

平成 30 年 6 月 13 日現在

機関番号：13501

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K06269

研究課題名(和文) 複数の山岳観測拠点をネットワーク化した越境輸送微粒子の動態監視システムの構築

研究課題名(英文) Long range transported aerosol particle monitoring system with observation network in mountain sites

研究代表者

小林 拓 (KOBAYASHI, Hiroshi)

山梨大学・大学院総合研究部・准教授

研究者番号：20313786

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：越境輸送微粒子のイベントを捉えるために、偏光光散乱式粒子数計測器(以下偏光OPC)を山岳域を含め東アジア各地に設置し、観測ネットワークを構築した。また、リアルタイムに公開するwebシステムも作成した。複数地点での観測結果を用いた越境輸送イベントの抽出法の検討、および、偏光OPCによる組成毎の質量濃度推定方法の検討を実施した。  
設定したしきい値を超えた期間が複数地点で重なった期間を越境輸送イベントと判断した。他の観測結果と整合した結果が得られた。粒径区分の見直しおよび組成毎の複素屈折率を考慮した応答関数を用いたところ、質量濃度の推定に大幅な改善がみられた。

研究成果の概要(英文)：To monitor long range transported aerosol particle event, a polarization optical particle counter (hereinafter referred to as POPC) was installed in various sites of East Asia including the mountains. The POPC's observation network was constructed. We also created a web system of the measurement result released in real time. Examination of extraction method of long range transport events using observation results at multiple points and examination of mass concentration estimation method for each composition by POPC were carried out.

A period in which the period exceeding the set threshold overlapped at multiple points was judged as a long range transport event. Results consistent with other observation results were obtained. Using the response function considering the finer particle size range and the complex refractive index for each composition was used, the mass concentration estimation was greatly improved.

研究分野：土木環境システム

キーワード：越境輸送微粒子 偏光光散乱式粒子計測装置 山岳域 鉱物粒子 潮解性粒子 観測ネットワーク

## 1. 研究開始当初の背景

近年、PM<sub>2.5</sub>という言葉が報道を通して、広く社会一般に知られるようになり、越境輸送される微粒子への関心が高まっている。日本は偏西風帯に位置し、人間活動に伴って排出された人為起源の微粒子や砂漠で舞い上げられた黄砂粒子などの微粒子が、大陸から飛来している。微粒子は、太陽放射を散乱・吸収し地球の放射収支に影響を与え、気候変動を引き起こす。また、微粒子のうち粒径が2.5μm以下の微小粒子はPM<sub>2.5</sub>と呼ばれ、人体や植物に影響を与えると指摘されており、平成21年に環境基準が設けられた。自由対流圏とよばれる高度1km以上の上空に巻き上げられた微粒子は、日本、北太平洋、さらに北米大陸にまで越境輸送され、半球規模で環境に影響を与える可能性が指摘されており、その量や組成に関する動態の解明が求められている。

微粒子の観測体制として、各自治体にPM<sub>2.5</sub>の測定器が設置され、全国的な観測網が構築されている。しかし、これらの測定局は、平野部に限られている。また、環境基準が質量濃度で定義されているため、多種多様な微粒子が存在し、微粒子による気候影響や環境影響は、その組成や粒径に強く依存するにも関わらず、それらを一括して測定している。一方、自由対流圏中の微粒子を観測する手法として、航空機観測やリモートセンシングによる方法があるが、前者は長期にわたる連続観測ができず、後者は天候の影響を受け測定できないことがある。山岳を利用した場合、標高や山体の形状により山麓の大気の影響を受ける可能性があるが、長期間にわたる連続観測を実施できる。

## 2. 研究の目的

本研究代表者は、微粒子の粒径別大気濃度を測定するとともに、微粒子の偏光特性の違いを利用して微粒子の組成に関する情報も同時に取得する偏光を利用した光散乱式粒子数計測器(以下偏光OPCと呼ぶ)の開発を進めてきた(Kobayashi *et al.*, 2014)。偏光OPCは、硫酸塩や硝酸塩といった人為起源微粒子や海塩粒子、黄砂のような鉱物粒子を分離して、粒径別の濃度を推定することができる(鷹取ら, 2015)。本研究代表者は、偏光OPCによる富士山頂での夏季集中観測や木曾駒ヶ岳千畳敷での通年観測を実施している。越境輸送される微粒子を監視するためには、単独の観測拠点では、拠点近傍で局所的に発生した微粒子の影響を評価し、区別することが困難である。そこで本研究では、複数の山岳観測拠点を設け、拠点間の気塊の移動時間を考慮した時系列データの統計解析を実施することで、越境輸送される微粒子の動態を明らかにすることを目的としている。

偏光OPCは、粒径区分の代表径と各成分の

密度から各組成の質量濃度を推定しているが、従来のOPCでよく使用されている荒い粒径区分(0.5μm~10μmを4区分)を用いたため、粒径により代表径との差が大きくなる可能性があった。また、粒径は校正時に使用するポリスチレンラテックス粒子(PSL粒子)相当径を使用したため、複素屈折率が異なる粒子に対しては、粒径の推定誤差が大きくなってしまう。そこで粒径区分の見直しや、推定した組成ごとに複素屈折率を設定し粒径を推定することにより、質量濃度の推定方法の改良を実施した。また、偏光OPCで測定された偏光度を散乱理論により求めた理論値との比較・評価した。

## 3. 研究の方法

### (1) 偏光OPCによる観測ネットワーク構築

空間的・時間的に広範囲にわたる越境輸送エアロゾルの観測を行うため、偏光OPCを東アジアの複数地点に設置し、ネットワークPOPCARN (POPC Aerosol monitoring Network)を構築している。現在、福岡大学(福岡県福岡市, 33.55N, 130.36E, 18mASL)、九州大学(福岡県春日市, 33.52N, 130.47E, 28mASL)、近畿大学(大阪府東大阪市, 34.65N, 135.59E, 5mASL)、山梨大学(山梨県甲府市, 35.68N, 138.57E, 306mASL)、木曾駒ヶ岳千畳敷(長野県駒ヶ根市, 35.78N, 137.81E, 2642mASL)に設置された偏光OPCの測定データは通年を通して随時データ転送している。富士山頂(35.36N, 138.73E, 3776mASL)は、夏期集中観測期間である7月中旬~8月中旬のみ設置しており、設置期間中は随時データ転送している。

システムの試験運用をセキュリティの観点から研究室のLANにUbuntu Server 14.04.3 LTSをインストールしたサーバを設置し、5分ごとに転送されるデータの選択とそのデータのグラフ化、また多地点の観測結果を一括して比較可能なウェブサイト構築した。その後、山梨大学の仮想化サーバにシステムを移設し、各地に設置した偏光OPCからファイル転送ソフトFTPpushにより、データファイルをサーバに転送できるように設定した。グラフ生成スクリプトは、タイムスタンプによって最新のファイルを選択しているが、転送に失敗した場合にも対応できるようにファイル名の日時を参照してファイル指定するように設定した。また、FTPpushが応答無しになりデータ転送が中断されていることがあった。海塩粒子、鉱物粒子、人為起源粒子ごとの質量濃度を算出し、グラフを生成し、過去のデータを含めて閲覧できるwebサイト(<http://popcarn.yamanashi.ac.jp/>)を構築した。

### (2) 複数地点での観測結果を用いた越境輸送イベントの抽出法の検討

2016年3~7月、2016年10月~2016年12月、2017年3~5月の福岡、大阪、甲府の観

測データを用いて越境輸送イベント抽出法の検討を行った。各地点1ヶ月のデータを1時間毎に平均をとり平滑後、ヒストグラムから閾値を上位20%に設定し、その閾値を超えた期間を越境輸送の可能性のある期間とした。その後、3地点を比較することでローカルな影響を取り除き、複数箇所でも同時期にみられた場合を越境輸送イベントとした。

### (3) 偏光 OPC による組成毎の質量濃度推定方法の検討

#### ・解析に使用したデータ

九州大学応用力学研究所（福岡県春日市）に設置された偏光 OPC および大気エアロゾル化学成分連続自動分析装置（紀本電子工業、ACSA-12）のデータを使用した。データ期間は、人為起源粒子が相対的に増加する2017年1～2月、黄砂が飛来する2017年5月、海塩粒子が相対的に増加する2017年8月である。

#### ・粒径区分範囲細分化

Mie 散乱理論に基づいて PSL 粒子（複素屈折率： $1.590-1.000e-7i$ ）に対する粒径と散乱光強度の関係（応答関数と呼ばれている）を算出した。Mie 散乱理論に用いたパラメータは、光軸交角： $60.0^\circ$ 、集光半角： $22.5^\circ$ 、集光角度： $37.5-82.5^\circ$ 、波長： $780\text{nm}$  である。粒径は、 $0.5-13\mu\text{m}$  の範囲を対数的に等間隔に1500点設定した。

#### ・組成毎に複素屈折率設定

人為起源粒子、鉱物粒子、海塩粒子それぞれに複素屈折率を仮定し、前節と同様に応答関数を算出した。複素屈折率はそれぞれ  $1.353-3.603e-9i$ 、 $1.550-5.500e-3i$ 、 $1.373-3.881e-9i$  とした。

#### ・測定された偏光度の評価

標準粒子（ $0.5\mu\text{m}$ ,  $1\mu\text{m}$ , JSR ライフサイエンス;  $3\mu\text{m}$ , ThermoSCIENTIFIC;  $5\mu\text{m}$ ,  $10\mu\text{m}$ , 積水化学工業株式会社）を POPC に導入し、偏光度を測定した。偏光度の理論値は2-2節の Mie 散乱理論の計算結果から算出した。

## 4. 研究成果

### (1) 複数地点での観測結果を用いた越境輸送イベントの抽出法の検討

本研究で用いた手法により、測定した濃度が設定したしきい値を超えた期間を抽出し、その期間の重なりを判定した（図1）。赤が3地点、青が2地点重なっていた期間である。設定したしきい値では、気象庁による視程観測でも観測されるような高濃度イベント期間については全ての期間において抽出できていた。これは環境省が展開しているライダー観測ネットワークの観測結果や NOAA の HYSPLIT モデルによる後方流跡線からも越境輸送であると判断できた。2016年6、7月及び2017年1、2月は、抽出された期間に対し、ライダーの測定結果や後方流跡線解析結果と比較したところ、越境輸送されたイベン

トの可能性は低かった。各月ごとにしきい値を設定していたため、各成分の濃度が低い時期は、相対的に低い濃度でも高濃度イベントとして判定されたと考えられる。今後は、時期を分けずに年間を通してしきい値を設定する予定である。

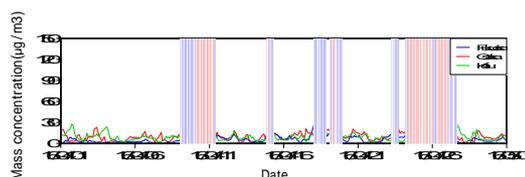


図1 2016年4月に福岡市、東大阪市、甲府市で測定された鉱物粒子の質量濃度の時間変動。設定したしきい値を超えた期間が3地点とも重なっている期間を赤色で、2地点重なっている期間を青色で示す。

### (2) 偏光 OPC による組成毎の質量濃度推定方法の検討

Mie 散乱理論を用いて計算した応答関数を図2に示す。Mie 散乱による振動の影響を避け、従来の区分範囲に加え、図中に赤色と青色で示した点で示した20区分を新たな粒径区分とした。

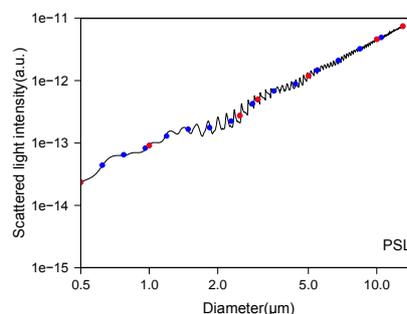


図2 Mie 散乱理論により求めた PSL 粒子の粒径に対する散乱光強度の応答関数。赤色および青色の点が新たなしきい値を示す。

本研究により決定した新たな粒径区分および組成ごとに設定した応答関数を用いて、各組成の質量濃度を算出した。その結果、改良前と比較し人為起源粒子の質量濃度は約3倍、鉱物粒子、海塩粒子は10%程度増加した。人為起源粒子の増加分が特に大きい。これは校正に使用している PSL 粒子の複素屈折率の実数部に対し、人為起源粒子の複素屈折率の実数部として使用した値が小さく、同じ光散乱強度の場合、PSL 粒子相当径より大きな粒径を推定したためである。

今回の質量濃度推定法の改良により大幅に推定濃度が増加した人為起源粒子の質量濃度の妥当性を評価するために ACSA-12 の測定結果との比較を行った。POPC での測定において潮解性微小粒子を人為起源粒子として扱っているため、ACSA-12 で測定された  $f\text{WSOC}$ 、 $f\text{SO}_4^{2-}$ 、 $f\text{NO}_3$  から硫酸アンモニウムおよび硝酸アンモニウム、有機エアロゾルの

質量濃度を推定し、それらの和を比較に用いた。硫酸イオン及び硝酸イオンは、それぞれすべて硫酸アンモニウム及び硝酸アンモニウムとして存在すると仮定した。ACSA-12で測定されるWSOCは $C_2O_4^{2-}$ であるため、水溶性有機炭素成分に換算し、WSOC/OCが0.3 (Salma et al., 2007)、OM/OCが1.9 (Polidori et al., 2008)と設定し有機エアロゾルの質量濃度を推定した。比較結果を図3に示す。1～2月の冬季は、ほぼ1:1の関係を示したが、5、8月は、POPCから推定した値が低くなる傾向を示した。ACSA-12の結果から、冬季と比較し夏季は硫酸イオン濃度は高いが、硝酸イオンと水溶性有機炭素濃度は低い傾向がみられた。この組成の違いが関係していると考えられるが、詳細なメカニズムは不明である。

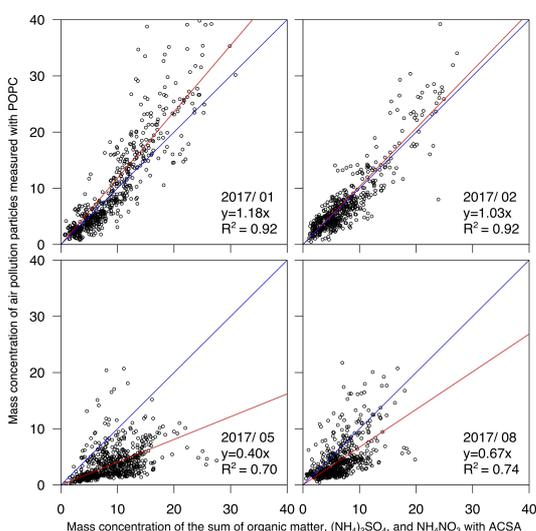


図3 偏光 OPC から導出した人為起源粒子の質量濃度と ACSA-12 で観測された水溶性エアロゾルの質量濃度の和との相関関係。

偏光 OPC で測定した PSL 粒子の偏光度と Mie 散乱理論から推定した理論値とを比較した (図4)。概ね一致しており、偏光 OPC により偏光度の測定の妥当性が確認できた。0.5 $\mu$ m の偏光度は実測値が高めであったが、偏光成分の光強度が検出限界に近く測定値がばらついたためと考えられる。

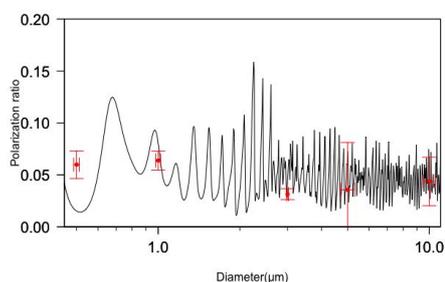


図4 Mie 散乱理論により算出した PSL 粒子の偏光度。点は偏光 OPC で測定した値を示す。

## 参考文献

Kobayashi, H., Hayashi, M., Shiraiishi, K., Nakura, Y., Enomoto, T., Miura, K., Takahashi, H., Igarashi, Y., Naoe, H., Kaneyasu, N., *Atmos. Environ.*, 97, 486–492, 2014.

鷹取翔, 小林拓, 松本潔, *エアロゾル研究*, 30, 270–274, 2015.

Salma, I., Ocskay, R., Chi, X., Maenhaut, W., *Atmos. Environ.*, 41, 4106–4118, 2007.

Polidori, A., Turpin, B. J., Davidson, C. I., Rodenburg, L. A., Maimone, F., *Aerosol Sci. Technol.*, 42, 233–246, 2008.

## 5. 主な発表論文等

(雑誌論文)(計 8件)

Hara, Y., T. Nishizawa, N. Sugimoto, I. Matsui, X. Pan, H. Kobayashi, K. Osada, and I. Uno (2017), Optical properties of mixed aerosol layers over Japan derived with multi-wavelength Mie–Raman lidar system, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 188, 20–27, doi: <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2016.06.038>. (査読有)

Pan, X., Uno, I., Wang, Z., Nishizawa, T., Sugimoto, N., Yamamoto, S., Kobayashi, H., Sun, Y., Fu, P., Tang, X., Wang, Z. (2017), Real-time observational evidence of changing Asian dust morphology with the mixing of heavy anthropogenic pollution, *Scientific Reports*, 7(1), 335, doi: 10.1038/s41598-017-00444-w. (査読有)

Wang, Z., Pan, X., Uno, I., Li, J., Wang, Z., Chen, X., Fu, P., Yang, T., Kobayashi, H., Shimizu, A., Sugimoto, N., Yamamoto, S. (2017), Significant impacts of heterogeneous reactions on the chemical composition and mixing state of dust particles: A case study during dust events over northern China, 159, 83–91, *Atmospheric Environment*, doi: <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2017.03.044>. (査読有)

鵜野伊津志, X. Pan, 板橋秀一, 弓本桂也, 原由香里, 栗林正俊, 山本重一, 下原孝章, 田村圭, 緒方美治, 長田和雄, 上口友輔, 山田早紀, 小林拓 (2016), 九州北部で2014年5月下旬から1週間継続した黄砂と高濃度大気汚染現象のオーバービュー, *大気環境学会誌*, 51(1), 44–57, doi: 10.11298/taiki.51.44. (査読有)

Pan, X., I. Uno, Y. Hara, K. Osada, S. Yamamoto, Z. Wang, N. Sugimoto, and H. Kobayashi (2016), Polarization properties of aerosol particles over western Japan: classification, seasonal variation, and implications for air quality, *Atmospheric*

Chemistry and Physics, 16(15), 9863-9873, doi: 10.5194/acp-16-9863-2016. (査読有)

Pan, X., I. Uno, Y. Hara, M. Kuribayashi, H. Kobayashi, N. Sugimoto, S. Yamamoto, T. Shimohara, and Z. Wang (2015), 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, Geophysical Research Letters, 42(5), 1593-1598, doi: 10.1002/2014GL062491. (査読有)

Sugimoto, N., T. Nishizawa, A. Shimizu, I. Matsui, and H. Kobayashi (2015), Detection of internally mixed Asian dust with air pollution aerosols using a polarization optical particle counter and a polarization-sensitive two-wavelength lidar, Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 150, 107-113, doi: <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2014.08.003>. (査読有)

鷹取翔, 小林拓, 松本潔 (2015), 偏光光散乱式粒子数計測装置による鉱物粒子濃度推定方法の検討, エアロゾル研究, 30(4), 270-274, doi: 10.11203/jar.30.270. (査読有)

〔学会発表〕(計 1件)

沖由裕, 小林拓, 林政彦, 原圭一郎, 西田千春, 財前祐二, 五十嵐康人, 三浦和彦, 西澤智明, 杉本伸夫, 東アジアにおける越境輸送大気エアロゾルモニタリングのための偏光OPCによる観測ネットワーク構築, 第57回大気環境学会年会, 2016年9月7日, 北海道大学(北海道札幌市).

〔産業財産権〕

取得状況(計 1件)

名称: 粒子測定装置  
発明者: 林 政彦, 小林 拓, 名倉 義信  
権利者: 学校法人福岡大学, 国立大学法人山梨大学, 株式会社山梨技術工房  
種類: 特許  
番号: 特許第 5717136 号  
取得年月日: 2015年3月27日  
国内外の別: 国内

〔その他〕

偏光光散乱式粒子計測装置による観測ネットワーク  
<http://popcam.yamanashi.ac.jp/>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

小林 拓 (KOBAYASHI, Hiroshi)  
山梨大学・大学院総合研究部・准教授

研究者番号: 20313786

### (2) 研究分担者

なし

### (3) 連携研究者

なし

### (4) 研究協力者

沖 由裕 (OKI, Yoshihiro)

石井 雄太 (ISHI, Yuta)