

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 17 日現在

機関番号：13501

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24560660

研究課題名(和文) 個別粒子の偏光特性を利用した自由対流圏越境輸送微粒子の動態解明

研究課題名(英文) Long range transported aerosol particle monitoring with polarization property of indivisual particle

研究代表者

小林 拓 (KOBAYASHI, Hiroshi)

山梨大学・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) 4,100,000円

研究成果の概要(和文)：偏光光散乱式粒子数計測器(以下、偏光OPC)による大気エアロゾル粒子の組成別測定手法を検討するために、山梨県甲府市においてフィルターサンプリングを平行して実施した。エアロゾル粒子中の化学成分との比較検討を行い、個別粒子の粒子径と偏光解像度から組成別に区分する方法を決定した。偏光OPCを平成25年7～8月は富士山頂に、平成25年12月より木曾駒ヶ岳千畳敷に設置し、連続観測を実施した。日本の都市域よりも高い濃度の大气汚染粒子や黄砂を測定した例がみられた。流跡線解析などから大陸から越境輸送された微粒子であることが示唆された。

研究成果の概要(英文)：Polarization optical particle counter (POPC) measurement and a filter sampling of atmospheric aerosol particles was conducted in Kofu to develop an method distinguishing aerosol type, which are mineral dust and air pollution particles. Comparison between chemical composition of an aerosol particle and the POPC measurement determines the method using the particle diameter and the depolarization ratio of the scattering light. The POPC measured free-tropospheric aerosol particle at the top of Mt Fuji on July-August 2013, and Senjojiki, Kisokomagatake, where the altitude is 2640m, since December, 2013. The results sometimes show air pollution aerosol particle concentration higher than that in Japanese city areas and Asian dust. It indicates that the aerosol particles were come from the continent with back-trajectory analysis.

研究分野：土木環境システム

キーワード：偏光光散乱式粒子計測装置 越境輸送 大気エアロゾル粒子 黄砂 鉱物粒子 大気汚染粒子 自由対流圏 山岳域

## 1. 研究開始当初の背景

近年、アジア各国の経済発展に伴い、産業活動から排出される各種物質の環境影響が懸念されている。特に工場や自動車から排出される、もしくは排気ガスから生成される大気汚染微粒子、さらに大陸内部の砂漠地帯から巻き上げられた黄砂などの微粒子は、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。日本が位置する中緯度帯は偏西風が卓越しており、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。

山岳域での観測は、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、長期間にわたり自由対流圏の連続観測を実施できる。富士山は日本の最高峰であり、また、独立峰であるため、富士山頂に位置する富士山測候所は自由対流圏の観測に適している。現状では測候所の利用は夏季に限られ、他の時期は閉鎖され無人になる。そのため、微粒子が大陸から越境輸送される確率が高い春季と秋季に観測を実施するためには、無人条件下でも遠隔操作でき、不具合が発生しても自己復帰可能で、構造的に稼働部が少なく信頼性の高い低消費電力の測定器が必要となる。

大気微粒子を対象とした自動測定器の一つとして光散乱式粒子数計測器がある。これはレーザー光などの指向性の強い光を外部から導入した微粒子を含む大気に照射し、微粒子により散乱された光を測定するものである。微粒子による散乱光は、その形状により照射光に対する偏光特性が変化する。球形粒子による散乱光は照射光の偏光が保持され、非球形粒子の場合は照射光の偏光が解消される。大気汚染微粒子のうち硫酸塩や硝酸塩粒子は球形に近い形状、黄砂のような鉱物粒子は一般に非球形である。よって、微粒子による散乱光の偏光特性を測定することで組成に関する情報を得ることができる。本研究代表者は、連携研究者(林)らとともにこの原理に基づく測定器の特許を取得した(特願 2011-103666)。そこで、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)の開発を進めつつ、厳しい自然環境の山岳域で通年にわたり連続測定が可能な測定システムに発展させ、自由対流圏越境輸送微粒子の動態を明らかにすることを最終目的とする。

## 2. 研究の目的

偏光 OPC により個々の微粒子の偏光特性

から微粒子の組成を求める手法を開発する。散乱光強度、すなわち粒径および散乱光の偏光度を 2 次元空間にマッピングし、グルーピングを行うことで微粒子を組成別に区別する手法を確立する。さらに自由対流圏の気塊を直接測定可能な山岳域において偏光 OPC による通年観測を実施し、自由対流圏越境輸送微粒子の組成別大気濃度の変動を明らかにする。同時に流跡線解析を実施し、気塊の起源を探ることで微粒子の大気濃度の変動要因を解明する。

## 3. 研究の方法

### (1) 偏光 OPC による組成別測定手法の検討

観測は、山梨大学甲府キャンパス(山梨県甲府市) B2 号館 2 階において、2013 年 2 月 17 日から 2013 年 7 月 1 日まで実施した。偏光 OPC による観測とともに同期間、同場所において、フィルターホルダー、流量計およびポンプからなるエアロゾル粒子サンプリング装置を 2 系統用意し、非水溶性粒子測定用のポリフロンフィルター(直径 47mm, PF040, 東洋濾紙)およびイオン成分分析用のヌクレポアフィルター(直径 47mm, ポアサイズ 0.4 $\mu$ m, Whatman)のそれぞれに大気エアロゾル粒子を捕集した。非水溶性粒子測定用システムは、開放型フィルターホルダーを用い、採気流量は 20LPM とした。イオン成分分析用システムには直径 10 $\mu$ m 以上の粒子をカットするインパクターを取付けたフィルターホルダーを用い、採気流量は 18LPM に設定した。非水溶性粒子測定用試料は 74 個、イオン成分分析用試料は 30 個採取した。水溶性イオン成分濃度を求めるため、捕集後のポリフロンフィルターにエタノール 0.5ml を浸透させ、超純水(Milli-Q, 18.3M $\Omega$  cm) 4.5ml を加え、超音波処理により捕集したエアロゾル粒子の水溶性成分を抽出した。水溶性成分中の代表的な陽イオン、陰イオン成分濃度をイオンクロマトグラフ(DX-120, Dionex)を用いて分析を行った。大気エアロゾル中のナトリウムイオンは、全て海塩由来と仮定し、非海塩性硫酸イオン(nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>)、非海塩性カルシウムイオン(nss-Ca<sup>2+</sup>)の質量濃度を算出した。一方、非水溶性粒子の粒径別個数濃度を求めるため、捕集後のヌクレポアフィルターを 90ml の 5%Na<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> 電解液中で 30 分間攪拌し、フィルター上に捕集したエアロゾル粒子を懸濁させ、コールターカウンター(Multisizer3, Beckman Coulter)により粒子濃度および粒径分布を測定した。最後に偏光 OPC の測定から得られる個別粒子の粒径と偏光解消度から鉱物粒子を判定する条件を検討した。偏光 OPC によって得られた個別粒子の粒径と偏光解消度を元に、粒径に関し 4 区分(0.5~1 $\mu$ m, 1~3 $\mu$ m, 3~5 $\mu$ m, 5~10 $\mu$ m)、偏光解消度に関して 10 区分(0.0~0.1, 0.1~0.2, ..., 0.9~1.0)の計 40 区分毎の個数濃度を求めた。次に各区分の代表粒

径を利用し、体積濃度を算出した。各区分の体積濃度と WIPs の体積濃度および水溶性イオン成分濃度との相関解析を実施した。求めた相関係数の大小から、黄砂に対応する区分を決定した。

#### (2) 山岳域での連続観測

平成 25 年度の夏季に富士山頂の富士山測候所において、自由対流圏中の越境輸送微粒子の連続観測を実施した。平成 25 年 12 月より冬季もロープウェイでアクセス可能な木曾駒ヶ岳千畳敷（標高 2600m）に偏光 OPC を移設し観測を開始した。機器の制御・監視を行うために携帯電話網を使用し、千畳敷に設置した偏光 OPC の制御用コンピュータに山梨大学から 24 時間接続できるようにネットワーク環境を整備した。

### 4. 研究成果

#### (1) 偏光 OPC による組成別測定手法の検討

鉱物粒子の指標となる  $n_{ss-Ca^{2+}}$  と WIPs の分析結果を用いて、偏光 OPC の各区分濃度との相関分析を行った。 $n_{ss-Ca^{2+}}$  の相関分析の結果、偏光解消度 0.1 以下、粒径  $0.5 \sim 1 \mu m$  かつ偏光解消度 0.3 以下、偏光解消度  $5 \mu m \sim 10 \mu m$  かつ偏光解消度 0.9~1.0 の区分以外で相関係数 0.7 を超える高い値を示した。WIPs の相関分析の結果は、 $n_{ss-Ca^{2+}}$  とほぼ一致した。この結果から、 $n_{ss-Ca^{2+}}$  と WIPs どちらかが相関係数 0.7 以上となる区分を鉱物粒子と分類した。また、人為起源粒子の指標となる  $n_{ss-SO_4^{2-}}$  と  $NO_3$  を用いて偏光 OPC 各区分と相関分析を行った結果では、主に鉱物粒子と分類していない領域において高い相関を示したため、鉱物粒子と同様にどちらかの相関係数が 0.7 となる区分を人為起源粒子と分類とした。

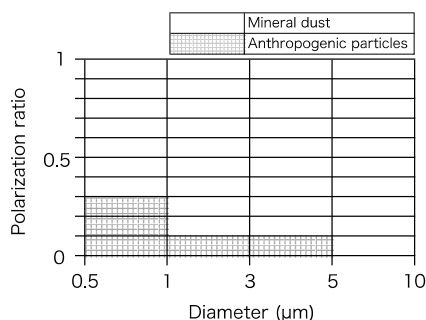


図1 フィルターサンプリングの観測結果との比較から決定した偏光 OPC の組成別区分方法

この時、鉱物粒子の指標となる成分と人為起源粒子の指標となる成分の双方で相関係数が 0.7 以上となった場合、より高い相関係数を示した成分側の分類とした。どの成分も相関係数が 0.7 以上とならない偏光解消度  $0.5 \sim 1 \mu m$ 、偏光解消度 0.2~0.3 の区分は、 $n_{ss-SO_4^{2-}}$  と最も相関が高かったため、人為起源粒子に分類し、粒径  $5 \sim 10 \mu m$  の範囲は、黄

砂現象と推定される期間において主に観測されるため鉱物粒子と分類した（図 1）。

山梨大学（山梨県甲府市）において 2013 年 2 月から 6 月まで観測した結果を図 2 に示す。甲府気象台の記録と比較したところ、黄砂として記録されている期間において相対的に鉱物粒子の重量濃度は増加していたが、記録がない期間においても高濃度を示していた。また、煙霧と記録されていた期間は大気汚染粒子の重量濃度が増加していたが、鉱物粒子の濃度も高濃度であった。気象台が視程を基準に煙霧や黄砂を判定しているためにこのような食い違いが起きたと考えられる。

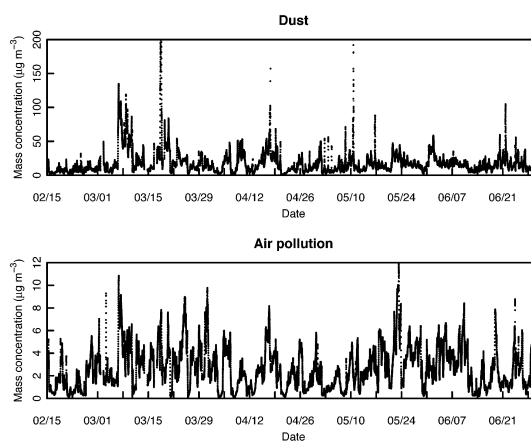


図2 2013年甲府において偏光 OPC により測定された組成別大気エアロゾル粒子の重量濃度

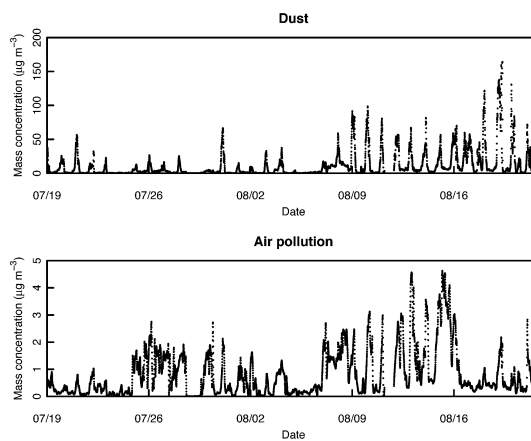


図3 2013年富士山頂において偏光 OPC により測定された組成別大気エアロゾル粒子の重量濃度

富士山測候所において 2013 年 7 月から 8 月まで観測した結果を図 3 に示す。鉱物粒子は非常に明瞭な日変動を示していた。これは測候所周辺が森林限界を超えた裸地であり、登山者や風により巻き上げられた鉱物粒子の影響を受けたためと考えられる。一方、大気汚染粒子は、日変動を示している期間もあったが、数日程度の周期で濃度変動していた。8 月 8 日前後、夜間においても鉱物粒子の濃度が減少せず、高い濃度のまま推移していた様子が観測された（図 3）。8 月 7 日の 18:00

すぎから徐々に鉱物粒子及び大気汚染粒子の濃度が上昇していた。この高濃度状態は、8/9 6:00 頃まで継続し、その後減少した。同時期、国立環境研究所が富山に設置したライダーの結果から、富士山頂と同程度の高度において偏光消度の高い気塊が存在していたことが示された。また、後方流跡線解析より、気塊が大陸方面から富山付近を通り輸送されたことが示され、この期間の鉱物粒子および大気汚染粒子は大陸から長距離輸送された可能性が高いことが示された。

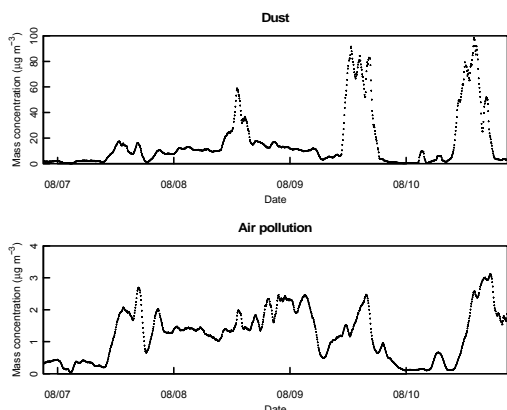


図4 2013年8月7日～10日にかけて富士山頂において偏光 OPC により測定された組成別大気エアロゾル粒子の重量濃度

木曽駒ヶ岳千畳敷において2013年12月から2014年11月まで観測した結果を図5に示す。千畳敷においてはインレットから偏光 OPC までのチューブ長が短く、鉱物粒子のような粗大粒子の測定には適している。しかし、雲粒子も吸引してしまうことがわかった。そこで粒径別のエアロゾル粒子の粒径分布から Junge スロープを算出し、2 未満の場合、雲と判定した。しかし、図5と他地点での測定結果を比較すると高濃度を示すことが多い。雲除去が不十分な可能性があり、除去方法に関して今後検討が必要である。鉱物粒子および大気汚染粒子は、富士山頂での測定結果と比較すると日変動は小さかった。5 月頃まで周囲は積雪が残り、また、植生があるため、富士山頂よりは局所的な粒子の巻き上げの影響が小さいと考えられる。3月12日前後、鉱物粒子の濃度が、高い濃度のまま推移していた様子が観測された(図5)。鉱物粒子の濃度が増加する際に大気汚染粒子の濃度が急激に上昇していたが、その後減少した。同時期のライダーの測定結果や後方流跡線解析より、気塊が大陸方面から輸送されたことが示され、鉱物粒子は大陸から長距離輸送された可能性が高いことが示された。9月27日に木曽駒ヶ岳の西方30kmに位置する御嶽山が噴火した。火山灰粒子は鉱物粒子と同じく非球形粒子であり、偏光 OPC では鉱物粒子と判定される可能性が高い。噴火直後の測定結果に鉱物粒子濃度が増加している様子がみられ、御嶽山の火山灰を測定した可能性が高い。

偏光 OPC により鉱物粒子と大気汚染粒子を区別し連続測定することが可能となった。また、偏光 OPC を山岳域に設置し、連続測定することにより、自由対流圏中の越境粒子を捉えることができた。

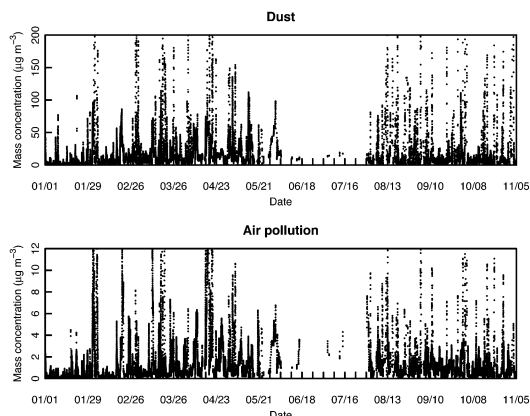


図5 2014年木曽駒ヶ岳千畳敷において偏光 OPC により測定された組成別大気エアロゾル粒子の重量濃度

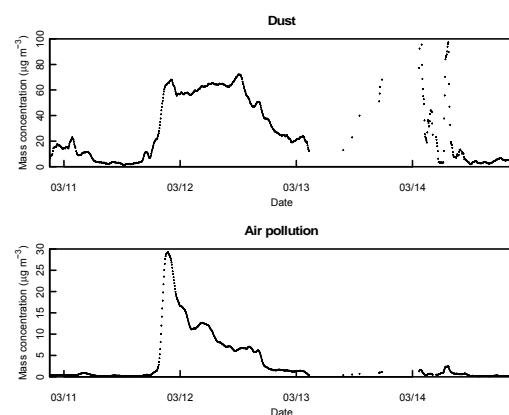


図6 2014年3月11日～14日にかけて木曽駒ヶ岳千畳敷において偏光 OPC により測定された組成別大気エアロゾル粒子の重量濃度

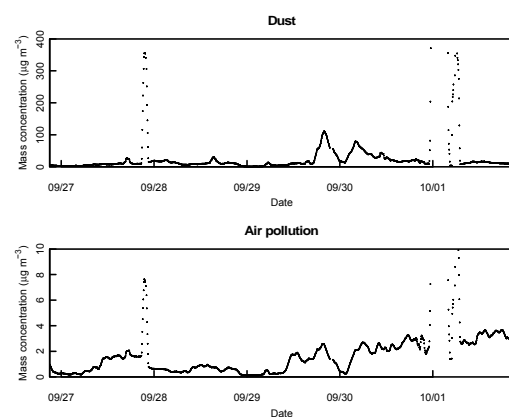


図7 2014年9月27日～10月1日にかけて木曽駒ヶ岳千畳敷において偏光 OPC により測定された組成別大気エアロゾル粒子の重量濃度

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計4件)  
Pan, X., I. Uno, Y. Hara, M. Kuribayashi, H. Kobayashi, N. Sugimoto, S. Yamamoto, T.

Shimohara, Z. Wang, Observation of the simultaneous transport of Asian mineral dust aerosols with anthropogenic pollutants using a 偏光 OPC during a long-lasting dust event in late spring 2014, Geophysical Research Letters, 査読有, 42, 2015, 1593-1598.  
DOI: 10.1002/2014GL062491

N. Sugimoto, T. Nishizawa, A. Shimizu, I. Matsui, H. Kobayashi, 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, 査読有, 150, 2015, 107-113.  
DOI: 10.1016/j.jqsrt.2014.08.003

Kobayashi, H., Hayashi, M., Shiraishi K., Nakura, Y., Enomoto, T., Miura, K., Takahashi, H., Igarashi, Y., Naoe, H., Kaneyasu, N., Nishizawa, T., Sugimoto, N., Development of a polarization optical particle counter capable of aerosol type classification, Atmospheric Environment, 査読有, 97, 2014, 486-492.  
DOI: 10.1016/j.atmosenv.2014.05.006

Kobayashi, H., Hayashi, M., Nakura, Y., Enomoto, T., Miura, K., Takahashi, H., Igarashi, Y., Naoe, H., Nishizawa, T., Sugimoto, N., Kaneyasu, N., Development of polarization optical particle counter to detect particle shape information, Proceedings of SPIE, 査読有, 8526, 2012, 852609.  
DOI: 10.1117/12.979634

〔学会発表〕(計3件)

Kobayashi, H., Hayashi, M., Nakura, Y., Enomoto, T., Miura, K., Takahashi, H., Igarashi, Y., Naoe, H., Nishizawa, T., Sugimoto, N., Kaneyasu, N., Field measurement of new polarization optical particle counter capable of measuring particle shape information, American Geophysical Union, fall meeting 2012, 2012年12月3日~2012年12月7日, San Francisco(USA).

Kobayashi, H., Hayashi, M., Nakura, Y., Enomoto, T., Miura, K., Takahashi, H., Igarashi, Y., Naoe, H., Nishizawa, T., Sugimoto, N., Kaneyasu, N., Development of polarization optical particle counter to detect particle shape information, SPIE, Lidar Remote Sensing for Environmental Monitoring XIII, 2012年10月29日~2012

年11月1日, Kyoto International Conference Center(Kyoto).

小林拓, 林政彦, 名倉義信, 榎本孝之, 三浦和彦, 高橋宙, 五十嵐康人, 直江寛明, 西澤智明, 杉本伸夫, 偏光を利用した光散乱式気中粒子計測器による2012年春季の観測結果, 日本気象学会2012年度秋季大会, 2012年10月5日, 北海道大学(北海道・札幌市)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

小林 拓 (KOBAYASHI, Hiroshi)  
山梨大学・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

林 政彦 (HAYASHI, Masahiko)  
福岡大学・理学部・教授  
研究者番号: 50228590