

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年5月30日現在

機関番号：27401

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2009～2011

課題番号：21510021

研究課題名（和文）乾性沈着により東シナ海域に供給される鉱物粒子の性状及びフラックス

研究課題名（英文）Characteristics and flux of minerals input into the East China Sea by dry deposition

研究代表者

張 代洲 (ZHANG DAIZHOU)

熊本県立大学・環境共生学部・教授

研究者番号：90322726

研究成果の概要（和文）：

黄砂粒子は東シナ海を横断する際に海塩との結合により大きくなることが確認された。地上へ落下した黄砂粒子は中国沿岸ではほぼ鉱物のままであるが、九州西岸では海塩・硫酸塩・硝酸塩・塩酸塩を含んだ粒子へと変化していた。その結果、九州西岸での鉱物落下フラックスは数～十数パーセント大きくなることが分かった。水溶性鉄は僅かに検出されたが、それらが粒子中の塩類に関わることは確認されなかった。また、比較的小さい黄砂粒子中の鉄の量が多く、大きい黄砂粒子中にカルシウムの量が多くなる傾向があることが分かった。

研究成果の概要（英文）：

Asian dust particles grew in size during they passed the East China Sea to Japan due to the adherence by sea salt. At the western coast areas of Kyushu areas of Japan, dust particles settling to the surface mixed with sea salt, sulfate, nitrate and chloride in contrast to that particles settled at the coast areas of China were clean (meaning rare contents of the secondary salts). Because of the change of dust particles, dust flux to the surface at Kyushu coast became larger by the factor of several to tens of percentage in comparison with the cases when dust particles did not change. Water-soluble iron was detected in a small number of dust particles and no correlation of its content with the salt was identified. In addition, iron tended to accumulate in smaller particles while calcium tended to in larger particles.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	1,700,000	510,000	2,210,000
2010年度	1,200,000	360,000	1,560,000
2011年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
総計	3,600,000	1,080,000	4,680,000

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：環境学・環境動態解析

キーワード：環境分析・大気現象・アジア黄砂・乾性沈着

1. 研究開始当初の背景

(1)学術背景：大陸起源の鉱物粒子が大気を介

して海への落下することは、海洋生態系の進化と維持に重大な働きをもたらしている。北

太平洋での調査により、海へ落下した黄砂粒子は海水中のプランクトンに栄養塩を供給し、プランクトンの成長と増殖を促すことが確認されている。ハワイでの調査により、大気から黄砂の絶え間ない供給によって島の表層土壌は河川により徐々に浸食されても劣化していないこともわかっている。これらの影響及びそのメカニズムを探るためには、地上付近又は海面に落下してきた黄砂粒子の性状及びその落下により海洋生態系に供給された鉱物栄養塩の実態とフラックスが不可欠な情報であると考えられる。

(2)これまでの研究：近年、黄砂の沈着により海に供給された鉱物栄養塩(主に鉄)の性状が注目されている。モデルの計算では、大気中に浮遊している黄砂粒子は、二酸化硫黄や窒素酸化物などの酸性物質の吸収により変質し、それに伴い粒子中的一部分の鉱物成分が非水溶性から水溶性に変化し、海水中の植物プランクトンが摂取できる栄養塩になると報告されている。このようなモデル結果は実験室の実験で確認されたが、現場調査では未だに確認できていない。一方、最近の報告では、黄砂粒子中の鉄の水溶性化が大気中の化学反応ではなく黄砂粒子自身の大きさと直接関与している結果が見出された。しかし、これらの黄砂の性状を求める現場調査ではバルクサンプルで採集・分析する方法が使われたため、得られた情報は採集された全ての粒子状物質の平均情報であり、厳密に黄砂の性状とは言えない。すなわち、黄砂粒子の落下により海洋にインプットされた鉄の状態及びその量的変化などについて研究はかなり進んできたにもかかわらず、結論的な見方はまだ無いのが現状である。黄砂の乾性沈着による海洋生態系への影響を評価するに当たって、最も基本的な情報が欠けているといわざるをえない。

2. 研究の目的

黄砂が発生する春季に熊本県天草半島西岸と中国東部沿岸都市青島市において、地面もしくは海面に乾性沈着した黄砂粒子及び空中に浮遊している黄砂粒子の比較を行うことにより、次のことを明らかにする。

(1)中国沿岸地域と九州西岸において空中に浮遊している黄砂粒子と地面もしくは海面に落下した黄砂粒子の物理的(形態・大きさ・水溶性部分)・化学的(鉱物組成・混合状態・水溶性成分)な差異

(2)中国沿岸地域と九州西岸における黄砂イベント毎の鉱物乾性沈着量及び海にインプットされた鉄の状態(水溶性・非水溶性)とフラックス

(3)九州に飛来・落下した黄砂粒子中の水溶性塩類と金属類の含有状況と粒子の大きさ・変質などの関係—水溶性鉄の存在原因—

3. 研究の方法

(1)黄砂の観測：観測を実施する場所は熊本県天草半島西海岸と中国東部の青島市である。青島市は中国東部の沿岸地域であり、黄砂がよく通過する場所である。サンプルの採集は毎年3月と4月に行った。天草での観測について、黄砂時に乾性沈着物を採集する装置を利用して、複数の乾性沈着サンプルを同時に採集した。黄砂の濃度状況(粒子数濃度で判断)に応じて特殊なチタン板とメッシュ及びミリポアフィルターの上に乾性沈着サンプルを採集した。また、乾性沈着物を採集する開始と終了時にカスケードインパクターを用いて大気中の黄砂粒子をチタンとメッシュの上に採集し、電子顕微鏡分析用のサンプルを取得した。また、秋から翌年の春にかけて粒子数計測装置を用いて粒計別の粒子個数濃度を継続的に測定した。青島市での観測では、中国海洋大学の施設と設備を利用して、天草西海岸の観測と同様に乾性沈着サンプルと電子顕微鏡分析用サンプルを採集し、粒子数濃度の計測も行った。

(2)サンプルの分析：チタン板とメッシュ上の黄砂粒子は走査電子顕微鏡を用いて、粒子一粒一粒の形態、大きさ、元素組成について分析した。粒子中の水溶性成分に関しては、研究代表者が改良した水透析法により粒子から取り除き、その後粒子をSEMEDXで再度分析した。水透析以外に海水と弱酸溶液の透析法も試みた。それぞれの透析処理前後の測定結果の差異により、個別の黄砂粒子中に含まれた可溶性の物質及び量などに関するデータを得た。

(3)データの解析

粒子の分析で得られたデータを用いて気象条件を考慮し、次のような解析を行った。
①両サイトにおいて浮遊している黄砂粒子と落下した黄砂粒子の物理的・化学的な性状を比較した。
②両サイトに落下してきた黄砂粒子の水透析前後の物理的・化学的な性状を比較した。
③黄砂粒子の物理的な変化及び成分の化学的な変化に関与している要素を探るために粒子の大きさ・鉱物特徴・形状の立場及び大気中で経験した可能性のあるプロセスの立場からそれらの変化を考察し、鉄やカルシウムなどの成分が非水溶性から水溶性になる原因を特定した。

4. 研究成果

(1)青島でも天草西岸でも沈着した黄砂粒子は、浮遊している粒子より平均粒径(大きさ)が大きいことが確認された。また、青島で落下した黄砂粒子はほとんど変質しなかったのに対して、天草で落下した黄砂粒子は海塩と混合した粒子が多い時も少ない時もあり、これらは気団の移動と関連していると考え

られる。

(2) 定量的評価により沈着した黄砂粒子の平均粒径は青島より天草西岸の方が小さかったが、浮遊している粒子の平均的な大きさはほぼ同じであることが見出され、その原因は黄砂粒子が海塩などと結合して成長した結果だと考えられる。

(3) 青島では黄砂時に鉱物粒子の以外にスス粒子がほとんど見出されなかったに対して、天草において黄砂時にスス粒子がサブミクロンの粒径範囲に頻繁に検出された。すなわち、日本列島に到着する前に黄砂ブルームはある程度の割合で人為汚染大気と混合したことが示唆された。

(4) 天草西岸の結果に基づく黄砂の沈着フラックスを試算した結果、海塩の結合により鉱物フラックスが数～十数パーセント大きくなることが分かった。つまり、粒子表面の硫酸塩と硝酸塩の生成は落下に直接的に影響はしないが、粒子の水吸収能力が向上され水を吸収する際に大きく影響される可能性があることが示唆された。

(5) 同じ黄砂ブルームの中でも場所によって黄砂粒子の性状、すなわち大きさの分布、他の物質との混合状態は異なることが観測された。

(6) 海洋大気中の黄砂粒子について、人為的な汚染物質(硫酸塩と硝酸塩)が少ない場合には粒子表面に塩酸塩が優先的に生成され、鉱物粒子の水蒸気の吸収能力が著しく向上することがわかった。

(7) 個別粒子レベルで黄砂粒子中の水溶性鉄の存在が確認されたが、黄砂粒子中の硫黄成分との量的な関係は見出されなかった。

(8) 黄砂粒子中の鉄を含む状況は、小さい黄砂粒子中に鉄量が多いことが分かった。また、それに反して大きい粒子中にカルシウムの量が多いことも分かった。鉄と硫黄が同時に存在し、カルシウムを含まない黄砂粒子は全体の粒子の約1割程度であり、粒子表面の化学反応により鉄を非水溶性から水溶性に効率的に変換させることは難しいことが示唆された。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計6件)

- ① Tetsuji Nagatani, Maromu Yamada, Tomoko Kojima, Daizhou Zhang, Episodic particulate sulfate and sulfur dioxide on the southwestern Japan coast in March and April 2010. *Asian Journal of Atmospheric Environment*, 査読有, Vol.6, 2012, 41-52, doi: <http://dx.doi.org/10.5572/ajae.2012.61.041>.

- ② P. Formenti, L. Schütz, Y. Balkanski, K. Desboeufs, M. Ebert, K. Kandler, A. Petzold, D. Scheuven, S. Weinbruch and D. Zhang, Recent progress in understanding physical and chemical properties of African and Asian mineral dust. *Atmos. Chem. Phys.*, 査読有, Vol.11, 2011, 8231–8256, doi:10.5194/acp-11-8231-2011.
- ③ Weijun Li, Daizhou Zhang, Longyi Shao, S. Z. Zhou and W. X. Wang, Individual particle analysis of aerosols collected under haze and non-haze conditions at a high-elevation mountain site in the North China plain. *Atmos. Chem. Phys.*, 査読有, Vol.11, 2011, 11733–11744, doi:10.5194/acp-11-11733-2011.
- ④ Niu, Hongya, Longyi Shao and Daizhou Zhang, Aged status of soot particles during the passage of a weak cyclone in Beijing. *Atmos. Environ.*, 査読有, Vol.45, 2011, 2699-2703.
- ⑤ Hiroko Ogata, Daizhou Zhang, Maromu Yamada, and Yutaka Tobo: Comparison of elemental composition of Asian dust particles at Amami and Amakusa during a dust event. *Journal of Japan Society for Atmospheric Environment*, 査読有, Vol.46, 2011, 10-19, https://www.jstage.jst.go.jp/article/taiki/46/1/46_1_10/_pdf.
- ⑥ Yutaka Tobo, Daizhou Zhang, Atsushi Matsuki, and Yasunobu Iwasaka: Asian dust particles converted into aqueous droplets under remote marine atmospheric conditions. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*. 査読有, Vol.107, No.42, 2010, 17905-17910, www.pnas.org/cgi/doi/10.1073/pnas.1008235107.

[学会発表] (計9件)

- ① Daizhou Zhang, Changes of dust particle due to sea salt and chlorine chemistry in the marine atmosphere. Invited presentation at the International Symposium on Aerosol Studies Explored by Electron Microscope, 招待講演, 2012年2月, 気象研究所, つくば.
- ② 張代洲:「海洋大気中における黄砂粒子の変質:電子顕微鏡を用いた調査」. 2011年度日本海洋学会西南支部・海洋気象学会・水産海洋学会九州沖縄地域合同シンポジウム「東アジア域での大気海洋相互

- 作用と越境汚染研究の現状」基調講演、2011年12月7日、長崎。
- ③ 張代洲, 黄砂に伴う微生物の拡散, 第28回エアロゾル科学・技術研究討論会, 大阪堺市, 2011年8月
 - ④ Daizhou Zhang, その他5名, Boundary layer evolution and soot aging: a case study with tethered balloon observation. The Seventh Asian Aerosol Conference, 2011年8月, Xian, China.
 - ⑤ Daizhou Zhang, その他5名: Cases of Vertical Profiles and Estimated Optical Properties of Aerosol Particles in the Boundary Layer in Beijing. 2010 APRS (Asia-Pacific Radiation Symposium), 2010年8月, Seoul, Korea
 - ⑥ 張代洲, その他9名: Observations of atmospheric aerosols with tethered balloons at Amakusa: case studies in December 2008 and March 2010. 第27回エアロゾル科学・技術研究討論会, 2010年8月, 名古屋
 - ⑦ Daizhou Zhang, その他7名, Sea salt, sulfate, nitrate, and chloride in Asian dust particles observed in Japan: results of individual particle analysis. European Geosciences Union General Assembly 2010年5月 Vinna, Austria
 - ⑧ Daizhou Zhang, その他8名, Asian dust particles arriving at Japan: change and subsequent effects during their transport. The Fourth Japan-China-Korea Joint Conference on Meteorology, 2009年11月, つくば
 - ⑨ 張代洲, その他11名, 係留気球を用いた大気エアロゾルの観測について: 北京と天草の観測例. 第26回エアロゾル科学・技術研究討論会, 岡山, 2009年8月

6. 研究組織

(1) 研究代表者

張 代洲 (ZHANG DAIZHOU)
熊本県立大学・環境共生学部・教授
研究者番号: 90322726

(2) 研究分担者

古賀 実 (KOGA MINORU)
熊本県立大学・環境共生学部・教授
研究者番号: 40131916

(3) 連携研究者

()

研究者番号: