

黄砂発生源上空で採集された黄砂粒子の硫黄化合物による変質程度

山田丸¹・岩坂泰信²・石広玉³・松木篤²・ディミトリ トロシキン²・張代洲⁴・長谷正博⁵・金潤?²・長谷徹志⁶・沈志宝⁷・早川和一¹

¹〒920-1192 金沢市角間町 金沢大学大学院自然科学研究科；²〒920-1192 金沢市角間町 金沢大学自然計測応用研究センター；³100029 中国北京市 中国科学院大気物理研究所；⁴〒862-8502 熊本市月出3-1-100 熊本県立大学環境共生学部；⁵〒442-8507 愛知県豊川市穂ノ原3-13 名古屋大学太陽地球環境研究所；⁶〒464-8601 名古屋市千種区不老町 名古屋大学大学院環境学研究所；⁷730000 中国蘭州市 中国科学院寒区乾区環境技術研究所

YAMADA Maromu, IWASAKA Yasunobu, SHI Guangyu, MATSUKI Atsushi, TROCHKINE Dmitri, ZHANG Daizhou, NAGATANI Masahiro, KIM Yoon-suk, NAGATANI Tetsuji, SHEN Zhibao and HAYAKAWA Kazuichi: Modification degree of KOSA particles by sulfur compounds in the free troposphere over a KOSA source region

【はじめに】

黄砂は中国およびモンゴルの乾燥地帯に大規模な発生源を持っている。発生源において上空（自由対流圏）まで巻き上げられた大量の鉱物粒子（黄砂粒子）は、偏西風によって風下に輸送され、時には北アメリカにまで長距離輸送される。その際に、黄砂粒子は太陽放射収支や雲物理過程を通して地域規模或いは地球規模で気象・気候に影響を及ぼす。また、輸送中に黄砂粒子表面が周囲のガスやエアロゾルとの化学反応場として振る舞うことが知られており、このような黄砂粒子の変質を通して、黄砂は直接・間接的な放射影響、酸性雨、生物地球化学的循環に強く作用する。これらのメカニズム或いは環境影響を理解するためには、黄砂の輸送高度（自由対流圏）におけるエアロゾル粒子の混合状態、鉱物粒子の化学組成および表面状態についての情報が必要である。しかしながら、黄砂発生源上空においてこれらの情報は全くない。

そのため、本研究では、大規模な黄砂発生源の一つであるタクラマカン砂漠上空の黄砂粒子を気球を使って直接採集し、電子顕微鏡により粒子一つ一つの形態、元素組成を観察した。ここでは、長距離輸送初期段階における黄砂粒子の硫黄化合物による変質の程度について報告する。

【試料採集・分析方法】

2002年～2003年にかけて、タクラマカン砂漠東に位置する中国敦煌市において、エアロゾルサンプラー（約9kg）を気球に搭載し3?5km、5?7km、7?9kmの各高度でエアロゾル粒子を直接採集した。観測は、春に2回、夏に1回行い、いずれも晴天で視程のよい日であった。サンプラーは2段式ローボリュームインパクターを3つ用い、サイプラーに取り付けられたGPSからの信号によってインパクターのインレットとアウトレット部に取り付けたバルブの開閉を制御することにより、高度の異なる3層でのエアロゾル採集を可能にした。エアロゾル粒子は炭素蒸着したコロジオン膜上に採集した。気球は約300m/minで上昇した。試料は、地面落下後数時間で回収に成功し、地上大気・温度湿度変化による影響はないと考えられる。回収された試料は、走査型電子顕微鏡とエネルギー分散型X線分析器を用いて、粒子一つ一つの形態と元素組成について分析した。観測で用いたサンプラー装置、試料回収の詳細については山田他(2004)によって報告されている。

【結果と考察】

黄砂発生源上空の自由対流圏において採集された鉱物粒子 742 個（2002 年 8 月：83 個、2003 年 3 月：420 個、2004 年 3 月：239 個）の分析結果をもとに、硫黄化合物による鉱物粒子の変質の程度を議論する。ここで議論する鉱物粒子とは、EDX 分析によって、Si, Al, Mg, Ca, Na, Fe, Ti の鉱物由来の元素が検出された粒子をさしており、重金属(Zn, Cr, Pb)を含む粒子やバイオマス燃焼由来とおもわれる粒子はここでは省く。また、粗大粒子($d > 1.0 \mu\text{m}$)と微小粒子($d < 1.0 \mu\text{m}$)を比較することで、粒径の違いによる変質程度の違いを調べる。

図 1 は、採集された鉱物粒子の総数に対して、硫黄が検出された鉱物粒子の個数頻度を示している。ここでは、硫黄含有鉱物粒子をその鉱物組成と硫黄の相対質量比をもとに 3 つに分類した。(1)質量比が $S/(Ca+Na) < 1$ 、(2) $S/(Ca+Na) > 1$ 、(3) Ca 或いは Na を含有しない鉱物粒子から S が検出された粒子である。ここで、 $S/(Ca+Na) < 1$ の粒子は、もともと天然に存在する石膏($\text{CaSO}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$)或いはテナードイト(Na_2SO_4)の可能性があり、硫黄が検出されたからといって、大気中で変質されたとは限らない。一方で、 $S/(Ca+Na) > 1$ や Ca, Na を含まない鉱物粒子に S が含有されている粒子は大気中で硫酸化合物を取り込み、変質したと考えられる。ここで後者の 2 つを変質された粒子と仮定すると、敦煌上空では粗大域で 4~10%、微小域で 6~43%の鉱物粒子がすでに硫酸化合物によって変質を受けていた。2002 年夏に採集した粒子は、他のものと比べると例外的に高い頻度で変質を受けていた。この現象は次のような説明が可能である。即ち、春季のようにタクラマカン砂漠で砂塵が頻繁に観測される気象条件のとき、自由対流圏中の鉱物粒子の大部分はタクラマカン砂漠から直接供給されているので、硫黄化合物による変質を受けている鉱物粒子の割合が低い。一方で、タクラマカン砂漠の大気が非常に静穏時には、タクラマカン砂漠から自由対流圏に供給される鉱物粒子が少なく、他の地域（例えば、ヨーロッパや中東）から既に変質を受けた鉱物粒子がタクラマカン砂漠上空に輸送されたと考えられる。そのため、2002 年夏に観測されたように、大気中での寿命の長い微小粒子域の鉱物粒子が高い割合で変質を受けていたことが示唆される。

偏西風支配下に位置する日本の大気環境は、中国や韓国上空の大気状態を把握することが必須であり、東アジアの大気環境を理解するために今後も中国或いは韓国との共同研究が数多く行われるだろう。本研究では日本（金沢大学 21 世紀 COE、金沢大学自然計測応用研究センター、名古屋大学環境学研究科）と中国（中国科学院大気物理研究所、中国科学院寒区乾区環境技術研究所）との共同で研究が行われ、多くの研究成果が得られただけでなく、日中の研究者間で将来に繋がる良好な協働関係を築くことができた。

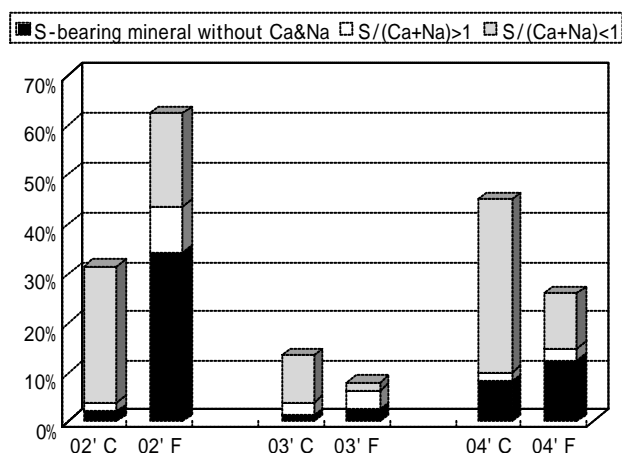


図 1. 鉱物粒子の総数に対しての硫黄を含有する鉱物粒子の個数頻度。図中の C、F はそれぞれ粗大粒子 ($d > 1 \mu\text{m}$)、微小粒子 ($d < 1 \mu\text{m}$)を示している。