証した。

これらの研究によって、汚染混合型黄砂の飛来および、PM2.5黄砂の濃度、黄砂の汚染状況（外部混合、内部混合）を準リアルタイムで把握することが可能となった。

[キーワード]

PM2.5黄砂、汚染された黄砂、黄砂飛来監視、ライダーネットワーク、偏光パーティクルカウンター

## 1. はじめに

日本で観測される黄砂の多くはモンゴル南部や中国内モンゴル自治区のゴビ砂漠で発生し、中国東北部を經由して輸送される。この時、大気汚染粒子と前後してあるいは同時に日本に飛来することがしばしばある。気象状況によっては、河北省などの汚染地域の大気境界層内を通過してゆっくり輸送されることもあり、そのような場合には黄砂表面に大気汚染粒子が付着した汚染された黄砂の飛来が懸念される。ここでは、黄砂と大気汚染粒子が混合して飛来する黄砂現象を総称して汚染混合型黄砂と呼ぶこととする。汚染混合型黄砂には、黄砂と大気汚染粒子が共存する外部混合状態と黄砂表面に大気汚染粒子が付着した内部混合状態があると考えられる。

黄砂の疫学研究において、黄砂の小児の喘息<sup>1)</sup>や呼吸器疾患への影響<sup>2)</sup>の報告があるが、汚染混合型黄砂は汚染されていない純粋な黄砂よりも影響が大きいことを示唆する結果も報告されている<sup>2)</sup>。そこで、汚染混合型黄砂の特徴を明らかにすることが重要な課題である。黄砂と汚染粒子の外部混合状態と内部混合状態では環境や健康への影響が異なると考えられ、それらを区別して汚染混合型黄砂を捉えることが重要となる。

これまでの研究では、2波長偏光ライダー（532nmと1064nmの後方散乱と532nmの偏光解消度を測定）により、黄砂と大気汚染粒子の外部混合状態を解析する手法が開発されているが、本研究では、外部混合と内部混合を明確に観測するために、個々の粒子の大きさと偏光特性を測定することできる偏光パーティクルカウンター（偏光OPC）を新たに導入し、2波長偏光ライダーとの長期間の同時観測をソウルにおいて行った。これによって、純粋な黄砂と外部混合および内部混合の汚染混合型黄砂の光学的な特徴を捉えることができた。また、ライダーデータとの対応も明らかになった。さらに、ライダーネットワーク観測により、本研究期間中に日本に輸送された黄砂の三次元的な分布と大気汚染粒子との混合状態を解析した。本研究期間中には大規模な黄砂現象は見られなかったが、2014年5月末から6月初めには長期間持続する黄砂現象が西日本で観測され、大気汚染粒子との混合も観測された。また、2015年3月には関東地方でも黄砂の飛来が観測された。

一方、PM<sub>2.5</sub>規制においては、PM<sub>2.5</sub>中の黄砂寄与を把握することは重要であると考えられる。本研究ではPM<sub>2.5</sub>中の黄砂量（PM<sub>2.5</sub>黄砂）を推定する手法を検討した。現在、多くのモニタリング局でPM<sub>2.5</sub>とPM<sub>10</sub>（あるいはSPM）が同時に測定されており、これらを組み合わせたPM<sub>2.5</sub>黄砂の推定方法は有用であると考えられる。そこで、PM<sub>2.5</sub>とPM<sub>10</sub>の比からPM<sub>2.5</sub>黄砂を推定する手法を定式化した。一方、偏光ライダーで得られる黄砂および球形粒子の消散係数とPM<sub>2.5</sub>の関係を調べ、黄砂消散係数および球形粒子消散係数からPM<sub>2.5</sub>黄砂および大気汚染性PM<sub>2.5</sub>を求めるための変換係数を求めた。PM<sub>2.5</sub>とPM<sub>10</sub>の比から求めたPM<sub>2.5</sub>黄砂とライダーから変換したPM<sub>2.5</sub>黄砂を比較して整合性を検証した。

これらの研究によって、黄砂の飛来状況に加えて、PM<sub>2.5</sub>黄砂の濃度および黄砂の汚染状況（外部混合、内部混合）を準リアルタイムで把握することが可能となった。

## 2. 研究開発目的

本研究（本サブテーマ）の研究開発目的は大きく以下の3つである。

- 1) メガシティにおける汚染混合型黄砂の分布および輸送の三次元的動態を明らかにする。
- 2) 汚染混合型黄砂（外部混合、内部混合）の光学的な特性を明らかにし、準リアルタイムで計測

する手法を開発すること。また、この手法を用いて動態を明らかにすること。

- 3) PM2.5に含まれる黄砂量（PM2.5黄砂）を推定する手法を開発すること。また、事例解析により実態を明らかにすること。

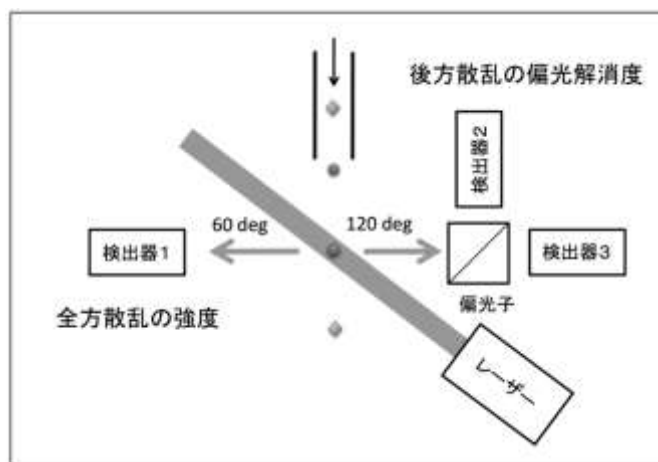
### 3. 研究開発方法

#### (1) メガシティにおける汚染混合型黄砂の分布および輸送の三次元的動態の把握

先行研究等で開発された東アジアの2波長偏光ライダーネットワーク（AD-Net）による観測および化学輸送モデルによって、メガシティにおける汚染混合型黄砂の分布、発生源から研究対象地域であるメガシティまでの輸送、メガシティから風下への輸送の三次元的な動態を明らかにする。また、ライダーネットワークによる継続的観測データを関連サブテーマに提供するとともに、三国環境大臣会合の黄砂に関する研究ワーキンググループの活動等の関連研究や環境省黄砂飛来情報ホームページにデータを提供する。

#### (2) 汚染混合型黄砂のリアルタイム計測

ライダーネットワークの2波長偏光ライダーと同時に、地上で粒子一個毎の粒径と非球形性を計測できる偏光パーティクルカウンター（偏光OPC）を用いた観測を行う。偏光OPCの概念を図(1)-1に示す<sup>3)</sup>。偏光OPCでは個々の粒子について散乱強度と偏光解消度、前方散乱対後方散乱の3つの情報が得られる。これを統計的に解析することによってエアロゾルの粒径分布や非球形性と混合状態が分かる。



図(1)-1 偏光 OPC

2波長偏光ライダーでも2波長の後方散乱と1波長の偏光解消度の3つの情報が得られ、黄砂の混合状態が推定されるが、ライダーでは原理的に多数の粒子からの散乱を同時に測定するので散乱特性に関する情報は偏光OPCに比べて少ない。そこで、本研究では偏光OPCとライダーによる測定を同じ地点で長期間行い、解析結果を比較することによって、偏光OPCで黄砂の混合状態（外部混合、内部混合）を明確に捉えるとともに、ライダーで捉えた光学特性との整合性を検証する。これによって、ライダーのみでも混合状態の推定が可能となる。さらに偏光OPCのデータか

ら、内部混合した黄砂（汚染された黄砂）の光学モデルを決定することができる。本研究では長期間の観測データを用いて汚染された黄砂の光学モデルを検討した。なお、ライダーと偏光 OPC の同時連続観測は、中国からの汚染された黄砂の影響を受けると考えられるソウルにおいて行った。

### （3）PM2.5に含まれる黄砂量（PM2.5黄砂）の推定

モニタリング局のPM2.5およびPM10（あるいはSPM）データを用いてPM2.5に含まれる黄砂量を推定する手法および2波長偏光ライダーで得られる黄砂消散係数からPM2.5黄砂を推定する手法を開発し、黄砂事例について両者の比較を行う。

PM2.5とPM10を用いる手法では、あらかじめ黄砂と大気汚染粒子について粒径分布を仮定し、黄砂と大気汚染粒子の2種類が外部混合しているものと考えてPM2.5黄砂を推定する。本研究では、PM2.5/PM10をパラメーターとしてPM2.5黄砂を定式化した。

一方、ライダーによる黄砂量の推定では、黄砂と大気汚染粒子では偏光解消度が大きく異なることを利用する。ここでも黄砂と大気汚染粒子の外部混合を仮定して観測された偏光解消度が再現されるように混合比を求める。得られた黄砂および大気汚染粒子（球形粒子）の消散係数を近傍のモニタリング局のPM2.5と比較して、それぞれをPM2.5の重量濃度に変換するための係数を求めた。

## 4. 結果及び考察

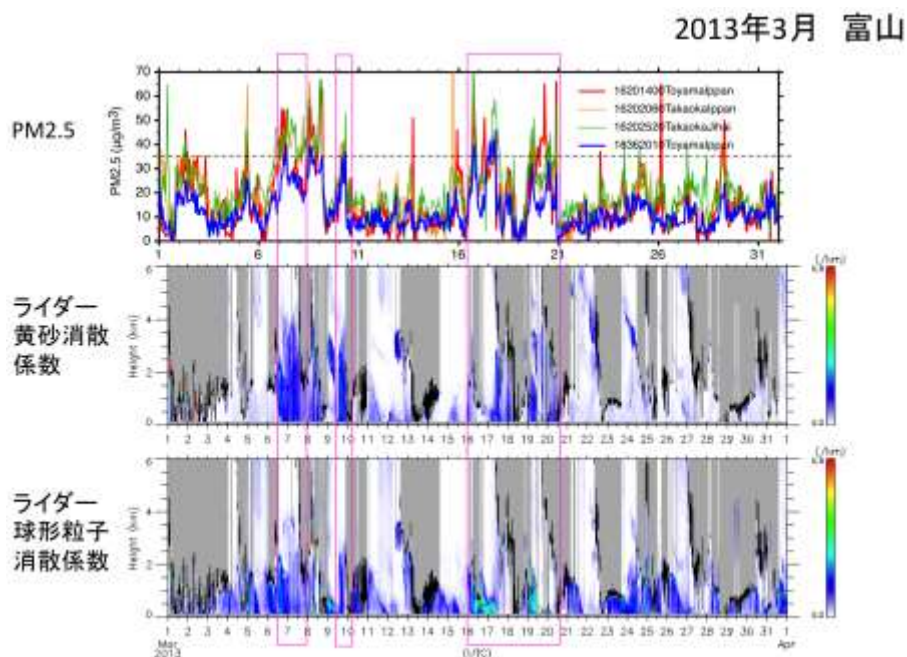
### （1）メガシティにおける汚染混合型黄砂の分布および輸送の三次元的動態の把握

汚染混合型の黄砂の観測が期待されるメガシティであるウランバートル、ソウルを含むライダーネットワーク観測を実施した。ライダーネットワークは東アジアの20地点（環境省設置の富山、長崎、松江、新潟、東京の5地点を含む）で構成され、2波長（532nm, 1064nm）の後方散乱と（532nm）の偏光解消度が昼夜連続して観測される。データは準リアルタイムで国立環境研に転送され、準リアルタイムでデータ処理が行われる。標準的なデータ処理では、後方散乱ライダー基本的な測定パラメーターである532nmと1064nmの減衰後方散乱係数および532nmの体積偏光解消度と、独自の解析プロダクトである非球形粒子（黄砂）および球形粒子（大気汚染粒子）の消散係数を準リアルタイムで算出している。

黄砂および大気汚染粒子の消散係数は、粒子偏光解消度の異なる黄砂と大気汚染粒子の2種類の混合（外部混合）を仮定し、観測された偏光解消度が再現されるように混合比を求めることによって推定される。この手法は簡単な仮定に基づくが、黄砂と大気汚染粒子の分布を分離して可視化できるため非常に有用である。また、解析結果の誤差の評価も行われており、黄砂のデータ同化研究や疫学研究にもこの解析データが用いられている。本研究においては、この解析データをもとに黄砂および大気汚染粒子の輸送の動態を解析した。日中韓環境大臣会合の黄砂共同研究第1ワーキンググループでも、主要な黄砂イベントについてこの解析データ（黄砂および大気汚染粒子の消散係数）を共有して共同研究を進めている。

黄砂および大気汚染粒子の消散係数の一例を図(1)-2に示す。これは富山の2013年3月の例で、最上段はライダー地点に近いモニタリング局のPM2.5を合わせて表示している。二段目が黄砂消散係数の時間高度表示、最下段は大気汚染粒子の消散係数である。この図では、3月6-10日に弱い黄

砂が観測され、16-19日には大気汚染粒子が観測されている。地上PM2.5との比較の結果、弱い黄砂でもPM2.5が日平均の基準である $35 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 近くまで増加することが分かる。



図(1)-2 モニタリング局で測定されたPM2.5とライダーから導出した黄砂および球形粒子（大気汚染粒子）の消散係数（弱い黄砂でもPM2.5に大きく影響することを示す事例）

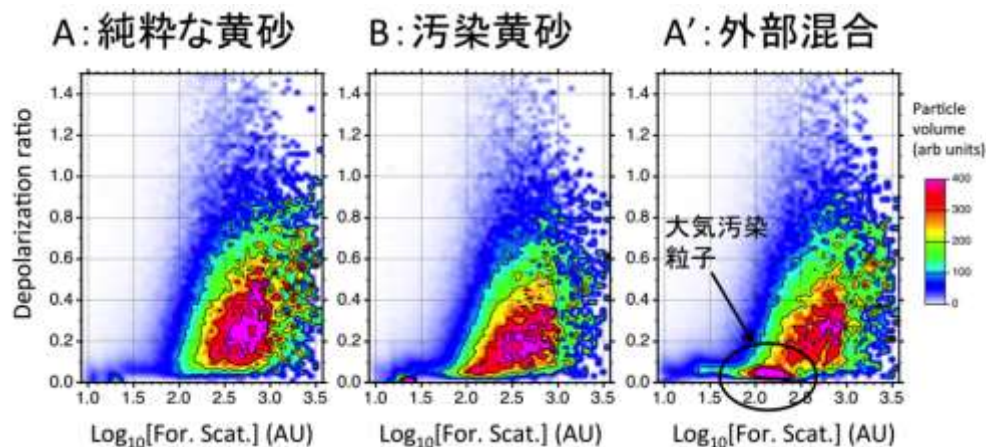
本研究期間（2012年4月から2015年3月）は比較的黄砂の少ない期間であったが、2012年3月27-4月2日、4月20-5月2日、11月25-30日などに黄砂がライダーネットワークにより観測された。2013年は3月5-22日、2013年12月26日-2014年1月6日などに黄砂が観測された。この他、次節で詳細に報告するように2013年4月にも小規模な黄砂がソウルなどで観測された。2014年は5月25日から6月4日にかけて長期間持続する黄砂現象が西日本で観測された。この事例の解析の詳細については本報告書では触れないが、輸送状況や大気汚染との混合についての解析が行われた<sup>4)</sup>。

## （2）汚染混合型黄砂のリアルタイム計測

黄砂と大気汚染性粒子の混合が外部混合であるか内部混合であるかを明らかにすることは汚染混合型黄砂の健康影響や環境影響（例えば海洋生態系への影響など）を研究するうえで極めて重要であると考えられる。前節で述べた標準的な偏光ライダーの解析では外部混合状態を仮定して解析が行われ、黄砂と大気汚染粒子が混合していることは分かっても内部混合であるかどうかを判定できない。2波長偏光ライダーの偏光解消度と散乱の波長依存性を同時に用いることによって外部混合、内部混合の判別は可能であると考えられるが、これまでには明確な証拠となる比較観測は行われていなかった。そこで、本研究では、個々の粒子の大きさと非球形性（偏光解消度）を同時に測定できる地上測器である偏光OPCを導入し、純粋な黄砂、大気汚染粒子と外部混合した黄砂、大気汚染粒子と内部混合した黄砂のそれぞれの特徴を明らかにした。また、2波長偏光ライダーと同時に観測を行なうことによってライダーのみから混合状態を推定する可能性についても検証した。観測は中国から汚染された黄砂が飛来すると考えられるソウルのライダー観測地点

において、2013年3月から継続して実施した。

偏光OPC (図(1)-1) では、前方散乱強度 (粒径に対応) と後方散乱偏光解消度、前方散乱強度対後方散乱強度比の3つのパラメーターが粒子ひとつ毎に測定される。個々の粒子に対する測定値 (例えば偏光解消度) は粒子のレーザービームに対する向きによって大きく変化するが、前方散乱強度と偏光解消度の散布図にプロットして分布を解析することで粒子のグループの粒径分布と粒径毎の偏光解消度を統計的に解析することができる。(原理的には3次元の散布図で解析が可能であるがここでは前方散乱強度と偏光解消度の2次元を考える。) 図(1)-3に、純粋な黄砂、内部混合した汚染された黄砂、汚染粒子と外部混合した黄砂に対する散布図を示す。図の横軸は前方散乱強度、縦軸は偏光解消度で、それらの値を持つ粒子の体積をカラースケールで表示している。測定時間はそれぞれ一時間で、それぞれ数十万点のデータを含んでいる。純粋な黄砂(A)の散布図は大粒子で大きな偏光解消度を持つひと山の分布を示す。外部混合状態(A')では純粋な黄砂の分布に加えて小粒子で偏光解消度の小さいピークが現れる。内部混合状態(汚染黄砂)では分布はひと山であるがピークの偏光解消度が純粋な黄砂よりも小さい。

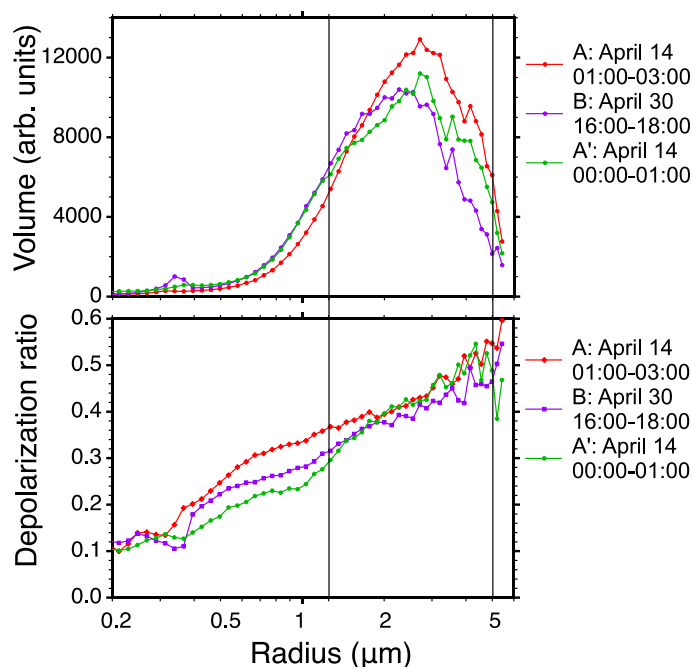


図(1)-3 偏光OPCで測定された前方散乱強度と偏光解消度の散布図  
(横軸の前方散乱強度は粒径と対応する)

図(1)-4は、図(1)-3の結果を粒径分布と粒径毎の偏光解消度で表したものである。この図では前方散乱強度を粒径に変換してある。純粋な黄砂(A)と汚染された黄砂(B)を比較すると、汚染された黄砂ではどの粒径でも偏光解消度が低下していることが分かる。図(1)-4では汚染された黄砂と外部混合した黄砂(A')の違いは分かりにくい、外部混合では大粒子の偏光解消度は低下していないことが分かる。粒径分布をみると、汚染された黄砂(B)では大粒子が純粋な黄砂(A)に比べて減っていることが分かる。これは、後に流跡線を示すように汚染された黄砂では発生源からの輸送時間が長いことと対応している。外部混合では、絶対値は異なるが大粒子側の分布形状に大きな変化はなく、(図(1)-4では明らかなように) 小粒子が増えていると解釈される。

内部混合による偏光解消度の変化は、粒子表面への大気汚染性粒子の付着による形状の変化あるいは複素屈折率の変化で説明できるが、後に示すように複素屈折率の変化(光吸収性が増加)によると考えるのが妥当である。

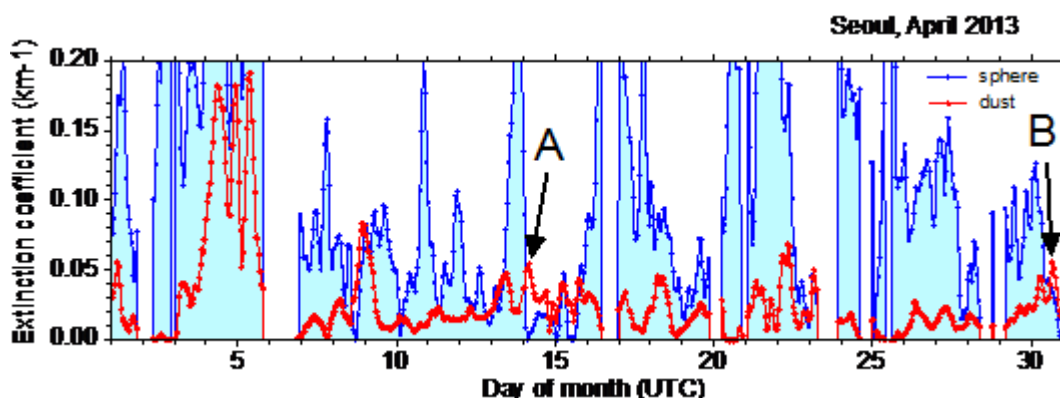




図(1)-4 偏光OPCデータ (図(1)-3) から求めた粒径分布と粒径毎の偏光解消度

図(1)-3、図(1)-4に示した純粋な黄砂、内部混合した汚染された黄砂、汚染粒子と外部混合した黄砂の事例は、ソウルにおける2013年4月ライダーの黄砂および大気汚染粒子の消散係数データと偏光OPCデータから探し出したものである。まず、ライダーデータから黄砂と大気汚染が同時に観測されている期間を探し、さらに1時間毎の偏光OPCデータの散布図の特徴を調べて事例を選択した。

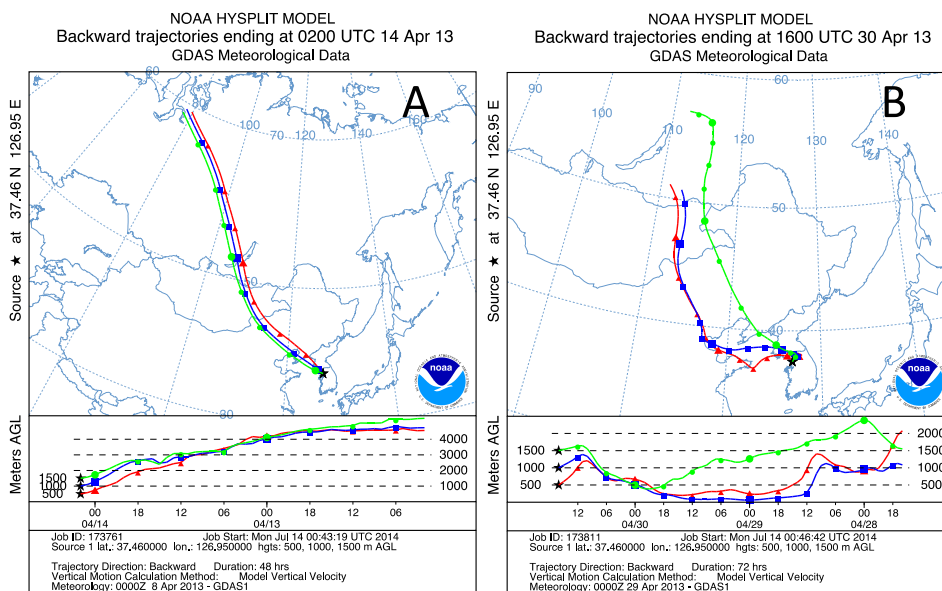
図(1)-5にライダーから求めた黄砂と大気汚染粒子の消散係数を示す。A、Bは選択された純粋な黄砂、汚染された黄砂の事例である。外部混合状態A'は、ここに表示していないがAの直前である。



図(1)-5 ライダーから求めた (赤) 黄砂と (青) 大気汚染粒子の消散係数  
(外部混合を仮定して導出)

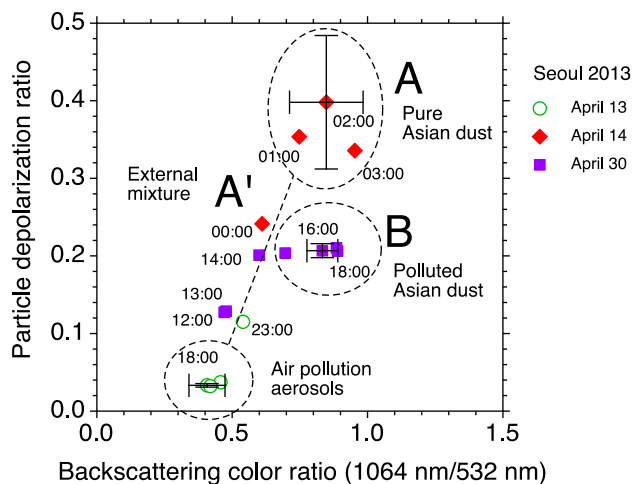
NOAAのHYSPLITモデルによる事例A、Bの後方流跡線を図(1)-6に示す。Aでは黄砂は発生源から直接ソウルに輸送されているのに対して、Bでは北京周辺を、時間をかけて通過していることが分か

る。また、重要なことは、北京周辺で低高度を輸送されていることである。図(1)-5を見ると3月4日などにも黄砂と大気汚染の混合状態が観測されているが、これらでは偏光OPCで内部混合の特徴を表すデータは得られなかった。流跡線によると汚染地域で上空を通過していたためであると考えられる。



図(1)-6 純粋な黄砂と汚染された（内部混合した）黄砂の輸送経路の違い

図(1)-7に事例A, A', Bについて、2波長偏光ライダーで測定した地上付近の偏光解消度と後方散乱係数の波長比の散布図を示す。

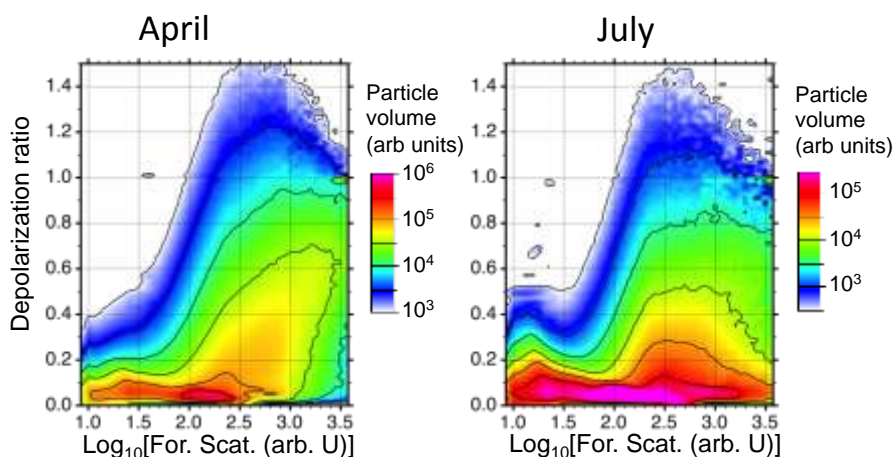


図(1)-7 同じ事例についてライダーで測定した地表付近のエアロゾルの光学特性

ライダーで得られる光学特性は多数の粒子の散乱を同時に測定したものであるので情報量は少ないが、純粋な黄砂Aと汚染された黄砂B、外部混合状態A'の特徴は捉えられている。この結果は、ライダーデータのみからでも黄砂と大気汚染エアロゾルの混合状態を推定できることを示してい

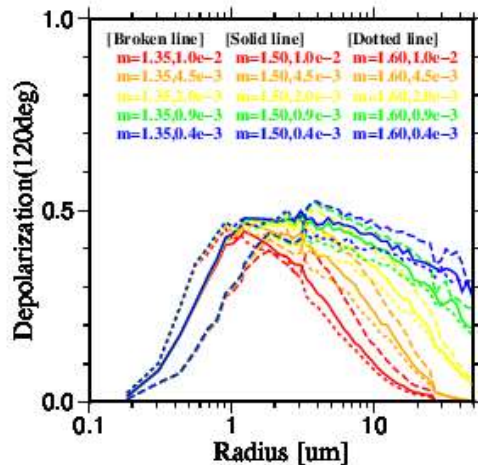
る。ただし、海塩などの球形の大粒子と黄砂が外部混合した場合の光学特性が大気汚染粒子と内部混合した黄砂と似ていると考えられるため、海塩粒子が存在する場合にはこれらの判別は困難である。

ソウルにおける偏光OPCによる継続的な観測から、黄砂シーズン以外でも濃度は低い非球形の大粒子がバックグラウンド的に存在することが明らかになった。図(1)-8に4月と7月の一ヶ月の前方散乱強度と偏光解消度の散布図を示す。いずれも偏光解消度の高い大粒子のグループと偏光解消度の低い小粒子のグループが重なっているが、大粒子のモードのみを見ると、7月の偏光解消度が低いことが分かる。これは7月の方が、内部混合が進んでいるためであると推定される。



図(1)-8 ソウルの偏光OPCで得られた(左)2013年4月と(右)7月の前方散乱強度と偏光解消度の散布図

4月と7月の偏光解消度の違いをよく調べると、図(1)-8の横軸のスケールで2.3付近(直径2.5ミクロンに相当)よりも大粒子では偏光解消度の違いが大きく、小粒子側ではあまり変わらないように見える。内部混合状態の黄砂の光学モデルにおいて、内部混合による形状の変化(丸くなる)と複素屈折率が変化(光吸収性が増える)のいずれの効果が重要であるかについて、楕円体モデルとボロノイモデルの黄砂について検討した。楕円体モデルの黄砂について形状を変化させた場合、偏光解消度の粒径依存性は、丸くなるに従ってどの粒径でも単調に偏光解消度が小さくなるわけではなく複雑な挙動を示すことが分かった。一方、複素屈折率の虚数部を増加した場合はどの粒径でも単調に偏光解消度が減少することが分かった。図(1)-9はボロノイモデルの黄砂の計算結果の一例である。複素屈折率の虚数部を大きくすると大粒径の偏光解消度が単調に減少している。また、小粒子側は変化がない。複素屈折率の実数部を変えるとピークがシフトするものの虚数部に対する変化には大きな違いは見られない。ただし、ここでは粒子全体の複素屈折率を変化させている。汚染された黄砂の場合は表面に吸収性を増やした層を考えるのが妥当であると考えられ、そのようなモデルによる計算を今後行なう必要がある。また、形状や組成について、電子顕微鏡などを使った分析との比較が必要である。

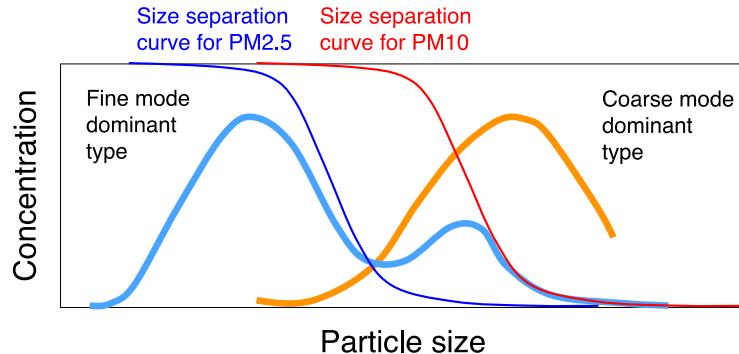


図(1)-9 ボロノイモデルの黄砂の偏光解消度の粒径に対する依存性

### (3) PM2.5に含まれる黄砂量 (PM2.5黄砂) の推定

#### 1) PM2.5とPM10の比を用いた手法の定式化

PM2.5とPM10の比は、大粒子モードが卓越する黄砂では小さく、微小粒子モードが卓越する大気汚染粒子では大きい(図(1)-10)。このことを利用して、PM2.5/PM10比からPM2.5(あるいはPM10, TSP(総浮遊粒子状物質))に占める黄砂の割合を推定する手法を定式化した。ここでは、PM2.5とPM10を考えたがPM2.5とSPM(PM7に相当)でも同様の手法が利用できる。



図(1)-10 黄砂と大気汚染粒子の粒径分布とPM2.5, PM10の分級特性の概念

黄砂および大気汚染粒子を分けて考え、それぞれについて、TSPに対するPM10の比が  $f_{10}$  および  $c_{10}$ 、TSPに対するPM2.5の比を  $f_{2.5}$  および  $c_{2.5}$  と表すと、PM2.5およびPM10は以下のように書ける。

$$\begin{aligned} PM_{2.5} &= f_{2.5}F + c_{2.5}C \\ PM_{10} &= f_{10}F + c_{10}C \end{aligned} \quad ((1)-1)$$

ここに、 $F$  と  $C$  は大気汚染粒子と黄砂の総重量濃度である。PM2.5/PM10比をRとするとRは以下のように書ける。

$$R = \frac{PM_{2.5}}{PM_{10}} = \frac{f_{2.5}F + c_{2.5}C}{f_{10}F + c_{10}C} \quad ((1)-2)$$

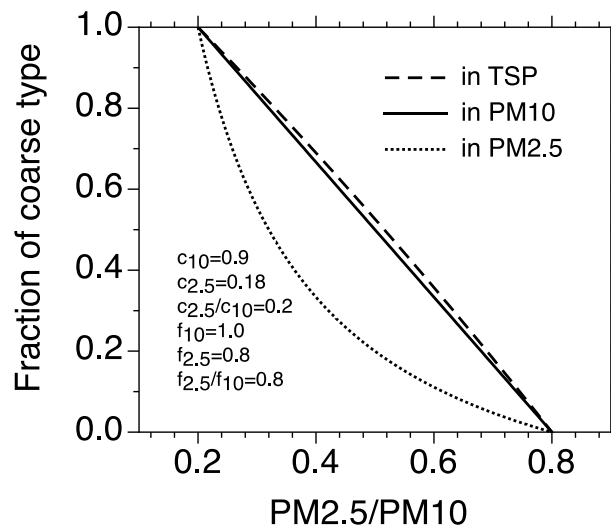
今、 $f_{2.5}$ 、 $f_{10}$ 、 $c_{2.5}$  および  $c_{10}$  が分っているものとする、TSP、 $PM_{10}$  および  $PM_{2.5}$  に占める黄砂の割合は  $R$  の関数として以下のように書ける。

$$(\text{Dust in TSP}) = \frac{C}{C+F} = \frac{f_{2.5} + f_{10}R}{f_{2.5} - c_{2.5} - (f_{10} - c_{10})R} \quad ((1)-3)$$

$$(\text{Dust in } PM_{10}) = \frac{c_{10}C}{c_{10}C + f_{10}F} = \frac{\left(\frac{f_{2.5}}{f_{10}}\right) - R}{\left(\frac{f_{2.5}}{f_{10}}\right) - \left(\frac{c_{2.5}}{c_{10}}\right)} \quad ((1)-4)$$

$$(\text{Dust in } PM_{2.5}) = \frac{c_{2.5}C}{c_{2.5}C + f_{2.5}F} = \frac{\left(\frac{c_{2.5}}{c_{10}}\right) \left(\left(\frac{f_{2.5}}{f_{10}}\right) - R\right)}{\left(\left(\frac{f_{2.5}}{f_{10}}\right) - \left(\frac{c_{2.5}}{c_{10}}\right)\right) R} \quad ((1)-5)$$

$f_{2.5}=0.8$ 、 $f_{10}=1$ 、 $c_{2.5}=0.18$ 、 $c_{10}=0.9$  とした場合の例を図(1)-11に示す。



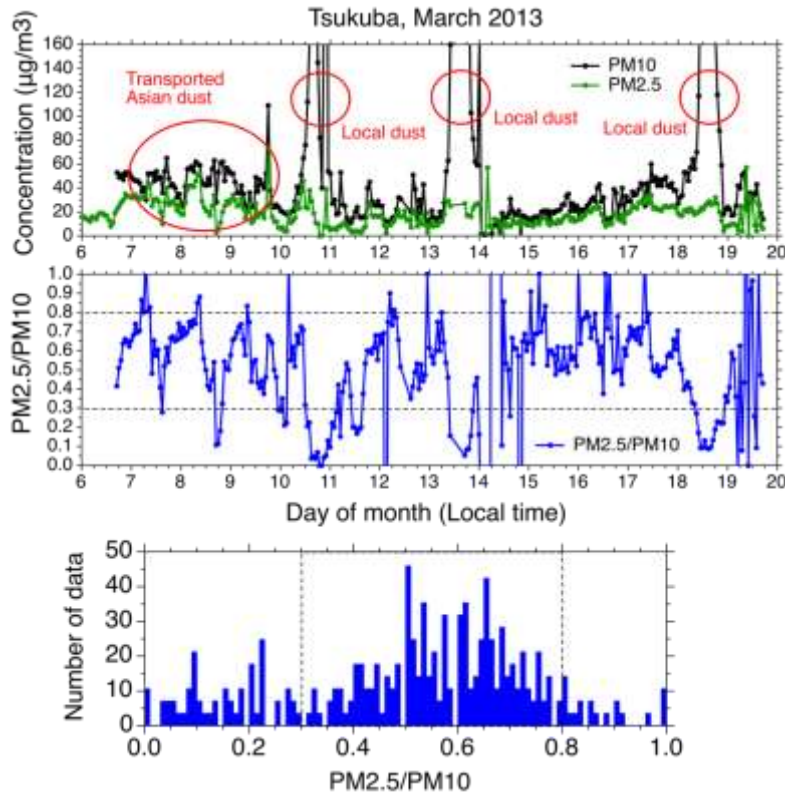
図(1)-11 黄砂の比率を  $R$  の関数としてプロットした例

$PM_{10}$  に占める黄砂の比率は  $R$  に線形であるが、 $PM_{2.5}$  と TSP では、それぞれ下と上に膨んだ関数になる。また、式(1)-4と5から分るように、 $PM_{10}$  と  $PM_{2.5}$  に対する黄砂の比率は  $c_{2.5}/c_{10}$  と  $f_{2.5}/f_{10}$  のみに依存し、TSP に対する割合  $c_{10}$ 、 $f_{10}$  を知らなくても計算できる。この手法を実際に用いるには、あらかじめ  $c_{2.5}/c_{10}$  と  $f_{2.5}/f_{10}$  を経験的に求めておく必要がある。なお、実際に測定した  $R$  が  $f_{2.5}/f_{10}$  よりも大きい、あるいは  $c_{2.5}/c_{10}$  よりも小さくなった場合は、 $R$  をその値で止めることで対応できる。

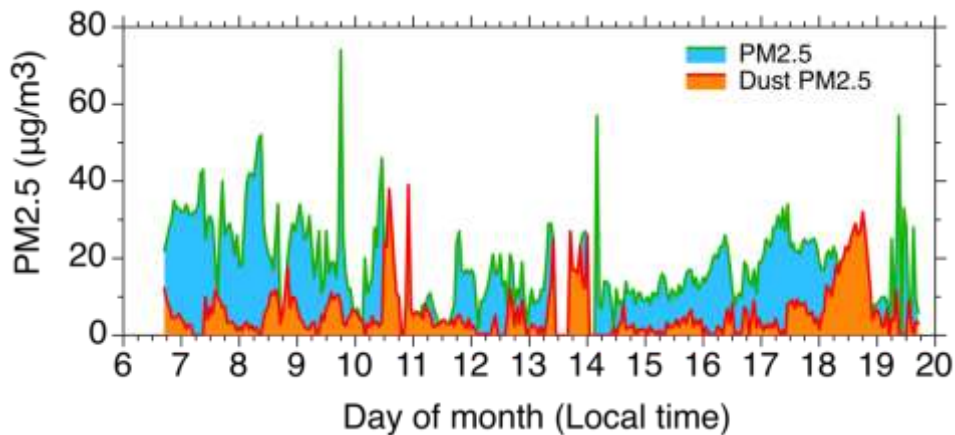
## 2) ライダー観測との比較

2013年3月のつくばにおける  $PM_{10}$  と  $PM_{2.5}$  の測定データとライダーデータを用いて、 $PM_{2.5}/PM_{10}$  比から  $PM_{2.5}$  に含まれる黄砂の割合を推定する手法の検証を行った。2013年3月にはローカルダスト(強風による農地からの土壌粒子の巻き上げ)と輸送された黄砂の両方が観測された。図(1)-12

に観測されたPM10とPM2.5、PM2.5/PM10比およびPM2.5/PM10比のヒストグラムを示す。3月10、13、18日の大きなPM10のピークは農地から発生したローカルダストである。3月7-9日の小さなピークは輸送された黄砂である。図(1)-12の中段を見ると、ローカルダストのPM2.5/PM10比は0.1以下、輸送された黄砂では0.1-0.3である。大気汚染性のエアロゾルではPM2.5/PM10比は0.7-0.8である。ここでは、輸送された黄砂に着目し、図(1)-12下段のヒストグラムから(1)-5式の $c_{2.5}/c_{10}=0.3$ 、 $f_{2.5}/f_{10}=0.8$ としてPM2.5中の黄砂の比率を求めた。その結果を図(1)-13に示す。

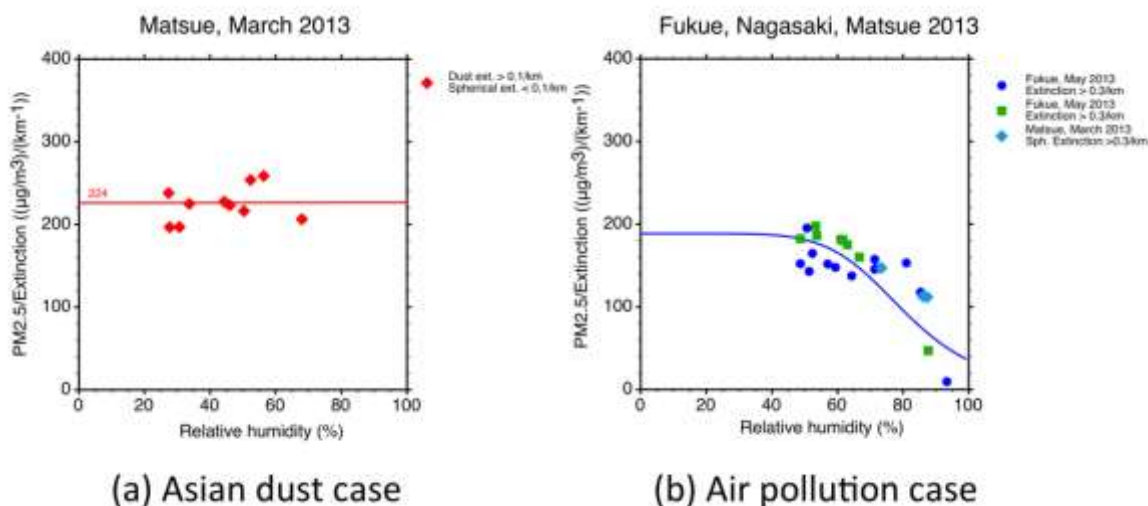


図(1)-12 つくばにおいて観測されたPM10とPM2.5（上），PM2.5/PM10比（中），およびPM2.5/PM10比のヒストグラム（下）



図(1)-13 PM2.5/PM10比から推定した2013年3月つくばのPM2.5に含まれる黄砂の濃度  
一方、ライダーで得られる黄砂消散係数および球形エアロゾル（大気汚染エアロゾル）消散係

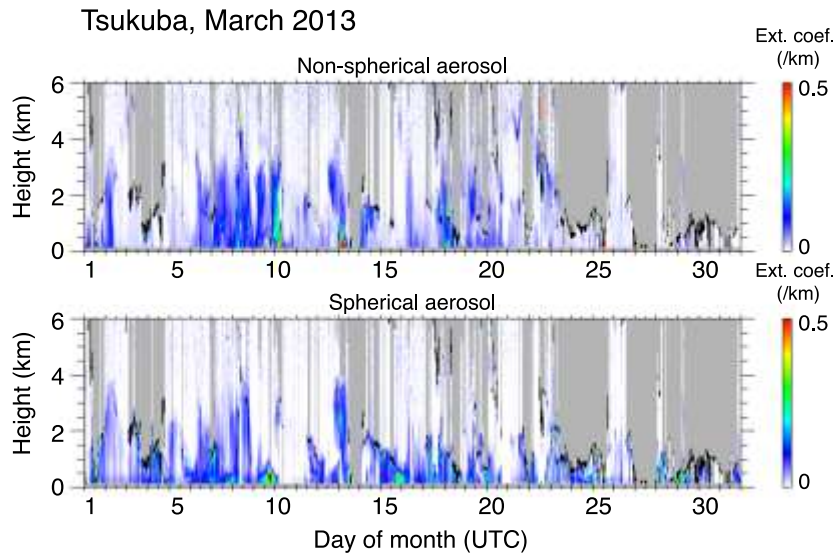
数からPM2.5に含まれる黄砂と大気汚染粒子を推定することができる。図(1)-14は黄砂時および越境大気汚染時にモニタリング局のPM2.5とライダー消散係数を比較した結果である。横軸は相対湿度である。黄砂は、吸湿性でないので一定値の変換係数で消散係数からPM2.5が推定できることが分かる。また、大気汚染粒子についても変換係数を相対湿度の関数とすればPM2.5が推定できる。



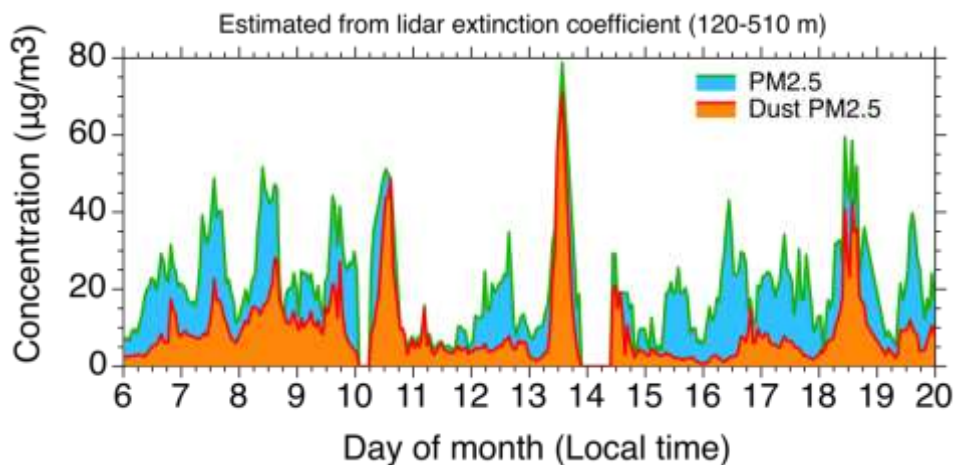
図(1)-14 ライダーの黄砂および球形エアロゾル消散係数をPM2.5に変換する係数の湿度依存性 (地上付近(120-1000km)のライダーデータと最寄りのモニタリング局のPM2.5を用いた)

図(1)-15に、つくばのライダーから導出した2013年3月の黄砂消散係数および球形エアロゾル消散係数の時間高度表示を示す。また、図(1)-16に地上付近(120-510m)のライダーデータから換算した黄砂PM2.5とPM2.5(黄砂PM2.5+球形エアロゾルPM2.5)である。なお、ここでは黄砂消散係数については変換係数(PM2.5/消散係数) for Asian dust of =150 ( $(\mu\text{g}/\text{m}^3)/(\text{km}^{-1})$ )、球形エアロゾル消散係数については(PM2.5/消散係数) =  $Q^{-1}(1+a \times (\text{Rh}/100)^b)^{-1}$  を用いた。ここに、 $Q$  質量散乱効率因子、 $\text{Rh}$  は相対湿度(%),  $a$ と $b$  は経験的なフィッティングパラメータで、 $Q^{-1} = 189$  ( $(\mu\text{g}/\text{m}^3)/(\text{km}^{-1})$ ),  $a=4.34$ ,  $b=6.72$  を用いた<sup>5)</sup>。なお、黄砂に対する変換係数は、PM2.5が過大評価されないように調節した。その結果、図(1)-14の値(220  $(\mu\text{g}/\text{m}^3)/(\text{km}^{-1})$ )よりも小さい値を用いている。この違いは測定地点の違いによると考えられる。従来の研究結果からは、黄砂消散係数を黄砂PM2.5に変換する係数は観測地点に大きく依存しないと考えられるので、今後さらに検討が必要である。

図(1)-13と図(1)-16は似ているが、詳細では異なる点がある。3月7-9日の輸送された黄砂は図(1)-13では小さい。原因のひとつは  $c_{2.5}/c_{10}$  の値の設定にあると考えられる。また、黄砂PM2.5の計測では分球特性の違いが大きく影響することも考慮する必要があるだろう。いずれにしても、以上の比較によって、PM2.5/PM10比を使った黄砂の比率の推定手法が、定性的あるいは半定量的な黄砂の検知手法として利用できることが示されたと言える。



図(1)-15 つくばのライダー観測から導出した2013年3月の黄沙消散係数および球形アロゾル消散係数の時間高度表示

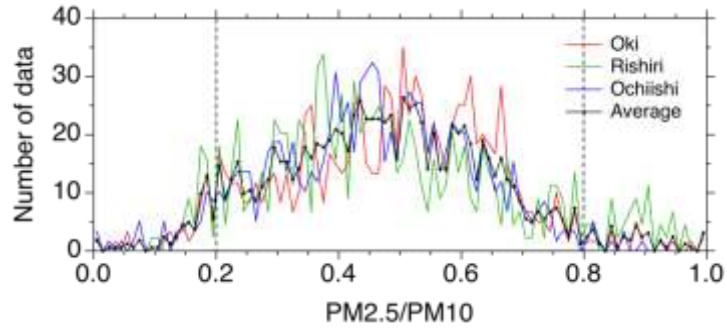


図(1)-16 ライダーから推定した2013年3月のつくばのPM2.5と黄沙PM2.5

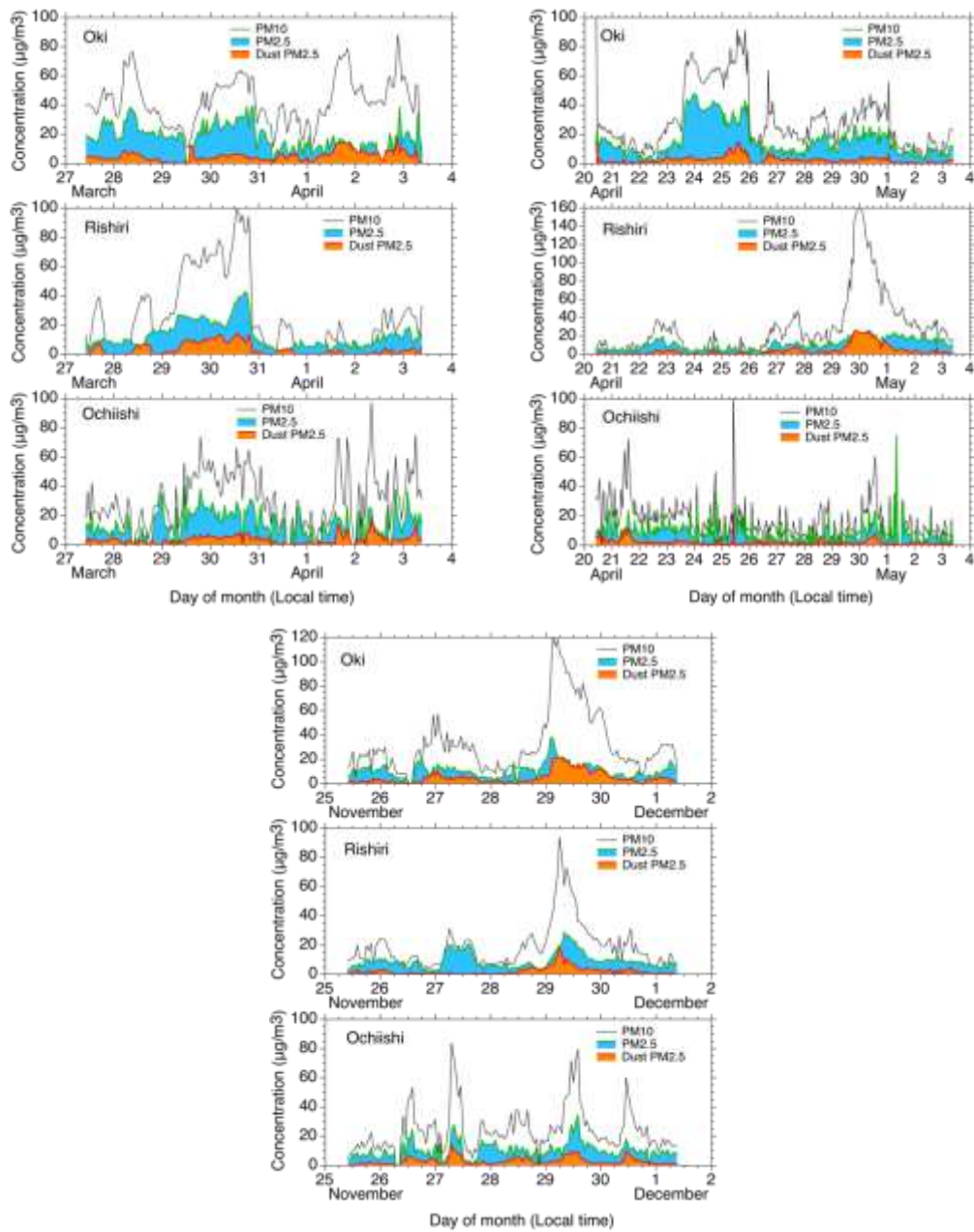
### 3) PM2.5/PM10比を使った黄沙検知の応用

三国環境大臣会合の黄沙に関する研究第1ワーキンググループで共有された2012年の黄沙事例について、PM2.5/PM10比を使った黄沙量の推定手法を適用して解析した。用いたのはEANETの隠岐、利尻、落石の3地点のPM2.5とPM10データで、解析期間は2012年3月27-4月3日、4月20日-5月3日、11月25日-12月2日である。図(1)-17に全解析期間を通した3地点のPM2.5/PM10比のヒストグラムを示す。3つ観測地点でヒストグラムに大きな違いは見られない。そこで全地点について $c_{2.5}/c_{10}=0.2$ 、 $f_{2.5}/f_{10}=0.8$ としてPM2.5に占める黄沙濃度を求めた。結果を図(1)-18に示す。





図(1)-17 全解析期間の隠岐、利尻、落石のPM2.5/PM10比のヒストグラム



図(1)-18 PM10、PM2.5とPM2.5/PM10比から推定した黄砂PM2.5

図(1)-18と松江および札幌のライダーのデータを比較した。観測地点がPM2.5、PM10とは同一でないためライダーから見積もった黄砂PM2.5ではなく、黄砂および球形エアロゾル消散係数と定性的に比較した。その結果、3月30日には松江と札幌で大気汚染と同時に黄砂が観測されたこと、4月2日に松江で比較的純粋な黄砂が観測されたことなど図(1)-18の結果と整合することが示された。この他、4月24-26日に大気汚染と混合した黄砂が松江で観測されたこと、4月29-30日に純粋な黄砂が札幌で観測されたこと、11月29日に比較的純粋な黄砂が松江で観測されたことなども図(1)-18とよく整合した。

現在、多くのモニタリング局でPM2.5とPM10あるいはSPMが同時に測定されているので、ここで述べた方法は、黄砂の定性的な検知手法あるいは半定量的な黄砂濃度の推定手法として有用である。しかし、例えば2013年8月上旬の例のように、大気汚染性エアロゾル事例でも、2.5ミクロンを越える粒子が多くPM2.5/PM10比を用いた方法では黄砂と誤判定してしまう事例もあった。従って、化学輸送モデルやライダーネットワークデータなどと比較しながら利用する必要がある。

## 5. 本研究により得られた成果

### (1) 科学的意義

偏光OPCにより内部混合状態の黄砂（汚染された黄砂）を初めて観測した。また、汚染された黄砂の光学モデル構築のための方法を示した。さらに、2波長偏光ライダーにより汚染された黄砂の分布を遠隔計測する手法を実証した。

ライダーおよび偏光OPCにより汚染された黄砂をリアルタイムで測定する手法を開発し、黄砂および大気汚染粒子の濃度に加えて黄砂の汚染度のデータを疫学研究等へ応用研究に提供することが可能となった。

### (2) 環境政策への貢献

#### <行政が既に活用した成果>

ライダーネットワークで捉えた黄砂の動態を環境省黄砂飛来情報ホームページに提供した。また、三国環境大臣会合の黄砂に関する研究第1ワーキンググループにおいてライダーネットワークデータを共有するとともに、本研究の成果を含む研究情報をワーキンググループに提供した。

#### <行政が活用することが見込まれる成果>

PM2.5に含まれる黄砂量の推定手法はPM2.5規制に有用な情報となると期待される。また、ライダーおよび偏光OPCによる汚染された黄砂の検出手法は、黄砂の飛来状況に加えて、黄砂の汚染度の情報（純粋な黄砂、大気汚染粒子と共存、汚染された黄砂の3レベル程度）を準リアルタイムで一般に発信するための手法としての活用が期待される。

## 6. 国際共同研究等の状況

### 【日中韓環境大臣会合黄砂に関する研究第1ワーキンググループ】

カウンターパート: B. Pan (中国環境保護局 (CNEMC)), S.-B. Kim (韓国気象庁 (KMA))

参加・連携状況: 毎年1回会合を開催してデータ共有等を通じた共同研究を実施し、成果を論文

集に取り纏めている。

国際的な位置づけ:日中韓環境大臣会合、日中韓局長級会合の合意を経て設置されている。

#### 【世界気象機関砂塵嵐警戒評価システム(SDS-WAS)】

カウンターパート:A. Baklanov(WMO 事務局)、X.-Y. Zhang(中国気象局(CMA))、S.-B. Ryoo (韓国気象庁(KMA))

参加・連携状況:年に1度程度会合を開催して観測データ、予測データ等の共有を進めている。

国際的な位置づけ:世界気象機関(WMO)の世界天気研究計画(WWRP)におけるプロジェクト。

#### 【エアロゾル予測のための国際協調 (International Cooperative for Aerosol Prediction, ICAP)】

カウンターパート: Jeff Ried (米国海軍研究所)、Angela Benedetti, Miha Razinger (欧州中期気象予報センター)、Peter Colarco (NASA GSFC), Sarah Lu(米国環境予測センター研究官・米国)ほか

連携状況:現業向けエアロゾル予報モデルの開発協力・エアロゾルの観測可能性・予測の検証・アンサンブル予測・モデル間相互比較に関する情報交換。

国際的な位置づけ:研究者ベースでの共同研究。

#### 【世界気象機関全球大気監視計画 (GAW)】

カウンターパート:世界気象機関

参加・連携状況:東アジアのライダーネットワーク (AD-Net) がコントリビューティングネットワークとしてGAWの承認を受け観測に参加。準リアルタイムでデータを提供。

国際的な位置づけ:世界気象機関(WMO)のプロジェクト。

## 7. 研究成果の発表状況

### (1) 誌上発表

#### <論文(査読あり)>

- 1) N. Sugimoto, Y. Hara, A. Shimizu, T. Nishizawa, I. Matsui, and M. Nishikawa: Asia-Pacific J. Atmos. Sci., 49(1), 27-39, (2013)

“Analysis of Dust Events in 2008 and 2009 Using the Lidar Network, Surface Observations and the CFORS Model”

- 2) N. Sugimoto, T. Nishizawa, A. Shimizu, I. Matsui, H. Kobayashi: Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer 150, 107-113, (2015)

<http://dx.doi.org/10.1016/j.jqsrt.2014.08.003>.

“Detection of internally mixed Asian dust with air pollution aerosols using a polarization optical particle counter and a polarization-sensitive two-wavelength lidar”

- 3) 杉本伸夫、西澤智明、松井一郎、清水厚、日暮明子: Journal of The Remote Sensing Society of Japan, 34(4) 286-292, (2014)

“地上ライダーおよび放射計ネットワークによる EarthCARE搭載 ATLIDの検証手法の開

発”

- 4) 杉本伸夫、西澤智明、清水 厚、松井一郎: Earozoru Kenkyu 29(3) 166-173, (2014)  
 “エアロゾルライダー :データ品質保証と観測の整合性の確保”

<その他誌上発表 (査読なし) >

- 1) D. Jugder, N. Sugimoto, M. Shinoda, R. Kimura, I. Matsui, M. Nishikawa: Proceedings of the 18th International Joint Seminar on Regional Deposition Processes in the Atmosphere and Climate Change, 64-72 (2012)  
 “Dust detected by polarization-sensitive mie lidar measurements in Mongolia”
- 2) N. Sugimoto, T. Nishizawa, A. Shimizu, I. Matsui: Proc. SPIE 9232, International Conference on Optical Particle Characterization (OPC 2014), 92320N (2014) doi: 10.1117/12.2064957  
 “Aerosol characterization with lidar methods”
- 3) N. Sugimoto, T. Nishizawa, A. Shimizu, I. Matsui, Y. Jin: Proc. of SPIE 9262, 92620K, (2014) doi: 10.1117/12.2069892  
 “Characterization of aerosols in East Asia with the Asian Dust and aerosol lidar observation network (AD-Net)”

(2) 口頭発表 (学会等)

- 1) N. Sugimoto, T. Nishizawa, I. Matsui, A. Shimizu: The first China-Japan Aerosol Symposium, Kanazawa (2012)  
 “Lidar network observation of aerosols in East Asia”
- 2) N. Sugimoto: International Laser Radar Conf., Porto Heli, Greece (2012)  
 “Assimilation of lidar observations in aerosol transport models”
- 3) A. Shimizu, N. Sugimoto, I. Matsui, T. Nishizawa: The 3rd International Symposium on Atmospheric Light Scattering and Remote Sensing (2013)  
 “Lidar extinction coefficient compared with particle number concentration and subjective weather report”
- 4) N. Sugimoto, T. Nishizawa, A. Shimizu, I. Matsui: The 3rd International Symposium on Atmospheric Light Scattering and Remote Sensing (2013)  
 “Studies on Characteristics and Distributions of Aerosols Using the Asian Dust and Aerosol Lidar Observation Network (AD-Net)”
- 5) 杉本伸夫, 西澤智明, 清水厚, 松井一郎: 第30回エアロゾル科学・技術研究討論会 (2013)  
 「ライダーネットワークによる東アジアのエアロゾルの動態把握」
- 6) 清水厚, 杉本伸夫, 松井一郎, 西澤智明: 第31回レーザセンシングシンポジウム (2013)  
 「ネットワークライダーで観測された黄砂鉛直分布の年々変動」
- 7) 杉本伸夫, 清水厚, 松井一郎, 西澤智明: 第31回レーザセンシングシンポジウム, (2013) 同予稿集  
 「ライダーネットワークと偏光OPCによる汚染混合型黄砂の観測」

- 8) T. Nishizawa, N. Sugimoto, I. Matsui, A. Shimizu, A. Higurashi: International workshop on inventory, modeling and climate impacts of greenhouse gas emissions (GHG's) and aerosols in the Asian region (2013)  
 "Observation of air pollution aerosols and Asian dusts using the Asian Dust and aerosol lidar observation Network (AD-Net)."
- 9) T. Nishizawa, N. Sugimoto, I. Matsui, A. Shimizu, A. Higurashi: International SKYNET workshop (2013)  
 "Ground-based lidar network observation of aerosols and clouds in AD-Net."
- 10) T. Nishizawa, N. Sugimoto, I. Matsui, A. Shimizu, H. Kobayashi: 3rd international symposium on atmospheric light scatterin and remote sensing (2013)  
 "Aerosol observation by polarization optical particle counter (POPC) at Seoul, Korea"
- 11) N. Sugimoto: International Workshop on Air Quality in Asia Inventory, Modeling and Climate Impacts of Greenhouse Gas emissions (GHG's) and Aerosols; Remote sensing applications and Integrated Technologies, Hanoi, June 24-26, (2014)  
 "Continuous observation of aerosols in East Asia using a ground-based Lidar network (AD-NET)"
- 12) N. Sugimoto, T. Nishizawa, I. Matsui, A. Shimizu, A. Higurashi, Y. Jin, E. Oikawa: AOGS, Sapporo, July (2014)  
 "Development of validation methods for the EarthCARE ATLID using ground-based lidar and radiometer networks"
- 13) N. Sugimoto, T. Nishizawa, A. Shimizu, I. Matsui: AOGS, Sapporo, July 31, (2014)  
 "Detection of Internally Mixed Asian Dust with Air Pollution Aerosols Using a Polarization Optical Particle Counter and a Polarization-Sensitive Two-Wavelength Lidar"
- 14) N. Sugimoto, JSPS研究拠点形成事業, B. アジア・アフリカ学術基盤形成型, アジアダストと環境レジームシフトに関する研究拠点の構築, 第一回国際セミナー, Nagoya, August 4-5, (2014)  
 "Study of Asian Dust Using the Asian Dust and Aerosol Lidar Observation Network (AD-Net)"
- 15) 杉本伸夫, 西澤智明, 清水 厚, 松井一郎, 小林 拓: 第31回エアロゾル科学・技術研究討論会, つくば, 8月8日 (2014)  
 「偏光パーティクルカウンターとライダーによる黄砂の内部混合状態の推定」
- 16) N. Sugimoto, T. Nishizawa, A. Shimizu, I. Matsui, Y. Jin: Sino-Japan Workshop on Air Quality Simulation over East Asia, Beijing, August 11, (2014)  
 "Characterization of aerosols with multi-parameter lidars"
- 17) N. Sugimoto, T. Nishizawa, I. Matsui, A. Shimizu, A. Higurashi, Y. Jin, E. Oikawa: EarthCARE Workshop, Tokyo, Sep 17-19, (2014)  
 "Validation methods for the EarthCARE ATLID products and ATLID- CPR and ATLID-MSI"

synergy products using ground-based lidar networks and radiometer networks”

- 18) 杉本伸夫, 西澤智明, 清水厚, 松井一郎, 神慶孝: 第32回レーザセンシングシンポジウム, 飛騨高山, Sep. 4-5, (2014)  
 “ライダーネットワーク (AD-NET) の高機能化とデータ利用研究の新展開”
- 19) N. Sugimoto, T. Nishizawa, A. Shimizu, I. Matsui, Y. Jin: International Workshop on SKYNET and Asian Lidar Network, Hefei, China, Sep 10-12, (2014)  
 “Current status of the Asian Dust and aerosol lidar observation network (AD-Net)”
- 20) N. Sugimoto, T. Nishizawa, A. Shimizu, I. Matsui, Y. Jin: SATREPS Seminar, Punta Arenas, Chile, 8 October (2014)  
 “Continuous observation of aerosols in East Asia using a ground-based lidar network (AD-Net)”
- 21) N. Sugimoto, T. Nishizawa, A. Shimizu, I. Matsui, Y. Jin: SPIE Asia-Pacific Remote Sensing, Lidar RS Environ. Monitoring, Beijing, Oct 14-15, (2014)  
 “Characterization of aerosols in East Asia with the Asian Dust and aerosol lidar observation network (AD-Net)”
- 22) 杉本伸夫, 西澤智明, 清水厚, 松井一郎: 風送ダストに関する現状と今後の展開に関する研究集会, 福岡, 12月11-12日(2014)  
 「黄砂と大気汚染エアロゾルの混合状態と光学モデルの検討」

### (3) 出願特許

特に記載すべき事項はない。

### (4) 「国民との科学・技術対話」の実施

- 1) 国立科学博物館で開催された「ヒカリ展」(2014年10月28日から2015年2月22日)において、ライダー装置、黄砂・PM<sub>2.5</sub>観測の解説パネル、日本の6地点のリアルタイムデータ画像を展示。(入場者数17万8千人)(アンケートおよび個別の質問あり)

### (5) マスコミ等への公表・報道等

- 1) 東京新聞 (H25年1月19日、本研究と関連する中国の大気汚染についてコメント)
- 2) NHK BS1 ワールドWaveトゥナイト (H25年1月22日、本研究に関連する中国からのPM<sub>2.5</sub>の飛来について収録でコメント)
- 3) NHK ニュースウォッチ9 (H25年1月29日、中国の高濃度PM<sub>2.5</sub>について収録でコメント)
- 4) NHK あさイチ (H25年1月31日、中国からのPM<sub>2.5</sub>についてのコメントをキャスターが紹介)
- 5) NHK おはよう日本 (H25年2月4日、中国からのPM<sub>2.5</sub>について収録でコメント)
- 6) NHK BS1 ワールドWaveモーニング (H25年2月4日、中国のPM<sub>2.5</sub>について生出演でコメント)
- 7) テレビ朝日報道特集SUNDAY (H25年3月3日、PM<sub>2.5</sub>のライダー観測について装置と手法を解説)

- 8) 朝日新聞 (H25年19月29日火曜日14版、九州版社会面p.34、「PM<sub>2.5</sub>の汚さ予測へ」)
- 9) 朝日新聞デジタル 2013年10月28日20時18分「飛来する黄砂、汚れ具合予測へ、健康被害防止にも期待」

#### (6) その他

特に記載すべき事項はない。

#### 8. 引用文献

- 1) K. T. Kanatani, I. Ito, W. K. Al-Delaimy, Y. Adachi, W. C. Mathews, J. W. Ramsdell, and Toyama Asian Desert Dust and Asthma Study Team, Desert-dust Exposure is Associated with Increased Risk of Asthma Hospitalization in Children, *Am. J. Respir. Crit. Care Med.* 182(12) 1475-81 (2010). doi:10.1164/rccm.201002-02960C.
- 2) K. Onishi, Y. Kurosaki, S. Otani, A. Yoshida, N. Sugimoto, Y. Kurozawa, Atmospheric transport route determines components of Asian dust and health effects in Japan, *Atmospheric Environment* 49, 94-102 (2012). doi:10.1016/j.atmosenv.2011.12.018.
- 3) H. Kobayashi, M. Hayashi, K. Shiraishi, Y. Nakura, T. Enomoto, K. Miura, H. Takahashi, Y. Igarashi, H. Naoe, N. Kaneyasu, T. Nishizawa, N. Sugimoto, Development of a polarization optical particle counter capable of aerosol type classification, *Atmospheric Environment* 97, 486-492, (2014). doi:10.1016/j.atmosenv.2014.05.006.
- 4) X. Pan, I. Uno, Y. Hara, M. Kuribayashi, H. Kobayashi, N. Sugimoto, S. Yamamoto, T. Shimohara, and Z. Wang, Observation of the simultaneous transport of Asian mineral dust aerosols with anthropogenic pollutants using a POPC during a long-lasting dust event in late spring 2014, *Geophys. Res. Lett.*, 42, 1593-1598 (2015). doi:10.1002/2014GL062491.
- 5) X.-G. Liu, J. L. Y. Q, T. Han, L. Hou, J. Gu, C. Chen, Y. Yang, X. Liu, T. Yang, Y. Zhang, H. Tian, M. Hu, Formation and evolution mechanism of regional haze: a case study in the megacity Beijing, China. *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 4501-4514, (2013). doi:10.5194/acp-13-4501-2013.

## (2) メガシティにおけるPM2.5黄砂と人為汚染物質による複合汚染の化学的特徴の解明

(公財) 東京都環境公社 東京都環境科学研究所

分析研究科

山崎 正夫

森 育子 (平成24年度～平成25年度)

高橋 明宏 (平成24年度のみ)

調査研究科

星 純也 (平成26年度のみ)

平成24～26年度累計予算額：6,096千円 (うち、平成26年度予算額：2,006千円)

予算額は、間接経費を含む。

### [要旨]

黄砂発生源近傍の大都市の一つである、モンゴルの首都ウランバートルにおいて大気中粉じん (PM2.5、PM10) の捕集と化学成分測定を行った。その結果、炭素成分の組成は東京と異なり、OC1が多くOC4が少ない結果であった。これはウランバートルの厳冬期の非常に低い気温が影響していると考えられた。イオン成分については $\text{SO}_4^{2-}$ や $\text{NH}_4^+$ では東京より高濃度となったが、 $\text{NO}_3^-$ は東京と近い濃度となり、東京とは異なる組成であった。また、ウランバートルでは $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、Al、Ca、FなどはPM2.5に比べPM2.5-10中の構成比が大きくなっており、粗大粒子側に配分されやすいという特徴がみられた。

これらの結果を用いて、黄砂と汚染物質の混合状態についての解析を行った。その結果、ウランバートルの大気中ではEC、OC及びC1は黄砂粒子と別の粒子として存在、すなわち外部混合状態であったと示唆された。一方、 $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、及びFは内部混合状態であったと示唆された。東京ではこれらの物質は全て外部混合状態であったことが推察され、ウランバートルのような非常に寒い地域では、排出されたガス状の汚染物質が大気中で輸送中に二次生成粒子となるのではなく、大気に排出されるとすぐに大気中の土壌粒子に吸着されて輸送されていくことが示唆された。

また、ダイオキシン類の捕集法を検討し、大気中濃度を調査した結果、ウランバートルのダイオキシン類は冬季にはほぼ粒子態で存在していることが分かった。そのため、PUFを用いずにフィルター捕集した試料のダイオキシン類を測定した。ダイオキシン類の同族体組成は燃焼パターンを示した。ウランバートルの主な大気汚染の発生源と考えられているのは、石炭や薪を燃やす家庭用ストーブ、石炭火力発電所、石炭による供熱ステーションなどであり、これらがダイオキシン濃度に影響していることが示唆された。

### [キーワード]

ウランバートル、PM2.5黄砂、外部混合、内部混合

### 1. はじめに

微小黄砂 (PM2.5黄砂) は、大気汚染物質とよく混合し、一般的な黄砂より健康影響が大きいことが指摘されている。黄砂の発源地に近い北京やウランバートルでは、このような汚染混合型



黄砂が新たな都市大気環境問題となっている。また、日本においても、汚染混合型黄砂の飛来によるPM2.5の規制値超過が観測されるようになってきた。しかしながら、PM2.5黄砂に関する科学的知見は非常に少ない。

黄砂発源地近傍の大都市の一つであるウランバートルは標高1300mの盆地に位置するモンゴルの首都である。そこではモンゴルの人口の半数近くの120万人が暮らしている。近年益々極集中化が進んでいる。急激な人口増加に都市整備は追いつかず、大気汚染が深刻化しており、特に冬季の大気汚染が深刻と報告されている<sup>1)</sup>。しかし、ウランバートルの大気汚染に関する研究は始まったばかりで、その実態が十分に把握されているとは言い難い。本研究では、冬季を中心にウランバートルにおいて連続測定を行い、日内変動の特徴を把握した。またローボリウムサンプラーを用いてPM10及びPM2.5の試料採取し、採取した粉じん中の炭素成分、イオン成分、金属成分の分析を行ってそれらの特徴を把握したので報告する。また、これらのデータを用いて黄砂と汚染物質の混合状態について考察したので報告する。

また、ウランバートルでの大気汚染の発生源は、石炭や薪を燃やす家庭用ストーブ、石炭火力発電所、石炭による供熱ステーション、自動車（有鉛ガソリンを使用）と言われている。これらは老朽化している上に整備も不十分であるため、燃焼に伴うダイオキシン類の発生が懸念される。しかしながら、これまでにウランバートルの大気中のダイオキシン類の報告例はない。ダイオキシン類の測定については、環境省の「ダイオキシン類に係る大気環境調査マニュアル」（2008）<sup>2)</sup>では、試料捕集はポリウレタンフォーム（PUF）2個をつけたハイボリウムエアーサンプラー（HV）で行うとされているが、それに相当するHVのウランバートルへの持ち込みは通関等の問題があり容易ではない。本研究ではウランバートルの既存のローボリウムサンプラーを改良して大気中のダイオキシン類濃度測定を行い、濃度実態と異性体組成の特徴を把握したので合わせて報告する。

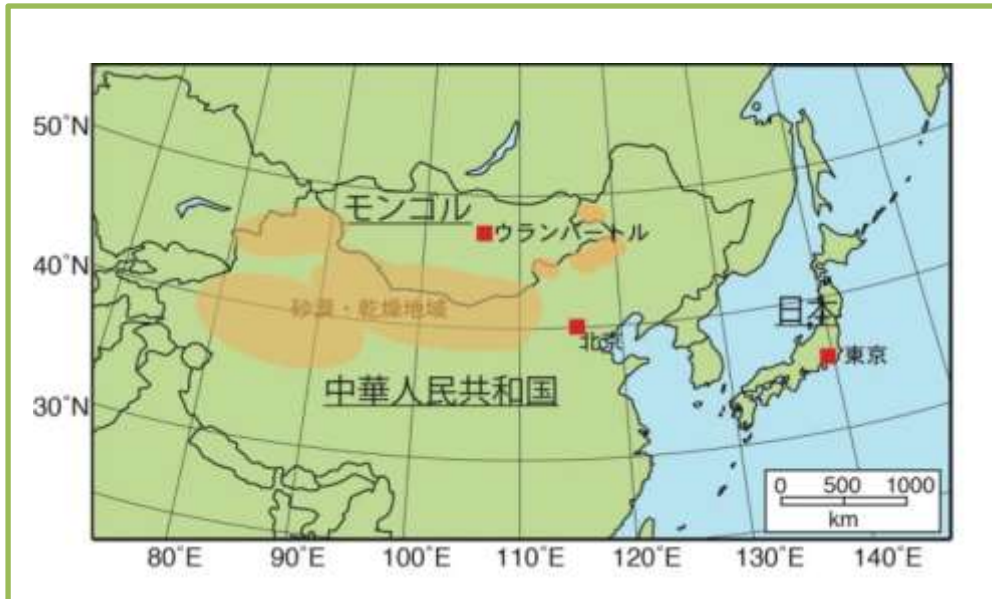
## 2. 研究開発目的

本研究では、黄砂発源地に近いウランバートルにおける都市大気汚染の実態を把握するための大気試料捕集法及び試料中の化学成分の分析法の確立を行う。確立した大気試料の採取法を用い、黄砂発源地に近い大都市ウランバートルにおいて、試料捕集及び試料中の化学成分分析を行い、都市大気汚染と黄砂による混合汚染の実態を解明するためのデータ収集を目的とする。

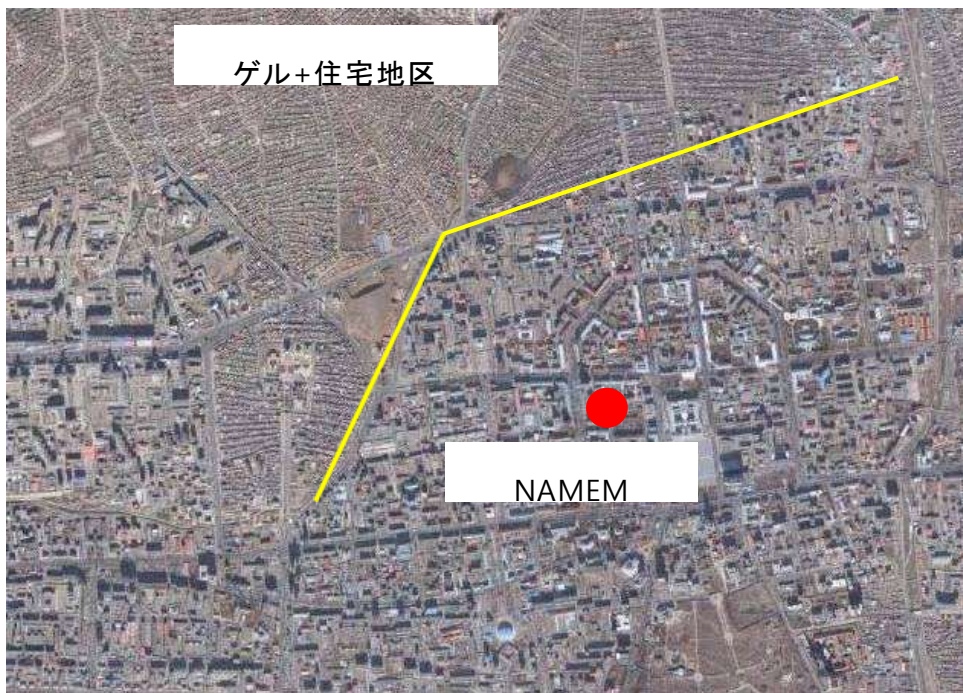
## 3. 研究開発方法

### （1）調査地点

試料の採取はモンゴルの首都、ウランバートルで行った。ウランバートルはゴビ砂漠の北東側に位置し、黄砂発源地に近いメガシティの一つである（図(2)-1）。試料採取装置はウランバートル市内のNational Agency of Meteorology and Environment Monitoring (NAMEM) の屋上（4階）に設置した。NAMEMの位置を図(2)-2に試料採取装置の設置状況を図(2)-3に示した。調査地点であるNAMEMの北～北東側にはゲルと住宅が多い地域となっている。ウランバートルの大気汚染物質発生源の一つとして石炭、薪を使用した家庭用ストーブが考えられ、このゲル+住宅地域が大きな発生源地域であると想定される。



図(2)-1 試料採取地点（広域図）



図(2)-2 試料採取地点（市内航空写真）

## (2) 採取期間、測定項目及び分析方法

試料の採取は以下の期間で行った。

- ① 2012年1月～2月（1試料あたりの捕集時間：12時間もしくは23時間）
- ② 2012年11月～2013年3月（1試料あたりの捕集時間：48時間）
- ③ 2013年8月～9月（1試料あたりの捕集時間：168時間）



図(2)-3 試料採取装置の設置状況 (NAMEM屋上)

採取した試料を用いて①の期間ではPM10、PM2.5の質量濃度の他、炭素成分、イオン成分、金属成分の分析を行った。②及び③で採取した試料については、主にダイオキシン類の測定に用いた。

①の期間の試料の採取はローボリュウムエアーサンプラー (FRM, Thermo Scientific) を用いて行い、石英繊維フィルター (2500QAT-UP, Pallflex) を装着して採取した。測定項目及びイオン成分、金属成分の測定対象物質と分析方法を表(2)-1に示した。また、炭素成分分析の分析条件を表(2)-2に示した。

表(2)-1 測定項目、測定対象物質及び分析方法

測定項目	分析方法
PM10	重量法
PM2.5	重量法
PM2.5-10	各々の成分についてPM10測定値からPM2.5測定値を差し引いて算出
炭素成分 (EC, OC)	サーマルオプティカル・リフレクタンス法
陽イオン (アンモニウムイオン: $\text{NH}_4^+$ )	水浸出-イオンクロマトグラフ法
陰イオン (フッ化物イオン: $\text{F}^-$ , 塩化物イオン $\text{Cl}^-$ , 硫酸イオン: $\text{SO}_4^{2-}$ , 硝酸イオン: $\text{NO}_3^-$ )	水浸出-イオンクロマトグラフ法
金属成分 (マグネシウム: Mg, アルミニウム: Al, カルシウム: Ca, 鉄: Fe)	混酸 (硝酸・過塩素酸・フッ化水素酸) で分解後、ICP-AES法

表(2)-2 炭素成分の分析条件

フラクション	設定温度 (°C)	分析雰囲気
OC1	120	He
OC2	250	He
OC3	450	He
OC4	550	He
EC1	550	98% He + 2% O <sub>2</sub>
EC2	700	98% He + 2% O <sub>2</sub>
EC3	800	98% He + 2% O <sub>2</sub>

また、①の期間ではPM<sub>2.5</sub>及びPM<sub>10</sub>の連続測定を行った。連続測定は分粒器付光散乱式装置 (KOSA Monitaor, TOA-DKK) を用いて測定を行い、ローボリウムエアースンプラーで同時に採取したPM<sub>2.5</sub>及びPM<sub>10</sub>の測定値を用いて校正を行った。

②及び③の期間で採取した試料についてはダイオキシン類の測定を行った。測定に先立ち、異性体組成が発生源解明の手がかりのひとつになると考えられる都市大気粉じん中のダイオキシン類を分析するための試料捕集法を検討した。一般的に、環境大気中のダイオキシン類を調査するときは、ガス態と粒子態を同時に捕集し、両者を合算した値で評価するが、ウランバートルにはガス態と粒子態を同時捕集可能なサンプラーがないため、既存のサンプラーの改造を試みた。改造したサンプラーで捕集した試料を用い、ガス態と粒子態の同時捕集の必要性についても検討した。

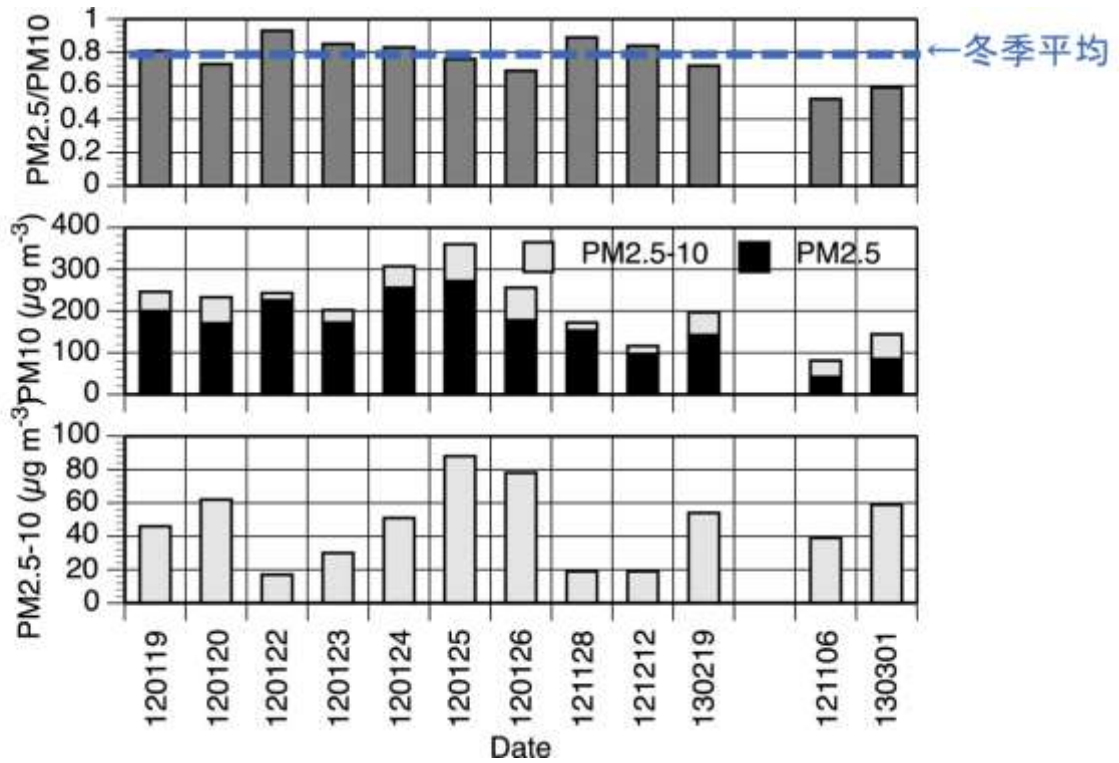
採取は石英繊維ろ紙とポリウレタンフォーム (PUF) を用いた。採取した試料はトルエンで抽出後、精製、分画し、高分解能ガスクロマトグラフ質量分析計 (HRGC-HRMS) で分析した。試料の抽出・分析はダイオキシン類に係る大気環境調査マニュアル (環境省(2008)) に従って行った。

## 4. 結果及び考察

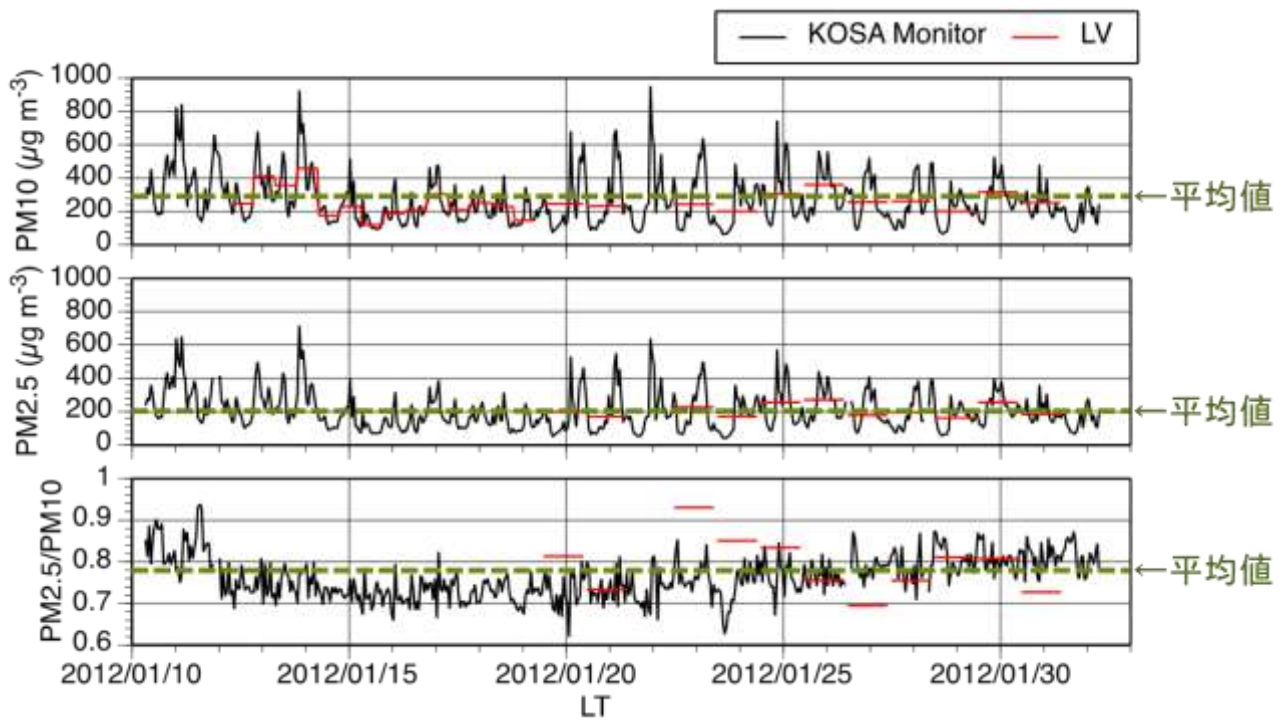
### (1) PM<sub>2.5</sub>及びPM<sub>10</sub>の質量濃度

図(2)-4にPM<sub>2.5</sub>、PM<sub>10</sub>の質量濃度と両者の比 (PM<sub>2.5</sub>/PM<sub>10</sub>) を示した。測定されたウランバートルのPM濃度はPM<sub>2.5</sub>、PM<sub>10</sub>とも高く、2011年度の都内平均 (15.7  $\mu\text{g m}^{-3}$ ) の3~15倍程度の濃度が観測された。PM<sub>2.5</sub>とPM<sub>10</sub>の比を見ると、PM<sub>2.5</sub>/PM<sub>10</sub>が0.6以下となり、粗大側のPM濃度が相対的に高くなった試料ではPM<sub>10</sub>までの全体の粉じん濃度が低くなる傾向が見られた。一方、PM<sub>2.5</sub>-10ではPM<sub>2.5</sub>/PM<sub>10</sub>との関係は見られなかった。

図(2)-5に連続測定機での冬季の測定結果を示した。2012年1月10日から2月1日までのPM<sub>10</sub>とPM<sub>2.5</sub>濃度の平均値は、それぞれ270  $\mu\text{g m}^{-3}$ 、200  $\mu\text{g m}^{-3}$ であった。PM<sub>10</sub>の平均値はモンゴルの環境基準値 (150  $\mu\text{g m}^{-3}$ ) を超過していた。また、PM<sub>2.5</sub>の平均値もWHOのガイドラインの年平均値 (10  $\mu\text{g m}^{-3}$ ) の10倍以上であった。これらの平均はNishikawa et al(2011)<sup>1)</sup> の報告値とほぼ同じ値であった。連続測定機の測定によるPM<sub>2.5</sub>/PM<sub>10</sub>は平均値で0.76となり、一般的な都市大気粉じんの比と同様であった。PM<sub>10</sub>、PM<sub>2.5</sub>ともに、夜間と午前の2回のピークをもつ濃度変動を示した。



図(2)-4 ウランバートルにおけるPM2.5及びPM10の質量濃度

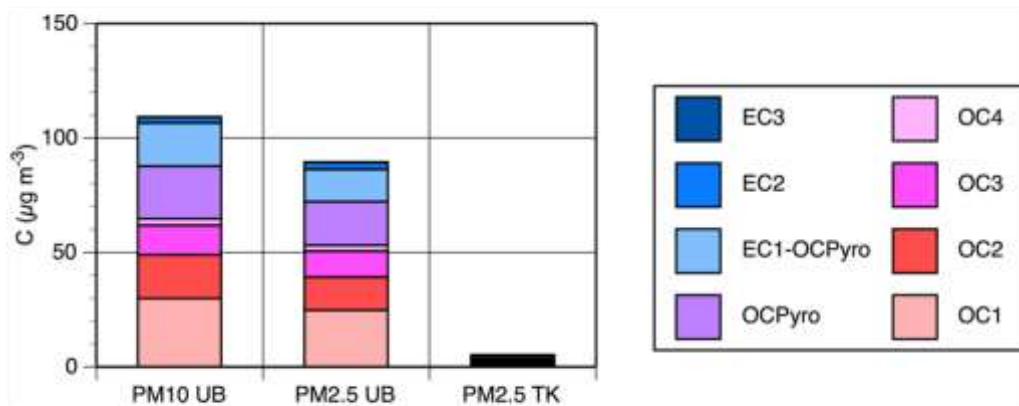


図(2)-5 ウランバートルにおけるPM2.5及びPM10の質量濃度(連続測定機による測定)

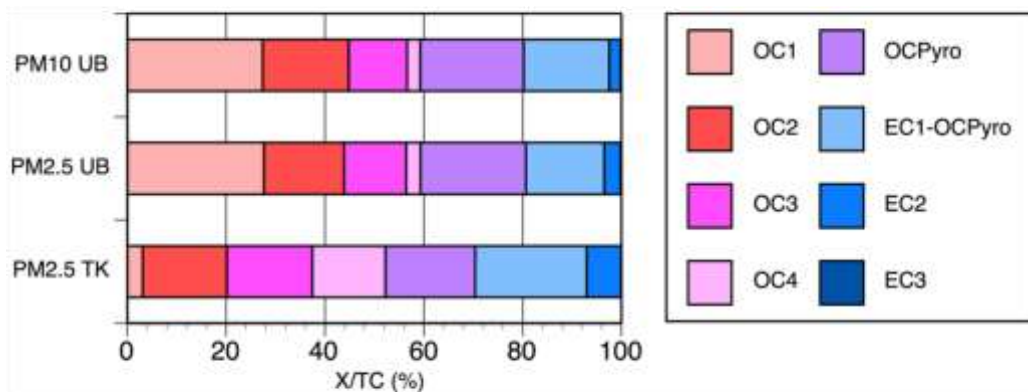
ライダーによる高度別のエアロゾルの観測結果は、冬季のウランバートルにおいて昼間よりも夜間に低い逆転層が形成されることを示しており、これが、夜間のPM高濃度現象をもたらす要因と考えられる。

## (2) 炭素成分濃度の特徴

2012年1月19日から27日にかけてウランバートルにおいて23時間捕集したときのPM10の炭素成分の濃度範囲は $93\sim 130\ \mu\text{g m}^{-3}$  (平均値： $110\ \mu\text{g m}^{-3}$ )であった(図(2)-6)。これはPM10濃度の42%に相当した。同時期に捕集されたPM2.5中の炭素成分の濃度範囲は $74\sim 110\ \mu\text{g m}^{-3}$  (平均値： $89\ \mu\text{g m}^{-3}$ )で、2008年度から2009年度に都内で捕集されたPM2.5中の炭素成分の約10倍であった<sup>3)</sup>(図(2)-6)。PM2.5中に含まれる炭素成分濃度のPM10中の炭素成分濃度に対する比の値の平均値は0.82で、PM2.5/PM10 (0.80) とほぼ同値であった。ウランバートルのPM2.5中の炭素成分のパーセンテージは43%で、約30%であった東京の値より高かった。各炭素フラクションの割合はPM10、PM2.5ともに、OC1が最も高く、次いでOCPyro、OC2、EC1-OCPyro、OC3の順であり(図(2)-7)、東京の



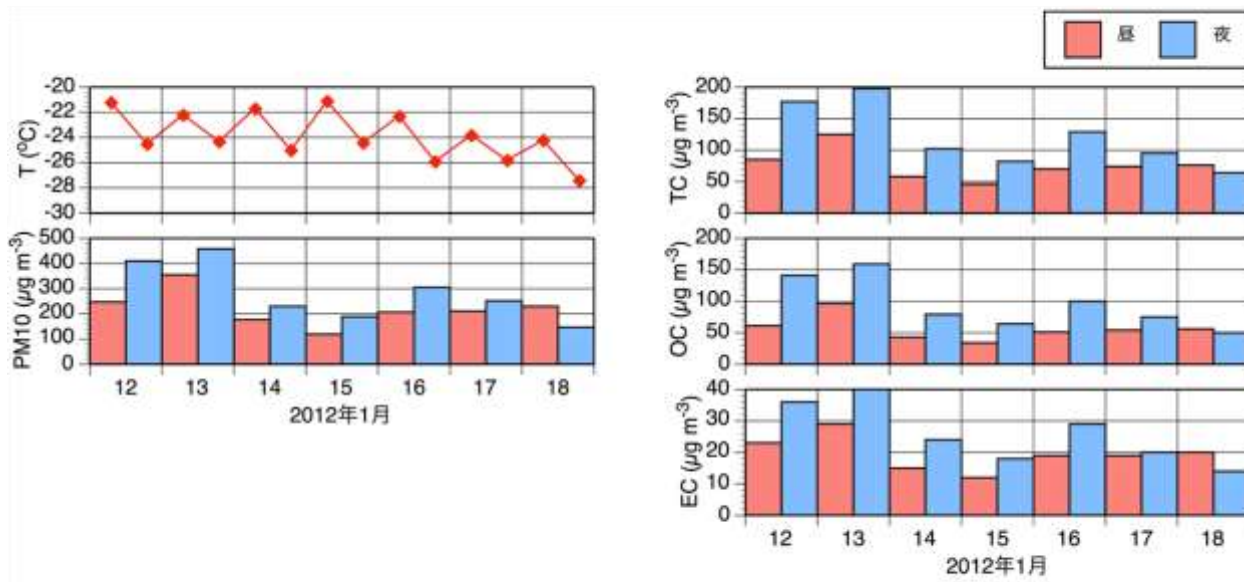
図(2)-6 2012年1月にウランバートルで捕集されたPM10及びPM2.5中の各炭素フラクション濃度 (UB:ウランバートル、TK:東京)



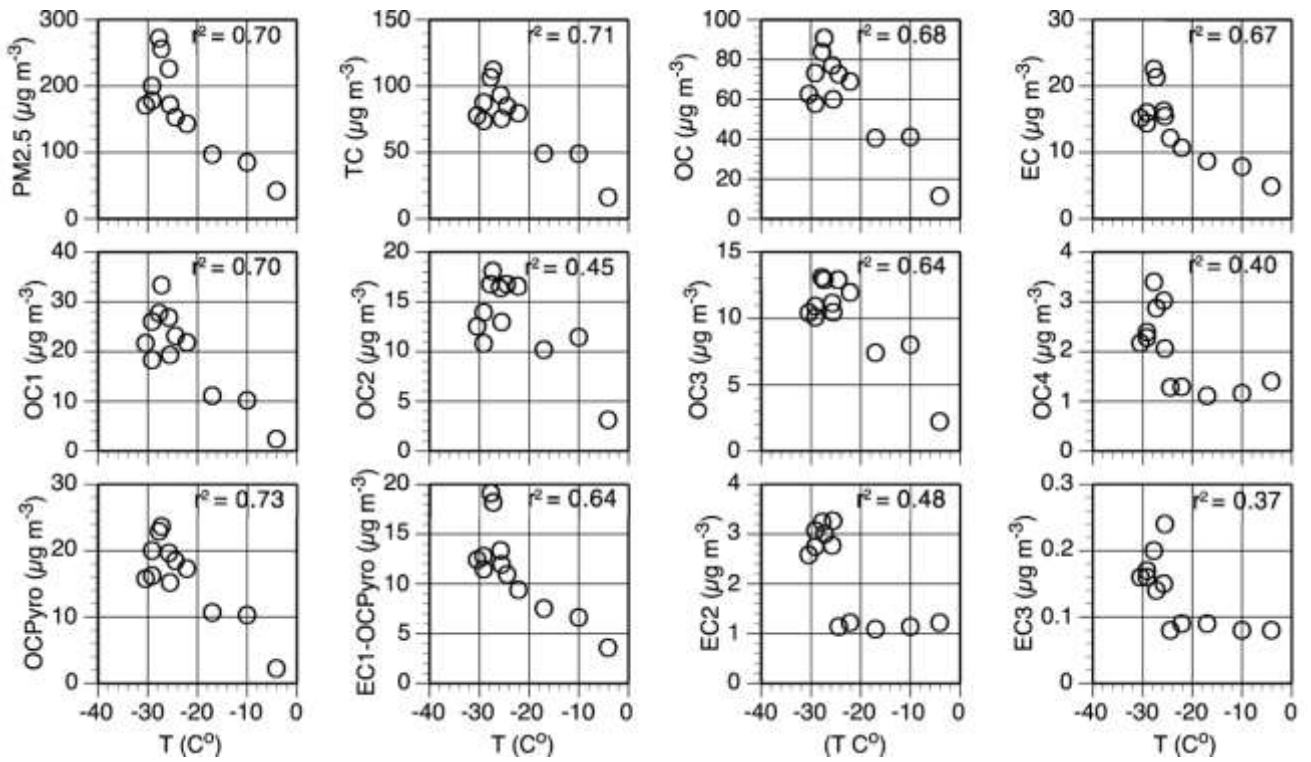
図(2)-7 2012年1月にウランバートルで捕集されたPM10及びPM2.5中の各炭素フラクションのパーセンテージ (UB:ウランバートル、TK:東京)

炭素成分のフラクシオンとは異なっていた。また、PM10中の全炭素濃度は、PM10濃度と同様に、昼間低く、夜間に高い傾向を示していた（図(2)-8）。

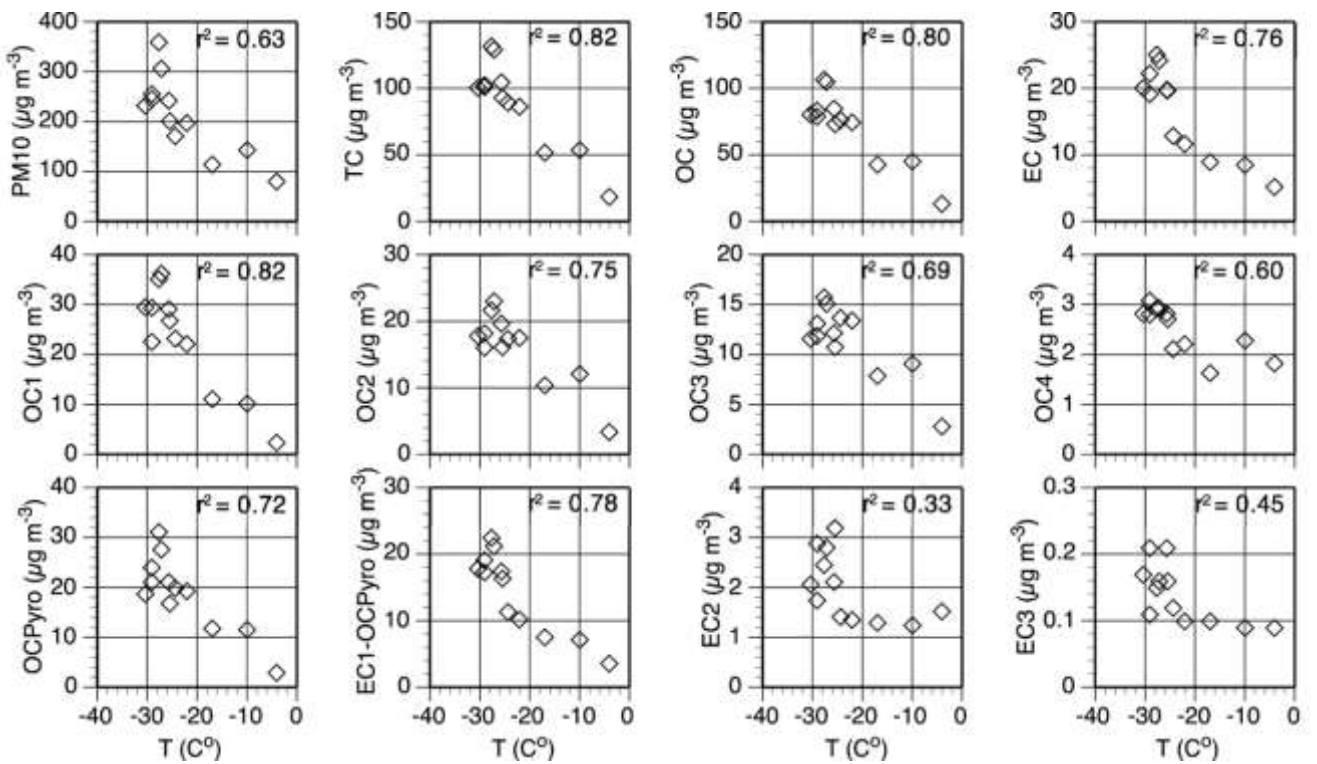
これらの傾向を示す要因の一つとして気象要素が考えられるため、気温との関係について解析を行った。図(2)-9にPM2.5中の炭素フラクシオン濃度と気温の関係、図(2)-10にPM10中の炭素フラクシオンと気温の関係を図示した。PM2.5、PM10ともに、質量濃度、OC1、OCPyroなどで気温と逆相関の関係が見られている。大気中のVOCから生成されると考えられるOCが気温の低下とともに生成しやすくなっていることが考えられる。一方、EC2、EC3やOCの中でも高温の条件で分析されるOC4などは気温との関係が見られない。OC1は気温の低下とともにTC中の割合が増加し、OC4は減少していくと考えられる。-20℃以下の気温となるウランバートルでは、東京に比べ、OC1の割合が大きく増加し、東京とウランバートルの組成の違いを生じる原因となっていると考えられる。



図(2)-8 炭素成分濃度の時間変動（2012年1月 ウランバートル）



図(2)-9 PM2.5中の炭素フラクション濃度と気温との関係

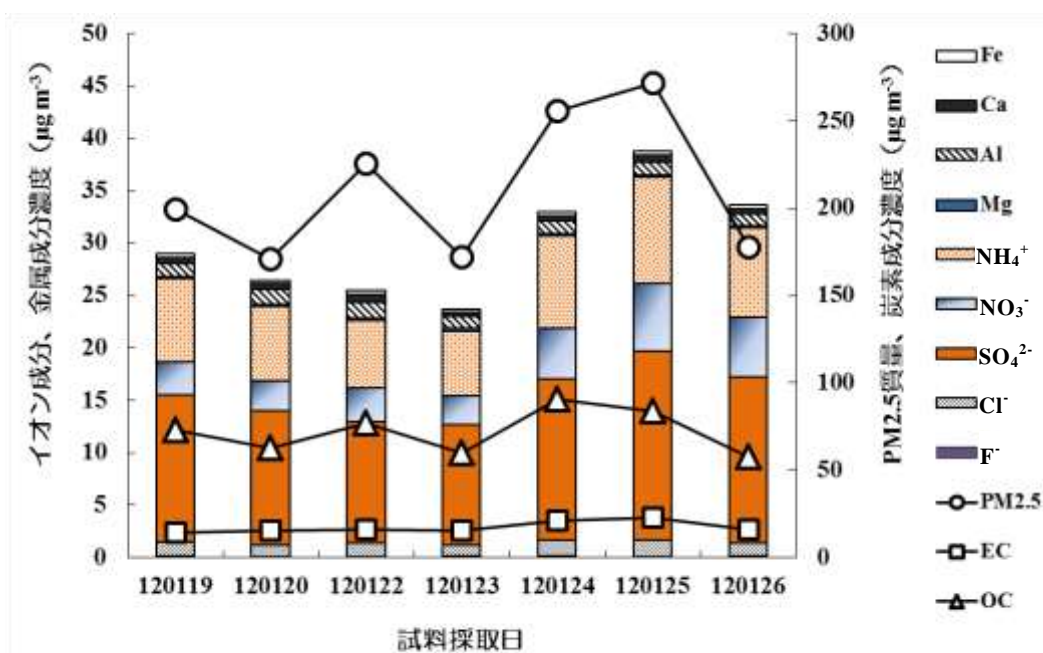


図(2)-10 PM10中の炭素フラクション濃度と気温との関係

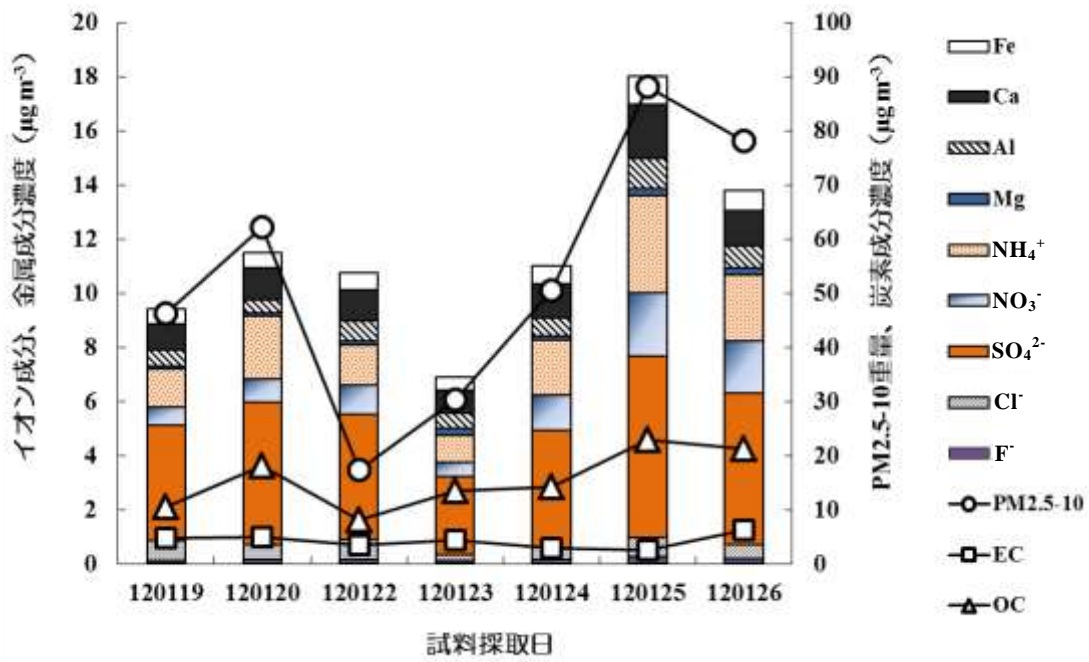


### (3) イオン成分、金属成分の特徴

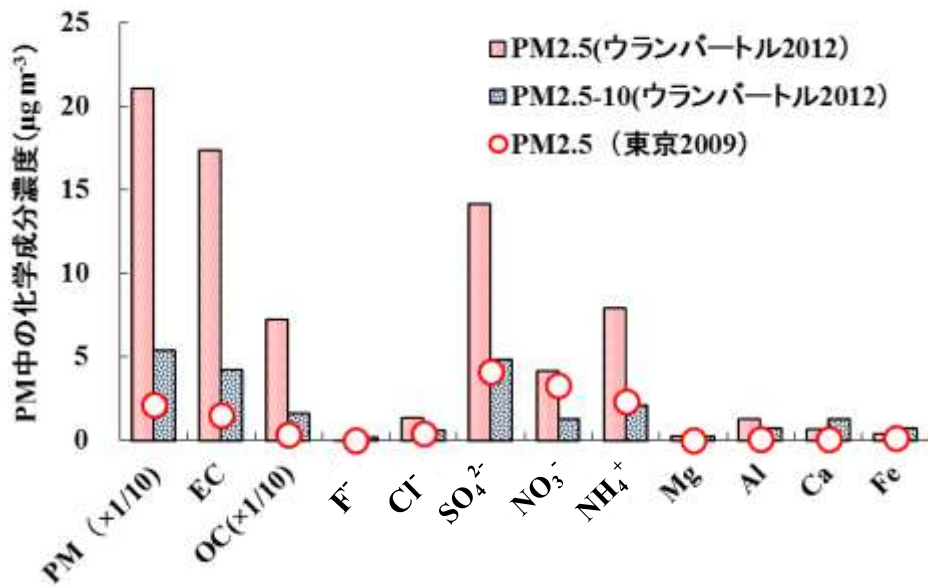
2012年1月19日から1月26日までウランバートルで採取したPM2.5及びPM2.5-10中の各成分濃度を図(2)-11、図(2)-12に示した。PM2.5の質量濃度は171~272 $\mu\text{g m}^{-3}$ 、PM2.5-10の質量濃度は17~88 $\mu\text{g m}^{-3}$ であった。PM2.5中の $\text{SO}_4^{2-}$ は11~18 $\mu\text{g m}^{-3}$ 、 $\text{NO}_3^-$ は2.7~6.5 $\mu\text{g m}^{-3}$ 、 $\text{NH}_4^+$ は6.2~10 $\mu\text{g m}^{-3}$ であった。PM2.5-10中の $\text{SO}_4^{2-}$ は2.9~6.7 $\mu\text{g m}^{-3}$ 、 $\text{NO}_3^-$ は0.51~2.3 $\mu\text{g m}^{-3}$ 、 $\text{NH}_4^+$ は1.0~3.6 $\mu\text{g m}^{-3}$ であった。PM2.5中の各成分の濃度を2009年2月に東京都内9か所で測定したPM2.5成分濃度(平均値)<sup>4)</sup>と比較すると、PM2.5質量濃度で8.2~13倍、OCで16~25倍、 $\text{SO}_4^{2-}$ で2.8~4.4倍、 $\text{NH}_4^+$ で2.7~4.4倍と多くの成分で高濃度となった(図(2)-13)。一方、 $\text{NO}_3^-$ は都内の0.83~2.0倍と比較的近い値となった。PM2.5-10とPM2.5の成分濃度を比較すると、総量ではPM2.5-10がPM2.5の1/4程度になっており、主要成分であるEC、OC、 $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ も概ね1/4程度となった。一方、Ca、Fe、FではPM2.5-10中の濃度がPM2.5中の濃度の2倍程度になっていた。ウランバートルでのPM2.5、PM2.5-10中の各成分の総量に対する割合(構成比)と東京でのPM2.5中の割合を図(2)-14に示した。ウランバートルでは $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、Al、Ca、FなどはPM2.5に比べPM2.5-10中の構成比が大きくなっており、粗大粒子側に配分されやすいという特徴がみられた。東京で測定されたPM2.5中の構成比と比較すると、OCの割合はウランバートルの方が高く、 $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{NH}_4^+$ は東京の方が高くなっていた。これはウランバートルと東京での発生源の違いや一次粒子と二次粒子の寄与割合の違いなどが反映していると考えられる。



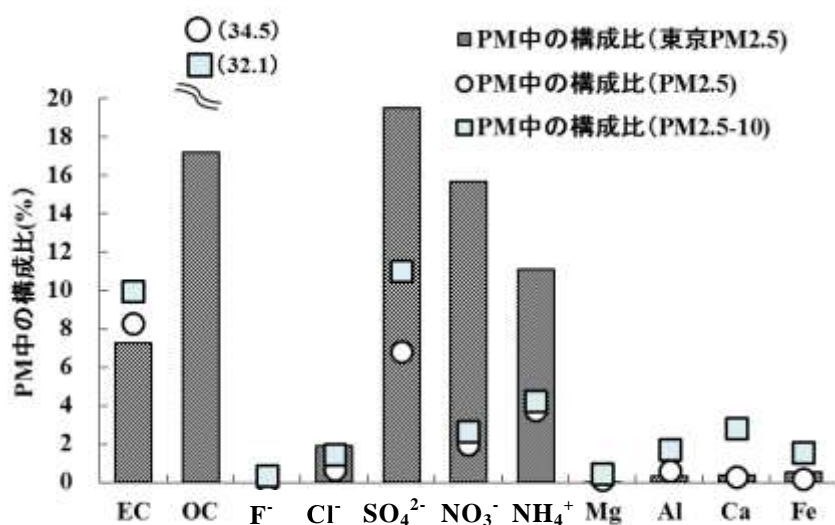
図(2)-11 PM2.5中の各成分濃度



図(2)-12 PM10中の各成分濃度

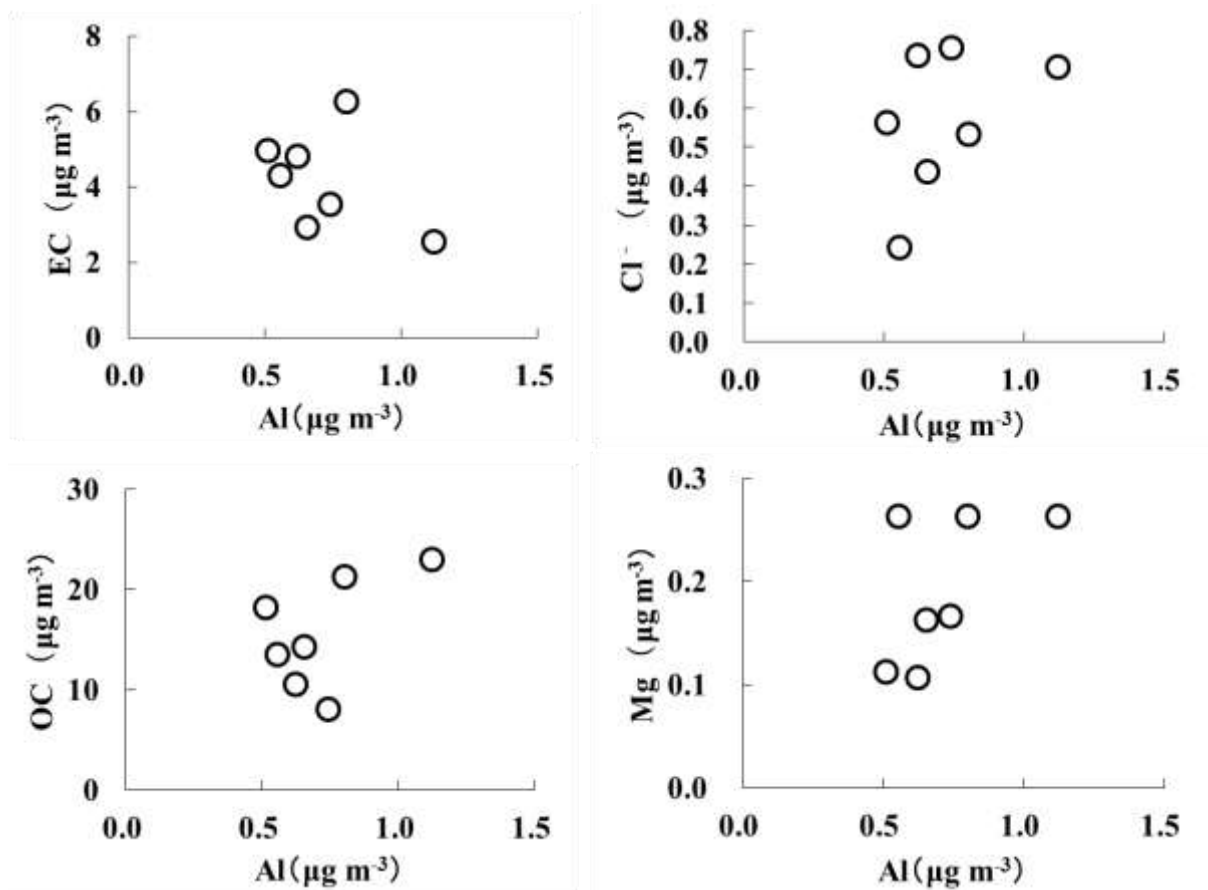


図(2)-13 ウランバートル及び東京のPM中の化学成分濃度(期間平均)

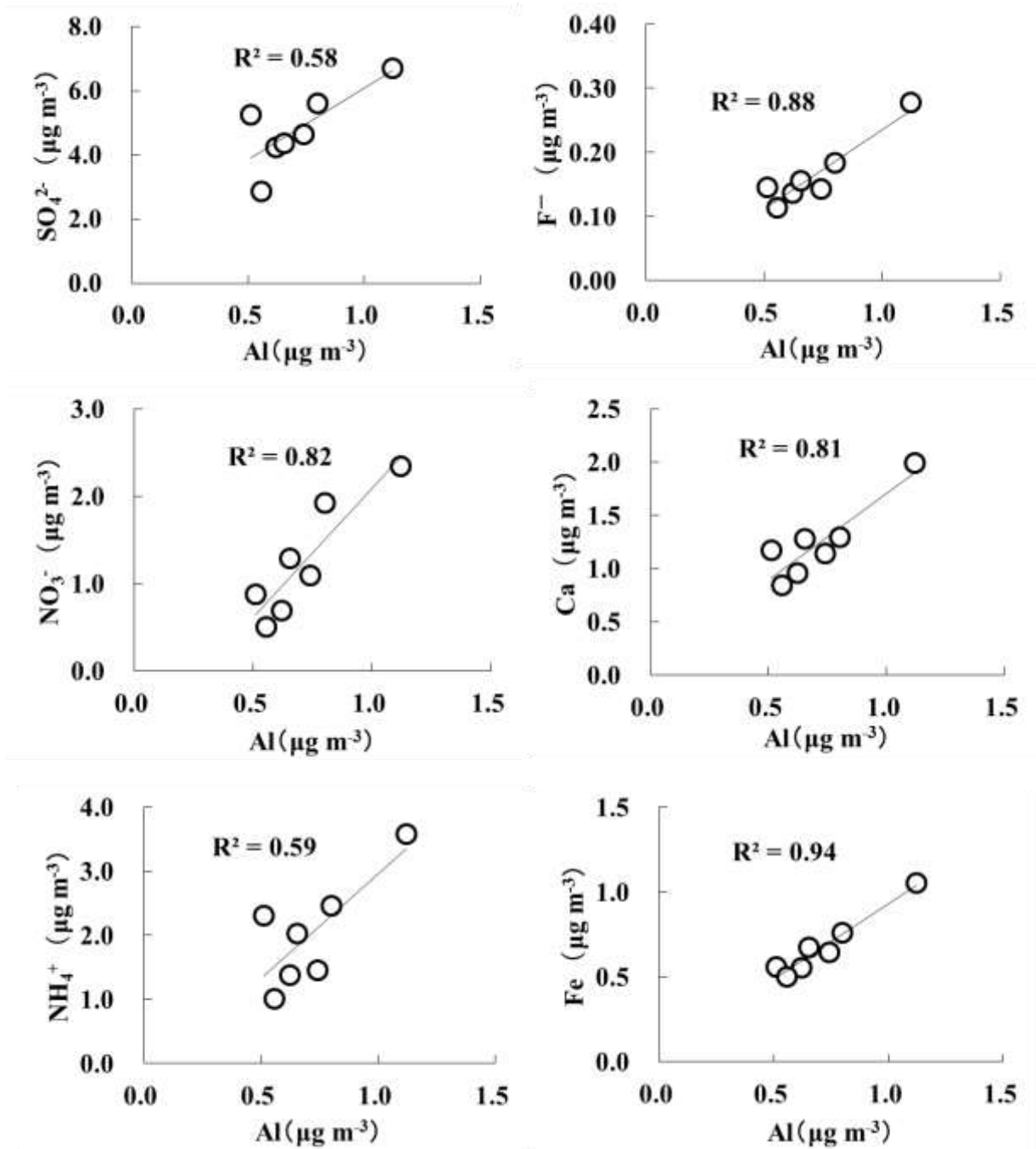


図(2)-14 ウランバートル及び東京のPM中の化学成分組成割合(期間平均)

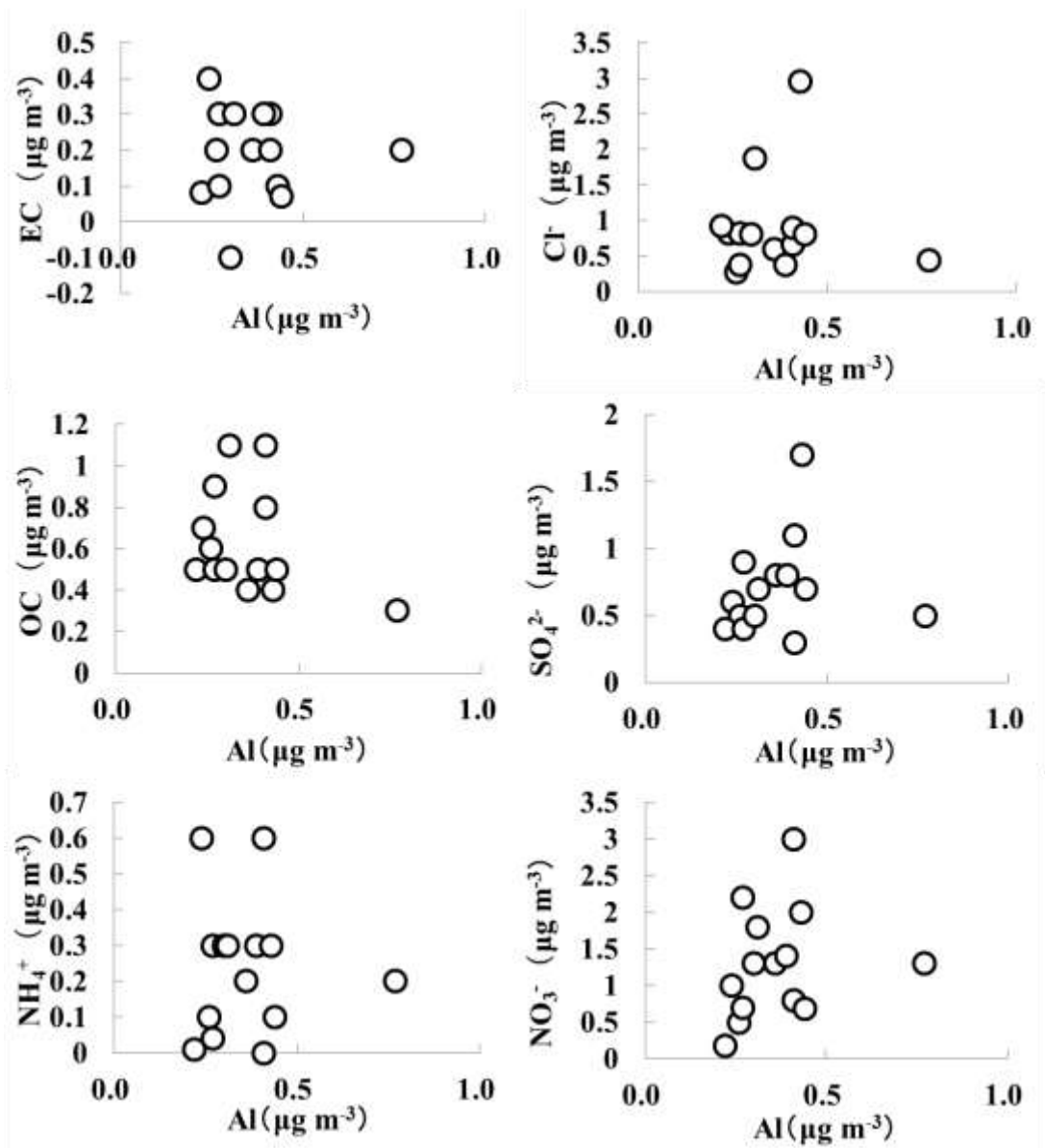
黄砂の発生源地に近く、かつ激しい都市大気汚染が生じているウランバートルの大気粉じんの化学成分分析結果を用いて、黄砂と汚染物質の混合状態についての解析を行った。これまでの研究で黄砂粒子の主成分のひとつはAlであることがわかっている。また、黄砂エアロゾルの粒径分布は粗大粒子領域にピークを持つ分布であることもわかっている。それらを踏まえ、ここでは粗大粒子に相当するPM2.5-10に含まれるAl(粗大Al)を黄砂エアロゾルの指標とした。粗大Al濃度に対してPM2.5-10(粗大粒子)に含まれる化学成分濃度をプロットしたところ、Al濃度とEC、OC及びCl<sup>-</sup>濃度の間に相関は認められなかった(図(2)-15)。一方、Al濃度とSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>は5%有意水準、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、F<sup>-</sup>は1%の有意水準で相関が認められた(図(2)-16)。この結果から、EC、OC及びCl<sup>-</sup>は黄砂粒子と別の粒子として存在、すなわち外部混合状態であったと示唆された。一方、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、及びF<sup>-</sup>はAlと同じ粒子中に存在、すなわち内部混合状態であったと示唆された。図(2)-17には2009年度の冬季に東京足立区の綾瀬で採取されたSPM-PM2.5中のAl濃度と各化学成分濃度の関係を示した。東京ではAlと他の化学成分との間に相関は見られず、外部混合状態であったことが推察される。このことから、ウランバートルのような非常に寒い地域では、排出されたガス状の汚染物質が大気中で輸送中に二次生成粒子となるのではなく、大気に排出されるとすぐに大気中の土壌粒子に吸着されて輸送されていくことが考えられる。



図(2)-15 ウランバートのPM<sub>2.5-10</sub>中のAlに対する各化学成分濃度(その1)



図(2)-16 ウランバートルのPM<sub>2.5-10</sub>中のAlに対する各化学成分濃度(その2)

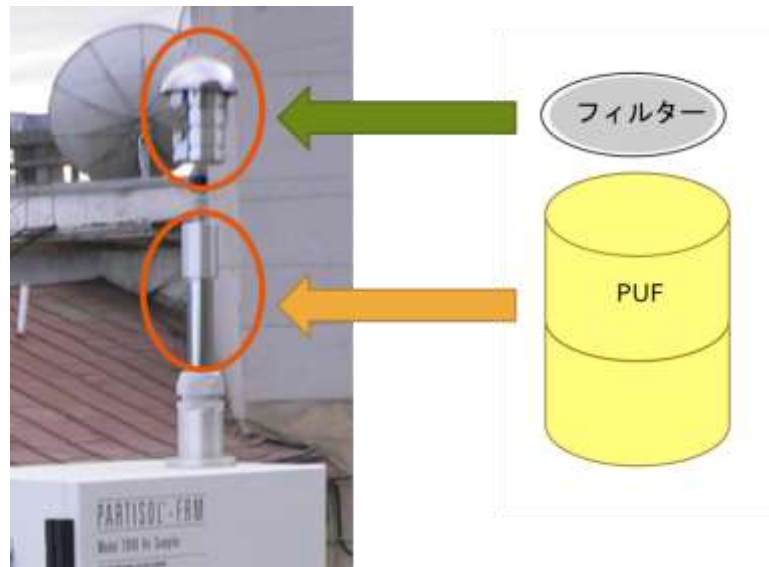


図(2)-17 東京のSPM-PM<sub>2.5</sub>中のAlに対する各化学成分濃度(2009年度、足立区綾瀬)

#### (4) ダイオキシン類の測定と大気中濃度の特徴

##### 1) ダイオキシン類の捕集法の検討

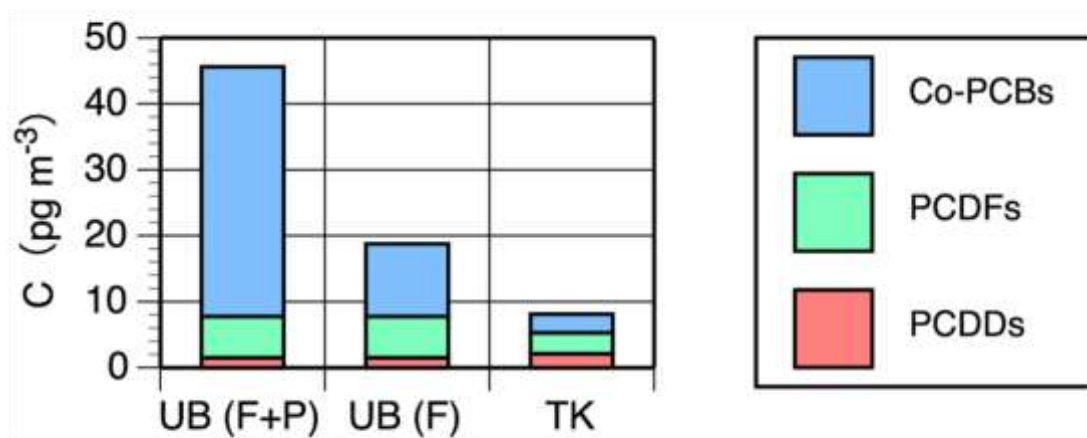
前述のように、環境省の「ダイオキシン類に係る大気環境調査マニュアル」(2008)<sup>2)</sup>には、試料捕集は石英繊維ろ紙とポリウレタンフォーム(PUF)2個をつけたハイボリウムエアサンプラー(HV)で行うと記載されているが、ウランバートルには2個のPUFを装着できるHVがない。そのため、現地に既存のローボリウムエアサンプラー(FRM、Thermo)に、PUF装着のためのチューブ及び粉じん採取用のインパクター(石英繊維ろ紙を装着)を接続し、ガス態と粒子態の同時捕集を可能とした(図(2)-18)。



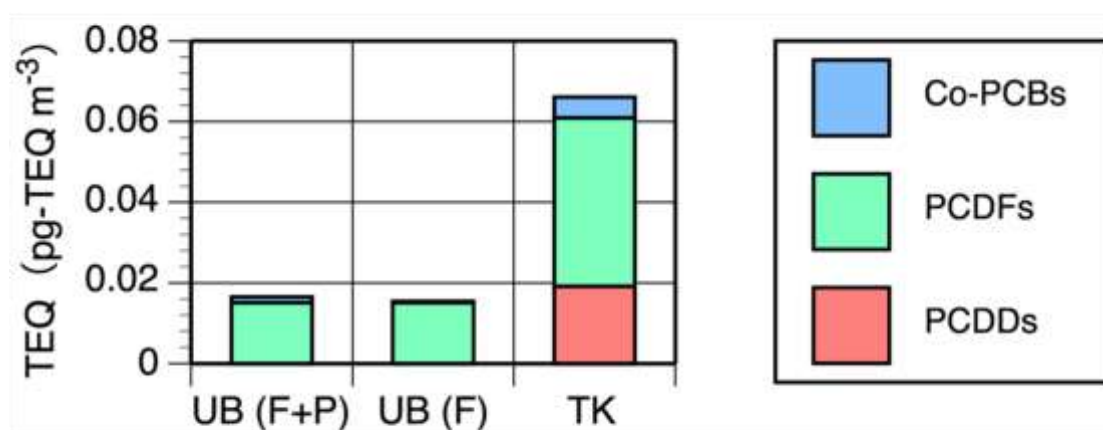
図(2)-18 改造したローボリュウムエアサンプラーによる試料捕集

改造したガス・粒子同時捕集システムにより2012年11月28日～30日にウランバートルにおいてPM2.5およびガスを捕集した。PM2.5の捕集材は石英繊維ろ紙（フィルター）を用いた。フィルターおよびPUFに捕集されたダイオキシン類（ポリ塩化ジベンゾ-パラ-ダイオキシン（PCDDs）、ポリ塩化ジベンゾフラン（PCDFs）、コプラナーポリ塩化ビフェニル（Co-PCBs））を、フィルターからはトルエン、PUFからはアセトンで抽出し、抽出液中のダイオキシン類を高分解能ガスクロマトグラフィー質量分析計を用いて定量した。

捕集された大気中のダイオキシン類濃度は $46 \text{ pg m}^{-3}$ で、2011年11月に東京都環境科学研究所で捕集された大気中のダイオキシン類濃度（ $8.1 \text{ pg m}^{-3}$ ）の5倍以上であった（図(2)-19）。このときのウランバートルの大気中のダイオキシン類の83%がCo-PCBsであり、全ダイオキシン類中のCo-PCBsのパーセンテージが35%であった東京都の大気とは異なる特徴を持っていた。毒性等量に換算すると、ウランバートルが $0.017 \text{ pg-TEQ m}^{-3}$ 、東京が $0.066 \text{ pg-TEQ m}^{-3}$ となった（図(2)-20）。



図(2)-19 11月にウランバートル（UB）及び東京（TK）で捕集された大気中のダイオキシン類濃度（F: フィルター上に捕集されたもの、P: PUFに捕集されたもの）



図(2)-20 11月にウランバートル（UB）及び東京（TK）で捕集された大気中のダイオキシン類の毒性等量（F:フィルター上に捕集されたもの、P:PUFに捕集されたもの）

毒性等量への寄与が最も大きかったのはPCDFsで、この傾向は東京と同じであった。ウランバートルの大気中のダイオキシン類は、濃度は東京都より高いものの、毒性等価係数が小さいCo-PCBsが主体であるため、毒性等量が小さかった。

分析値が定量下限値以上であった異性体についてガス・粒子分配比を計算した。計算には以下の式を用いた。

【粒子態存在比】（％）＝【フィルターに捕集された各成分量】／（【フィルターに捕集された各成分量】＋【PUFに捕集された各成分量】）×100

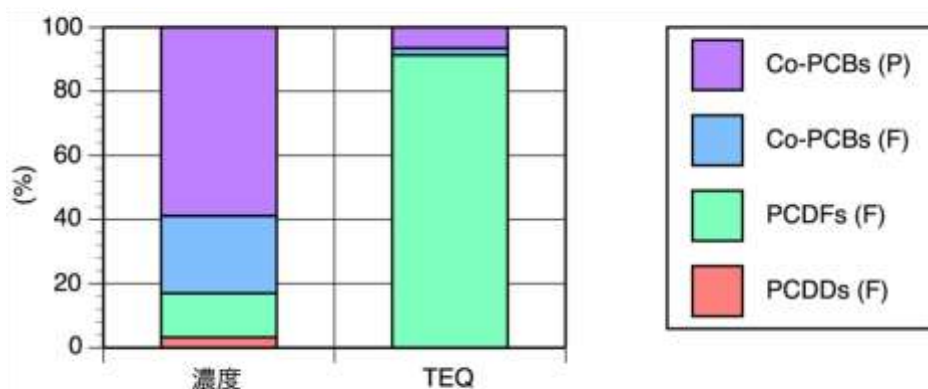
ガス態のPCDDsとPCDFsの各異性体は定量下限値以下であった。Co-PCBsの各異性体は50～90％がガス態であり、塩素数が少ない異性体ほどガス態の割合が大きかった（表(2)-3）。ウランバートルの大気中の総ダイオキシン類濃度に占めるガス態のCo-PCBs濃度のパーセンテージは59％であったが、総ダイオキシン類の毒性等量に占めるガス態のCo-PCBsの毒性等量のパーセンテージは6.5％であった（図(2)-21）。この結果から、ウランバートルに既存のPUFを装着できないサンプラーを用いてフィルターのみで大気試料を捕集した場合でも、PCDDsとPCDFs濃度については、十分に評価可能と考えられた。また、ガス態のCo-PCBsが全ダイオキシン類に占める割合が高いものの、それらは毒性等価係数が低いため、毒性等量については十分に評価可能であると考えられた。

表(2)-3 ウランバートル大気中のダイオキシン類のガス・粒子分配比（2012年11月）

TeCDD	0	TeCDF	0	TeCB	90
PeCDD	0	PeCDF	0	PeCB	68
HxCDD	0	HxCDF	0	HxCB	56
HpCDD	0	HpCDF	0	HpCB	0
OCDD	0	OCDF	0		
PCDDs	0	PCDFs	0	Co-PCB	70

表はガス態の比率（％）を表示





図(2)-21 11月にウランバートルで捕集された大気試料中のPCDDs、PCDFs、及びCo-PCBs濃度と毒性等量のパーセンテージ  
(F:フィルター上に捕集されたもの、P:PUFに捕集されたもの)

## 2) ウランバートルの大気中ダイオキシン類の濃度と組成

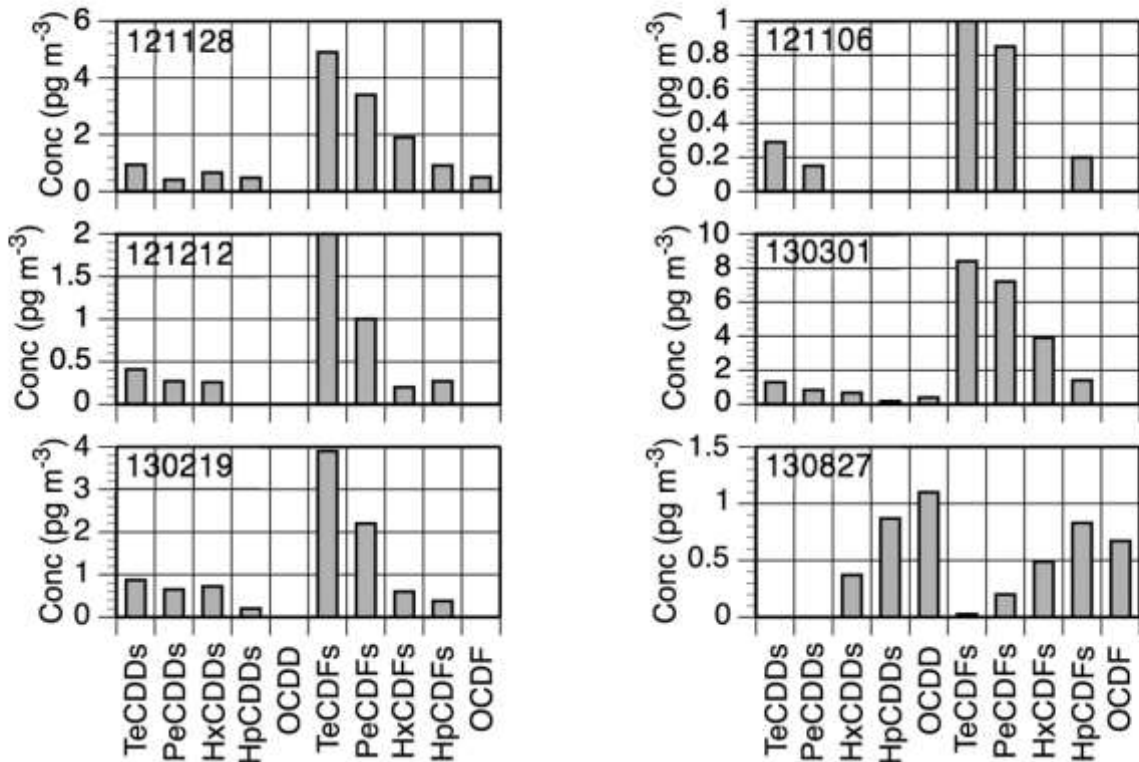
2012年11月にPUFも含めた大気中ダイオキシン類測定及びトラベルブランク測定を行った。表(2)-4に測定結果を示した。フィルターのトラベルブランク値は十分に低かった。一方、PUFのトラベルブランクはCo-PCBで高い傾向が見られた。これは、現地での保管期間が6週間と長くなっているため、保管中に汚染があった可能性も考えられる。

表(2)-4 フィルターあるいはPUF1組あたりのダイオキシン類

		トラベル ブランク	試料 1 06-08 Nov 2012	試料 1 28-30 Nov 2012
フィルター (PM2.5)	PCDDs (pg)	<LOQ	28	41
	PCDFs (pg)	<LOQ	130	170
	Co-PCB (pg)	<LOQ	160	300
PUF (ガス態)	PCDDs (pg)	<LOQ	<LOQ	<LOQ
	PCDFs (pg)	<LOQ	<LOQ	<LOQ
	Co-PCB (pg)	190	79	930
ウランバートルにおける 保管期間		6週間	3週間	6週間

図(2)-22にウランバートルで捕集されたPM2.5中のダイオキシン類の同族体濃度及び組成を示した。図中の6桁の数値はサンプリング開始日を示している。2013年8月(130827)を除いて、ダイオキシン類の同族体組成は燃焼パターンを示した。ウランバートルの大気汚染物質排出源は、火力発電所、暖房ボイラ施設、小型石炭焚き温水ヒーター、ゲルストーブと考えられており、大気中のダイオキシン類もこれらの排出源の影響を受けていることが考えられる。一方、2013年8月

は他と異なる組成となった。8月は平均気温が14.4℃と、他の月に比べ高くなっていたため、低塩素のPCDDsとPCDFsが粒子態でなくガス態で存在しており、同族体パターンが異なっていた可能性がある。本研究では捕集法検討の結果、フィルターのみでの試料捕集としているが、夏季のダイオキシン類調査については今後検証が必要である。それ以外の月については、捕集期間中の平均気温が氷点下となっており、PCDDsとPCDFsの大半が粒子態で存在していたと考えられる。



図(2)-22 ウランバートルにおける PCDDs、PCDFs の濃度及び同族体組成

## 5. 本研究により得られた成果

### (1) 科学的意義

ウランバートルにおいて大気中のダイオキシン類濃度の調査が可能となり、今後、黄砂発生源近傍での有機汚染物質と挙動解明に活用することができる。また、厳冬期のウランバートル大気粉じん中の化学成分の特徴を把握し、汚染物質の土壌粒子との混合状態が東京とは異なる特徴を持つことを明らかにした。

### (2) 環境政策への貢献

#### <行政が既に活用した成果>

特に記載すべき事項はない。

### <行政が活用することが見込まれる成果>

本研究成果は、大陸起源の汚染物質による日本国内のPM2.5濃度上昇の影響を推定し、PM2.5低減対策の立案に貢献できると考えられる。

## 6. 国際共同研究等の状況

ウランバートルにおける大気環境試料の採取に関しては、下記の現地研究者の協力を得て実施した。事前に来日して打ち合わせた後、ウランバートルでの試料捕集や観測装置のメンテナンスについて協力を得た。また、調査結果の考察への参加を得、連名による学会発表を行った。

氏名：Dashdondog Batdorj

所属：Institute of Meteorology, Hydrology and Environment

国名：モンゴル

## 7. 研究成果の発表状況

### (1) 誌上発表

#### <論文（査読あり）>

- 1) M. Nishikawa, D. Batdorj, M. Ukachi, K. Onishi, K. Nagano, I. Mori, I. Matsui, T. Sano: Analytical Methods, 5, 4088-4095, (2013), DOI: 10.1039/c3ay40435h.  
“Preparation and chemical characterization of an Asian mineral dust certified reference material”
- 2) M. Nishikawa, I. Matsui, I. Mori, D. Batdorj, E. Sarangerel, K. Ohnishi, A. Shimizu, N. Sugimoto: Earozoru Kenkyu, 30(2), 126-133, (2015), DOI: 10.11203/jar.30.126.  
“Chemical characteristics of airborne particulate matter during the winter season in Ulaanbaatar”

#### <査読付論文に準ずる成果発表>

特に記載すべき事項はない。

#### <その他誌上発表（査読なし）>

特に記載すべき事項はない。

### (2) 口頭発表（学会等）

- 1) 森 育子、山崎正夫、Dashdondog Batdorj、高橋明宏、西川雅高、松井一郎、清水 厚、高橋 克行：冬季ウランバートルの大気粉じん濃度変動の特徴，第53回大気環境学会年会（2012）
- 2) 森育子、山崎正夫、Dashdondog Batdorj、西川雅高「ウランバートルの環境大気中のダイオキシン類分析の試み」第22回環境化学討論会（2013）
- 3) 森育子、山崎正夫、Dashdondog Batdorj、西川雅高、松井一郎、高橋克行、板谷庸平、田淵 浩司：冬季ウランバートルの大気粉じん中炭素成分の特徴，第54回大気環境学会年会（2013）
- 4) 星純也、森育子、山崎正夫、Dashdondog Batdorj：ウランバートルの大気粉じん中の化学成分濃度，第55回大気環境学会年会（2014）

**(3) 出願特許**

特に記載すべき事項はない。

**(4) 「国民との科学・技術対話」の実施**

東京都環境科学研究所公開研究発表会（平成24年12月21日、参加者約150名）にて成果紹介

**(5) マスコミ等への公表・報道等**

特に記載すべき事項はない。

**(6) その他**

特に記載すべき事項はない。

**8. 引用文献**

- 1) M. Nishikawa, I. Matsui, D. Batdorj, D. Jugder, I. Mori, A. Shimizu, N. Sugimoto, K. Takahashi: Chemical composition of urban airborne particulate matter in Ulaanbaatar, Atmospheric Environment, 45(32), 5710-5715(2011)
- 2) 環境省(2008): ダイオキシン類に係る大気環境調査マニュアル
- 3) 秋山薫, 上野広行, 三好猛雄, 横田久司, 石井康一郎, 樋口幸弘, 伊藤 雄一: PM2.5 に含まれる炭素成分の特徴—炭素フラクション特性—, 東京都環境科学研究所年報, 137-140 (2010)
- 4) 東京都微小粒子状物質検討会: 東京都微小粒子状物質検討会報告書資料集 (2011)

### (3) 汚染混合型の黄砂沈着フラックス量を推計する黄砂予報モデルの応用研究

国土交通省気象庁気象研究所

研究総務官 三上 正男  
環境・応用気象研究部 第1研究室 眞木 貴史  
関山 剛

国土交通省気象庁地球環境・海洋部環境気象管理官付

田中 泰宙

平成24～26年度累計予算額 15,907千円

(うち、平成26年度予算額 5,435千円)

上記の予算額は、間接経費を含む。

#### [要旨]

本サブ課題では、これまでに用いてきた黄砂予報モデル(MASINGAR)に対して大気モデル、黄砂等の放出・沈着過程等に関する改良を行い(MASINGARmk-2)、汚染混合型黄砂予測システムとして毎日準リアルタイムの予測計算を実行と検証を行う環境を構築した。この予測システムを用い、粒子状浮遊物質による大気汚染現象事例の検証と解析を行い、汚染と混合したエアロゾル成分の推定を行った。事例解析では大陸から黄砂とともに硫酸塩等の大気汚染に由来する成分が輸送される現象や、火山噴煙に起因する硫酸塩によると推定されるPM2.5濃度の上昇事例なども見出された。また、MASINGAR mk-2を用いて過去30年間における東アジアにおける黄砂発生量と日本付近への飛来量/降水量に関するシミュレーション解析を行い、この両者が正の相関を持つと共に、黄砂発生量の約5%程度が日本付近に沈着することを示した。さらに、地上観測データとMASINGARを用いて東アジアにおける黄砂発生量を推定する逆解析手法を過去の黄砂イベントに関して適用した結果、MASINGARの黄砂放出量が中国東北部で過小評価とみられることも判明した。今後、この手法をより大規模に適用することにより、日本付近への黄砂飛来量/沈着量を定量化できる目処を立てることができた。

[キーワード] 黄砂、エアロゾル、飛来量、沈着量、黄砂予報モデル、逆解析

#### 1. はじめに

微小黄砂(PM2.5黄砂と呼ぶ)は、大気汚染物質とよく混合することが定性的に判ってきた。大気汚染物質と混合した黄砂である汚染混合型黄砂は、黄砂そのものに比べ健康影響が大きいと指摘されている。黄砂発生源に近いアジア大陸の大都市(北京、ウランバートル)では汚染混合型黄砂が新たな都市大気環境問題となり、日本でもPM2.5規制値を超える汚染混合型黄砂の飛来が目立ってきた。近年、PM2.5による大気汚染に関する報道等が盛んに行われ、環境省において環境基準に基づいた注意喚起の指針が設定されるなど、国民の関心も高まっている。しかしながら、PM2.5領域に存在する汚染混合型黄砂の日本への飛来・沈着に関する科学的知見は非常に少なく、対応する数値モデルの開発も遅れている。

黄砂発生源に近い北京やウランバートルでは、都市郊外に沈着している黄砂の再飛散粒子と都

市大気汚染物質との複合汚染が懸念されている。この沈着後の再飛散黄砂は内陸部で発生する黄砂と異なり、粒径が小さい方にシフトする傾向があることから健康への影響が注視されている。また、風下にある我が国への越境飛来も懸念される。このような背景から、日中韓三カ国大臣会合において、黄砂問題は発生源対策や予報システムの構築に加えて都市大気汚染や越境大気汚染問題とリンクした新たな議題となっている。

これまで、黄砂の発生と広域輸送、予測モデル、健康影響に関する研究が、環境研究総合推進費などで行われて来た。その結果、日本に飛来する黄砂の主発生源はゴビ砂漠域で、年間推定発生量約1億トンのうち約4割が日本上空に飛来すること、黄砂に関する動物投与実験や疫学調査から健康影響が認められること、などが判ってきた。しかしながら、それらの研究は黄砂の質量（バルク黄砂）のみを対象としており、PM2.5以下の小粒径黄砂に焦点をあてた長距離輸送や日本周辺域に沈着する黄砂に関する研究は非常に遅れている。また、PM2.5黄砂に大気汚染物質が取り込まれることで粒子が肥大化し、大気中からの除去が加速される効果や、黄砂の乾性・湿性沈着の地域特性については定性的な理解にとどまり、精度の高いモデル化はできていない。

## 2. 研究開発目的

本研究課題は、各分野において先行する研究手法をベースに新たな独創的手法を加え、今まで未解明のPM2.5黄砂と沈着量の実態解明と国際貢献的研究の両方を実行するものである。本サブ課題では、ライダーネットワークデータと気象庁の黄砂予報モデルをベースにして、黄砂予報モデルを大気汚染物質によって変質を受けた汚染混合型黄砂の予測システムへと高度化し、沈着量推定手法を開発する。沈着量観測ネットワークによる検証データを活用して日本周辺域を対象に汚染混合型黄砂の飛来量及び沈着量分布を明らかにする。これら観測や数値モデルによる成果は、環境省・気象庁が共同運用する黄砂ホームページの質的向上に貢献する。

本課題では黄砂予報モデル、データ同化、逆解析といった数値解析手法を有機的に結合して汚染物質の混合過程を経た汚染混合型黄砂の日本周辺への沈着量を推定する。この目標を達成することによって日本域のPM2.5予測精度の飛躍的な向上に貢献する。

## 3. 研究開発方法

### (1) 汚染混合型黄砂の予測システムの開発

本サブ課題では、気象庁の黄砂予測システムを汚染混合型黄砂の監視と予測に適用できる数値モデルとするためのシステム開発に取り組んだ。気象庁で発表されている黄砂情報で扱われている黄砂予報モデルMASINGAR (Model of Aerosol Species in the global atmosphere; Tanaka et al., 2003)<sup>1)</sup> は、予測の対象は土壌ダスト粒子による黄砂のみである。そこで、本研究では土壌ダスト粒子とともに、硫酸塩等の他の主要なエアロゾル粒子を予測の対象とした。また、使用する放出源データベースの見直しを行った。

本研究で使用するMASINGAR mk-2は気象研究所が開発した全球を対象とするエアロゾル数値モデルであり、MASINGARを基にしている。MASINGARは大気大循環モデル(MRI/JMA98)と直接結合しており、気象庁の黄砂予報情報業務 (<http://www.jma.go.jp/jp/kosafest/>) に使用されてきた

(2014年11月よりMASINGAR mk-2を利用開始)。一方、MASINGAR mk-2は気象研究所の地球システムモデルMRI-ESM1 (Yukimoto et al., 2011<sup>2)</sup>, 2012<sup>3)</sup>) のコンポーネントとして気候変動研究に

も用いられている。MRI-ESM1はその構成要素として大気大循環モデルMRI-AGCM3、海洋大循環モデルMRI.COM、エアロゾルモデルMASINGAR mk-2、大気化学モデルMRI-CCM2から構成されている。これらのコンポーネントはカップラーライブラリSCUP (Yoshimura and Yukimoto, 2009)<sup>4)</sup>によって結合されている。本研究ではこのMRI-ESM1のコンポーネントであるMRI-AGCM3とMASINGAR mk-2のみを結合させ(本報告書では、このモデルをMASINGAR mk-2と呼ぶ)、水平解像度を約50km (TL319, 全球640×320格子)に向上させた。鉛直解像度も気象庁の黄砂予報モデル黄砂予報モデルでは20層であるのに対して40層(対流圏ではそれぞれ数十～数百mの厚み)に設定している。気象場(風向・風速等)は気象庁全球解析値データを参照値として大気大循環モデルMRI-AGCM3にナッジング手法を用いることで、現実大気の状態を精度良く表現している。エアロゾルモデルMASINGAR mk-2では、主要なエアロゾルとして硫酸塩・黒色炭素・有機炭素・鉱物ダスト・海塩の5種類を扱っている。各エアロゾル粒子は外部混合していると仮定され、発生・移流・拡散・沈着の過程を計算している。気象庁黄砂予報モデル(2014年10月まで)と本研究による汚染混合型黄砂予測システムの比較を表(3)-1に示す。

本研究では、まずPM2.5黄砂を含む汚染混合型黄砂を予測するためのエアロゾルの放出プロセスの改良を行った。土壌ダスト粒子の放出量は地表面近傍の風速や大気安定度、土壌水分・積雪・植生・土壌の種類などの地表面の状態を考慮して計算される。この過程には Tanaka and Chiba (2005)<sup>5)</sup>による、摩擦速度を基にサルテーション・ボンバードメント過程を考慮したモデルを用いている。また、東アジア領域では早春や春季・冬季に重要となる土壌凍結の影響をKang et al. (2013)<sup>6)</sup>に基づいて採り入れている。

海洋からは、風の応力による泡沫の破裂から生じる海塩エアロゾル粒子の放出量は Gong (2003)<sup>7)</sup>による関数から計算している。また、植物プランクトンによって生成される硫化ジメチル(DMS)は大気中での酸化過程を経て硫酸塩エアロゾルとなる。DMSの放出量は Kettle et al. (1999)<sup>8)</sup>による海洋表層水中のDMS濃度データを基にして、Liss and Merlivat (1986)<sup>9)</sup>による関数を用いて計算している。

二酸化硫黄および黒色炭素・有機炭素の放出量は放出量インヴェントリに基づいている。硫酸塩エアロゾルの基となる二酸化硫黄の放出量は、人間の活動に基づく放出、森林火災などのバイオマス燃焼による放出、火山活動による放出を考慮している。黒色炭素・有機炭素の放出量は人間の活動に基づく放出、森林火災などのバイオマス燃焼による放出、および植生の活動によるモノテルペンおよびイソプレン放出を考慮している。人為起源の二酸化硫黄・黒色炭素・有機炭素放出量データには、MACCity インヴェントリ(MACC/CityZEN EU projects)を用いている。このインヴェントリはIPCCの第5次報告書における気候モデル比較実験で用いられているRCPインヴェントリ(Lamarque et al., 2010)<sup>10)</sup>に基づき、かつ月毎の変動を考慮していることが特徴である。

森林火災などのバイオマス燃焼による放出量は、日々の変動が大きく、リアルタイムでのエアロゾル予測に対して影響が大きい。このため、ヨーロッパ中期予報センターによって開発されたGFAS(Global Fire Assimilation System, Kaiser et al. 2012)<sup>11)</sup>の提供を受け、これを準リアルタイムのエアロゾル予測計算に導入した。このGFAS放出源データベースは、衛星放射観測によって得られた火災による放射強度(Fire radiative power; FRP)を基に放出量を推定している。

次に、沈着パラメータの調整によるエアロゾル分布の気候値を改良したほか、サブテーマ5で実施された乾性・湿性別沈着観測ネットワークDRAEMON(Osada et al. 2014)<sup>12)</sup>のデータと比較す

ることによって、ダストの粒径分布パラメータの最適化を行った。

さらに、予測モデルによるPM2.5汚染混合型黄砂濃度の推定を行った。この予測モデルでは、上

表(3)-1 黄砂予測モデルの主な変更点 (全球大気大循環モデル部)

	気象庁黄砂予測モデル(2014年10月まで)	汚染混合型黄砂予測システムモデル
空間解像度 (エアロゾル)	T106L20 水平：1.125° × 1.125° (約110km) 鉛直：地上～5hPa (約35km), 30層	TL319L40 水平：0.56° × 0.56° (約55km) 鉛直：地上～0.4hPa (約55km), 40層
予測エアロゾル種	土壌粒子	土壌粒子、硫酸塩、黒色炭素、有機炭素、海塩
土壌粒子放出	地表10m風速の関数 (風速の3乗に比例)	地表面摩擦風速の関数 (Tanaka and Chiba, 2005)
化学計算	なし	DMS, OCS および SO <sub>2</sub> から気相・液相反応を通じて硫酸塩を生成する
放出インベントリ	なし	RCP インベントリ (Lamarque et al., 2012) <sup>9)</sup> , MACCityインベントリ, GFAS (Kaiser et al. 2012) <sup>11)</sup>
空間解像度 (気象)	T106L30 水平：1.125° × 1.125° (約110km) 鉛直：地上～5hPa (約35km), 30層	TL319L40 水平：0.56° × 0.56° (約55km) 鉛直：地上～0.4hPa (約55km), 40層
時間積分	セミ・インプリシット法	セミ・インプリシット法
移流スキーム	オイラー法	鉛直保存セミ・ラグランジュ法
積雲対流	Arakawa-Schubertスキーム	Tiedtke-likeスキーム (Yoshimura et al. 2014) <sup>13)</sup>
放射過程	2方向近似 (Shibata)	2方向近似 (JMA2004R1)
陸面モデル	SiBL3	HAL <sup>b</sup>
その他変更点		Scup ライブラリによるモデルの並列結合およびMPI並列計算

述したようにエアロゾルの混合状態は、外部混合を仮定しており、硫酸塩、黒色炭素および有機炭素は対数正規分布を仮定し、鉱物ダストおよび海塩粒子はビン法にもとづいて粒径分布を表現している。PM2.5汚染混合型黄砂濃度の計算では、硫酸塩・黒色炭素・有機炭素は、粒径が小さいため全てPM2.5に含まれると仮定した。鉱物ダストおよび海塩粒子は、測器による捕集効率を考慮して、対象となる粒径区間の質量を足し合わせた。

予測計算は気象研究所のスーパーコンピュータシステムまたはクラスタシステムを用いて、準リアルタイムでの5日間の予測値が毎日自動計算される。このシステムでは気象庁全球気象解析値の取得・バイオマス燃焼による放出量データの取得を行い、予測計算を毎日5時から開始し、計算終了後は各エアロゾルの濃度や光学的厚さなど、観測と比較するための図を作成し、Webサーバー



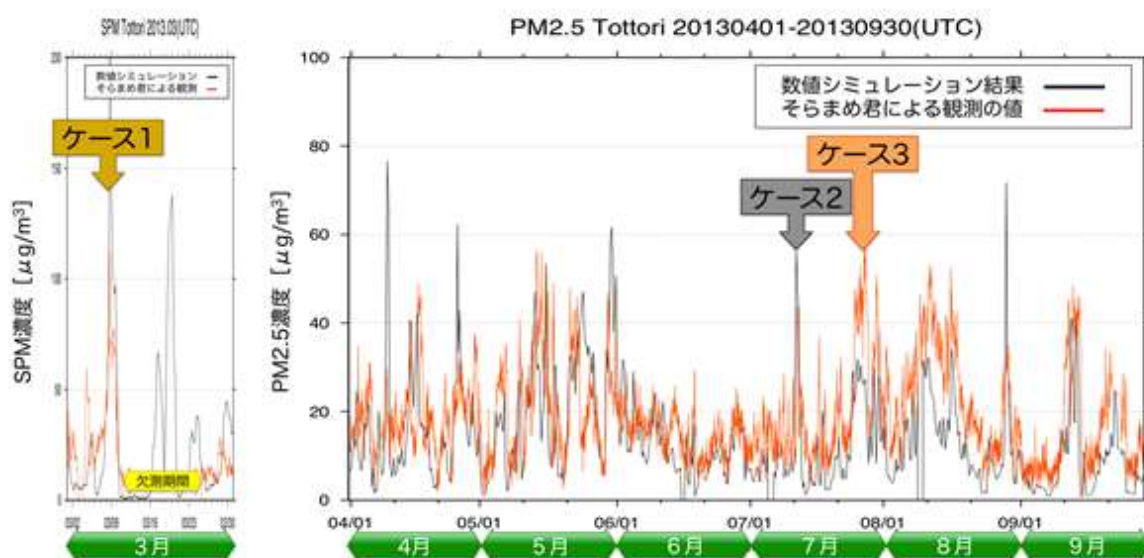
上に掲載する。計算にかかる時間はおおよそ4時間程度である。また、予測計算結果を確認するため、計算終了時には作図結果を電子メールで自動発信することができる。

本システムによる準リアルタイムによるエアロゾルの光学的厚さは、ICAP (International Cooperative for Aerosol Prediction, エアロゾル予測に関する国際協力) のモデル間相互比較 (Sessions et al. 2015)<sup>14)</sup> に提出され、全球モデルによるエアロゾル予測の精度向上のために使用されている。また、本システムによるエアロゾル濃度や気象要素などの計算結果は、世界気象機関世界気候研究計画 (WMO WCRP) の数値実験作業部会 (Working Group on Numerical Experimentation; WGNE) において2013 - 2014年に実施された Evaluating aerosols impacts on Numerical Weather Prediction (<http://meioambiente.cptec.inpe.br/wgne-aerosols/>) にも提出され、大気エアロゾルが数値予報に及ぼす影響のモデル間相互比較に使用された。

## (2) 黄砂予報モデルの検証

本研究ではモデルシミュレーション結果を検証するための観測データとして、環境省の大気汚染物質広域監視システム (そらまめ君: <http://soramame.taiki.go.jp/>) の一般局によるPM2.5濃度測定値 (1時間平均値) を利用した。予測システムの検証と大気汚染実況の監視のため、大気汚染物質広域監視システムによる1時間毎のデータを準リアルタイムで取得し、日本地図上に可視化し、イントラWeb上で表示するシステムを構築した。本システムによる計算結果は他のサブテーマにも提供され、黄砂予報モデルの検証等にも用いられた。

図(3)-1に鳥取県での粒子濃度観測とモデルシミュレーション結果の比較検証の例を示す。期間は2013年3月から2013年9月までである。その中で鳥取県内の測定局を2点選び出し (設置地点は鳥取保健所および米子保健所)、その2点のPM2.5濃度平均値とMASINGARが計算する鳥取県内における



図(3)-1 鳥取県内2カ所(鳥取市と米子市のそらまめ君測定局)で観測されたPM2.5濃度の平均値(赤線)とエアロゾル数値モデルで計算された鳥取県内の平均PM2.5濃度(黒線)の時系列変化 (観測期間: 2013年春～夏、ただし3月については上記測定局でPM2.5濃度の観測が行われていなかったためSPM (粒子径10 μ m以下のエアロゾル粒子) 濃度で代用した)

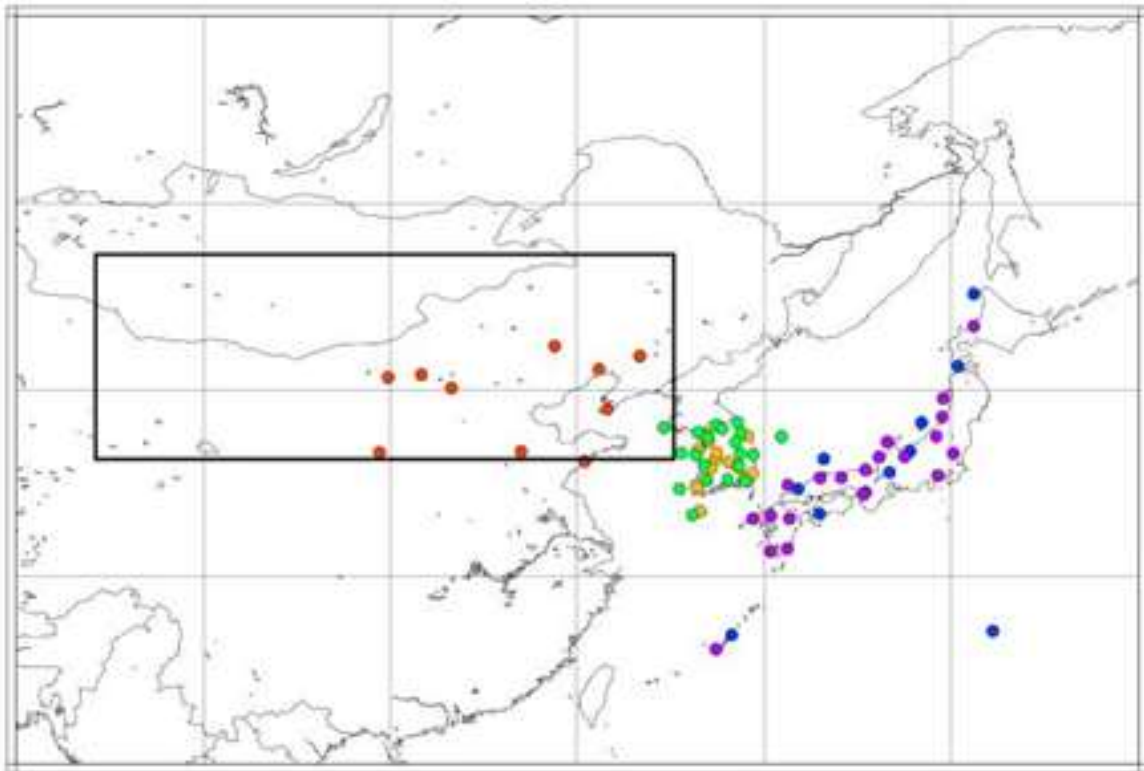
るPM2.5汚染混合型黄砂濃度平均値を比較した。ただし、3月についてのみ、上記測定局でPM2.5濃度の観測が行われていなかったためSPM（粒子径 $10\mu\text{m}$ 以下のエアロゾル粒子）濃度で代用した。

### （3）黄砂予報モデルと逆解析を用いた黄砂放出量、沈着量の推定

近年、化学輸送モデルを用いて黄砂の放出量や沈着量を推定しようという試みがなされつつある。これらの研究では、比較的長期間に関しての解析や、データ同化手法や逆解析といった観測データをモデルに取り込むような試みは余りなされてきていなかった。そこで、今回は化学輸送モデルを用いた長期間（30年以上）にわたる数値実験を行うとともに、近年のいくつかの黄砂イベントに関しては観測データと化学輸送モデルを逆解析という手法で組み合わせた解析を実施した。

長期間の化学輸送モデルを用いた実験に関しては、計算負荷を考慮して水平解像度 $1.875^\circ$ （約200km）、鉛直層数48の全球エアロゾル輸送モデル（MASINGAR mk-2）を用いた。気象データとしては気象庁が実施した再解析データ（JRA-55）をナudging参照値として用いた。また、気象場に大きな影響を与える海面水温についても解析値を与えた。計算期間は1979～2010年であったが、黄砂の放出量等の解析は、最初の1年間をスピニアップ期間として1980～2010年に関して実施した。黄砂の年毎の放出量をゴビ砂漠とタクラマカン砂漠を含む領域（東経 $80\sim 120^\circ$ 、北緯 $30\sim 50^\circ$ ）に関して積算し、日本付近への沈着量に関しては日本本土を含む領域（東経 $130\sim 150^\circ$ 、北緯 $30\sim 50^\circ$ ）に関して湿性・乾性沈着量を積算した。

逆解析を用いた黄砂放出量解析に関しては、2008～2009年に関する顕著な黄砂事例を4例抽出し、それぞれに関して全球エアロゾル輸送モデル MASINGAR を低解像度（水平解像度 $2.8^\circ$ ：約300km）で輸送実験を実施した。低解像度モデルを用いた理由は、数多くの輸送実験（時間数（解析期間/3時間）×領域数（東西南北44格子点）につき2週間の計算）を実施する必要があり、多くの計算機資源を必要とするためである。観測データは日中韓黄砂共同研究第一作業部会で共有された日本、中国、韓国の地上黄砂観測データを用いた（図(3)-2）。この際、ある閾値以上のエアロゾル濃度の観測を用い、エアロゾルは黄砂が主であるという仮定を置いた。逆解析の手法としては、炭素循環逆解析などで実績のあるベイズ統合逆解析（Gurney et al., 2002<sup>15)</sup>, Maki et al., 2011<sup>16)</sup>）を用い、観測データの不確かさは20%、第一推定（MASINGAR）フラックスの不確かさは感度実験を行った後に100%とした。



図(3)-2 逆解析で利用した観測所と黄砂放出量を解析した範囲（黒枠）（観測所は記号毎に機関を示し、四角形が中国環境保護局、菱形が韓国環境研究所、星形が韓国気象研究所、丸形が東アジア大気汚染センター、三角形が環境省の観測地点）

#### 4. 結果及び考察

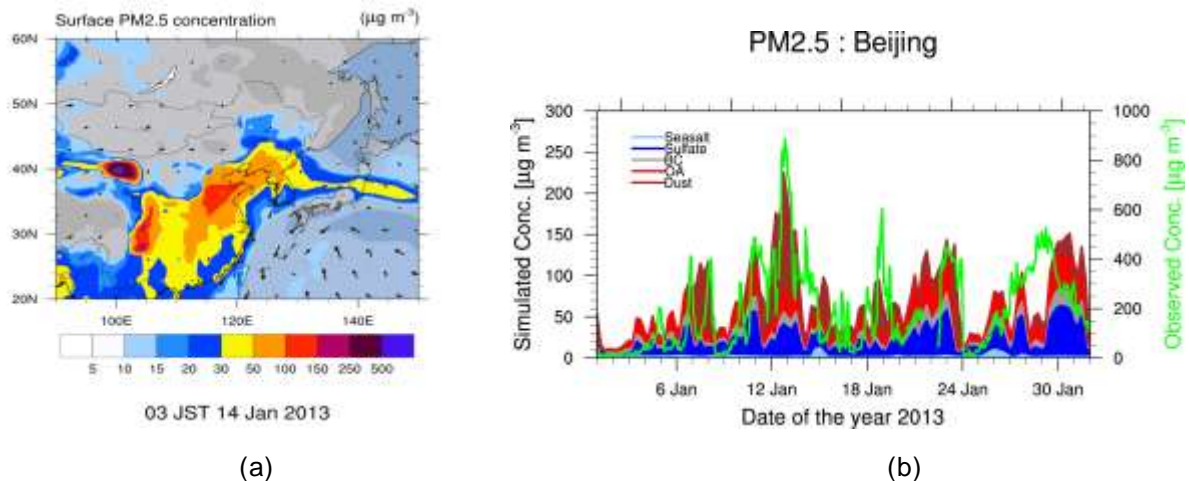
ここでは、汚染混合型黄砂予測システムによって得られた、エアロゾル高濃度事例、および黄砂予報モデルと逆解析を用いた黄砂放出量、沈着量の推定について述べる。

##### (1) 大陸から輸送される大気汚染現象の事例解析

近年、中国では大気汚染が深刻化しており、特に在中国米国大使館が2008年以降にPM2.5濃度を公表し始め、また中国行政機関も測定値を公開するようになり、報道でも大きく取り上げられている。特に2013年1月には、北京市においてPM2.5が $800 \mu\text{g m}^{-3}$ を超える濃度が観測されるなど、深刻な大気汚染となった。大陸から日本に輸送される気象場では、日本においてもPM2.5の環境基準値を超える地点が相次いだ。

図(3)-3(a)は黄砂予報モデルシミュレーションによる2013年1月14日のPM2.5汚染混合型黄砂の地表付近濃度分布を、図(3)-3(b)はシミュレーションによる北京での2013年1月の濃度の時系列を成分毎に示したものである。1月11日～14日には、人為起源の硫酸塩や炭素系エアロゾルとともにダストの濃度が高くなっており、PM2.5濃度上昇にダスト粒子が寄与している可能性を示唆している。しかしながら、1月11日前後に中国・モンゴルでのダスト現象の観測報告は少なく、このイベントに対してはダスト濃度が過大評価である可能性が高い。また、非常に高濃度のPM2.5汚染が報告されているにもかかわらず硫酸塩の濃度が低めである。一方、国立環境研究所による福江島で

のPM<sub>1.0</sub>相当の粒子状物質の成分別濃度観測によると、硫酸塩は約48%、有機物が約35%を占めており、二酸化硫黄から硫酸塩エアロゾルを生成する等の化学過程プロセスに改良が必要であること示唆されている。



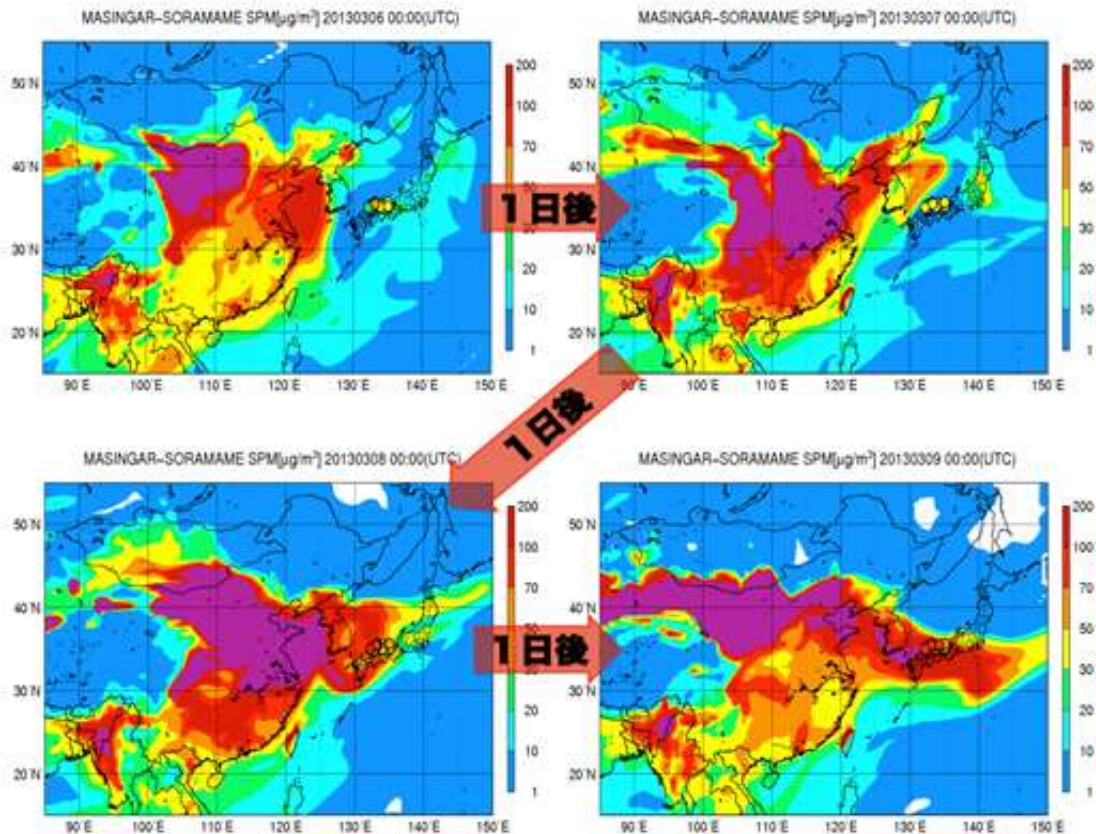
図(3)-3 汚染混合型黄砂予測システムによるPM<sub>2.5</sub>汚染混合型黄砂濃度分布 ((a) 2013年1月14日00UTCの地表付近におけるPM<sub>2.5</sub> (b) 2013年1月の北京のPM<sub>2.5</sub>濃度の時系列変化)

## (2) 大気汚染物質広域監視システム（そらまめ君）と数値モデルを用いた事例解析

汚染混合型黄砂予測システムによってシミュレートされる粒子濃度を、日本国内の大気汚染物質広域監視システム（そらまめ君）による観測との比較検証を行い、日本国内のPM<sub>2.5</sub>の組成的特徴とその発生起源について考察した。予測システムによる硫酸塩、海塩、煤、有機物のエアロゾル分布の再現計算も行い、日本に飛来する黄砂がどのような外部混合状態であるのかの推定を行った。検証対象地域としては黄砂および越境汚染の影響を受けやすい山陰地方を選んだ。局所的な濃度変動の影響を除外し、広い範囲の黄砂およびPM<sub>2.5</sub>の変動の特徴を比較するため、そらまめ君の観測値としては鳥取市の測定局で得られた値と米子市の測定局で得られた値の平均値を使い、シミュレーション結果としては数値モデルの中で鳥取県に相当する領域全体の平均値を使った。

検証対象時期としては黄砂および硫酸塩の発生が多い春から夏までを選んだ。特に、2013年夏季には日本国内でPM<sub>2.5</sub>濃度が上昇する現象が観測された。

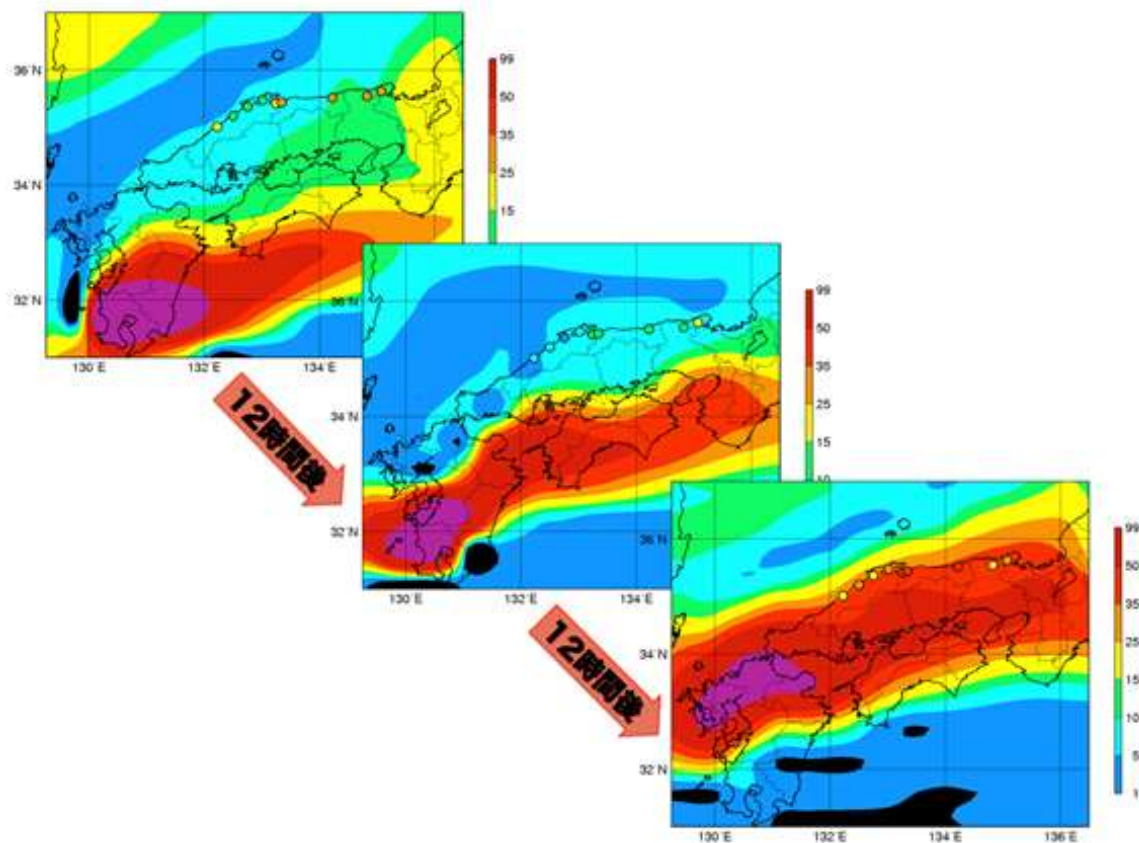
図1を見ると、全球エアロゾル数値モデルMASINGAR mk-2は鳥取県内のPM<sub>2.5</sub>濃度を精度良く定量的に再現していることが分かる。特に数日間にわたって大規模な濃度上昇が観測される期間（すなわち総観規模の現象が起きている期間）には、その濃度上昇および下降のタイミングを非常に良く再現している。これは数値モデルを用いてPM<sub>2.5</sub>濃度を解析あるいは予測することが可能であることを示唆している。山陰地方におけるPM<sub>2.5</sub>濃度変動は様々な要因によって影響を受けており、気象条件・黄砂の飛来・日本国内の人為大気汚染・海外からの越境汚染・自然起源の環境変動などが複雑に組み合わさっていると考えられている。図1を見ているだけではその区別が分からないが、濃度上昇期間の東アジアあるいは日本上空のPM<sub>2.5</sub>濃度等を平面的に地図上へプロットすれば、濃度上昇の原因が何であるか一目瞭然となる。以下、図(3)-1で示されたケース1、2、3の場合について濃度上昇時およびその前後の平面分布図を示し、その特徴を記す。



図(3)-4 ケース 1 : 東アジアの地表面SPM濃度 [ $\mu\text{g m}^{-3}$ ] 分布の1日おきの変化 (時刻はそれぞれ2013年3月6日00時, 3月7日00時, 3月8日00時, 3月9日00時. 等値線はエアロゾル数値モデルの計算結果、山陰地方に並ぶ丸印はそらまめ君の一般局において観測された値を示す)

### ケース 1

図(3)-4に3月6日から9日までの東アジア上空の地表面SPM濃度を示す。この時期、鳥取県では観測でもモデル計算でも急激なSPM濃度上昇が起き、その状態が数日間続いたことが図(3)-1から見て取れる。3月6日の時点ではゴビ砂漠南部付近で非常に濃いブルームが発生しており、3月7日にはそれが徐々に南東方向へ移流拡散していることが分かる。発生地域から考えて明らかであるが、この濃いブルームはダスト(黄砂)である。その頃、中国沿岸部では硫酸塩主体の人為起源エアロゾル(いわゆる大気汚染)も発生しており、それが黄砂のブルームと一体化して移流拡散している様子が分かる。3月8日にはそのブルームの先端が西日本上空に到着し、3月9日も引き続きこのブルームが関東以西の日本上空を覆っている。山陰地方のそらまめ君測定局では3月8日から急激なSPM濃度上昇を観測しており、数値モデル計算の結果と非常に良く一致している。ケース1で鳥取上空を覆ったブルームはゴビ砂漠南部を起源とするダスト(黄砂)を主成分とし、若干の人為起源汚染物質が混合した物だと言える。



図(3)-5 ケース2：西日本の地表面PM<sub>2.5</sub>濃度 [ $\mu\text{g m}^{-3}$ ] 分布の12時間おきの変化（時刻はそれぞれ2013年7月11日09時，7月11日21時，7月12日09時．等値線はエアロゾル数値モデルの計算結果、山陰地方に並ぶ丸印はそらまめ君の一般局において観測された値を示す）

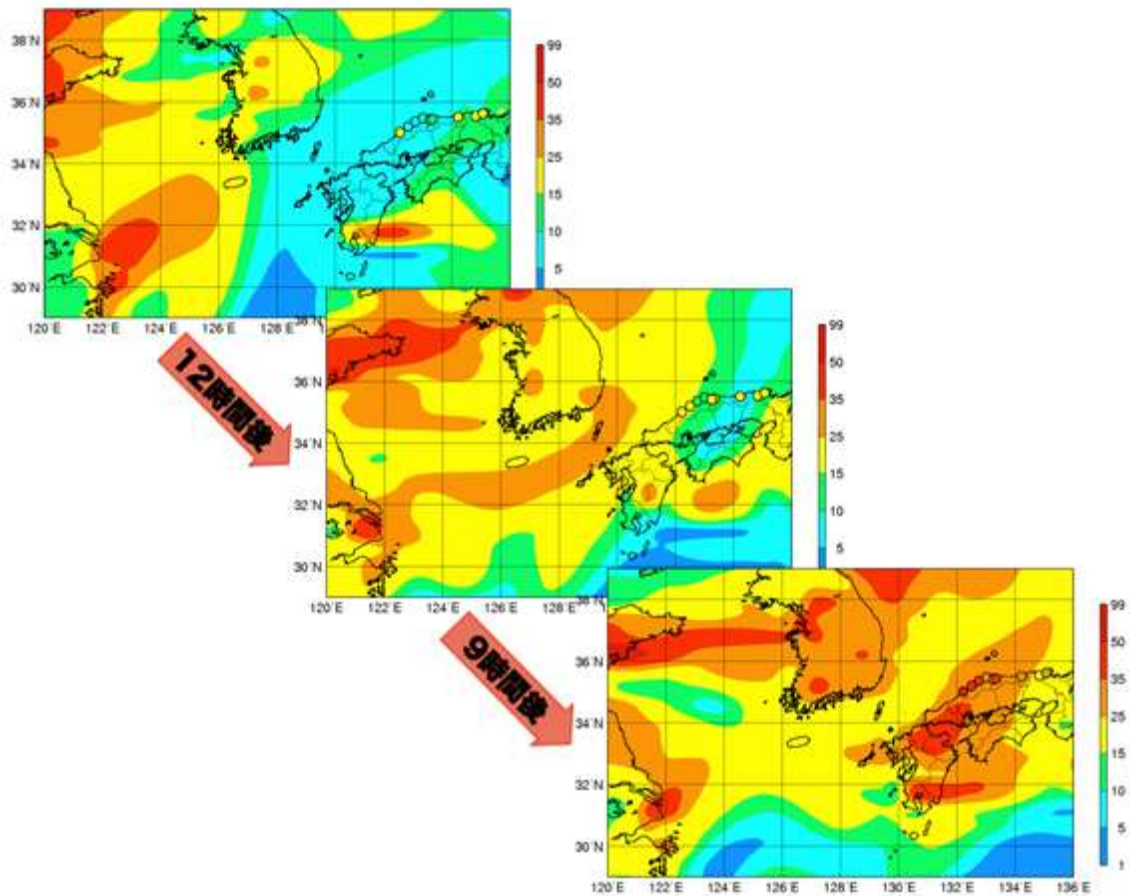
### ケース2

図(3)-5は7月11日から12日にかけての西日本の地表面におけるPM<sub>2.5</sub>濃度の時間変化を表しており（12時間おき）、この時期に鳥取県のPM<sub>2.5</sub>濃度は観測とモデル計算共に若干上昇している（図1）。この時の汚染空気塊は九州南部から山陰地方に流れてきている。この時期、九州南部の桜島では火山活動が活発化しており、さらに晴天の気象条件などが重なることによって光化学反応が促進され、噴煙に含まれる二酸化硫黄（気体）が硫酸（液体）に変化してエアロゾルとなり、PM<sub>2.5</sub>濃度を上昇させたと推定できる。

### ケース3

図(3)-6に7月24日から25日にかけての東シナ海および西日本上空の地表面PM<sub>2.5</sub>濃度を示す。この時期、鳥取県では観測でもモデル計算でも急激なPM<sub>2.5</sub>濃度上昇が起き、その状態が数日間続いたことが図1から見て取れる。これはケース2と異なり、人為起源汚染物質に起因する硫酸エアロゾルによる越境大気汚染である。図(3)-6左上図（7月24日12時）では、西日本上空は（桜島噴火の影響を受けている南九州を除いて）清浄な大気に覆われている。この時、中国大陸沿岸部では

PM2.5濃度が上昇しているが、これは人為起源の二酸化硫黄ガスが光化学反応によって硫酸塩エアロゾルに変化したことが原因である。この硫酸塩プルームは西風に乗って東シナ海を移動し7月25日00時（中央図）の時点では九州に到達していることが分かる。さらに当日の好天によって光化学反応が進行した結果プルームのPM2.5濃度が上昇し、7月25日09時の時点では鳥取県にまでそのプルームが到達していることが分かる。モデルで再現されたこの時系列変化は山陰地方各地のそらまめ君測定局の観測値の変化と非常に良く一致している（図(3)-6）。ケース3で鳥取上空を覆ったプルームは中国沿岸南部（上海などの人口密集地域）で排出された人為起源物質を起源とする硫酸塩エアロゾルだと推定できる。

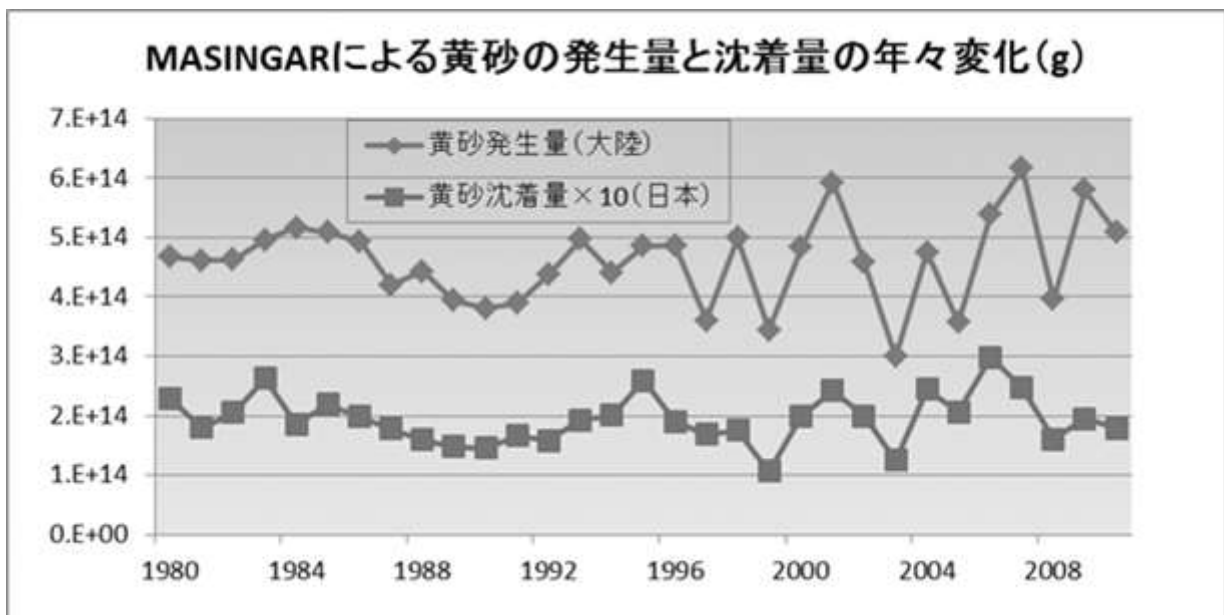


図(3)-6 ケース3：東シナ海から西日本にかけての地表面PM2.5濃度 [ $\mu\text{g m}^{-3}$ ] 分布変化（時刻はそれぞれ2013年7月24日12時，7月25日00時，7月25日09時．等値線はエアロゾル数値モデルの計算結果、山陰地方に並ぶ丸印はそらまめ君の一般局において観測された値を示す）

全球エアロゾル数値モデルMASINGAR mk-2によってダスト（黄砂）を含む様々なエアロゾルの分布を再現計算し、そらまめ君観測値と比較検証した。MASINGAR mk-2は黄砂発生域（ゴビ砂漠・タ克拉玛カン砂漠等）と東アジアの大気汚染発生地域を同時に計算することができる。そのため日本国内で観測されたPM2.5の発生源推定が可能である。2013年に山陰地方で見られたPM2.5濃度上昇の事例では、黄砂（若干の大気汚染物質を含む）による汚染、自然起源の硫酸塩による国内汚染、人為起源の硫酸塩による越境汚染など様々な要因が絡むことが分かった。

### (3) 黄砂予報モデルと逆解析を用いた黄砂放出量、沈着量の推定

長期間の黄砂予報モデルシミュレーションにおける黄砂の放出量、沈着量の計算結果を図(3)-7に示す。黄砂の放出量自体に大きなトレンドは見られないが、年毎の黄砂放出量は1990年代後半から年毎の変動が大きくなっている。大陸における黄砂の発生量と日本付近への黄砂の沈着量には正の相関（相関係数=0.68）があり、黄砂発生量が多くなると日本付近への沈着も多くなることが分かる。日本付近への黄砂沈着量の大陸における黄砂発生量の割合は概ね5%程度であった。なお、沈着の大部分は湿性沈着によるものである（図略）。

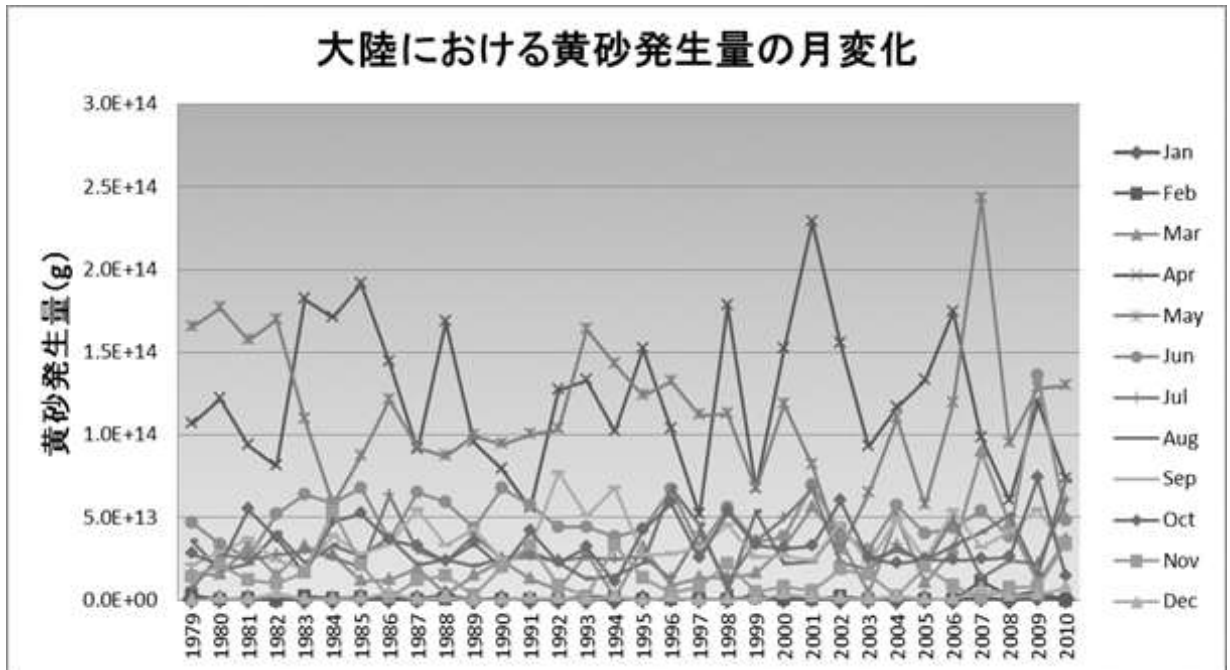


図(3)-7 MASINGARによってシミュレートされた1980～2010年の大陸（東経80°～東経120°，北緯30°～40°）における黄砂発生量と日本付近（東経130°～150°，北緯30°～50°）への黄砂沈着量

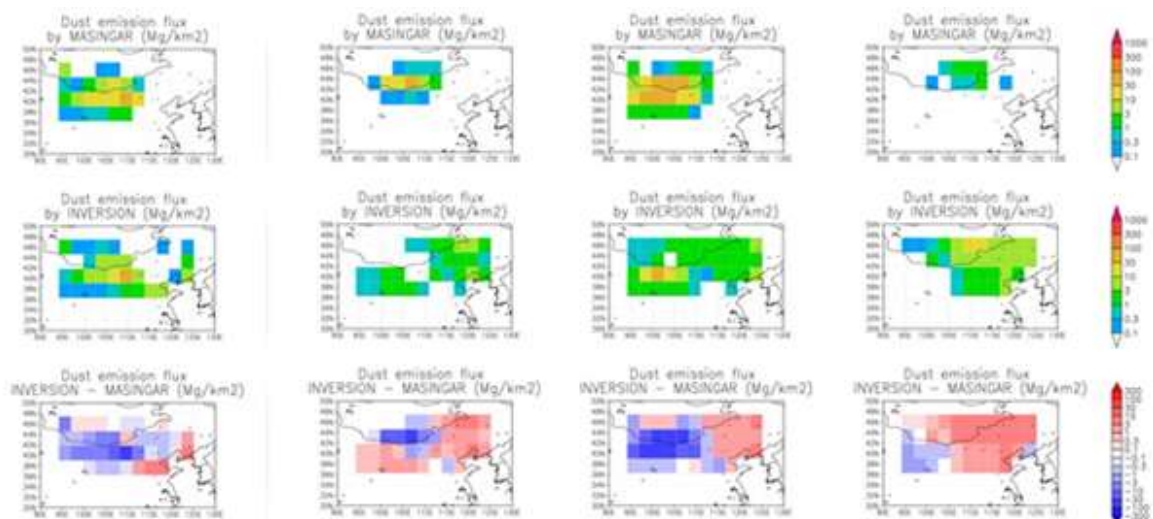
月毎の黄砂放出量を図(3)-8に示す。大陸における黄砂発生量は年による違いはあるものの3月～6月に多くなることが分かる。

図(3)-9は、2008年から2009年にかけての4事例の黄砂放出量解析結果である。上段が解析に用いたMASINGARによる結果、中段が逆解析によって推定された放出量で下段が両者の差で赤が逆解析で黄砂放出量を増やしたことを示し、青が黄砂放出量を減らしたことを示している。逆解析は、各事例において、MASINGARの中国東北部における黄砂放出量を大きくしている。このことは、中国東北部に於ける植生の取り扱い等に問題がある可能性を示唆している。また、各事例における黄砂の総放出量は2008年5月が8.2Tg（先験情報では14.6Tg、以下同様）、2009年3月が3.1Tg（8.0Tg）、2009年10月が9.6Tg（38.9Tg）、2009年12月が8.1Tg（0.8Tg）となり、2009年12月の事例を除いて逆解析は総放出量を大きく減少させている。このことは、MASINGARの黄砂放出過程に若干の改良の余地が残されていることを示している。





図(3)-8 MASINGARによってシミュレートされた1979～2010年の大陸（東経80°～東経120°，北緯30～50°）における月毎の黄砂発生量



図(3)-9 各事例における黄砂放出量（左から2008年5月，2009年3月，10月，12月の事例，上段はMASINGARによる黄砂放出量，中段は逆解析による黄砂放出量，下段は逆解析とMASINGARの差，単位はTg）

## 5. 本研究により得られた成果

### (1) 科学的意義

#### 1) 汚染混合型黄砂予測システムによる準リアルタイムの大気汚染実況監視

汚染混合型黄砂予測システムと準リアルタイムの大気汚染物質広域監視システムの可視化により、個別の大気汚染現象の組成と発生源の推定を行うことが可能となった。特に、2013年夏季の事例では、日本国内のPM2.5粒子濃度の上昇に桜島等の火山噴火に起因する二酸化硫黄が広域にわたって影響することを示唆した。このシステムの検証によって国内の高濃度PM2.5の組成と発生源を詳細に推定することを目指しており、検証結果は行政へのインプットとしての利用が期待できる。また、黄砂発生量を数値モデルで逆推計するには事前情報としてある程度の精度で発生源情報が必要である。本研究の検証結果はそのような逆推計の基礎データとしても利用が可能である。

#### 2) 黄砂予報モデルと逆解析を用いた黄砂飛来量、沈着量の推定

気象研究所の黄砂予報モデル(MASINGAR)の放出源データや湿性沈着パラメータ等の改良を進めることにより、PM2.5汚染混合型黄砂の定性的なシミュレーションに活用可能であることが確認できた。また、今後は更なる放出源データやエアロゾル化学過程の改良が必要であることが分かった。さらに、MASINGARを用いた30年以上における長期シミュレーションの結果、大陸における黄砂発生量の変動や日本付近への沈着量に関する知見を得ることもできた。また、逆解析によりMASINGARの改善すべき領域に関する知見を得ることができたことに加え、PM2.5汚染混合型黄砂のデータ同化計算を行える環境を整えることができた。

### (2) 環境政策への貢献

#### 1) 汚染混合型黄砂予測システムによる準リアルタイムの大気汚染実況監視

気象研究所のエアロゾルエアロゾルモデルを基にした汚染混合型黄砂予測システムとその検証を通じて、モデルの精度向上を図った。気象庁による黄砂情報は2014年11月にこのモデルを基にした新しい黄砂予報モデルに更新された(気象庁, 2014<sup>17)</sup>)。今後さらに、黄砂予報モデルの高解像度化など、本研究成果を踏まえた黄砂予測情報の高度化を予定している。

#### 2) 黄砂予報モデルと逆解析を用いた黄砂飛来量、沈着量の推定

近年マスコミなどでよく報じられている日本におけるPM2.5汚染混合型黄砂の飛来について、インベントリーや化学過程で改善点はあるものの黄砂予報モデルによるシミュレーションが可能であることを示すことができた。PM2.5汚染混合型黄砂の飛来過程を理解するために重要な放出源分布についても逆解析とデータ同化という複数の独立したアプローチから解析を行うことにより、放出源の評価や監視・予測情報の改良といった面で環境施策に貢献することができる。

## 6. 国際共同研究等の状況

### 1) 日中韓黄砂共同研究

カウンターパート：S. =B. Kim (韓国気象庁)、B. Pan (中国環境監視センター)、西川雅高 (国立環境研究所)

連携状況：観測データ共有ならびにこのデータを用いたデータ同化解析

国際的な位置づけ：日中韓環境大臣会合の合意を経て設置

## 2) 世界気象機関 (WMO) 砂塵嵐警戒評価システム (SDS-WAS)

カウンターパート: A. Baklanov (WMO事務局)、X.-Y. Zhang (中国気象局)、S-B. Ryoo (韓国気象庁(KMA))、杉本伸夫 (国立環境研究所)

連携状況: 観測データ並びに予測データの共有システムの構築中

国際的な位置づけ: WMOの計画として承認

## 3) エアロゾル予測のための国際協調 (International Cooperative for Aerosol Prediction, ICAP)

カウンターパート: Jeff Reid (米国海軍研究所), Angela Benedetti, Miha Razinger (ヨーロッパ中期気象予報センター), Peter Colarco (NASA GSFC), Sarah Lu (米国環境予測センター研究官・米国) ほか,

連携状況: 現業向けエアロゾル予報モデルの開発協力・エアロゾルの観測可能性・予測の検証・アンサンブル予測・モデル間相互比較に関する情報交換。

国際的な位置づけ: 研究者ベースでの共同研究

## 7. 研究成果の発表状況

### (1) 誌上発表

<論文 (査読あり) >

- 1) T. T. Sekiyama, T. Y. Tanaka and T. Miyoshi: *Geoscientific Model Development Discussions*, **5**, 1877-1947 (2012)  
 “A simulation study of the ensemble-based data assimilation of satellite-borne lidar aerosol observations”
- 2) J. -Y. Kang, T. Y. Tanaka, M. Mikami and S. -C. Yoon: *Asia-Pac. J. Atmos. Sci.*, **49**(1), 57-65 (2013)  
 “A numerical study of the effect of frozen soil on dust emission during an East Asian dust event in December 2009”
- 3) K. Osada, S. Ura, M. Kagawa, M. Mikami, T. Y. Tanaka, S. Matoba, K. Aoki, M. Shinoda, Y. Kurosaki, M. Hayashi, A. Shimizu and M. Uematsu: *Atmos. Chem. Phys.*, **14**(2), 1107-1121 (2014)  
 “Wet and dry deposition of mineral dust particles in Japan”
- 4) J. -Y. Kang, T. Y. Tanaka and M. Mikami: *Atmos. Environ.*, **86**, 35-46 (2014)  
 “Effect of dead leaves on early spring dust emission in East Asia”
- 5) W. R. Sessions, J. S. Reid, A. Benedetti, P. R. Colarco, A. da Silva, S. Lu, T. Sekiyama, T. Y. Tanaka, J. M. Baldasano, S. Basart, M. E. Brooks, T. F. Eck, M. Iredell, J. A. Hansen, O. C. Jorba, H. -M. H. Juang, P. Lynch, J. -J. Morcrette, S. Moorthi, J. Mulcahy, Y. Pradhan, M. Razinger, C. B. Sampson, J. Wang and D. L. Westphal: *Atmospheric Chemistry and Physics*, **15**, 335-362 (2015)  
 “Development towards a global operational aerosol consensus: basic climatological characteristics of the International Cooperative for Aerosol Prediction Multi-Model

Ensemble (ICAP-MME)”

〈その他誌上発表（査読なし）〉

- 1) 岩崎俊樹, 宮崎和幸, 関山剛, 五藤大輔, 中島映至, 弓本桂也, 鶴野伊津志, 塩谷雅人: 天気, **60**, 203-207 (2013)  
「2012年度秋季大会スペシャル・セッション「大気微量気体およびエアロゾルの同化とその気候研究への利用」報告」
- 2) 田中泰宙, 関山剛, 眞木貴史, 弓本桂也, 小木昭典, 平形麻紀, 村上浩: 天気, **61**, 785-キング (2014)  
「エーロゾル予測のための国際協力 (ICAP) 第5回ワーキンググループ会合「エーロゾル観測可能性についての最近の進展」開催報告」
- 3) A. Benedetti, J.M. Baldasano, S. Basart, F. Benincasa, O. Boucher, M.E. Brooks, J.-P. Chen, P.R. Colarco, S. Gong, N. Huneus, L. Jones, S. Lu, L. Menut, J.-J. Morcrette, J. Mulcahy, S. Nickovic, C.P. Garcia-Pando, J.S. Reid, T.T. Sekiyama, T.Y. Tanaka, E. Terradellas, D.L. Westphal, X.-Y. Zhang and C.-H. Zhou: *Mineral Dust: A Key Player in the Earth System*, 1st edition, Peter Knippertz and Jan-Berend W. Stuut edited, Springer, Netherlands, p.223-265 (2014)  
“Operational Dust Prediction”
- 4) P. Colarco A. Benedetti, J. Reid and T. Tanaka: *The Earth Observer*, **26**(5), 14-19 (2014)  
“Using EOS Data to Improve Aerosol Forecasting: The International Cooperative for Aerosol Prediction (ICAP)”

(2) 口頭発表 (学会等)

- 1) T.Y. Tanaka, T.T. Sekiyama, T. Maki, M. Kajino and K. Yamada: 4th International Cooperative for Aerosol Prediction (ICAP) Workshop, ESRIN, Frascati, Italy, 2012  
“Current status and updates of the aerosol forecast in Japan Meteorological Agency”
- 2) 関山剛: 日本気象学会2012年度秋季大会, 札幌 (2012)  
アンサンブル・カルマン・フィルタによるCALIPSOエアロゾル観測のデータ同化
- 3) 眞木貴史, 田中泰宙, 関山剛, 三上正男: 日本気象学会2012年度秋季大会, 札幌 (2012)  
「逆解析を用いた2008、2009年における黄砂放出量解析」
- 4) T. Maki, Y. T. Tanaka, T. T. Sekiyama, K. Yamada, N. Ohkawara and M. Mikami: The 5th meeting of Working Group I for Joint Research on DSS, Fukuoka, Japan, 2012  
“DSS forecast model in JMA”
- 5) T. Maki, Y. T. Tanaka, T. T. Sekiyama, K. Yamada, N. Ohkawara and M. Mikami: The 5th meeting of Working Group I for Joint Research on DSS, Fukuoka, Japan, 2012  
“The Dust Modeling Research Activities in Meteorological Research Institute”
- 6) T. Maki, M. Kajino, N. Oshima, M. Deushi, T. Y. Tanaka, T. T. Sekiyama, K. Shibata, M. Ikegami, A. Ogi, K. Mine, H. Fujiwara, T. Sakurai, N. Ohkawara, K. Yamada and M. Mikami: 4th International Workshop on Air Quality Forecasting Research, Geneva,

- Switzerland, 2012  
 “The Outline of Air Quality Operational and Research Activities in the Japan Meteorological Agency”
- 7) T. T. Sekiyama, T. Y. Tanaka, and T. Miyoshi: 93th AMS Annual Meeting, Austin, TX, U.S.A., 2013  
 “A simulation study of the ensemble-based data assimilation of satellite-borne lidar aerosol observations”
- 8) T. T. Sekiyama: AICS International Workshop on Data Assimilation, 神戸 (2013)  
 “Data Assimilation of Lidar Aerosol Observations”
- 9) 田中泰宙, 関山剛, 眞木貴史, 三上正男: 日本気象学会2013年春季大会, 東京 (2013)  
 「汚染混合黄砂の数値モデル研究: 2013年1月の大気汚染事例」.
- 10) T. Maki, T. Y. Tanaka, T. T. Sekiyama and M. Mikami: The 6th Meeting of Working Group (I) for Joint Research on Dust and Sandstorms among Mongolia, China, Korea, and Japan, 韓国仁川 (2013)  
 “Modeling Study on the DSS 2011 Cases”
- 11) 関山剛ほか: 鳥取大学乾燥地研究センター平成25年度共同研究発表会, 鳥取 (2013)  
 「気象庁エーロゾル数値モデルによる全球ダスト分布の再現～数値モデルを使って鳥取県のPM2.5濃度を再現する～」
- 12) 眞木貴史, 関山剛, 弓本桂也, 大島長, 出牛真, 直江寛明, 梶野瑞王, 田中泰宙, 小木昭典:, 統合的陸域研究連絡会, 福岡 (2014)  
 「全球エーロゾルモデル (MASINGAR) を用いた気候研究等への活用について」
- 13) T.Y. Tanaka: International Cooperative for Aerosol Prediction (ICAP) 6<sup>th</sup> working group meeting: Validation, Boulder, CO. U.S.A., 2014  
 “Updates of the aerosol prediction in Japan Meteorological Agency”
- 14) T. Maki, T. Y. Tanaka, T. T. Sekiyama, K. Yumimoto and M. Mikami: The 7th Meeting of Working Group (I) for Joint Research on Dust and Sandstorms among Mongolia, China, Korea, and Japan, 中国西安 (2014)  
 “Modeling Study in JMA/MRI”
- 15) M. Mikami, K. Yumimoto, T. Y. Tanaka, T. T. Sekiyama T. Maki and N. Ohkawara: Meeting of the WMO SDS-WAS Regional Steering Group for Asia, 中国北京 (2015)  
 “Operational Services and Research Activities in JMA and MRI/JMA”
- 16) Sekiyama, T. T. et al: 93rd AMS annual meeting, Austin, USA, 2013  
 “A simulation study of the ensemble-based data assimilation of satellite-borne lidar aerosol observations” (ポスター発表)
- 17) T. Maki, T. Y. Tanaka, K. Yumimoto, T. T. Sekiyama and M. Mikami: AGU Fall Meeting 2014, San Francisco, USA, 15-19 December, 2014  
 “Dust emission analysis of multi-year dust events by inverse model” (ポスター発表)

**(3) 出願特許**

特に記載すべきものはない

**(4) 「国民との科学・技術対話」の実施**

特に記載すべきものはない

**(5) マスコミ等への公表・報道等**

- 1) 共同通信社他、「桜島、PM<sub>2.5</sub>の一因関東、東海での濃度上昇」（2013年11月13日新聞報道、田中泰宙：取材協力）
- 2) 日本テレビ「news every サタデー」（2013年11月30日放送、「桜島噴煙がPM<sub>2.5</sub>濃度に影響？関連は…」田中泰宙：取材協力）

**(6) その他****セミナーの開催（主催のもの）**

エーロゾル予測のための国際協力（ICAP）第5回ワーキンググループ会合「エーロゾル観測可能性についての最近の進展」2013年10月

**8. 引用文献**

- 1) T. Y. Tanaka, K. Orito, T. T. Sekiyama, K. Shibata, M. Chiba and H. Tanaka, : MASINGAR, a global tropospheric aerosol chemical transport model coupled with MRI/JMA98 GCM, *Pap. Met. Geophys.*, 53, 119-138, 2003.
- 2) S. Yukimoto, H. Yoshimura, M. Hosaka, T. Sakami, H. Tsujino, M. Hirabara, T. Y. Tanaka, M. Deushi, A. Obata, H. Nakano, Y. Adachi, E. Shindo, S. Yabu, T. Ose, and A. Kitoh, 2011: Meteorological Research Institute-Earth System Model Version 1 (MRI-ESM1) - Model Description -, Technical Reports of the Meteorological Research Institute, No. 64, ISSN 0386-4049, Meteorological Research Institute, Japan
- 3) S. Yukimoto, Y. Adachi, M. Hosaka, T. Sakami, H. Yoshimura, M. Hirabara, T. Y. Tanaka, E. Shindo, H. Tsujino, M. Deushi, R. Mizuta, S. Yabu, A. Obata, H. Nakano, T. Koshiro, T. Ose, and A. Kitoh, 2012: A New Global Climate Model of the Meteorological Research Institute: MRI-CGCM3 —Model Description and Basic Performance—. *J. Meteorol. Soc. Japan*, 90A, 23-64, doi:10.2151/jmsj.2012-A02.
- 4) H. Yoshimura, and S. Yukimoto, 2008: Development of a Simple Coupler (Scup) for Earth System Modeling, *Papers in Meteorology and Geophysics*, 59, 19-29.
- 5) T. Y. Tanaka and M. Chiba, 2005: Global simulation of dust aerosol with a chemical transport model, MASINGAR. *J. Meteor. Soc. Japan*, 83A, 255-278.
- 6) Jung-Yoon Kang, Taichu Y. Tanaka, Masao Mikami, Soon-Chang Yoon, 2013: A numerical study of the effect of frozen soil on dust emission during an East Asian dust event in December 2009, *Asia-Pacific Journal of the Atmospheric Sciences*, 49(1), 57-65, 10.1007/s13143-013-0007-0

- 7) S. L. Gong, A parameterization of sea-salt aerosol source function for sub- and super-micron particles, *Global Biogeochem. Cycles*, 17 (4), 1097, doi:10.1029/2003GB002079, 2003.
- 8) A. J. Kettle, M. O. Andreae, D. Amouroux, T. W. Andreae, T. S. Bates, H. Berresheim, H. Bingemer, R. Boniforti, M. A. J. Curran, G. R. DiTullio, G. Helas, G. B. Jones, M. D. Keller, R. P. Kiene, C. Leck, M. Levasseur, G. Malin, M. Maspero, P. Matrai, A. R. McTaggart, N. Mihalopoulos, B. C. Nguyen, A. Novo, J. P. Putaud, S. Rapsomanikis, G. Roberts, G. Schebeske, S. Sharma, R. Sim, R. Staubes, S. Turner and G. Uher, 1999: A global database of sea surface dimethylsulfide (DMS) measurements and a procedure to predict sea surface DMS as a function of latitude, longitude and month. *Global Biogeochem. Cycles* **13**, 399-444.
- 9) P. S. Liss and L. Merlivat, 1986: Air-sea exchange rates : Introduction and synthesis. P. Buat-Ménard (Ed.), *The Role of Air-Sea Exchange in Geochemical Cycling*, Vol. C 185 of *NATO ASI Series*, D. Reidel Publishing Company, 113-127.
- 10) J. -F. Lamarque, T. C. Bond, V. Eyring, C. Granier, A. Heil, Z. Klimont, D. Lee, C. Liousse, A. Mieville, B. Owen, M. G. Schultz, D. Shindell, S. J. Smith, E. Stehfest, J. Van Aardenne, O. R. Cooper, M. Kainuma, N. Mahowald, J. R. McConnell, V. Naik, K. Riahi, and D. P. van Vuuren: Historical (1850-2000) gridded anthropogenic and biomass burning emissions of reactive gases and aerosols: methodology and application, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 7017-7039, doi:10.5194/acp-10-7017-2010, 2010.
- 11) Kaiser, J. W., Heil, A., Andreae, M. O., Benedetti, A., Chubarova, N., Jones, L., Morcrette, J.-J., Razinger, M., Schultz, M. G., Suttie, M., and van der Werf, G. R. : Biomass burning emissions estimated with a global fire assimilation system based on observed fire radiative power, *Biogeosciences*, 9, 527-554, doi:10.5194/bg-9-527-2012, 2012.
- 12) K. Osada, S. Ura, M. Kagawa, M. Mikami, T. Y Tanaka, S., Matoba, K. Aoki, M. Shinoda, Y. Kurosaki, M. Hayashi, A. Shimizu, and M. Uematsu: Wet and dry deposition of mineral dust particles in Japan: factors related to temporal variation and spatial distribution, *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 1107-1121, doi:10.5194/acp-14-1107-2014, 2014.
- 13) H. Yoshimura, R. Mizuta, and H. Murakami, 2015: A Spectral Cumulus Parameterization Scheme Interpolating between Two Convective Updrafts with Semi-Lagrangian Calculation of Transport by Compensatory Subsidence. *Mon. Wea. Rev.*, **143**, 597-621.
- 14) W. R. Sessions, J. S. Reid, A. Benedetti, P. R. Colarco, A. da Silva, S. Lu, T. Sekiyama, T. Y. Tanaka, J. M. Baldasano, S. Basart, M. E. Brooks, T. F. Eck, M. Iredell, J. A. Hansen, O. C. Jorba, H.-M. H. Juang, P. Lynch, J.-J. Morcrette, S. Moorthi, J. Mulcahy, Y. Pradhan, M. Razinger, C. B. Sampson, J. Wang, and D. L. Westphal: Development towards a global operational aerosol consensus: basic climatological characteristics of the International Cooperative for Aerosol Prediction Multi-Model Ensemble (ICAP-MME), *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 335-362, doi:10.5194/acp-15-335-2015,

2015.

- 15) K. R. Gurney, R. M. Law, A. S. Denning, P. J. Rayner, D. Baker, P. Bousquet, L. Bruhwiler, Y.-H. Chen, P. Ciais, S. Fan, I. Y. Fung, M. Gloor, M. Heimann, K. Higuchi, J. John, T. Maki, S. Maksyutov, K. Masarie, P. Peylin, M. Prather, B. C. Pak, J. Randerson, J. Sarmiento, S. Taguchi, T. Takahashi and C.-W. Yuen, Towards robust regional estimates of CO<sub>2</sub> sources and sinks using atmospheric transport models. *Nature*, 415(6872), 626-630, 2002.
- 16) T. Maki, T. T. Sekiyama, T. Y. Tanaka and M. Mikami, The Impact of Ground-based Observations on the Inverse Technique of Aeolian Dust Aerosol, *SOLA*, 7A, 021-024, 2011
- 17) 気象庁 地球環境・海洋部, 配信資料に関する技術情報(気象編)第404号 ~黄砂予測モデルの改良について~, 2014年10月29日,  
<http://www.data.jma.go.jp/add/suishin/jyouhou/pdf/404.pdf>



#### (4) 黄砂沈着のネットワーク観測と組成変化に関する研究－海洋に沈着する黄砂－

国立大学法人東京大学大気海洋研究所

植松 光夫

平成24～26年度累計予算額：9,849千円（うち、平成26年度予算額：3,510千円）

予算額は、間接経費を含む。

##### [要旨]

大気および降水中の不溶性粒子の粒径分布を測定する手法を確立し、観測実験を行った。その結果、沈着した粒子の粒径分布は大気中のものとは異なること、降水中に大粒子が多く雨滴との衝突による雲下除去が重要であることなどが明らかになった。洋上を輸送される黄砂粒子が海洋大気中で海塩タイプ粒子と内部混合し、粒径が増加し、乾性沈着が促進され、また、より吸湿性の高い粒子となるので、湿性沈着が促進される。このことを個々の粒子組成を測定することにより、定量的にその変質量を明らかにした。黄砂予想モデルによって再現された黄砂と汚染起源物質である硫酸塩エアロゾルの濃度分布と研究船による観測データ、その時間の粒径別粒子数濃度の時間変化を示しているが、粗大粒子である黄砂の通過と引き続いて通過する微小粒子である硫酸塩エアロゾルの相対的な変化が明確に再現された。

##### [キーワード]

黄砂粒子、海洋大気、乾性・湿性沈着、粒径分布、吸湿特性

##### 1. はじめに

黄砂は、中国内陸部のタクラマカン砂漠、ゴビ砂漠など砂漠乾燥地帯で発生する砂塵嵐がもとで起きる現象である。数ミクロンという細かい黄砂粒子が、春先の低気圧によって高く舞い上げられ、西風によって数千メートル上空を東へ運ばれる。年ごとの黄砂の規模や発生日数は、発生源の降水量や、積雪の被覆期間などによって左右される。アジア大陸内陸部で大気中へ舞い上がってから、中国、朝鮮半島、日本列島を越え、北太平洋の中央部に浮かぶミッドウェイ島やハワイ諸島まで輸送されていることが現地での長期の大気観測や、最近の衛星による解析によって明らかになっている。アジア大陸から北太平洋全域に、数日から十数日かけて運ばれた後、太平洋の深海底に堆積している。

これらの堆積量は、北太平洋の西部では1年間に $1-2 \text{ g m}^{-2}$ 程度、北太平洋の中央部では $0.5 \text{ g m}^{-2}$ 前後と推定されている。北太平洋の深海底では、泥が千年に数ミリメートルという速度で堆積しており、これは黄砂の堆積量にほぼ匹敵する。つまりこの海域の泥は、わずかな生物の死骸などを除けば、大部分がアジア大陸から風で運ばれ、海深く沈んだ黄砂粒子といえる。

黄砂がアジア大陸を運び出され、海洋大気中でどのような過程を経て、大気から除去され海水面に沈着するのか。このことを明らかにするには非常に限られた機会しかない海洋上での研究船を用いた大気観測を中心に取り組む必要がある。

## 2. 研究開発目的

黄砂粒子が海洋大気中を輸送されている時に雲核として取込まれて変質したり、海塩粒子に付着して大粒子化し、除去が加速されたりする事が定性的に報告されている。浮遊している黄砂粒子と沈着する黄砂粒子に物理化学的な違いがあるのか、大気中全濃度から沈着量を推定するのが妥当であるのかを明らかにし、洋上での黄砂と付随する化学成分の沈着量のより正確な見積りをするために黄砂の除去過程や輸送過程を明らかにし、洋上での黄砂の分布と黄砂予想モデルによる再現を目的とした。

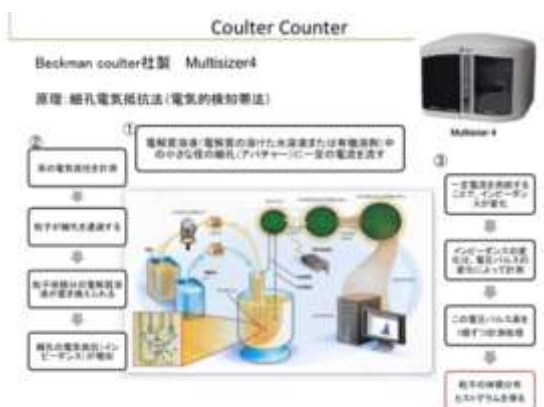
## 3. 研究開発方法

### (1) 大気中エアロゾルと降水中の不溶性粒子の粒径分布測定的基础研究

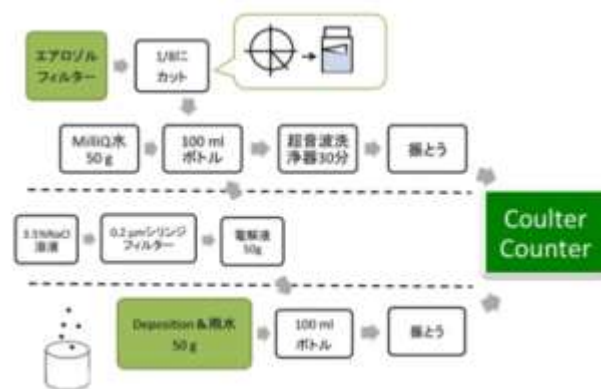
基礎実験のために東京大学柏キャンパス大気海洋研究所屋上（地上高31 m）においてフィルターによるエアロゾルと降水試料を採取した。同時に大気中の粒径分布をパーティクルカウンターにより、計測した。図(4)-1に屋上に設置した採取装置を示す。全沈着採取器と降水採取器、エアロゾルサンプラーで得られた試料中の不溶性粒子について、コールターカウンター（液中パーティクルカウンター）を用い、粒径の差異を測定した。用いたコールターカウンターの測定原理を図(4)-2に示す。粒子がアパーチャーと呼ばれる細孔を通る時に個々の粒子の体積を計測し、粒径分布を求めるものである。コールターカウンターでの計測方法を検討し、図(4)-3に示す手順で測定した。本研究では孔径100ミクロンのアパーチャーを用いて、3.5ミクロンから60ミクロンまでの粒子を256チャンネルに分割して測定した。



図(4)-1 東京大学大気海洋研屋上に設置した採取装置類



図(4)-2 コールターカウンターの測定原理



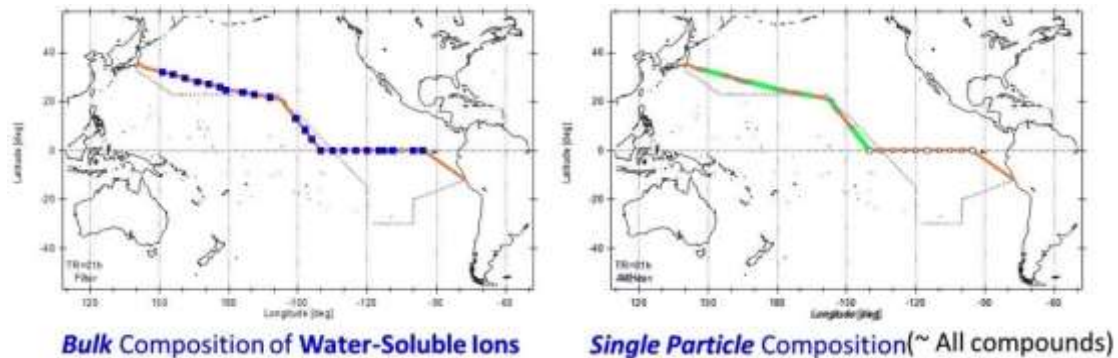
図(4)-3 確立された計測法手順

## (2) 北太平洋上の黄砂現象の船上観測による測定

2012年1月29日から3月7日の学術研究船白鳳丸KH-12-1次航海 (EqPOS) において、太平洋東部赤道海域および西部北太平洋での大気エアロゾル観測を行った。観測期間中、アジア大陸由来と思われる黄砂粒子が飛来し、フィルターサンプリングにより、その黄砂イベントの試料を得た。そこで、観測で得られたデータに加えて、後方流跡線、地上天気図、SPRINTARS地表面黄砂濃度画像を用いることで、黄砂の輸送に関わる気象要素、黄砂を含むエアマスの粒径分布の特徴、海洋大気中での物質間の相互作用とその物理化学的変化を明らかにしようと解析を試みた。

エアロゾルサンプルは、High Volume Dichotomous Virtual Impactor (紀本電子工業, AS9) により、粗大粒子 ( $D > 2.5 \mu\text{m}$ ) と微小粒子 ( $D < 2.5 \mu\text{m}$ ) に分けてテフロンフィルターに捕集した。得られたサンプルから試料溶液を調製し、イオンクロマトグラフ (DIONEX, DX320) により主要無機イオン成分及びメタンスルホン酸 (MSA) の分析を行った。また粒子の捕集と同時に、走査型易動度粒径測定器 (TSI, SMPS3034) と光散乱式粒子計数器 (RION, KC01D) によるエアロゾル粒径-個数濃度分布の測定、凝結粒子計数器 (TSI, WCPC Model 3786) を用いた粒子数濃度の計測、雲凝結核計数器 (DMT, CCN Counter) による雲凝結核粒子の計測、そして単一微粒子質量分析器 (TSI, ATOFMS) による個別粒子の粒径-質量分析を行った。

最終年度にはサブテーマ (3) 汚染混合型の黄砂沈着フラックス量を推計する黄砂予報モデルの応用研究によって開発された黄砂予想モデルを使って、西部北太平洋上で観測された黄砂濃度と汚染エアロゾルである硫酸塩濃度の輸送と分布を再現することを試みた。



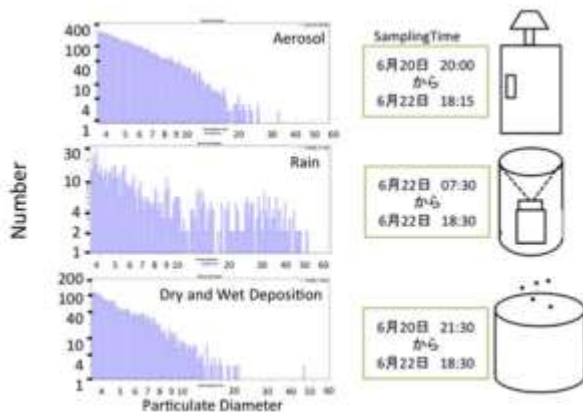
図(4)-4 KH-12-1航海の航路とサンプリング地点

## 4. 結果及び考察

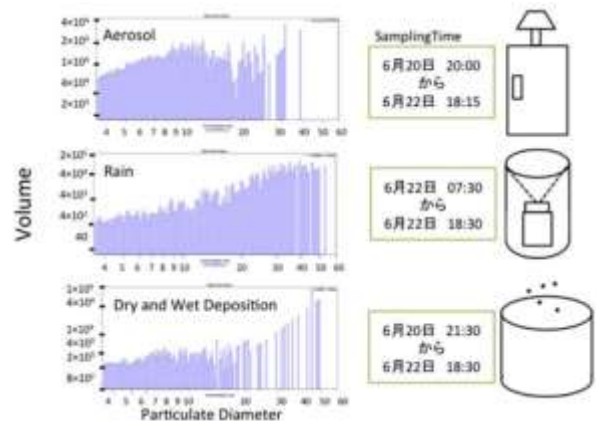
### (1) 大気中エアロゾルと降水中の不溶性粒子の粒径分布測定の基本的研究

エアロゾル試料と全降下物試料の採取期間に、生じた降水現象において、降水試料の採取に成功した。これらの試料中の不溶性粒子の数濃度による粒径分布を図(4)-5に示す。Y軸の粒子数は、相対的な単位で絶対的な濃度比較はできない。個数による粒径分布パターンは、エアロゾルと全降下物質は3.5ミクロンから20ミクロンまで、粒径が大きくなるに伴い、ほぼ直線的に数濃度が減少していく傾向を示した。一方、降水試料中の不溶性粒子の粒径分布は、測定した総数量も少なく、値はばらついているが、明らかに10ミクロン以上、50ミクロン程度までの粒子が同程度の数濃度で存在していることを示した。

これらの同じ試料について、体積濃度で粒径分布を図(4)-6に示す。もし、これらの不溶性粒子が同じ比重を有していれば、体積濃度は、そのまま重量濃度の分布として見る事ができる。エアロゾル不溶性粒子については、10ミクロンを中心に30ミクロン前後までは、ほぼ一定の体積濃度であった。これらのことから、乾性沈着、湿性沈着する不溶性粒子は、現場のエアロゾル粒子がそのまま同じ粒径分の状態で沈着する訳ではなく、粒径による沈着速度の違いが反映されていることが確かめられた。また、降水現象によって除去される場合、2つの過程が考えられる。一つは、雲核にすでに取込まれており、降水量が時間と共に増えると、沈着粒子量も増える雲内除去である。もう一つは雲下に存在する粒子が、落下する雨滴に衝突などによって取込まれ、空気柱から除去される雲下除去が考えられる。降水中に大粒径の不溶性粒子が多く、体積濃度でも大きな割合を占めるのは、降水時の雲下除去が重要な過程になっているためと考えられる。これらの不溶性粒子の粒径による化学組成の違いを今後明らかにする必要がある。



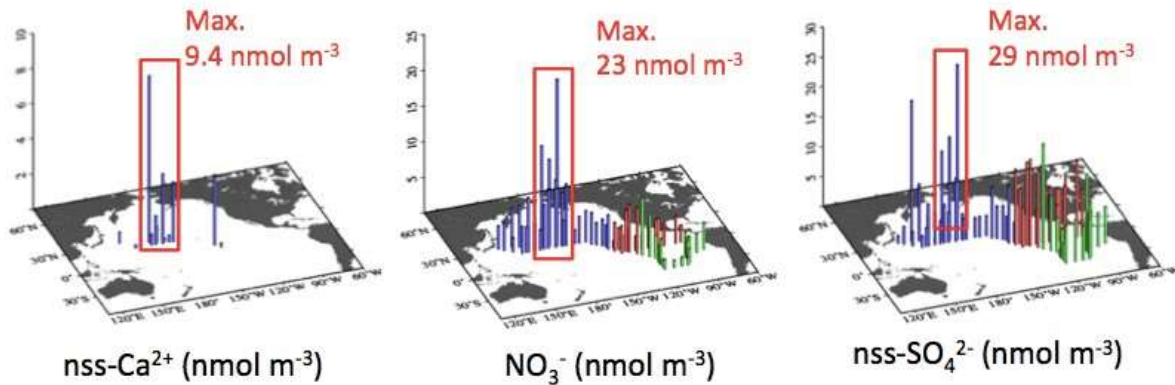
図(4)-5 各試料中の不溶性粒子数濃度による粒径分布



図(4)-6 各試料中の不溶性粒子体積濃度による粒径分布

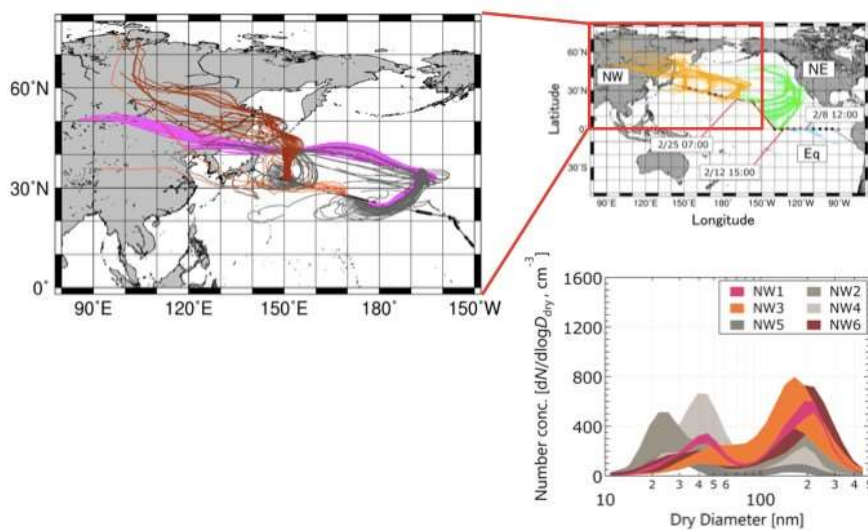
## (2) 北太平洋上の黄砂現象の船上観測による測定

フィルターサンプルの分析結果より、海塩に由来しない黄砂成分であるnss-Ca<sup>2+</sup>の濃度を求めた。その結果、2月29日、北緯28度、西経170度付近で得られたサンプルは、他の地点に比べて非常に高い値（10 nmol m<sup>-3</sup>）を示した（図(4)-7）。また、大気汚染起源物質でもある硝酸塩、非海塩性硫酸塩もこの前後の期間に高濃度であった。SPRINTARSによる同日、同海域の地表面黄砂濃度は2-5 μg m<sup>-3</sup>であり、周囲の海域よりもやや高めに分布しており、黄砂イベントがあったことを同モデルによっても定性的に確認できた。（<http://sprintars.riam.kyushu-u.ac.jp>）



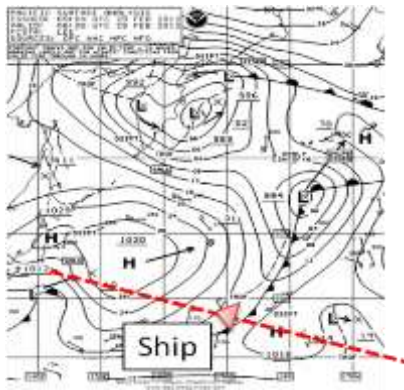
図(4)-7 海洋エアロゾル中の黄砂(非海塩性カルシウム)と汚染起源(硝酸塩と非海塩性硫酸塩)成分濃度の時間変化

図(4)-8に示すように後方流跡線解析により過去7日間のエアマスの経路を見ると、29日3:00 (UTC) を境に、エアマスが大陸由来に変化していることが図中のNW3 (茶色) で確認された。また同時刻、粒径 60 nm以上において粒子数濃度の増加が確認された。特に粒径5.0 μm以上の粗大粒子の数濃度も上昇しており、明確なエアマスの変化が確認された。粒子数濃度の高い状態は29日3:00 (UTC) から7時間以上続いており、この時間に黄砂が飛来していた可能性が高い。

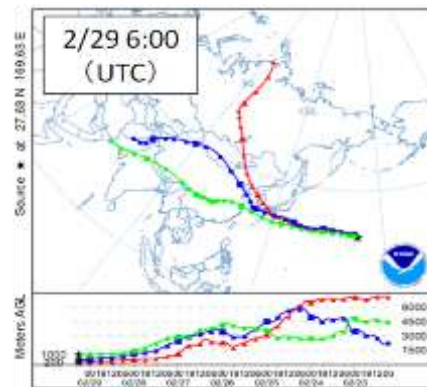


図(4)-8 KH-12-1航海の航路と 後方流跡線 (右上) 西部北太平洋域の拡大図 (左), 黄砂飛来時 (NW3) の粒径分布 (右下)

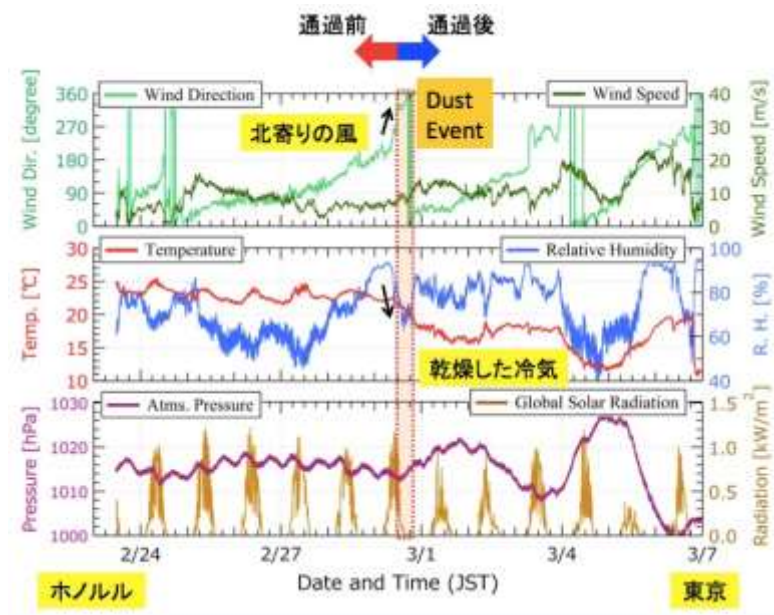
黄砂が飛来するまでの天気図の変化(図(4)-9)を見ると、エアマスの変化とほぼ同時刻に寒冷前線が通過していた。図(4)-10に示す29日の後方流跡線の変化をみると、寒冷前線の手前では、同海域で右回りに移動していたエアマスを南西の風として捉えていたが、29日3:00(UTC)頃を境にアジア大陸や日本上空を通過してきたエアマスを西風として捉えていたことがわかった。この寒冷前線の前後での風向き変化は、寒冷前線をもたらした低気圧を中心とする大気の流れを反映していると思われる。また、黄砂が飛来していたと思われる時間帯のうち、過去7日間の経路が大陸の内陸部まで伸びている流跡線では、エアマスが海上を通過する間に徐々に降下していた。寒冷前線の後方には高気圧が追従しており、この気圧配置によって上空の黄砂を含むエアマスが降下してきた可能性がある。黄砂が飛来するまでの気象条件の時間変化(図(4)-11)を見ると、エアマスの変化とほぼ同時刻に寒冷前線が通過していた。



図(4)-9 黄砂イベント中の天気図と船(△)の位置関係



図(4)-10 黄砂イベント中のエアマスの後方流跡線の例

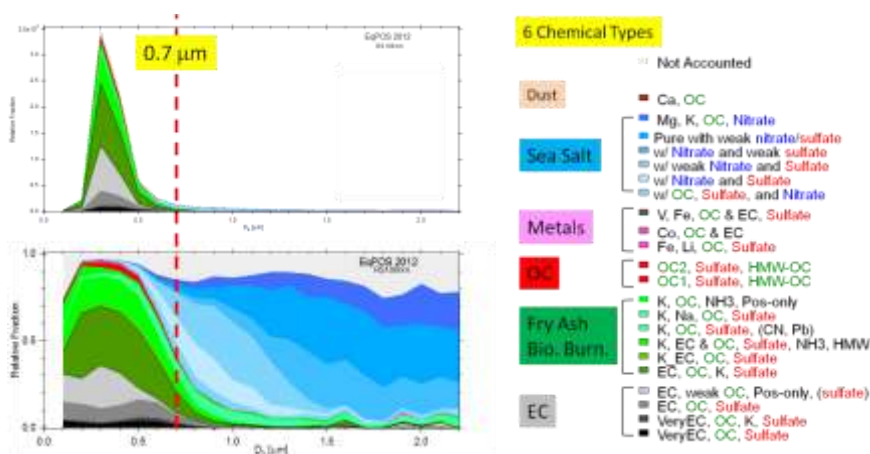


図(4)-11 黄砂通過前と通過後の気象条件の時間的変化

黄砂イベント中のエアロゾル粒径-個数濃度分布は、160 -170 nmに450-800 dN/d(logd<sub>p</sub>)、cm<sup>-3</sup>のピークを持つひと山分布であった。およそ 40 nm以下の極微小粒子は比較的低い濃度であり、遠隔海洋上でよく見られるふた山分布ではなかった。極微小粒子が少なかったのは、その前駆体ガスや粒子がより大きな粒子と混合し凝集して数が減少した為、あるいは、発生源で比較的大きい粒子のみが発生して輸送されてきた為だと考えられる。

さらに、黄砂イベント中の総粒子数濃度に対する雲凝結核濃度の割合は、過飽和度0.1%と0.2%においてそれぞれ40%程度、80%程度と、比較的高い値になった。比較的低めの過飽和度でも活性化率が高くなったのは、臨界粒径に満たない大きさの粒子が相対的に少なかった為である。これは、黄砂を輸送したエアマスにおいて極微小粒子が少ないという、粒径-個数濃度分布の特徴を反映している。

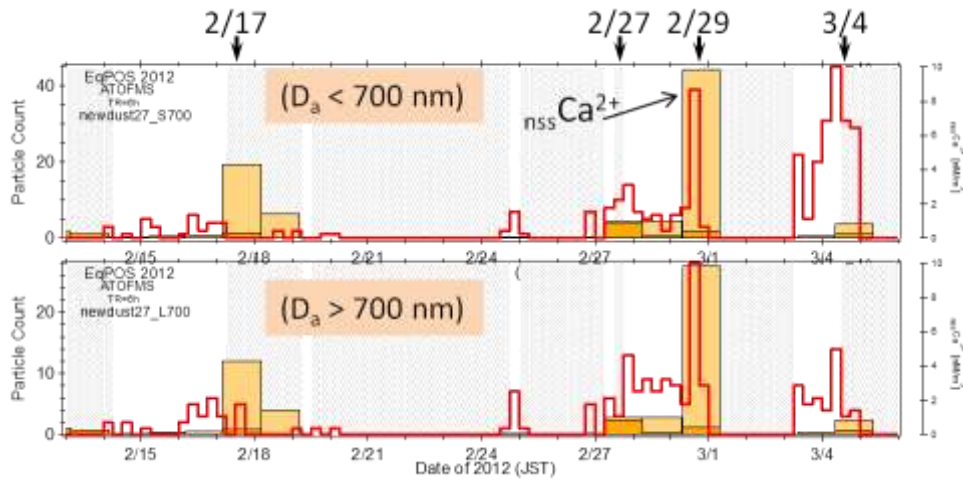
本観測では、ATOFMSを用いた個別粒子の粒径-化学組成分析により、粒子の混合状態を明らかにした。KH-12-1航海において得られた粒子を、それぞれの化学組成に基づいて組成タイプ別に分類した結果を図(4)-12に示した。ATOFMSの分析では、殆どの粒子が硫酸塩や硝酸塩、有機炭素成分と内部混合していることが分かった。また粒子を組成タイプ別に分類すると、およそ700 nmを境に粒子の組成タイプが異なっていた。700 nm以下の粒子のほとんどが燃焼起源のOCやECを含む粒子で占められていた。一方、700 nm以上では海塩粒子が大部分を占めていた。



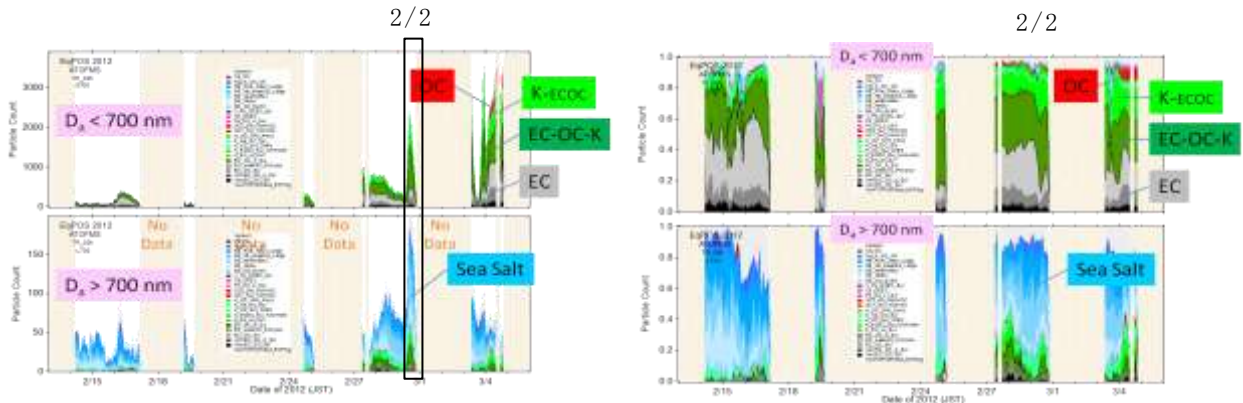
図(4)-12 KH-12-1航海での粒子の組成タイプ別粒径分布(左上)、各組成タイプの割合(左下)、組成タイプの分類方法(右)

単一粒子質量分析から nss-Ca<sup>2+</sup>を含む粒子の個数を6時間値として求めた結果を図(4)-13に示す。粒径分布と後方流跡線の変化が見られた29日3:00以降に高い粒子数濃度を示した。また、29日は nss-Ca<sup>2+</sup>だけでなく、EC、OCタイプの粒子や海塩粒子も多く観測され、特に700 nm以下ではEC、OCタイプの粒子の割合が増加している(図(4)-14)。

粒径700nm以上で海塩粒子の外部混合の比率が高い傾向は、黄砂イベントの29日も同様であった。そこで海塩と内部混合している黄砂粒子の割合を12時間値として求めた(図(4)-14)。29日の黄砂イベントでは、粒径700 nm以上の海塩混合黄砂粒子は、700 nm以下と比べて約2倍の割合であった。



図(4)-13 ATOFMSで得た黄砂粒子の数(赤)とバルク分析したnss-Ca<sup>2+</sup>濃度の時間変化

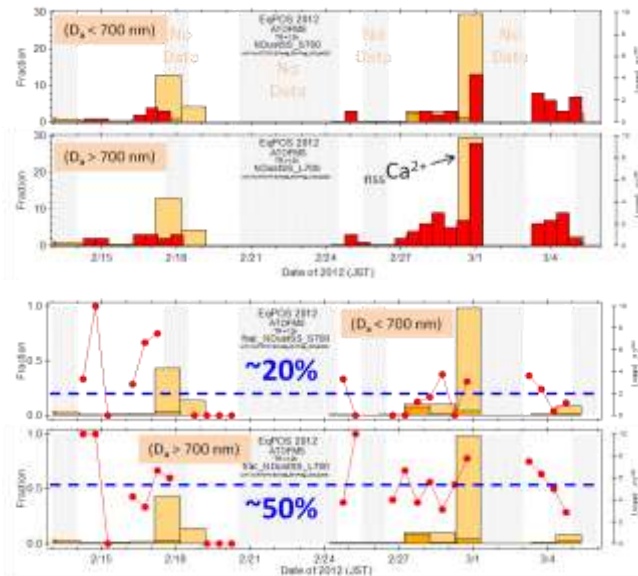


図(4)-14 各組成タイプ別の粒子数および割合の時間変化

更に、ATOFSで得られたnss-Ca<sup>2+</sup>を含む粒子全体のうち、粒径700nm以下のおよそ約20%が海塩と混合状態にある事が分かった。これに対し700nm以上では約50%であり、海塩タイプ粒子の多い700nm以上の大きさでは、黄砂と海塩がより内部混合していると判明した(図(4)-15)。粒径が増加することにより、乾性沈着が促進されることが予想される。

また、黄砂が海塩と内部混合し、より大きく吸湿性のある粒子へと変化することで、海上を輸送される黄砂粒子の湿性沈着が促進されている可能性がある。海洋大気中の海塩タイプ粒子の数は、太平洋中央部に比べて北西太平洋でより多く、殆どが粒径700nm以上であった。このような海塩粒子の分布は、風速に関係すると考えられるが、海洋大気中を輸送される黄砂との混合状態に気象条件が密接に影響していると考えられる。また硫酸塩や硝酸塩といった酸性物質との内部混合も粒子の可溶性を促進している。北西太平洋における海塩粒子および人為起源物質を、黄砂の沈着速度に影響する要因として捉え、海上での黄砂との相互作用について、さらに研究を進める必要がある。

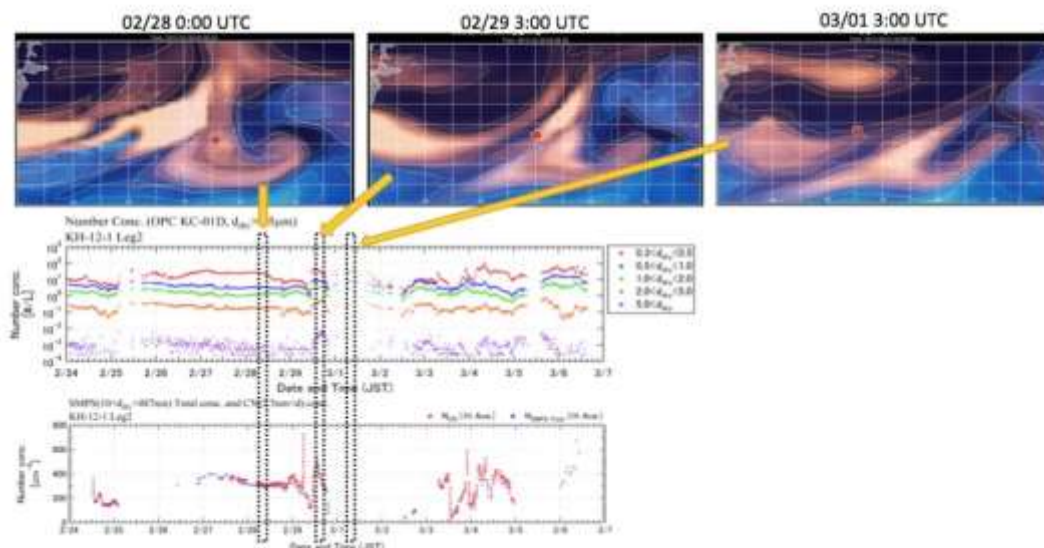




図(4)-15海塩と混合した黄砂粒子の数（上）,および黄砂粒子全体に対する割合（下）

### (3) 北太平洋上の黄砂現象の黄砂予想モデルによる検証

図(4)-16には、サブテーマ(3)の黄砂予想モデルによって再現された黄砂と汚染起源物質である硫酸エアロゾルの濃度分布と研究船の位置、その時間の粒径別粒子数濃度の時間変化を示しているが、粗大粒子である黄砂の通過と引き続いて通過する微小粒子である硫酸塩エアロゾルの相対的な時間変化が明確に再現されている。黄砂や硫酸塩エアロゾル濃度については、さらに検討する必要がある。



図(4)-16 黄砂（黄色）と汚染起源物質である硫酸エアロゾル（青色）の濃度分布の時間変化と研究船の位置（赤丸）（上），粒径別粒子数濃度の時間変化（中），総粒子数濃度（赤点）とSMPSによる数濃度（青点）の時間変化（下）との比較

## 5. 本研究により得られた成果

### (1) 科学的意義

洋上を輸送される黄砂粒子が海洋大気中で海塩タイプ粒子と内部混合し、粒径が増加し、乾性沈着が促進され、また、より吸湿性の高い粒子となるので、湿性沈着が促進される。このことを個々の粒子組成を測定することにより、定量的にその変質量を明らかにできた。また、黄砂輸送予測モデルで黄砂と人為起源物質の北太平洋上の濃度変化を再現できた。

### (2) 環境政策への貢献

#### <行政が既に活用した成果>

「特に記載すべき事項はない」

#### <行政が活用することが見込まれる成果>

サブテーマ(5)と共同で得た黄砂沈着量の地理的分布や粒径に関するデータ等の解析結果は、黄砂沈着現象を把握するために必要であると共に、黄砂予測・沈着モデルを検証し、改良するために役立つ。本研究ならびにサブテーマ(5)による観測と、サブテーマ(3)のモデルシミュレーションにより、日本への沈着量分布を明らかにすることは、黄砂の環境影響評価に役立つ。

## 6. 国際共同研究等の状況

戦略的国際科学技術協力推進事業

「北太平洋縁辺海から外洋における生態系システムの気候変化に対する応答」

GAO Huiwang・中国海洋大学・中華人民共和国・中国MOSTとの「気候変動」分野における研究交流(平成22～24年度)

本国際共同研究の目的は、大陸から海洋へ供給される人為起源および自然起源鉱物粒子の挙動を把握し、これらの物質供給がもたらす気候変化と、その結果として生じる縁辺海並びに太平洋外洋域での生態系変化、及び人間社会に対する影響を解明し、予測することであった。東シナ海と北太平洋西部海域で中国人研究者と海洋大気エアロゾルの採取やその海洋環境への影響評価を行った。本研究の推進にも貢献した国際共同研究であった。平成26年には中国での第7回Asian Dust and Ocean EcoSystem (ADOES)ワークショップに招聘され、研究交流を行った。

## 7. 研究成果の発表状況

### (1) 誌上発表

#### <論文(査読あり)>

「特に記載すべき事項はない」

#### <査読付論文に準ずる成果発表>

「特に記載すべき事項はない」

#### <その他誌上発表(査読なし)>

「特に記載すべき事項はない」

## (2) 口頭発表 (学会等)

- 1) 植松光夫、EqPOS サイエンスチーム：2013年度日本海洋学会春季大会 (2013)  
「太平洋赤道高生物生産海域における大気海洋間の物質循環研究 -白鳳丸KH-12-1次 (SOLAS/EqPOS) 航海概要-」
- 2) 古谷浩志、河田綾、中山寛康、上田紗也子、三浦和彦、植松光夫：2013年度日本海洋学会春季大会 (2013)  
「アジア大陸から中部北太平洋域に長距離輸送される陸起源大気エアロゾルの化学組成」
- 3) 三木裕介、上田紗也子、三浦和彦、古谷浩志、植松光夫：日本地球惑星科学連合2013年大会 (2013)  
「北太平洋における海洋大気中の鉄含有粒子：水溶性物質との混合状態」
- 4) 上田紗也子、三浦和彦、河田綾、古谷浩志、植松光夫：日本地球惑星科学連合2013年大会 (2013)  
「太平洋広域で観測されたエアロゾル粒子の個数粒径分布：海洋生物活動および気象条件との関係」
- 5) 澤崎和也、内田阿岐、南 秀樹、谷野賢二、植松光夫：日本地球化学会60回年会 (2013)  
「札幌における大気エアロゾル中微量元素元素の濃度変動について」
- 6) 中村篤博、植松光夫、三崎幸典：大気環境学会 (2013)  
「2013年春季の瀬戸内海沿岸部における大気エアロゾルの化学成分」
- 7) H. Furutani, J. Jung, and M. Uematsu: Gordon Research Conference 2013 Atmospheric Chemistry, West Dover, VT, USA, (2013)  
“Mixing states, geographical distributions, and sources of marine aerosols containing organic nitrogens over the North and South Pacific Oceans”
- 8) M. Uematsu: The 6th International Conference on Fog, fog Collection and Dew, Yokohama, Japan, (2013)  
“Temporal or Spatial change of Physical and Chemical Properties of Sea Fog”
- 9) S. Bureekul, H. Furutani, M. Uematsu: AGU Ocean Science Meeting, Honolulu, Hawaii USA, (2014)  
“Biogeochemical Enrichment in Sea-surface Microlayer”
- 10) 植松光夫、古谷浩志、河田綾、中山寛康、上田紗也子、三木裕介、三浦和彦：砂漠学会分科会/風送ダスト研究会 (2014)  
「北太平洋上に飛来した黄砂」
- 11) 村島淑子、Sujaree Bureekul、古谷浩志、成田祥、植松光夫：31回エアロゾル科学・技術研究討論会 (2014)  
「大気エアロゾルが太平洋における海水中懸濁粒子の元素組成とその分布に及ぼす影響」.
- 12) 三木祐介、三浦和彦、岩本洋子、加藤大樹、上田紗也子、古谷浩志、植松光夫：31回エアロゾル科学・技術研究討論会 (2014)  
「北太平洋で採取された鋳物粒子の構造」
- 13) 河田綾、中山寛康、古谷浩志、成田祥、上田紗也子、三浦和彦、植松光夫：日本地球化学会61回年会 (2014)  
「太平洋東部赤道海域から西部北太平洋における微小エアロゾルの雲凝結核特性と化学組成」
- 14) 河田綾、中山寛康、古谷浩志、成田祥、上田紗也子、三浦和彦、植松光夫：第20回大気化学

討論会 (2014)

- 「太平洋東部赤道海域から西部北太平洋における微小エアロゾルの雲凝結核特性と化学組成」
- 15) 岩本洋子, 三浦和彦, 横山慎太郎, 古谷浩志, 植松光夫: 第20回大気化学討論会 (2014)  
「北太平洋とその縁辺海における大気エアロゾル物理的特徴 -白鳳丸 KH-14-3 次航海における洋大気観測の速報結果」
- 16) 河田綾, 中山寛康, 古谷浩志, 成田祥, 上田紗也子, 三浦和彦, 植松光夫: 風送ダストに関する現状と今後の展開に関する研究集会 (2014)  
「太平洋東部赤道海域から西部北太平洋におけるダストエアロゾルの雲凝結核特性と化学組成」
- 17) A. Baker, K. Altieri, G. Okin, F. Dentener, M. Uematsu, M. Kanakidou, M.M. Sarin, R. Duce, J. Galloway, B. Keene, A. Singh, L. Zamora, J.-F. Lamarque, S.-C. Hsu: EGU General Assembly 2014, Vienna, Austria, 2014  
“Atmospheric Nitrogen Deposition to the Oceans: Observation- and Model-Based Estimates”
- 18) M. Uematsu, H. Furutani, R. Kawata, Y. Nakayama, S. Ueda, Y. Miki, K. Miura: International Conference on Atmospheric Dust-DUST 2014, Castellana Marina, Italy, 2014  
“Chemical Composition of Asian dust particles over the central North Pacific”
- 19) K. Osada, S. Ura, M. Kagawa, M. Mikami T.Y. Tanaka, S. Matoba, K. Aoki, M. Shinoda, Y. Kurosaki, M. Hayashi, A. Shimizu, and M. Uematsu: International Conference on Atmospheric Dust-DUST 2014, Castellana Marina, Italy, 2014  
“Wet and dry deposition of mineral dust particles in Japan: factors related to temporal variation and spatial distribution”
- 20) M. Uematsu: the AOGS 11th Annual Meeting, Sapporo, Japan, 2014  
“Sustainable Future of Coastal and Marine Ecosystems in the Indo-Pacific Ocean”
- 21) K. Sakata, A. Sakaguchi, M. Tanimizu, M. Uematsu, N. Kazuya, Y. Takahashi: the AOGS 11th Annual Meeting, Sapporo, Japan, 2014  
“Investigation of lead (Pb) and Boron (B) isotopes in aerosol above open ocean”
- 22) T. Nakajima, R. Imasu, M. Uematsu, A. Takami, D. Goto, J. Uchida, T. Inoue, H. Tsuruta, S. Misawa, R. Murata, T. Dai, N. Schutgens, K. Ueda, F. S. Chris Ng, M. Satoh, Y. Sato, A. Murakami, A. Higuchi: the AOGS 11th Annual Meeting, Sapporo, Japan, 2014  
“Development of a seamless assimilation system for atmospheric materials and its applications”
- 23) Y. Murashima, S. Burekul, H. Furutani, Y. Narita, M. Uematsu: International Aerosol Conference 2014, Busan, S. Korea 2014  
“Study on distribution of elemental composition of suspended particles in seawater and the impact of aerosols as an elemental source in the Pacific Ocean”
- 24) M. Uematsu: Chinese SOLAS workshop, Yinchuan, China, 2014  
“Land-Atmosphere-Ocean Linkage in the Pacific -Recent progress of SOLAS in Japan”
- 25) M. Uematsu: The 7th International Workshop on Asian Dust and Ocean EcoSystem (ADOES), Yinchuan, China, 2014  
“Transformation of Asian Dust Particles Over the Central North Pacific”

- 26) M. Uematsu, H. Furutani, R. Kawata, H. Nakayama: 13<sup>th</sup> Quadrennial iCACGP Symposium/ 13<sup>th</sup> IGAC Science Conference on Atmospheric Chemistry, Natal, Brazil, 2014  
“Transformation of Asian dust particles over the central North Pacific”

**(3) 出願特許**

「特に記載すべき事項はない」

**(4) 「国民との科学・技術対話」の実施**

- 1) 青森市立古川中学校における出前授業「海の水はなぜしょっぱいか -もし真水だったら-」  
(2014年11月13-14日、4回、計120名)
- 2) 茨城県古河市立第一古河小学校における出前授業「海の水はなぜしょっぱいか」 (2014年12月10日、2回、計60名)

**(5) マスコミ等への公表・報道等**

「特に記載すべき事項はない」

**(6) その他**

「特に記載すべき事項はない」

**8. 引用文献**

「特に記載すべき事項はない」

## (5) 黄砂沈着のネットワーク観測と組成変化に関する研究—陸地に沈着する黄砂—

国立大学法人名古屋大学

大学院環境学研究科地球環境科学専攻

長田 和雄

平成24～26年度累計予算額：10,799千円（うち、平成26年度予算額：3,510千円）  
予算額は、間接経費を含む。

### [要旨]

本研究では、降水の有無に応じて自動開閉する湿性・乾性沈着物採取装置を用いて、日本の陸上に沈着するダスト粒子の観測を、2012年9月から2014年12月の期間に秋田、鳥取、福岡、沖縄の4ヶ所でおこなった。大気沈着物は週毎の採取を基本とし、黄砂の飛来が予想される場合には日単位でのイベントサンプルも追加採取した。沈着物試料のFe含有量から残渣中の鉱物質ダスト量を求め、ダスト沈着量を見積もった。感雨器センサーの不調期間（2012年12月から2013年4月まで）を除くと、湿性沈着では2014年1月初旬と3月中旬、乾性沈着では2014年5月下旬に複数箇所で沈着量が増加した。2014年の湿性沈着量は秋田で最も多く（ $5.1\text{g}/\text{m}^2\text{yr}$ ）、次いで鳥取、福岡、辺戸岬（ $2.4\text{g}/\text{m}^2\text{yr}$ ）の順となり、乾性沈着量は福岡が最大（ $3.4\text{g}/\text{m}^2\text{yr}$ ）で、次いで鳥取、秋田、辺戸岬（ $1.4\text{g}/\text{m}^2\text{yr}$ ）の順となった。

ダストイベント時の試料を中心に、強熱後の沈着ダスト試料の体積粒径分布を測定した。湿性沈着したダスト粒子の場合には、 $5\mu\text{m}$ 付近の肩を持ち、 $10\text{--}15\mu\text{m}$ をピークとする分布が最も多く、 $>20\mu\text{m}$ にも肩があるような粒径分布も時折見られた。乾性沈着ダストの場合には、 $10\text{--}15\mu\text{m}$ と $>20\mu\text{m}$ の二つの峰の重ね合わせで表現される粒径分布が多かった。

鳥取においてPM10濃度とPM2.5濃度の連続測定を行い、同時に得たフィルター試料のイオン成分を分析した。春季にはしばしば見られる現象だが、2013年の夏季には、PM10-PM2.5（PMc）とPM2.5濃度の日平均値が両方で $25\mu\text{g}/\text{m}^3$ を2日間連続で超えたイベントが2回あった。このイベントではPMcとPM2.5試料ともに比較的高濃度の非海塩カルシウムが検出され、PM2.5黄砂が夏にも飛来していることが判明した。

### [キーワード]

ダスト粒子、沈着量、蛍光X線分析、粒径分布、地理的分布

<研究協力者>

秋田県立大学生物資源科学部・助教 佐々木佳明

鳥取大学乾燥地研究センター・准教授 黒崎泰典

福岡大学理学部・教授 林政彦

福岡大学理学部・助教 原圭一郎

国立環境研究所辺戸岬大気・エアロゾル観測ステーション 武田裕司

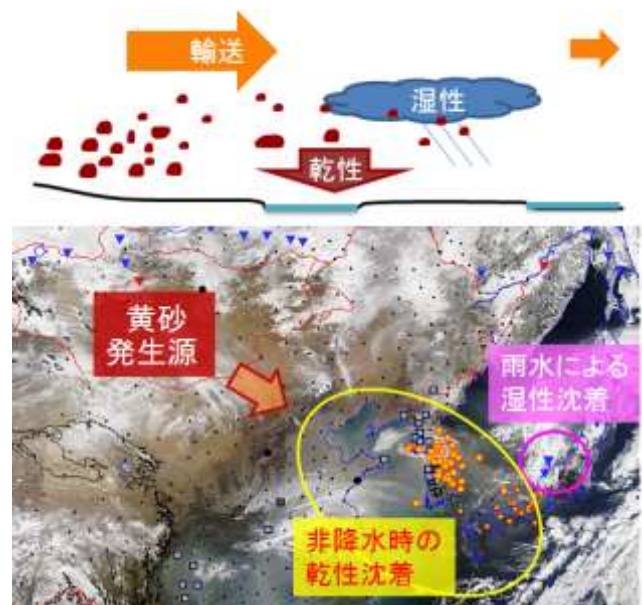
## 1. はじめに

黄砂のようなダスト粒子が大気中に浮遊することで、種々の気象学的影響や、大気を介した物質輸送に伴う生物学的・環境学的な影響がある他、人間への健康影響も示唆されている。いずれの影響についても、汎地球的なスケールから市町村オーダーのスケールまで、種々の空間スケールでの現象と影響があり、また、1回の降雨現象から年々の変動など、時間スケールとしても短長様々な現象と影響とがある。ダスト粒子の時空間分布については、地表付近の大気中エアロゾル濃度を直接観測することに加えて、ライダーや人工衛星などのリモートセンシングによる観測からもある程度の把握が可能である。

大気中のダスト粒子や沈着ダストが引き起こす種々の影響を、様々な時空間スケールで評価・予測するためには、数値モデルによるシミュレーションが有効である。しかし、数値モデルの不確実性の低減にはさらなる観測的な研究が必要である。特に必要とされるのは、大気からのダスト粒子の沈着量分布や沈着過程に関するデータである。図(5)-1に示すように、ダスト粒子の沈着は、ダスト粒子がどこまで輸送されるかということと表裏一体であり、これらの情報は大気中のダスト粒子の寿命を知る上で重要である。

大気からの沈着過程には、降水とともに地表へ降下してくる湿性沈着と、降水とは無関係に地表へ降下・付着する乾性沈着の二通りがある。湿性沈着過程では、雲内で雲粒の核（凝結核や氷晶核）として降水粒子中に取り込まれ、さらに、雲粒の併合衝突過程や降水粒子の落下過程で拡散・衝突等により取り込まれることで、大気中のダスト粒子等が降水粒子とともに地表へもたらされる。降水過程において雲内での微物理過程や雲底下除去過程について、十分な観測的データが積み上げられているわけではなく、現状は素過程の概要が知られている程度である。一方、直径の大きなダスト粒子の場合には、重力による落下が地表への沈着にたいして大きな役割を果たしており、大気中の粒径分布がわかれば、乾性沈着量を見積もることは湿性沈着よりも比較的容易いはずである。しかし実際には、大気中の粒径分布のうち、重力沈着が支配的な直径 $10\mu\text{m}$ を超える巨大粒子の割合を観測することが難しいので、沈着量に関する数値モデルシミュレーションもまた検証が難しい。そもそも沈着量については信頼できる観測例がほとんどないために、数値モデルの検証もままならない状態だった。

1年程度あるいは1カ所での観測、乾性と湿性を合わせた総沈着量としてのデータの報告は多いが、複数年にわたり、同一手法で複数箇所の沈着フラックスを湿性と乾性過程とにわけて観測した例は、世界的にもほとんどない。従前のデータの質は、残念ながら黄砂の環境影響評価に用いるようなレベルではない。例えば、フラックスの採取時間スケールが気象現象とは無関係に月単位であるとか、都市



図(5)-1 黄砂の発生から輸送、沈着に至る諸過程と気象現象の空間分布概念図

部での路上ダストの影響を受けた試料であるなど、時間変化の激しい黄砂現象を扱うモデルの検証や、自然現象を対象とした検証に用いるには不適切な観測データしかないのが現状である。このように、沈着量に関するデータの不足も、黄砂の環境影響評価に資するモデルの精緻化を妨げている大きな要因の一つである。

そこで本研究では、黄砂の環境影響評価に資するため、また、影響評価や予測に用いる数値モデルの検証データとしても使えるよう、気象現象に追従できる時間スケールの採取時間を念頭に、降水の有無に応じて自動開閉する湿性・乾性沈着物採取装置を用いて、ダスト沈着量の観測を2012年9月から2014年12月にかけて全国4ヶ所でおこなった。採取した沈着物試料には、花粉等の生物由来粒子なども含まれているため、東京大学大気海洋研究所の植松研究室が保有する上面照射型蛍光X線分析装置を用いて残渣物を元素分析し、Fe含有量から残渣中の鉱物質ダスト量を求め、ダスト沈着量を見積もった。このようにして求めたダスト沈着量に加えて、量的に多くのダスト粒子が沈着したイベント期間を中心に、残渣試料を強熱して生物由来粒子を除去した後の沈着ダスト粒子について粒径分布を測定した。

## 2. 研究開発目的

黄砂の環境影響評価に資するため、また、影響評価や予測に用いる数値モデルの検証データとしても使えるよう、気象現象に追従できる時間スケールの採取時間を念頭に、降水の有無に応じて自動開閉する湿性・乾性沈着物採取装置を用いて黄砂沈着物のネットワーク観測をおこない、陸上に沈着するイベント・週・月レベルの黄砂沈着量を明らかにする。大規模な黄砂イベントについては、地理的・時間的な沈着量の変動情報と合わせて、黄砂試料の粒径分布を測定することにより、黄砂の輸送や沈着過程に関する知見を深め、数値モデルの精緻化に資するデータを提供する。



図(5)-2 辺戸岬ステーションに設置したダスト沈着物サンプラー（降水を感雨器が検知すると、蓋が自動で向かって右側へ動き、降水が止むと左側に戻る）

## 3. 研究開発方法

### (1) 沈着ダスト試料の沈着過程別採取装置と採取地点

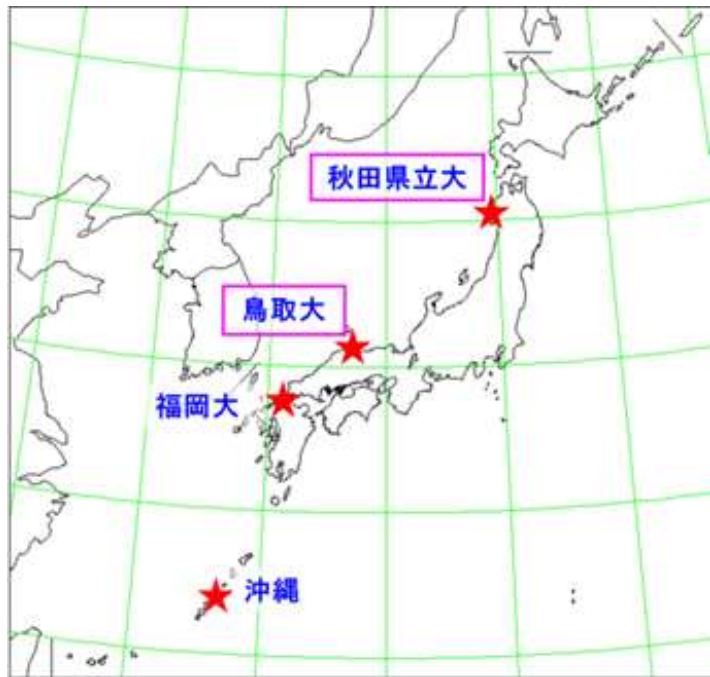
黄砂粒子の沈着量を観測的に知るためには、いくつか手法がある。しかし、前節で述べたように、数値モデルに有用なデータを得るためには、沈着過程別に沈着量を把握する必要がある。しかしながら、乾性沈着過程での沈着量を把握するには、重力沈降の他にも慣性衝突や分子拡散など複数の沈着過程が含まれているので、全ての粒径についてパーフェクトなサンプリング方法がない。一方、湿性沈着過程、特に雨水の場合には、気象学分野で標準化された計量手法があるので、これを流用し、乾性沈着由来の降下物が入らない仕組みの装置であれば、少なくとも湿性沈着によるダスト降下量は正確につかめるはずである。そこで、本研究では、酸性雨調査に用いられている自動雨水採取装置（小笠原計器製作所、US-330）を利用し、湿性過程と乾性過程とを



区別してダスト沈着物を採取することにした。この装置には、乾性沈着物採取用のダストジャーを付属させることができるので、現地での取り扱いを簡便にするために、予め微粒子をエタノールと純水で洗浄した厚手のビニール袋をかぶせる形で非降水時に暴露し、一定時間後に回収することとした。図(5)-2に、辺戸岬ステーションに設置した装置を例として示す。

ダストサンプリングについて、もう一つ重要な視点は、サンプリングの時間間隔と採取場所の選定である。黄砂イベントの時間スケールは、特別スケールからせいぜい日オーダーである。また、湿性沈着の降水現象も、特別からせいぜい日オーダーの時間スケールでしかない。このように、沈着過程を理解するための採取時間としては、できれば特別データを得ることが望ましい。

しかし本研究では、複数年・複数年所で採取物を集めるという量的な問題と、交換にかかる人手の問題とを勘案し、基本的には1週間毎に試料容器を交換することとした。ただし、黄砂イベ



図(5)-3 沈着ダストサンプラーの設置箇所（枠付きで示した地点は、降雪融解用のヒーター付きサンプラーを示す）



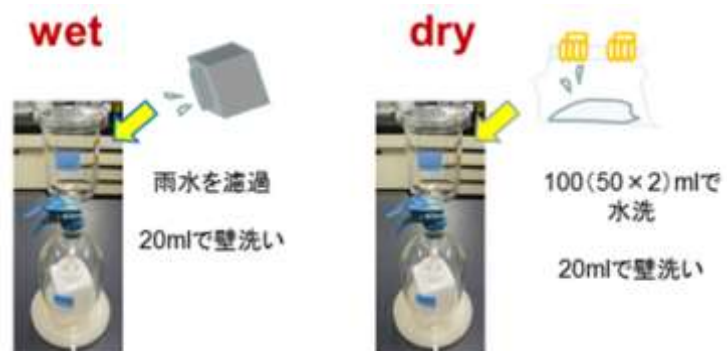
図(5)-4 各採取地点周辺の地図（縮尺は4地点とも同じ）

ントを個別に捉えるために、日単位で追加の試料交換を随時おこなうこととした。その際、サブテーマ（3）による現業黄砂予報と、サブテーマ（1）によるリアルタイムモニタリングによる情報を共有し、試料交換のタイミングを踏っている。

試料採取地点は、図(5)-3に示した4地点（秋田、鳥取、福岡、沖縄）である。選定のポイントとしては、次の項目を考慮した：1）西方からのダスト輸送を捉えるために、日本海・東シナ海に面した沿岸部に位置すること、2）ローカルな路上ダストの影響をなるべく避けるため、できるだけ海岸に近い地点で、かつ、採取交換が容易な場所であること、3）採取交換をおこなう人員が確保できること、4）サブテーマ1によるライダー観測で、ダストの鉛直分布がわかる場所に近いこと。これら4項目すべてを満たすのは鳥取と沖縄であり、秋田と福岡はサブテーマ1によるライダーの設置場所とは若干離れている。しかし、秋田県立大学と福岡大学ではシーロメーター等の観測を独自におこなっているため、十分、これらの条件を満たしている。また、秋田以外の観測点では、従前のプロジェクトにより設置した装置を休止させたままであったので、本研究では初年度の研究開始後速やかに観測態勢を整えることができた。新規観測地点の秋田県立大学には、入念な事前打ち合わせの上、北海道大学・低温科学研究所に保管していた沈着ダストサンプラーを移設した。また、沖縄・辺戸岬ステーションからは、装置を名古屋大学へと一端撤収していたので、改めて装置整備の後、辺戸岬ステーションへ再設置をおこなった。秋田県立大学と辺戸岬ステーションでの設置には、重量物の運搬やケーブル取り回しなど、補助作業者を必要としたので、所属大学院生をこれに充てた。これら観測ステーションの整備は9～10月に終了し、当初の予定通り、秋季のダスト飛来シーズンに間に合わせる事ができた。ちなみに、冬季降水が雪である可能性の高い場所（秋田県立大学と鳥取大学）に設置した装置は寒冷地仕様となっており、ひよこ電球による内部の保温と湿性沈着捕集時の加温装置が備わっている。

観測地点周辺の様子を図(5)-4に示す。いずれも日本海あるいは東シナ海に面した地域に位置し、最寄りの海岸までの距離は秋田県立大学が約900m、鳥取大学が約700m、福岡大学が約5km、辺戸岬ステーションが約200mと、ローカルな道路粉塵など国内ダストの混入リスクが低いと考えられる地点を選んでいる。逆に、砂防林の近くでもあるため、特に秋田や鳥取では、4～5月に大量の花

粉（松など）が沈着してしまう。このような生物由来粒子の影響の除去については後に述べる。秋田、鳥取、福岡では、各大学研究室の学生アルバイトを雇用して、装置の点検・保守と試料交換、名古屋への送付を依頼した。沖縄では、国立環境研究所辺戸岬大気・エアロゾル観測ステーションのスタッフにこれらの作業について協力を得た。また、各地点ともに比較的近距离にアメダスの観測点があるので、降水量など気象要素のデータも得やすい場所である。



図(5)-5 沈着物試料のろ過処理（左：湿性沈着試料，右：乾性沈着試料，どちらも孔径1  $\mu$ mのヌクレポフィルターでろ過した）

## (2) 試料採取の概要と名古屋大学での試料処理

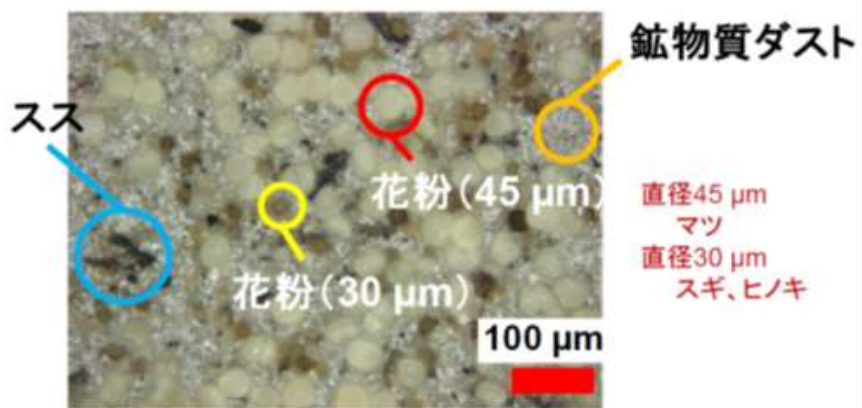
名古屋大学では、各観測地点での観測に合わせて、沈着試料の保管容器の洗浄と、4週毎の容器輸送、返送されてきた沈着物試料の一次処理をおこなうため、研究補助員を、週1日を基本に雇用了。試料採取は、4週間分に相当する洗浄済み湿性沈着物保管容器と乾性沈着物採取袋を各観測地点に送付し、4週間後に取得試料を返送してもらう方式で進めた。現地では、毎週水曜日に試料容器を交換し、サブテーマ(1)(3)から入手した黄砂イベントの予報に応じて、日単位の追加試料の採取(特に乾性沈着試料について)も依頼した。また、湿性沈着試料には、殺菌剤(オスバン)を所定

の濃度となるように現地で添加し、微生物の繁殖を防いだ。名古屋に輸送された沈着物試料は、予め秤量した孔径 $1\mu\text{m}$ のヌクレポアフィルターでろ過し、残渣重量を求めた。その際、湿性沈着試料は採取水量を測ってから良く攪拌の後にろ過し、ろ過水の重量から全降水中の非水溶性粒子濃度を求めた。後に、採取水量、開口面積、採取時間から、沈着フラックスに換算した。また、乾性沈着試料は、袋内を一定量の純水で洗浄しながらろ過し、非水溶性残渣試料を得た(図(5)-5)。乾性沈着試料の場合には、袋内の全量をろ過し、開口面積と採取時間から沈着フラックスを得た。

フィルター上残渣物の例を図(5)-6に、残渣の顕微鏡写真の例を図(5)-7に示す。この例に見られるように、フィル



図(5)-6 ろ過後のフィルター残渣の例(フィルター直径は25mm, 左上のフィルターは有機物量が多いためにカーリングしている。残渣物の内容により色が異なる)



図(5)-7 乾性沈着物試料をろ過した残渣の顕微鏡写真例(鉱物質ダストの他にも花粉やススなどの非鉱物質残渣が多数見られる)

ター上（特に乾性沈着物について）の残渣重量には、鉍物質ダストの他、花粉その他の非鉍物質（多くは有機物）重量が含まれている。これまでにサブテーマ（4）などと共同で、残渣試料の蛍光X線分析をおこなうことで、残渣中の鉍物質ダスト量の見積もり方法を検討してきた<sup>1)</sup>。手法の詳しい説明は省略するが、本研究でも、黄砂期間中の鉍物質ダスト中には平均的にFeが3.7%含まれていることを利用して、残渣物の蛍光X線分析により、鉍物質ダスト量を見積もった。ここで用いたFe含有量は、中国～韓国で観測された黄砂時のTPM中Fe含有比ときわめて近い。なお、花粉など生物由来粒子の量が著しく多い残渣試料の場合には、フィルターが湾曲する（図(5)-6の左上のフィルターを参照）などの理由により、蛍光X線分析装置での元素分析が不可能な場合もあった。そのような試料については、ダスト粒子の粒径分布を測定する時のように、強熱後の残渣重量を元に沈着フラックスを見積もった。

### （3）ダスト試料の粒径分布測定

残渣重量の多い試料を中心に、鉍物質ダストの粒径分布を測定した。当初、目開きが $20\mu\text{m}$ のナイロンフィルターと、孔径が $10\mu\text{m}$ 、 $5\mu\text{m}$ 、 $1\mu\text{m}$ のヌクレポアフィルターを用いての4段ろ過による手法と、遮光方式による粒径分布測定の二通りを試験した。使用したダスト試料を保存できる意味では多段ろ過が優れているが、測定の手軽さでは遮光方式の測定に軍配があがった。図(5)-8に、測定装置（HIAC、System9703+、センサー：HRLD 150CE）の外観を示す。この装置は、細管を通過する粒子による遮光時間をもとに粒径を判別している。光の散乱を用いる装置と異なり、粒子の光学的性質に左右されにくく、かつ、ダイナミックレンジも比較的広いので、本課題で対象とするミクロンサイズ以上の粒子で、しかも有色・無色の混じるダスト粒子を測定するのに適している。また、この装置以外にデモ品で他社の製品も試したが、少量試料を測定後の試料保管に難点があり、こちらの製品を使用することにした。

本課題で得られる残渣試料は、花粉やバクテリアなどの生物粒子も混在しているため、それら有機物を除去するため、残渣試料を電気炉内にて $750^{\circ}\text{C}$ で2時間加熱処理した。加熱処理の際、残渣物の灰化重量も測定し、Fe分析が不可能だった試料についてはこの値を沈着量の計算に使用した。加熱後に残った鉍物質粒子をエタノールで再懸濁させ、純水中に分散し、粒径分布測定に供した。



図(5)-8 遮光式自動微粒子測定装置を用いた測定の様子

#### (4) 大気中のPM濃度測定

大気からのダスト沈着量と大気中に浮遊する粗大粒子濃度との関係を知るために、沈着サンプリングをおこなっている鳥取サイトにて、紀本電子工業のPM712を用いたPM10・PM2.5の自動計測とテープろ紙によるサンプリングをおこなった（図(5)-9）。

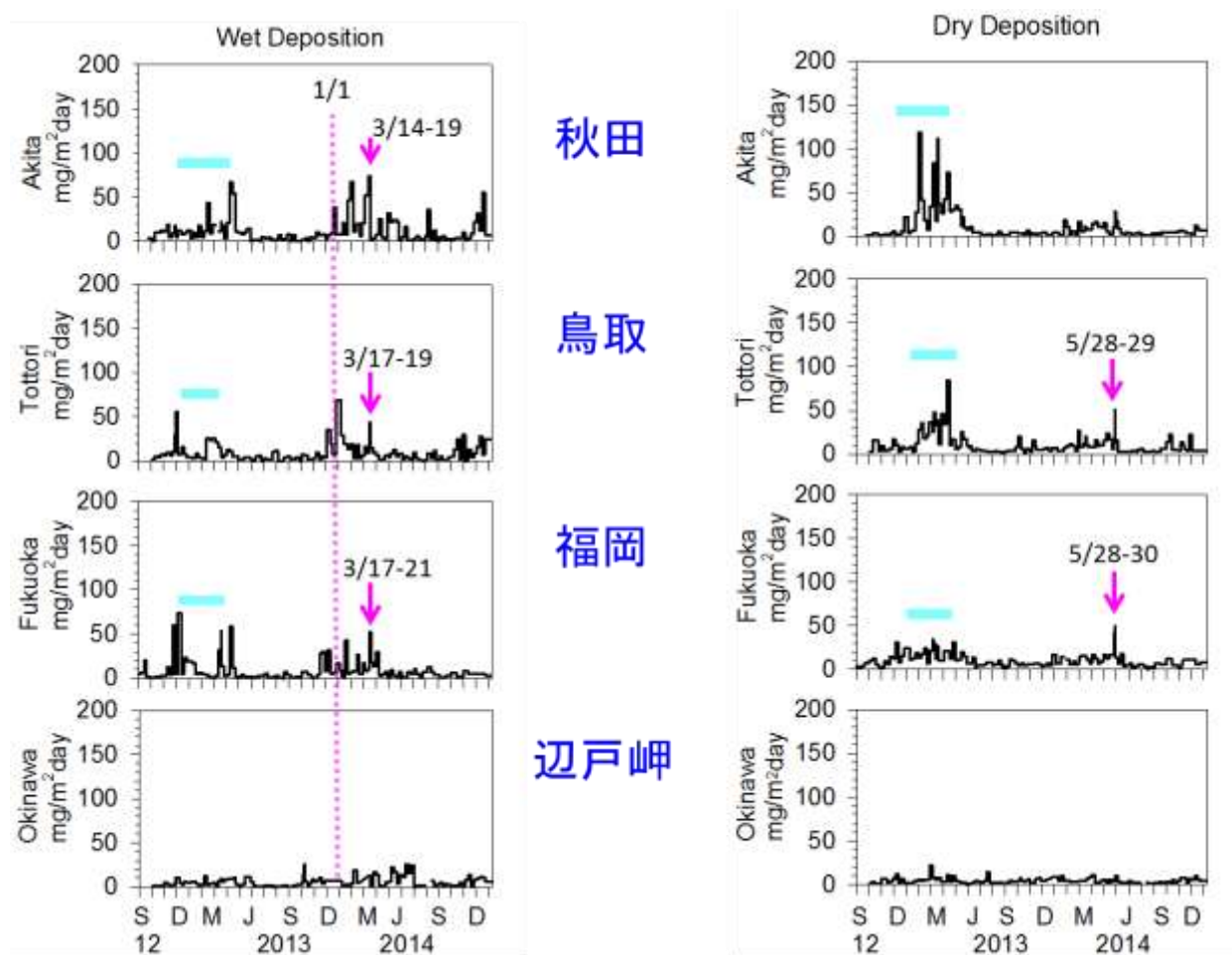


図(5)-9 鳥取大学乾燥地研究センター屋上に設置されたPM10 & PM2.5測定装置

#### 4. 結果及び考察

##### 1) 湿性・乾性沈着ダストフラックスの時系列変化と年間沈着量

2012年9月から2014年12月まで観測したダスト沈着フラックスを、沈着過程別に図(5)-10に示す。青横線で示した期間は、感雨器センサーが不調の期間で、湿性と乾性の区別が不確実な期間である。この不調は12年12月頃からしばしば見られるようになり、福岡大学で4月、秋田県立大学で5月、鳥取大学も4月に同センサーを交換することで復帰した。センサーの不調は、冬季に雪が混じるような気象条件になってから顕在化した。降水が雨の場合には正常に動作していても、特にあられの場合にはセンサー表面で跳ねるためにドライ袋に降水が混じることもあり、センサーの不調がわかりにくい。このような期間は、乾性沈着物を採取するビニール袋内に雨水が混入し、雨水中でバクテリアの繁殖が著しい場合にはフィルターによるろ過に支障をきたしたため、沈着過程の区別に加えて全沈着量の把握にも問題を生じたケースがある。しかしこの期間を除いては、良好なデータが得られた。



図(5)-10 2012年9月から2014年12月までの、湿性(左)・乾性(右)沈着過程による鉄物質ダスト沈着フラックス(mg/m<sup>2</sup>/day), 蛍光X線分析法によるFe分析結果に基づく鉄物質ダスト沈着量(秋田と鳥取、福岡における青横線の期間は、感雨センサーの不具合により分別採取が不確実であったことを示す)

秋田と鳥取では、14年春季の乾性沈着フラックスに比べて13年春季の方が大きいように見え、逆に湿性沈着量としては13年より14年の春季の方が大きく見える。しかしこれは、13年冬～春季の感雨器センサー不調のため、本来なら湿性沈着として採取されるべき降水が、降雨強度が低い場合には乾性沈着として採取された結果、秋田と鳥取でこのような傾向が現れたと考えられる。感雨器センサーが正常に動作している13年秋から14年春にかけてのデータを見ると、秋田・鳥取では湿性過程による鉱物質ダストの沈着頻度と量が大きい。西日本だけでなく、東北地方の日本海側でも湿性沈着がダスト沈着に重要であることを伺わせる。

2013年と2014年は黄砂の飛来が少ない年であった。気象庁の観測によれば、2014年に広域で黄砂が観測されたのは5月下旬から6月初旬にかけての1回だけとされているが、秋田では頻繁に湿性沈着していた。湿性沈着により複数箇所で沈着量が同時に増加したのは、14年では1月初旬と3月中旬に見られたが、乾性沈着では気象庁も報告している5月28日前後のイベントのみであった。

表(5)-1 鉱物質ダスト沈着量(g/m<sup>2</sup>yr)

	Wet			Dry			Total		wet/dry
	2012秋	2013	2014	2012秋	2013	2014	2013	2014	2014
秋田	(0.95)	(5.45)	5.12	(0.47)	(5.86)	2.28	(11.32)	7.40	2.2
鳥取	(0.97)	(3.40)	3.45	(0.80)	(4.53)	2.94	(7.94)	6.39	1.2
福岡	(1.83)	(2.50)	2.63	(1.42)	(3.81)	3.36	(6.31)	5.99	0.8
辺戸岬	0.35	1.43	2.36	0.39	1.54	1.43	2.97	3.79	1.7

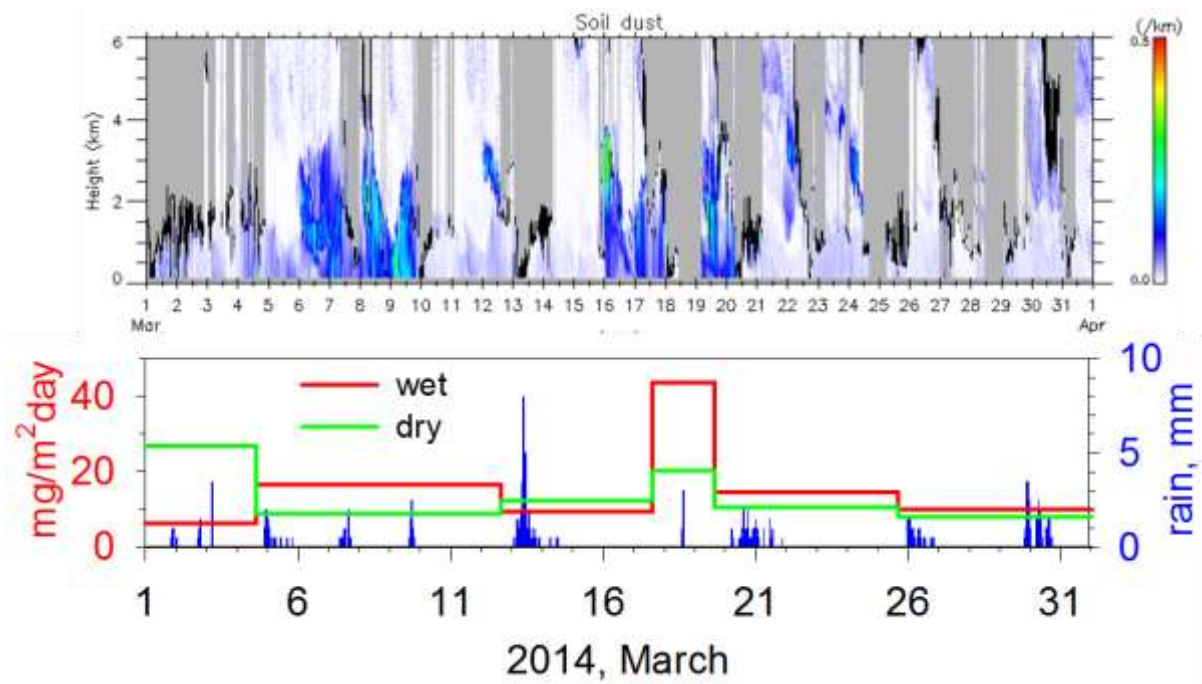
表(5)-1に挙げたのは、各地点における沈着過程別の鉱物質ダスト沈着量と、湿性/乾性沈着量比である。先に述べたように、2012年12月から2013年4月にかけての沈着過程分別が不確実な値については、表内に括弧書きで示した。先行事例(2008年秋から2010年12月まで<sup>2)</sup>)での沈着量と比べると、沖縄ではほぼ同程度であったが、その他の地点では2014年の沈着量が全体的に2～3割少なめであった。先に述べたように、気象庁による目視による黄砂観測記録によれば、2012年秋から2014年12月にかけては黄砂の飛来が少なく、小規模なイベントしかこなかったようなので、大まかな傾向としては整合的である。逆に言えば、黄砂の不活発年であっても、鉱物質ダストは少量ながら常に沈着しているということがわかった。また地理的には、南方の沖縄よりも北方の秋田の方が、湿性と乾性の和として、倍近く多くのダストが沈着していた。年間の乾性沈着量としては、最大が福岡の3.36g/m<sup>2</sup>yrに対して最小が辺戸岬の1.43g/m<sup>2</sup>yrであり、ここでも約2倍の差があった。湿性/乾性の比を見ると、秋田で2.2に対し、福岡では0.8と、観測地点の中では黄砂発生源にもっとも近い福岡で乾性沈着の割合が高かった。

## 2) 湿性・乾性沈着に見られる広域黄砂イベントと粒径分布

本研究の観測期間中に気象庁が報告した黄砂で、広域(2ヶ所以上)に影響が及んだイベントは、2013年では1月2-3日、3月8-10日、3月19-20日、4月18-19日、10月11-12日、2014年では5月26日-6月2日にかけてである([http://www.data.jma.go.jp/gmd/env/kosahp/kosa\\_data\\_index.html](http://www.data.jma.go.jp/gmd/env/kosahp/kosa_data_index.html))。感雨器が不調だった期間を除くと、乾性沈着として複数ヶ所で沈着量の多かったイベントとして目立つのは2014年5月26日-6月2日であり、2013年10月11-12日のイベントについては、

乾性沈着フラックスが特段に高いわけではなかった。従って、2013年10月11-12日のイベントは、大気塵象としては観測されても沈着量が多くない「通過する黄砂」だったと思われる。

湿性沈着の結果では、2012年11月30日頃や2014年3月17日頃の試料について、複数ヶ所での値が高かった。ところが、2012年11月下旬や2014年3月の該当期に、黄砂の報告はない。サブテーマ(1)による松江でのライダー観測データ (<http://www-lidar.nies.go.jp/>) を見ると、2012年11月29~30日にかけてと、2014年3月17日前後には、地表よりも上空でダスト濃度が上昇した様子が捉えられていた。少なくとも鳥取では、その一部が2012年11月30日や2014年3月18日の降水によって沈着したものと考えられる。例として、2014年3月の松江上空でのダスト粒子濃度と、鳥取での湿性沈着フラックスの時系列変化を図(5)-11に示す。2014年3月は、ライダーで見ると7~10日と16~20日に黄砂が飛来している様子が見える。冬~春にかけての日本海側では、低気圧の通過以外にも冬型の気圧配置下でも降水が生じるので、黄砂の飛来と降水イベントのタイミングがマッチする機会が多い<sup>3)</sup>。3月17~19日のサンプルはそのようなタイミングでの湿性沈着イベントを捉えたと考えられる。3月7日や9日にも類似の機会があったと推測されるが、採取期間が長かったため沈着イベントとしては目立たないのかもしれない。

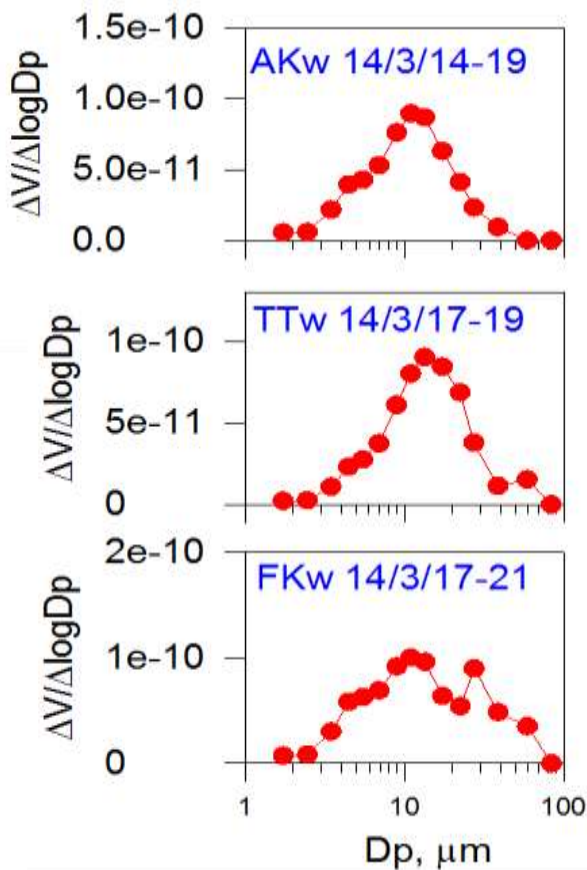


図(5)-11 松江上空のダスト粒子濃度鉛直分布(上段)と、鳥取での湿性(赤)・乾性(緑)沈着フラックス、最寄りのアメダス観測地点・湖山での特別降水量(青)

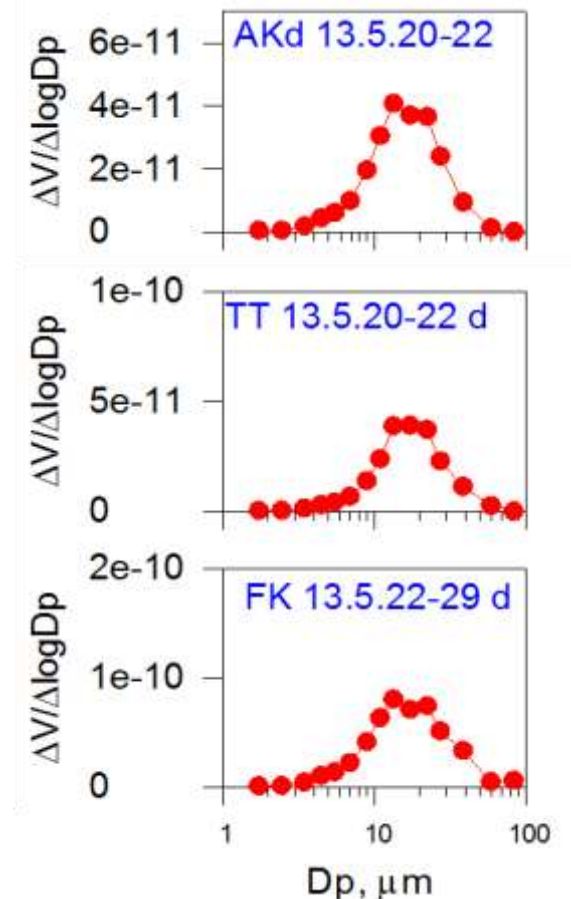


図(5)-12には、2014年3月17日頃の湿性沈着イベント期間に、秋田と鳥取、福岡で沈着物として採取されたダスト粒子の体積粒径分布を示す。3ヶ所ともに、5 $\mu\text{m}$ 付近の肩と10-15 $\mu\text{m}$ のモード径が共通して見られる特徴であり、鳥取と福岡では>20 $\mu\text{m}$ にも肩があるような粒径分布が得られた。この事例では、福岡で>20 $\mu\text{m}$ の割合が高くなっており、黄砂発生源に近いところほど大きな粒子が落ちる様子を想像させる。

次に、気象庁の観測では黄砂と認識されておらず、沈着フラックスとしても特に高いわけではないが、2013年5月20～22日にかけてのイベントについて、乾性沈着ダストの体積粒径分布を図(5)-13に示す。松江でのライダー観測によれば、この時期の5月20日に、高度1～3km上空を黄砂が通過していた。図(5)-12の湿性沈着と比べて、図(5)-13の乾性沈着の場合には、5 $\mu\text{m}$ 付近の肩が目立たない。またこの事例では、10～20 $\mu\text{m}$ に幅広いピークをもち、3ヶ所ともきわめてよく似た粒径分布を示しているところも、先の湿性沈着とは異なる。



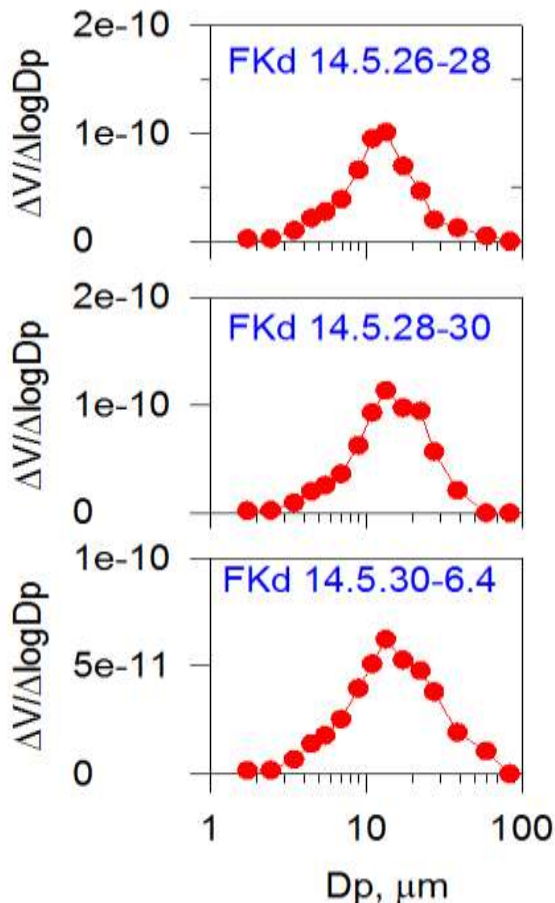
図(5)-12 2014年3月14～21日にかけて秋田 (AK), 鳥取 (TT), 福岡 (FK) で採取した湿性沈着ダストの体積粒径分布



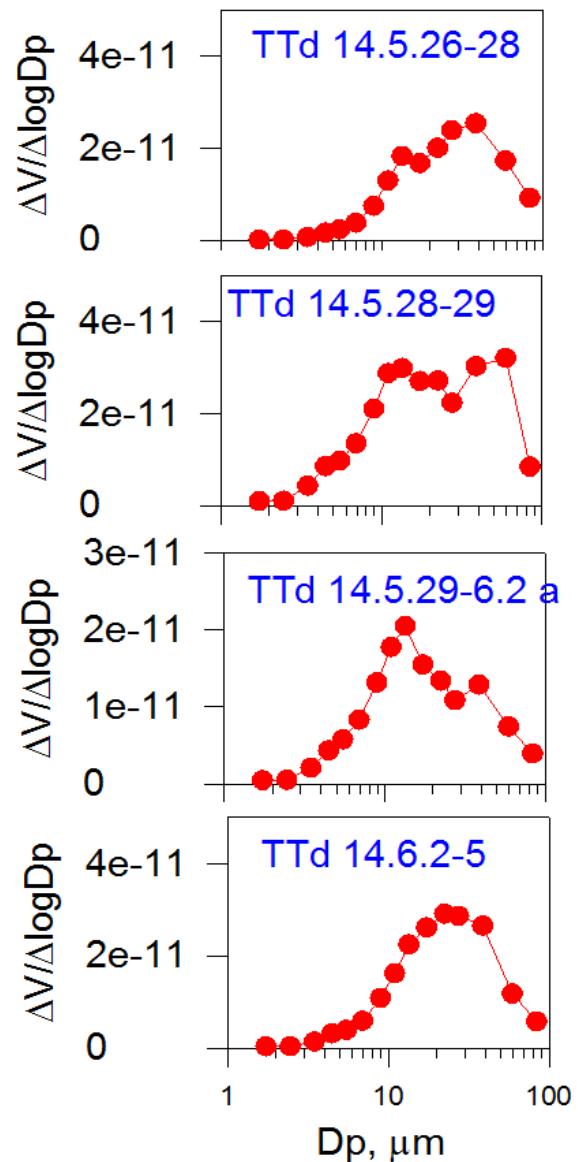
図(5)-13 2013年5月20～22日頃の乾性沈着試料の体積粒径分布

図(5)-14と-15には、2014年5月26-6月4日にかけて福岡と鳥取で採取した乾性沈着ダストの体積粒径分布を、同一地点での時系列変化の例として示す。図(5)-13で見たように、乾性沈着ダストの場合には10~15 $\mu\text{m}$ 付近と>20 $\mu\text{m}$ をモード径とする二峰の重ね合わせが多い。鳥取の5月26-28日や28-29日の例では、40 $\mu\text{m}$ 前後にもピークがあり、大きめの粒子が豊富な事例として興味深い。鳥取の場合には、鳥取砂丘などローカルな影響も考えられるが、図(5)-13のイベントで見られるように、鳥取だからと言って常時、大きなサイズの粒子が混入しているわけではないので、このイベント特有の粒径分布だったと考えられる。

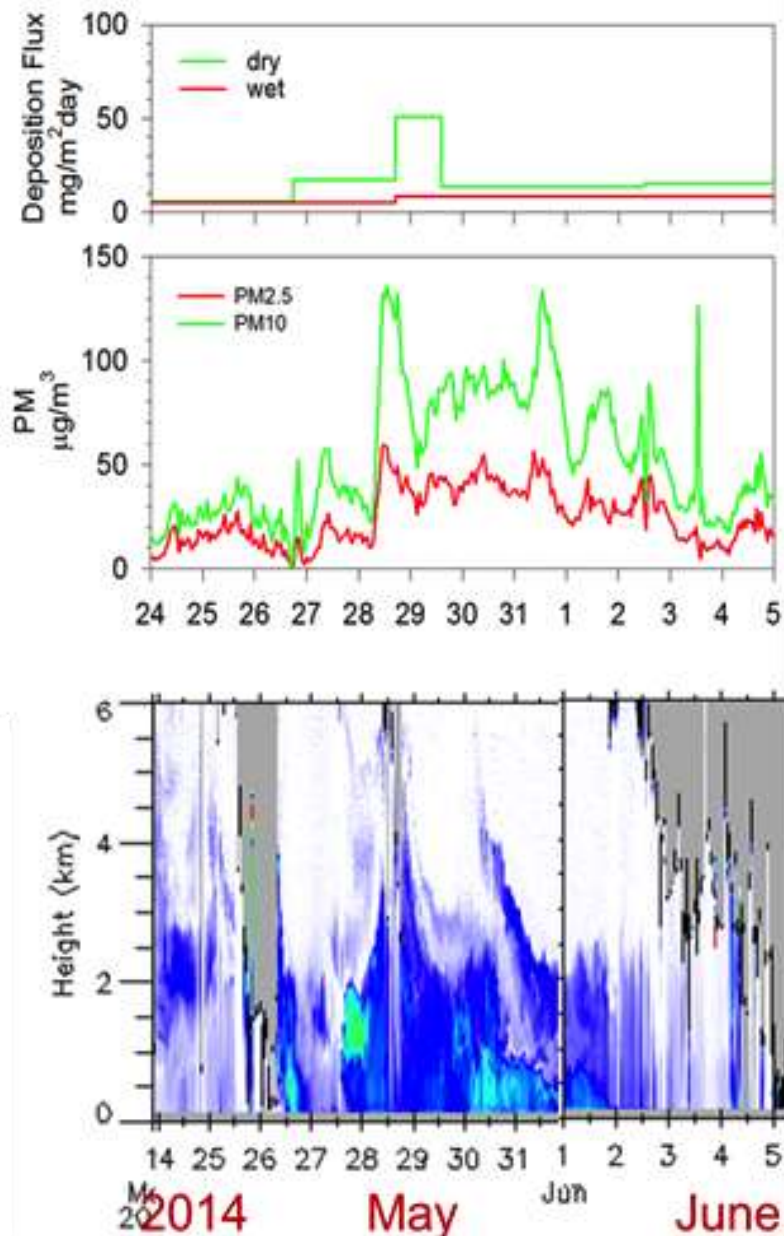
2014年5月下旬のイベントについて、特別に詳しく見るために、鳥取での沈着フラックスと大気中エアロゾル濃度、さらに、松江上空でのダスト濃度鉛直分布を見てみる(図(5)-16)。この期間中に乾性沈着フラックスが最も高かったのは5月28~29日にかけてのサンプルである。しかし、大気中のPM10濃度(PMc濃度も同様)は若干前倒しの5月28日がピークであった。沈着物の採取時間間隔が長いため、大気濃度との関係を議論す



図(5)-14 2014年5月26-6月4日にかけて福岡で採取した乾性沈着ダストの体積粒径分布



図(5)-15 2014年5月26日から6月5日にかけて鳥取で採取された乾性沈着ダストの体積粒径分布



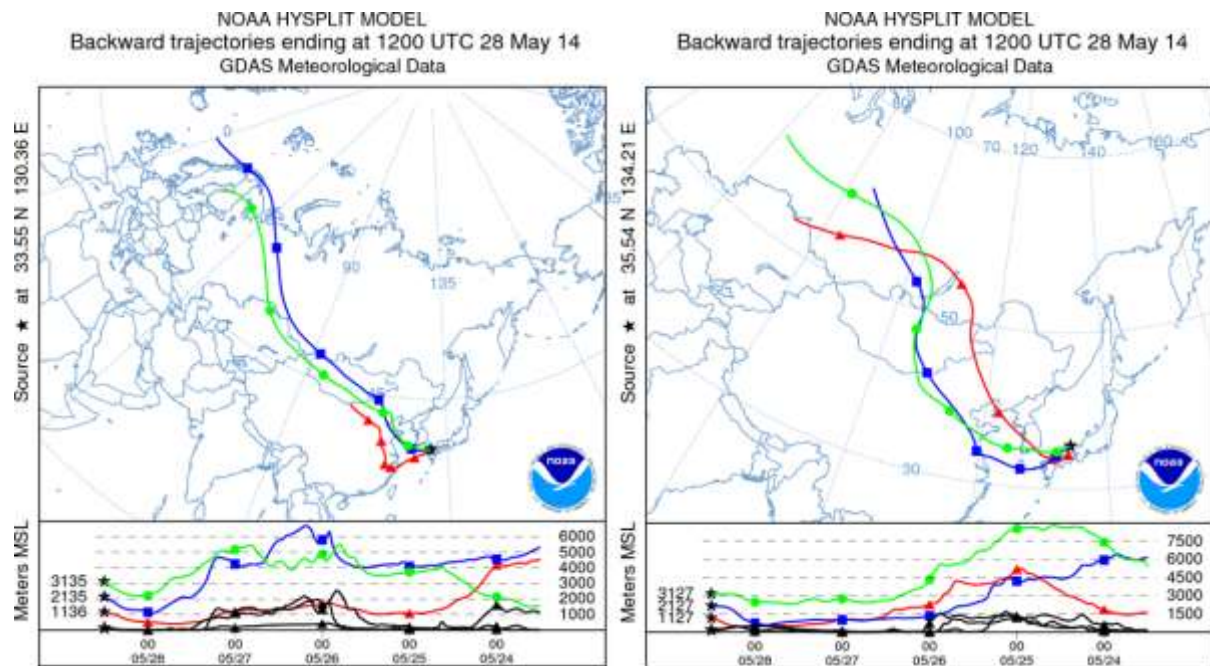
図(5)-16 鳥取大学乾燥地研究所でのダスト沈着フラックスと大気中PM10, PM2.5濃度, 松江でのライダー観測によるダスト濃度鉛直分布

るには注意が必要だが、両者はほぼ同時期もしくは沈着物のピークが少し遅れてピークに達していた。

松江上空の様子を見ると、28～29日にかけてダスト層が4km付近まで分布していることがわかる。これまでに、黄砂発生源からの輸送時間が短く、黄砂層上端の高さ高ければ、輸送途中での重力沈降による巨大粒子の損失があるとしても、日本へ巨大ダスト粒子が到達しやすくなることが示唆されている<sup>2)</sup>。5月28～29日のケースでも黄砂層の上端が高いので、より多くの巨大ダストが生き残り、生き残った巨大ダストが質量を稼ぐため、前後の期間に比べて沈着量が多くなった可能

性がある。一方、ダスト沈着量の多かった5月28日12UT時点からの5日間の後方流跡線解析の結果（図(5)-17）をみると、鳥取上空から遡った場合（右図）には、ダストの発生源からの輸送時間としては約3日もかかっていた。福岡からの後方流跡線解析では（図(5)-17の左）、2日弱と、比較的早く輸送されてきた高度も見受けられるが、鳥取からの後方流跡線では巨大粒子の存在を説明することが難しい。

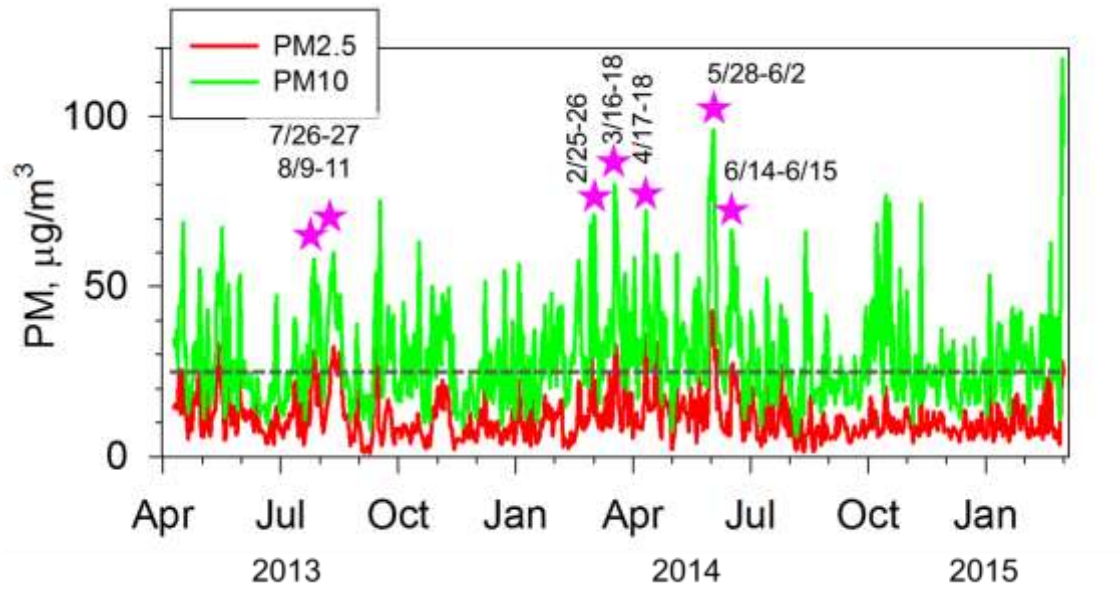
例えば密度 $2.6\text{g/cm}^3$ の球形粒子を考えると、直径 $10\mu\text{m}$ の粒子なら $673\text{m/day}$ の沈降速度なので、高度 $2\text{km}$ からの降下には約3日かかるはずだが、 $20\mu\text{m}$ では $2717\text{m/day}$ と、高度 $3\text{km}$ からでも約1日で落ちてしまう計算になる。従って、 $20\mu\text{m}$ 以上のダスト粒子が数日も大気中を輸送され続けることは、よほど高い高度まで持ち上げられない限り、あり得ない。常識的には考えにくいだが、 $100\mu\text{m}$ を超えるサイズのダスト粒子がハワイ沖まで大量に輸送された事例もある<sup>4)</sup>。鳥取だけでなく、福岡でのダスト粒子の粒径分布にも $20\mu\text{m}$ 以上の割合が多いので、西日本全体をある程度被うような範囲での現象と思われる。ハワイでの観測例も含めて、どのような大気現象なら巨大ダストの輸送が可能なのか、さらなる解析が待たれる。



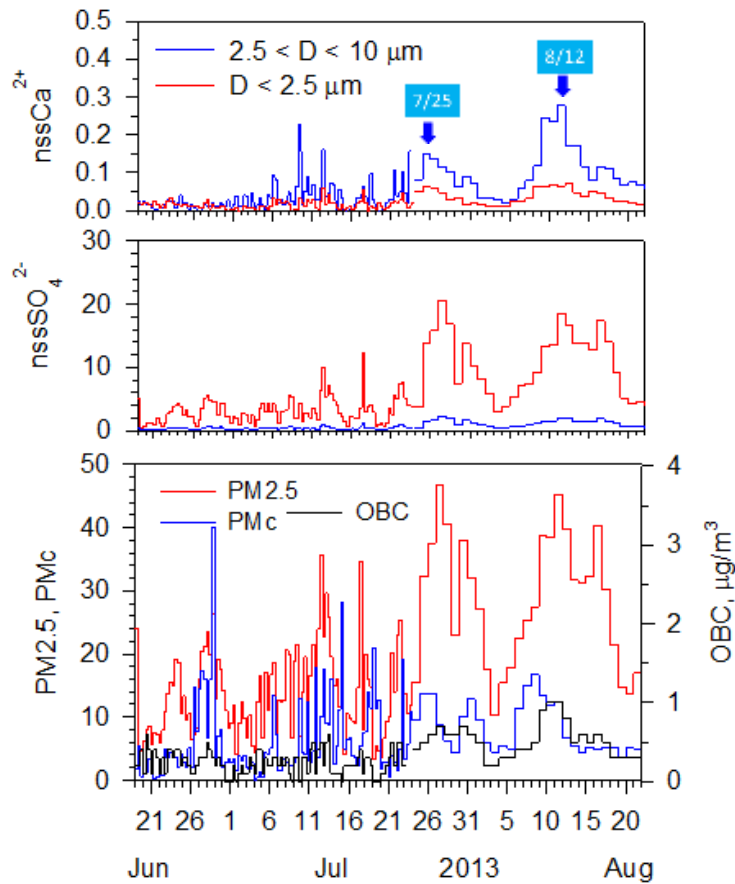
図(5)-17 福岡（左）と鳥取（右）上空の1000m、2000m、3000mから5日間の後方流跡線解析

### 3) 13年夏のPM2.5黄砂イベント

1)で見たように、ダストの沈着フラックスとしては夏に低い。本研究の観測期間である2013年の夏も、沈着ダスト量は春や秋に比べて少なかった。夏は太平洋高気圧に覆われていて、対流圏下部では南方からの空気塊の移流が卓越し、西方からの空気塊が日本付近に輸送されにくいのである。しかし日本上空の中～上部対流圏では、夏も中緯度大気の影響を受け続けており、その高度ではダスト粒子が飛来する可能性がある。



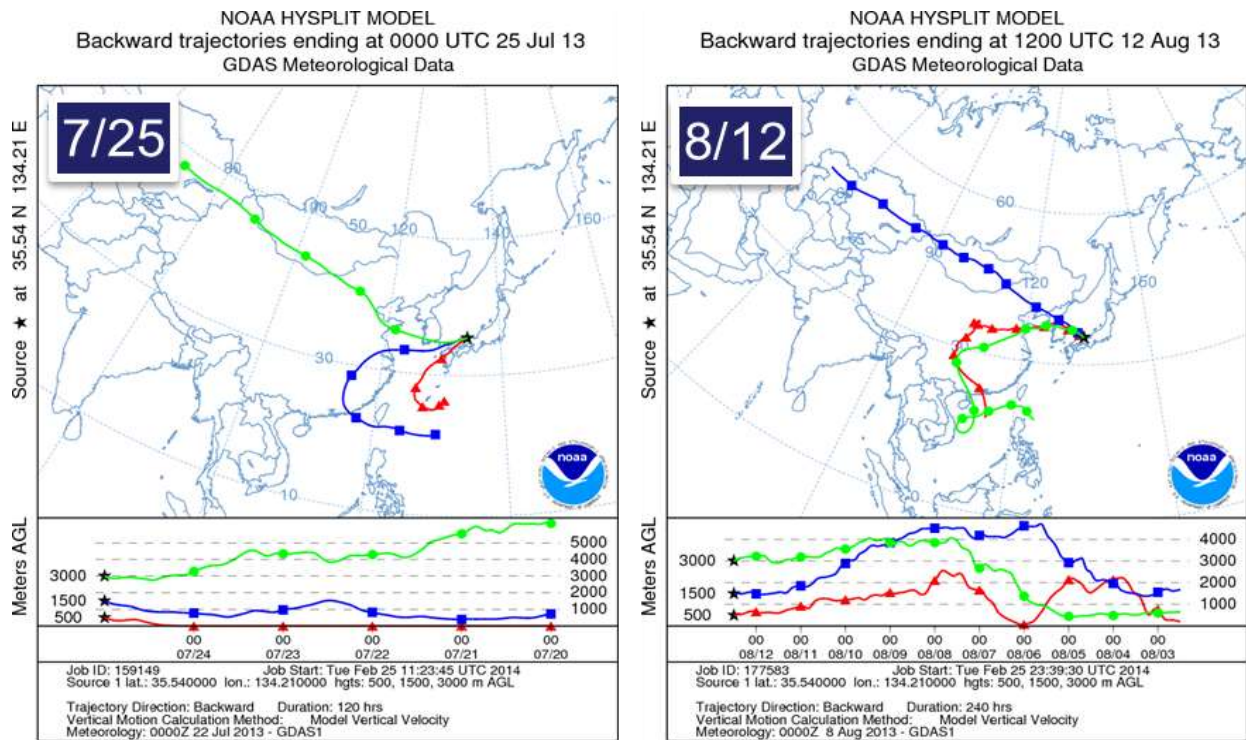
図(5)-18 鳥取での特別PM濃度 (PM10-PM2.5と、PM2.5の両方とも日平均値が $25\mu\text{g}/\text{m}^3$ を2日間連続で超えたイベントに星印を付けた)



図(5)-19 鳥取でのPM2.5, PMc, 粒径別エアロゾルイオン成分濃度



図(5)-21は、非海塩カルシウムイオン濃度が高かった2013年7月25日と8月12日から5日間さかのぼる後方流跡線を示す。7月25日の場合には、500mや1500m上空からのトラジェクトリでは台湾方面や中国南部からであるのに対し、3000m上空に飛来した空気は戈壁砂漠方面から輸送されてきていた。8月12日については、高度1500mからの空気塊のみが戈壁砂漠方面から輸送されてきており、500mや3000mへの空気塊は中国南部に起源をもつことが示唆されている。非海塩硫酸イオンなどの濃度が高いのは、中国南部から日本上空の下層に輸送されてきた空気塊に、大気汚染由来のPM2.5が多く含まれていたためであろうし、非海塩Ca濃度が高いという意味では、PM2.5黄砂を含むダスト粒子が日本上空に輸送されてきたためと考えられる。夏の日本上空は、陸地の日射加熱により、高度2000mを超えて3000m付近まで対流活動が活発となるので、上空3000m付近までの到達物であれば、地表付近まで輸送されてくるのが可能であろう。ただし、高さ方向に均一化される分、濃度としては薄まって見えるため、Ca濃度の絶対値としてはあまり高くならなかったと考えられる。

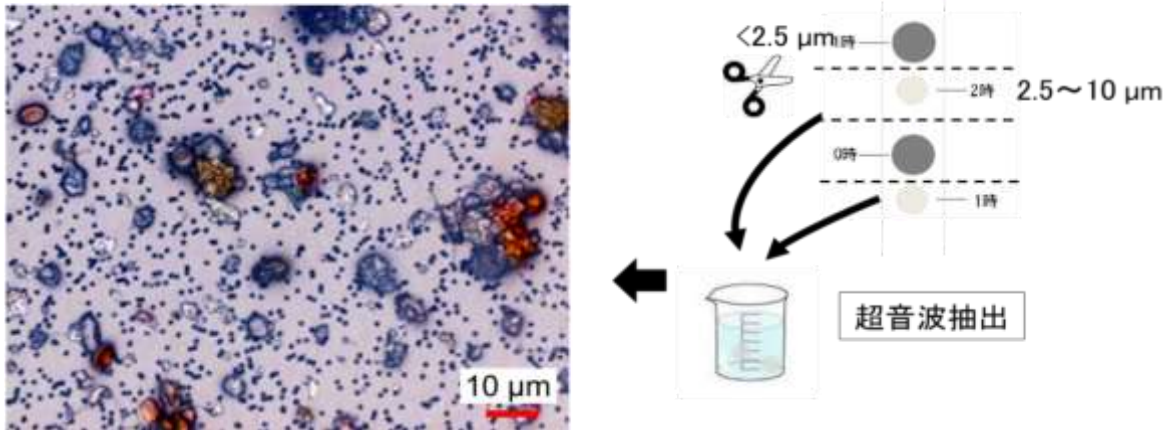


図(5)-21 2013年7月25日00UT (左) と8月12日12UT (右) を基点にした鳥取から5日間の後方流跡線 (NOAA HYSPLITによる)

ところで、この時期のダスト沈着量は、前後に比べてわずかに高い程度の上昇であった。この現象が「通過する黄砂」なのであれば、連続サンプリングのフィルター試料には黄砂粒子が捉えられているはずである。そこで、イオン分析した抽出液の残余水を、孔径 $1\mu\text{m}$ のヌクレポアフィルターで再ろ過し、顕微鏡で観察してみた (図(5)-22)。写真から明らかなように、無色あるいは有色の非球形粒子が多数観察された。残余水量が必ずしも一定ではないために、厳密な比較はできないが、Ca濃度の低い試料に比べてCa濃度の高い試料では、このような非球形粒子が多かった。

これらの期間について、ゴビ砂漠周辺ではダストイベントが報告されていないので、非海塩カルシウムをもたらしたダスト粒子の起源地域は、現時点で不明である。たとえ明確な起源地域が不明でも、夏の高PM2.5イベントの際に、PM2.5黄砂がわずかながらでも飛来していることは、非常に興味深い現象である。

### PMcフィルター上の粗大粒子



図(5)-22 PMcフィルターからの粒子再サンプリングと、2014年8月12日に採取した粗大粒子の顕微鏡写真



## 5. 本研究により得られた成果

### (1) 科学的意義

陸上のネットワーク観測により、湿性・乾性沈着する黄砂量と粒径分布を週～イベントレベルで調べることにより、黄砂の輸送・沈着現象の全体像を明らかにした。特に、黄砂の報告が少ない年においても年間で4～7g/m<sup>2</sup>も沈着しており、沈着ダストの体積粒径分布は10～15μmにモード径があることがわかった。さらに、今まで春が中心と思われてきたPM2.5黄砂が、夏にも飛来していたことを明らかにした。

### (2) 環境政策への貢献

#### <行政が既に活用した成果>

特に記載すべき事項はない。

#### <行政が活用することが見込まれる成果>

黄砂沈着量の地理的分布や粒径に関するデータ等の解析結果は、黄砂の予測モデルを検証し、改良するために役立つ。また、数値モデルによるシミュレーションにより、日本の陸地や周辺海域への沈着量分布を明らかにすることは、黄砂の環境影響評価に役立つと思われる。

## 6. 国際共同研究等の状況

特に記載すべき事項はない。

## 7. 研究成果の発表状況 ※【別添】H26年度研究等成果報告書作成要領 参照

### (1) 誌上発表

#### <論文(査読あり)>

- 1) K. Osada: Atmospheric Research, 124, 101–108 (2013)  
“Water soluble fraction of Asian dust particles,”
- 2) K. Osada, S. Ura, M. Kagawa, M. Mikami, T. Y. Tanaka, S. Matoba, K. Aoki, M. Shinoda, Y. Kurosaki, M. Hayashi, A. Shimizu, and M. Uematsu: Atmospheric Chemistry and Physics, 14, 1107–1121 (2014)  
“Wet and dry deposition of mineral dust particles in Japan: factors related to temporal variation and spatial distribution,”
- 3) 長田和雄、低温科学/北海道大学低温科学研究所、72巻、15–19 (2014)  
「ダスト粒子と水溶性物質との内部混合」

#### <その他誌上発表(査読なし)>

特に記載すべき事項はない

### (2) 口頭発表(学会等)

- 1) 長田和雄・DRAEMONグループ: 第30回エアロゾル科学・技術研究討論会 (2013年)

「通過する黄砂と沈着する黄砂」

- 2) 鈴木慶・長田和雄：日本気象学会2014年度春季大会（2014）  
「粗大粒子中の硝酸塩：ニトロン薄膜方を用いた個別定量法の検討」
- 3) 飯村真有・長田和雄：日本気象学会2014年度春季大会（2014）  
「沖縄・辺戸岬で採取した乾性・湿性沈着物中の球状炭化粒子」
- 4) K. Osada: International conference on Atmospheric dust 2014, Castellaneta Marina (TA), Italy (2014)  
“、Water soluble fraction of Asian dust particles”
- 5) K. Osada, S. Ura, M. Kagawa, M. Mikami, T. Y. Tanaka, S. Matoba, K. Aoki, M. Shinoda, Y. Kurosaki, M. Hayashi, A. Shimizu, and M. Uematsu: International conference on Atmospheric dust 2014, Castellaneta Marina (TA), Italy (2014)  
“Wet and dry deposition of mineral dust particles in Japan: Factors related to temporal variation and spatial distribution”
- 6) 長田和雄・黒崎泰典：第31回エアロゾル科学・技術研究討論会（2014）  
「鳥取における2013年夏期のエアロゾル高濃度イベントについて」

### （3）出願特許

特に記載すべき事項はない。

### （4）「国民との科学・技術対話」の実施

特に記載すべき事項はない。

### （5）マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項はない。

### （6）その他

特に記述すべき事項はない。

## 8. 引用文献

- 1) 浦 幸帆, 長田 和雄, 香川 雅子, 三上 正男, 的場 澄人, 青木 一真, 篠田 雅人, 黒崎 泰典, 林 政彦, 清水 厚, 植松 光夫: エアロゾル研究, 26, 234-241 (2011)  
「非水溶性大気沈着物中のFe含有量を用いた鉍物質ダスト量の推定」
- 2) K. Osada, S. Ura, M. Kagawa, M. Mikami, T. Y. Tanaka, S. Matoba, K. Aoki, M. Shinoda, Y. Kurosaki, M. Hayashi, A. Shimizu, and M. Uematsu: Atmospheric Chemistry and Physics, 14, 1107-1121 (2014)  
“Wet and dry deposition of mineral dust particles in Japan: factors related to temporal variation and spatial distribution,”
- 3) K. Osada, S. Ura, M. Kagawa, M. Mikami, T. Y. Tanaka, S. Matoba, K. Aoki, M. Shinoda,

- Y. Kurosaki, M. Hayashi, A. Shimizu, and M. Uematsu: SOLA, 7, 49-52 (2011)  
“Temporal and spatial variations of wet deposition flux of mineral dust in Japan”
- 4) P.R. Betzer, K. L. Carder, R. A. Duce, J. T. Merrill, N. W. Tindale, M. Uematsu, D. K. Costello, R. W. Young, R. A. Feely, J. A. Breland, R. E. Bernstein, and A. M. Greco: Nature, 336, 568-571, doi:10.1038/336568a0 (1988)  
“Long-range transport of giant mineral aerosol particles”

## **Integrated Observational and Modeling Study on Kosa Impacts throughout Japan for the Japanese PM2.5 Regulations**

Principal Investigator: Nobuo SUGIMOTO

Institution: National Institute for Environmental Studies (NIES)  
16-2 Onogawa, Tsukuba-City, Ibaraki 305-8506, JAPAN  
Tel: +81-29-850-2459 / Fax: +81-29-851-4732  
E-mail: nsugimot@nies.go.jp

Cooperated by: Tokyo Metropolitan Research Institute for Environmental Protection, Meteorological Research Institute, University of Tokyo, Nagoya University

[Abstract]

Key Words: Asian dust, Aerosol, Internal mixing, External mixing, Dust PM2.5, Polluted dust, Lidar observation network, Dust forecast model, Transport, Deposition

Asian dust emitted in the Gobi desert is often transported through heavily polluted areas and mixed with air pollution particles. Some of recent epidemiological studies reported health effects of mixed dust were larger than pure dust. Characterizing the mixing states of Asian dust and air pollution particles (external mixing and internal mixing) is indispensable for further studies of health effects of Asian dust. It is also important to monitor the fraction of Asian dust in PM2.5 for PM2.5 regulation.

Three-dimensional distribution of Asian dust and air pollution particles was continuously observed with the network of ground-based polarization-sensitive lidars (AD-Net). At the same time, continuous observation with an in-situ polarization particle counter (POPC) that can measure size and non-sphericity of single particles was performed in Seoul, and the characteristics of pure Asian dust, externally mixed dust, and internally mixed (polluted) dust were revealed. A method for characterizing the mixing states using the lidar derived particle depolarization ratio and backscattering color ratio was validated by comparison with the POPC. A method for estimating dust fraction in PM2.5 using the ratio of PM2.5 to PM10 (or SPM) data was formulated. Also, empirical conversion factors for estimating dust PM2.5 and air pollution PM2.5 from lidar-derived dust extinction coefficient and spherical aerosol extinction coefficient were determined.

Chemical compositions of aerosols were studied in Ulaanbaatar (a mega city near dust source areas) and Tokyo, and the difference in compositions was studied. A correlation method suggested  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^-$ , and  $\text{F}^-$  were internal mixed with dust in Ulaanbaatar.

Deposition of Asian dust was studied on Research Vessel Hakuho Maru.

Long-range transported Asian dust was observed in the Pacific Ocean. About 50% of dust with diameter larger than  $0.7 \mu\text{m}$  was internally mixed with sea salt, and an acceleration of deposition by internal mixing was suggested. Dry and wet deposition in Japan was observed with a deposition-monitoring network, and the seasonal and areal features of deposition were studied.

The chemical transport model MASINGAR was improved to calculate PM<sub>2.5</sub> for dust and other major aerosols components. Dust emission in the Gobi Desert was improved by an inverse method using observation data. Dust size distribution parameters were also improved based on the deposition-monitoring network data. Dust emission and deposition were estimated with a long-term calculation with MASINGAR. Dust emission in the Gobi desert was 300-600 Tg/year, and approximately 5% was deposited in the area (130-150 E, 30-50 N) surrounding Japan.