

海洋大気中における黄砂の沈着粒子と散乱特性

2016年3月

熊本県立大学 大学院 環境共生学研究科

大気環境学研究室

福島 聡

要旨

黄砂粒子は海域や陸域へと沈着することで、植物プランクトンの増殖などの一次生産に寄与し、二酸化炭素循環系を通じて気候へと影響を与えている。黄砂粒子の沈着による生態系・気候への影響を評価するためには沈着量を知る必要がある。沈着量推定には浮遊粒子の濃度と沈着速度から間接的に計算する方法が広く用いられている。この推定は沈着する粒子が浮遊粒子と同じ（似た）ようなものであるという前提が置かれる。しかしながら、浮遊粒子と実際に沈着した粒子の類似・相違についての検証はこれまでにほとんど見られない。黄砂粒子が海洋へ沈着することによる影響を正しく評価するためには、沈着粒子と浮遊粒子の類似点・相似点についての知見は不可欠である。

また、黄砂はエアロゾルとして太陽放射を散乱・吸収することで、または雲核や氷雲の氷結核として機能することで気候へと影響を与えている。しかし、その効果は定量的な不確かさが大きいと見積もられている。その主な原因はエアロゾルの時空間的な分布が複雑であることに加え、エアロゾルの組成や混合状態が大気の放射へどのような影響を与えるかについての知見が不足していることである。そのため、大気放射のモデル計算ではしばしば均質な混合状態を仮定する。しかし、そのシミュレーションによる結果と実測による結果には大きな隔たりがあるのが現状である。したがって、様々な地域、気象条件、エアロゾルの起源・組成を考慮した実測による結果を積み重ね、これらの関係性を明らかにしていく必要がある。

さらに、大陸を離れた黄砂粒子は海洋大気や汚染大気の影響を受け、その性質を変化させる。生態系や気候への影響をより正確に議論するために黄砂粒子と海塩粒子や汚染物質との内部混合状態が粒子の沈着や放射に対してどのように影響するのかを把握する必要がある。

本研究では、春季の黄砂時に九州西岸において採取された浮遊粒子について電子顕微鏡を用いて個別粒子の形状特徴と元素組成を分析した。浮遊粒子の分析結果を用いて、実際に乾性沈着した粒子との比較、そして、大気の後方散乱係数、エアロゾル濃度との比較を行い、粒子の物理・化学的な特性が乾性沈着過程に及ぼす影響と大気の散乱に及ぼす影響を考察した。

2010年から2012年の春季、計3回の黄砂が観測された時に九州西岸域天草において浮遊粒子と沈着粒子を採取し個別粒子分析を行った。分析の結果に基づいて、鉱物粒子と海塩・硫酸塩の混合状態、および粒径分布を比較した。海塩や硫酸塩と混合した浮遊粒子の割合は47-67%であったが、沈着粒子では15-26%であった。沈着粒子の中で海塩や硫酸塩と混合した粒子の割合は浮遊粒子に比べ明らかに少なかった。また、個々の粒子中の鉱物成分、海塩成分および硫酸塩成分の重量比の比較の結果、沈着粒子では浮遊粒子に比べて鉱物成分の重量比が高かった。浮遊粒子のモードサイズはおよそ2-3 μm であり、沈着粒子の3-5 μm に比べてやや小さかった。しかし、浮遊粒子の粒径分布に対し、粒径に応じた重力沈着速度によって重み付けを行いモードサイズを比較すると、実際に沈着した粒子のモードサイズと近い値になった。これらのことから、本研究の結果によって粒子サイズは沈着を決定する上で重要なパラメーターであることが裏付けられ、また、海洋大気中における浮遊粒子と沈着粒子の組成の違いから、正確な沈着フラックスの推定には海塩との混合による沈着粒子成分の変化を考慮する必要があること示唆された。

地表付近における大気の後方散乱係数とエアロゾルの濃度や組成との関係性について

2011年から2015年の春季に九州西岸で調査を行った。後方散乱係数はシーロメーターを用いて観測波長 $905 \pm 5 \text{ nm}$ の条件で計測した。 $0.3 \mu\text{m}$ 以上の粒径別の粒子数濃度は光散乱式粒子計測装置を用いて計測した。観測期間中に浮遊粒子試料を8回採取し、電子顕微鏡の分析によってエアロゾルに対する鉱物、海塩との混合が考えられる鉱物粒子、海塩、硫酸塩、すす、フライアッシュの組成を得た。相対湿度が70%未満で黄砂の影響が強い条件では、エアロゾルの組成の違いに関わらず後方散乱係数とエアロゾルの体積濃度との間に強い相関が見られた ($R^2 = 0.76$)。湿度が70%を超えると、単位体積濃度あたりの後方散乱係数には大きなばらつきが見られるようになった。相対湿度およそ90%の条件において、硫酸塩やすすといった人為汚染物質の割合が高い場合と海洋起源の粒子が多い場合が見られた。海塩粒子の割合が高い大気の後方散乱係数は、陸域起源の鉱物粒子やすすなどの粒子の占める割合が高い大気に比べて数倍高かった。また、人為汚染物質の粒子の占める割合が高い2ケースでは、大気の後方散乱係数は組成が似ているのにも関わらず、湿度が低い場合に比べてわずかに高い程度の場合と4倍程度になる場合とが見られた。また湿度が高い条件においてはエアロゾルの組成が似ていても体積-粒径分布の違いによって後方散乱係数に違いが見られた。これらの結果は、乾燥条件においては大気中のエアロゾル粒子濃度が後方散乱係数、すなわち大気の散乱の強さを決定する重要な要素であること、他方、湿潤条件ではエアロゾルの組成やサイズ分布が後方散乱係数に影響することを示している。

本研究によって、同一黄砂時の沈着粒子の粒径分布と浮遊粒子から推定される粒径分布は似ていたが、元素組成や混合状態の違いがあること見出された。また、乾燥大気の散乱の強さは、エアロゾル濃度によって大まかに決定され、湿潤大気では海塩や硫酸塩などの吸湿性の高い粒子の組成や、特に $1 \mu\text{m}$ よりも小さな粒子による大気の散乱への寄与が大きくなる可能性が示唆された。

目次

要旨	i
図目次	vii
表目次	x
略語リスト	xi
第 1 章 序論	1
1.1 エアロゾル粒子としての黄砂	2
1.2 黄砂粒子の乾性沈着	4
1.3 黄砂の散乱への寄与	8
1.4 海洋大気中における黄砂の変質	10
1.5 本研究の目的	13
第 2 章 黄砂の乾性沈着粒子と浮遊粒子の比較	15
2.1 研究背景	16
2.2 方法	21
2.2.1 乾性沈着粒子の採取	21
2.2.2 浮遊粒子の採取	24

2.2.3	個別粒子の分析	24
2.3	結果	27
2.3.1	気象条件と粒子濃度の変動	27
2.3.2	元素組成の比較	31
2.3.3	粒径分布の比較	34
2.4	考察	37
2.5	まとめ	39
第3章	エアロゾル粒子組成の散乱への寄与	41
3.1	研究背景	42
3.2	方法	44
3.2.1	シーロメーターの測定原理	44
3.2.2	後方散乱係数の測定	46
3.2.3	エアロゾル濃度の測定	50
3.2.4	データの変換と比較	51
3.2.5	後方散乱効率因子の計算	51
3.2.6	浮遊粒子の採集と分析	52
3.3	結果	54
3.3.1	散乱効率因子の計算	54
3.3.2	後方散乱とエアロゾル濃度	55
3.3.3	エアロゾル粒子組成の影響 (乾燥条件)	58
3.3.4	エアロゾル粒子組成の影響 (湿潤条件)	59
3.4	考察	61
3.5	まとめ	65

第 4 章	結論	67
4.1	黄砂の沈着粒子と浮遊粒子の比較	68
4.2	浮遊粒子の組成が大気の散乱に及ぼす影響	69
4.3	まとめと今後の展開	70
	謝辞	73
	参考文献	74

目次

1.1	エアロゾルのサイズ分布や二次粒子の成長過程	3
1.2	様々なエアロゾルの走査電子顕微鏡写真	3
1.3	黄砂発生源における砂漠化の状況と発生フラックス	4
1.4	ダスト粒子のライフサイクル	5
1.5	世界の海洋における栄養塩とクロロフィル濃度の分布	6
1.6	大気中の気体および粒子状物質の放射強制力	9
1.7	エアロゾルの放射影響（直接効果と間接効果）	9
1.8	海塩との混合による大きさの変化および重力沈着の働き	12
2.1	天草環境リサーチユニット AERU の位置と外観	22
2.2	乾性沈着試料採集器具	22
2.3	Ti グリッドの電子顕微鏡写真	23
2.4	カスケードインパクター	25
2.5	浮遊粒子試料の分析領域の選択	26
2.6	画像解析での粒子の選択と形状特徴の計測	27
2.7	粒子数濃度と気象の変動	28
2.8	天気図と後方流跡線	29

2.9	SEM 写真の例と EDX スペクトル	31
2.10	鉱物粒子分類の結果	33
2.11	鉱物粒子中の 3 成分の相対重量	34
2.12	数-粒径分布	36
3.1	ライダー観測原理の模式図	45
3.2	シーロメーター CT25K の写真	47
3.3	オーバーラップ現象の模式図	49
3.4	水蒸気による吸収スペクトル	50
3.5	粒径に対する後方散乱係数効率因子の分布	55
3.6	後方散乱係数 (BSC) とエアロゾル濃度 (IPV) の関係	56
3.7	粗大粒子の濃度と相対湿度に応じて分類した IPV と BSC の関係	57
3.8	単位体積濃度あたりの後方散乱係数と相対湿度の関係	58
3.9	個別粒子試料採集時の後方流跡線解析の結果	60
3.10	個別粒子の組成と体積-粒径分布	60
3.11	電子顕微鏡写真	63
3.12	浮遊粒子の体積濃度に対する 0.5-1.0 μm の粒子の体積の寄与	64

表目次

2.1	沈着粒子試料の採取開始時刻と終了時刻	23
2.2	浮遊粒子試料の採集の日時, 時間, 相対湿度, 視程, 風向・風速	25
3.1	浮遊粒子採集時のデータのまとめ	53

略語リスト

- AERU Amakusa Environmental Research Unit
AR4 Fourth Assessment Report
BSC BackScattering Coefficient
CFORS Chemical weather FORecasting System
EDX Energy Dipersive X-ray spectrometer
EIFEX European Iron fertilization Experiment
EisenEx European Iron Enrichment Experiment
HNLC High Nutrient(or Nitrate) Low Chlorophyll
IPCC Intergovernmental Panel on Climate Change
IPV Integrated Particle Volume
IronEx Iron fertilization Experiment
MASINGAR Model of Aerosol Species IN the loval AtmospheRe
NOAA National Oceanic and Atmospheric Administration
OPC Optical Particle Counter
REA Relaxed Eddy Accumulation
SAGE Surface-Ocean Lower Atmospheric Studies Air-Sea Gas Exchange
SEM Scanning Electron Microscope
SOIREE Southern Ocean Iron Release Experiment

第 1 章

序論

1.1 エアロゾル粒子としての黄砂

エアロゾルとは空気を分散媒とした粒子状物質の分散系を指し、しばしば構成する粒子自体を指す場合もある。エアロゾルの分類には様々な基準が用いられる。例えば発生源の違いによって、自然発生源エアロゾルと人為発生源エアロゾルに分類される。または粒子のサイズによって、微小粒子や粗大粒子に分類されることもある。気象学分野では、エアロゾル粒子は雲の重要な凝結核や氷結核として働くため、粒子の大きさによって小核、大核などに分類される場合もある(小倉, 1984)。これらの分類は、エアロゾルをどのように取り扱うかによって適宜用いられるべきである。エアロゾル粒子は数 nm (10^{-9} m) から数 mm (10^{-3} m) まで数桁に及ぶ粒径範囲をとる(図 1.1)。一般的には自然発生源のエアロゾルは機械的な破碎などのプロセスにより発生し、 $1 \mu\text{m}$ を超えるモードを持つため粗大粒子に分類される。一方、発生時にはガス状物質として排出され、大気中で粒子状物質に凝集する人為起源エアロゾルは $1 \mu\text{m}$ ほどの大きさまで成長することはなく、微小粒子に分類される。エアロゾル粒子の例を図 1.2 に示す。このようにエアロゾルは多種多様なサイズや形をしており、花粉や植物片なども含まれる。

黄砂 (Asian dust) は中国の黄土高原やゴビ砂漠、タクラマカン砂漠などの乾燥地帯や半乾燥地帯を発生源とするダストエアロゾルである。黄砂の発生源について図 1.3 に示す。中国の北西部から北東部、モンゴルにかけての地域は中緯度高圧帯に属し、気候的に乾燥地帯である。近年は土地利用の変化から砂漠地域が拡大している。黄砂はこのような乾燥地域において大気不安定解消のために発生する低気圧に伴う強風によって大気中に巻き上げられ、上空数 km まで到達し、偏西風によって風下に運ばれる。巻き上がったダスト粒子が風下へと移流拡散しながら沈着する(気象)現象を黄砂と呼ぶ。本研究中では黄砂とは現象、黄砂粒子は黄砂に含まれるダスト粒子と区別する。

黄砂は発生源の中国やモンゴルをはじめ、韓国や日本など国境を飛び越え、北大西洋域まで到達するが、条件が整うと地球規模の気流によって地球を一周以上する場合がある (Uno et al., 2009)。また、黄砂の発生頻度や規模には季節的な違いがあり、特に、冬の終わりから春季にかけての移動性高気圧・低気圧影響によって、日本への移流が多くな

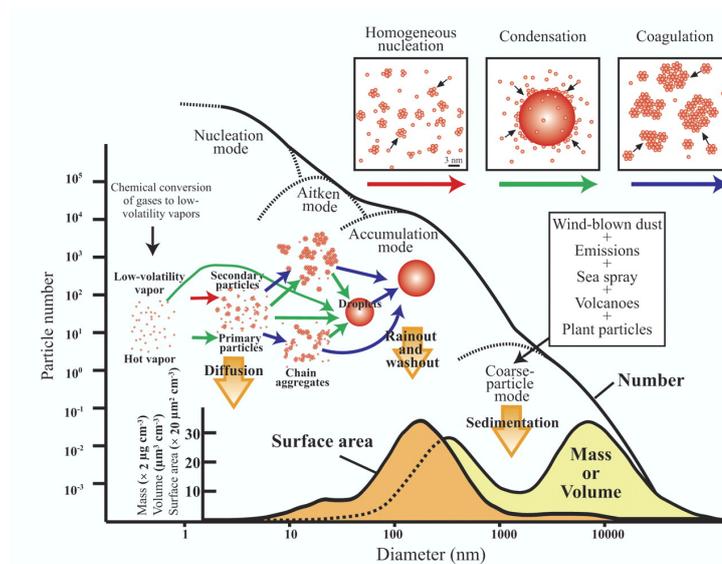


図 1.1: エアロゾルのサイズ分布や二次粒子の成長過程 (Buseck and Adachi, 2008).

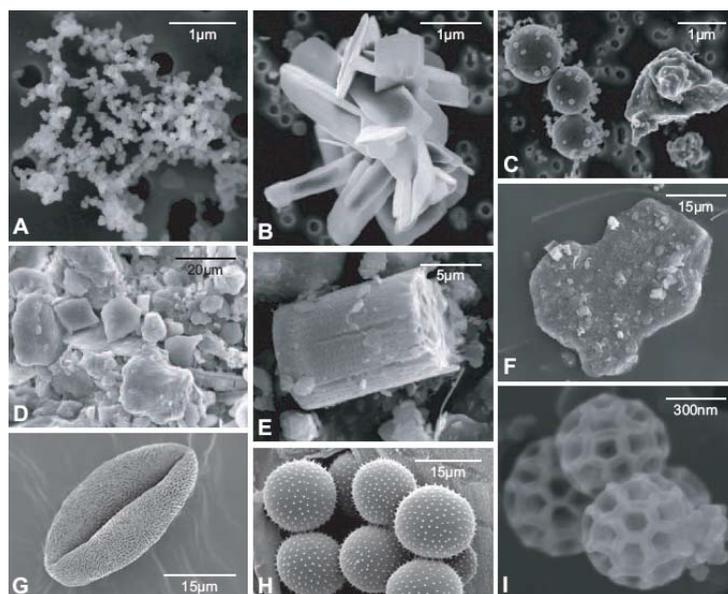


図 1.2: 様々なエアロゾルの走査電子顕微鏡写真 (Gieré and Querol, 2010).

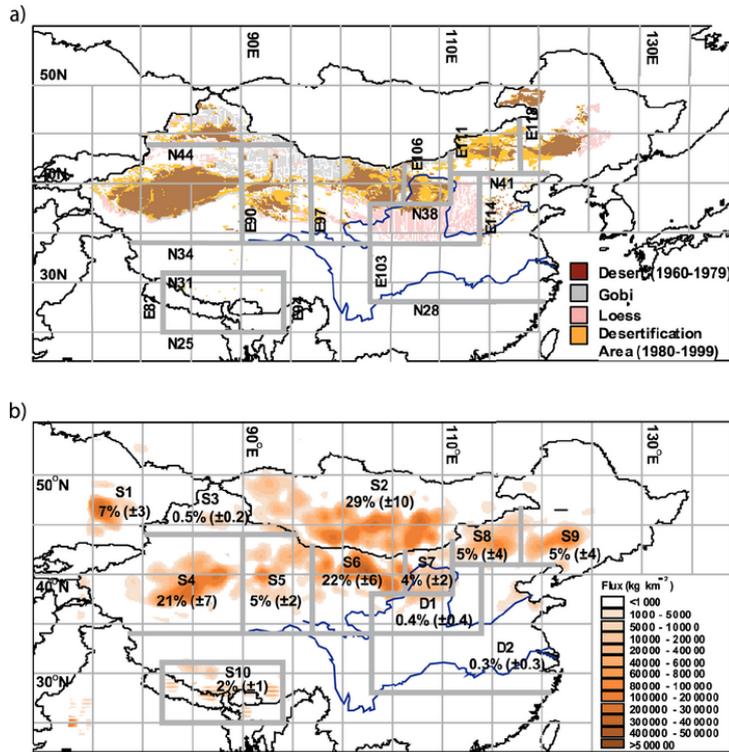


図 1.3: a) 中国北西部から北東部の黄砂発生源における砂漠化の状況; b) 黄砂の発生フラックス (Zhang et al., 2003c).

る。発生源付近においては、粒子の濃度も非常に高く、飛来する頻度も高いことから人畜へ甚大な影響を与える場合がある。被害としては、視程の低下、日射量の低下、交通への影響、ヒトや動物への健康影響などがある。

一方で黄砂には自然界において重要な役割を持つ一面がある。黄砂に含まれる成分が陸域や海域へと沈着することによって、生態系や、気候へ影響を与えている (図 1.4)。

1.2 黄砂粒子の乾性沈着

黄砂粒子が陸域や海域に沈着することによって、生態系の二酸化炭素循環を通じて気候へと影響を与えている (Martin, 1990; Chadwick et al., 1999; Okin et al., 2004; Wang et al., 2012a). 海洋, 特に HNLC (高栄養塩低クロロフィル) 海域に対するダスト粒子

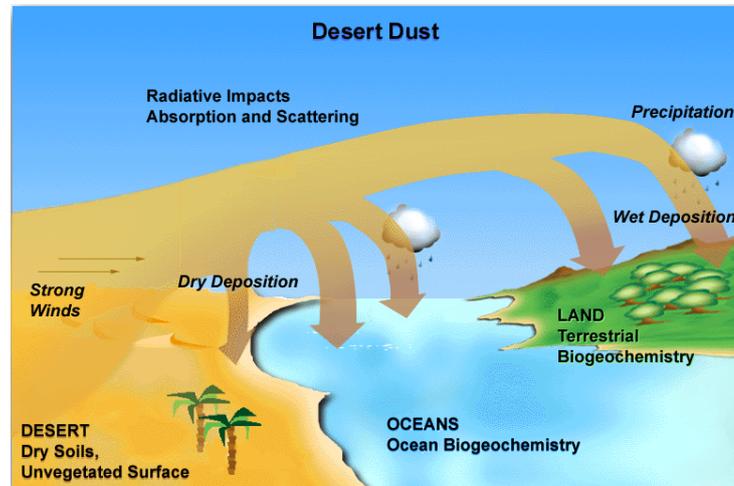


図 1.4: ダスト粒子のライフサイクル (Cornell University ウェブページ (URL:<http://www.geo.cornell.edu/eas/PeoplePlaces/Faculty/mahowald/dust.htm>) より引用).

の沈着の影響は Martin (1990) によって確立された鉄仮説として知られている。代表的な HNLC 海域としては北太平洋亜寒帯域や東部赤道太平洋および南極海が挙げられる (図 1.5)。このような海域では、陸域から河川を通じた生物利用可能な鉄の不足が植物プランクトンの増殖を制限している。この鉄仮説の確立から、鉄の散布による植物プランクトンの応答などをはじめとした様々な実験や観測が行われるようになった。例えば、Moss Landing 海洋研究所のグループによって太平洋赤道域 (IronEx I, 1993; IronEx II, 1994), 南極海 (SOIREE, 1999; SAGE, 2004), 大西洋 (EisenEx, 2000; EIFEX, 2004) などの地域で 1993 年から 2005 年までに合計 11 回の鉄散布実験が行われた (Boyd et al., 2007)。このような実験の結果、鉄散布に対する応答がプランクトンの種によって異なることなどが明らかになった。また、ダスト粒子中の鉄などの成分の溶解性に関する研究も盛んに行われている (e.g. Shi et al., 2008, 2012)。特に、近年では大気中の人為起源物質との混合によるダスト粒子の変質が、鉄の溶解性にどのような影響を与えるのかに非常に大きな関心が集まっている (e.g. Srinivas et al., 2012; Hsu et al., 2014; Srinivas et al., 2014)。

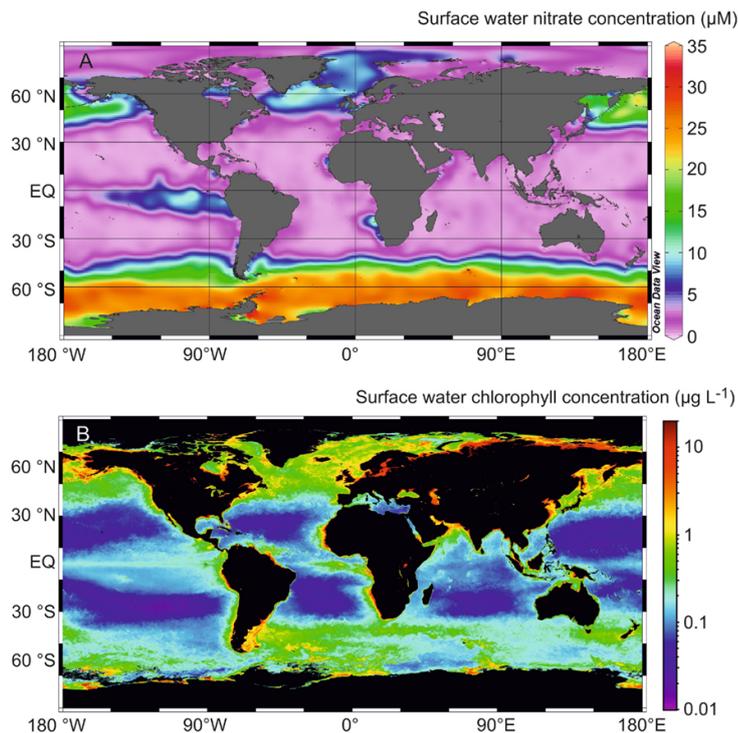


図 1.5: A:世界の海洋における栄養塩（硝酸塩）の濃度分布; B:クロロフィル濃度の分布 (Gledhill and Buck, 2012).

黄砂粒子の海洋への沈着については、中国の黄海や東シナ海への沈着が議論されている (e.g. Tan et al., 2012; Wang et al., 2012a; Hsu et al., 2013; Guo et al., 2014). これらの研究の結果、中国やモンゴルなどで発生したダストのうちおよそ 5% 程度が中国の近海に沈着しており、年間でおおよそ 18 g m^{-2} で沈着していることや、沈着した鉱物成分のうちわずか 1.5% が生物利用可能な鉄を含んでいたこと、黄砂の沈着が植物プランクトンの増殖発生の引き金となり得ることなどが確認された。しかしながら、このような粒子の沈着による影響を評価する研究において沈着量は直接測定したものではなく、大気中の浮遊粒子の濃度と沈着速度から間接的に算出されることが多い。黄砂粒子は自然発生源のエアロゾル粒子であり、日本における観測でも粒径は $1 \mu\text{m}$ 以上にモードサイズをとる場合が多い (Ma et al., 2001; Mori et al., 2003; Zhang et al., 2003b). このような大きさの粒子になると、重力沈降の影響が大きく支配的となり、沈着フラックスは浮遊粒

子の濃度と、重力沈降速度で計算することができると考えられる (Seinfeld and Pandis, 1996a). しかしながら、これまでに浮遊粒子と実際に沈着した粒子の違いについて詳細に検証された例はこれまでに報告されておらず、解決すべき課題である。

これまでこの検証がなされなかった主な理由は、沈着粒子の捕集と用いられる分析法の限界によるところが大きいと考えられる。例えば、日本で観測される黄砂粒子の粒径は $1 \mu\text{m}$ 以上にモードを持つ粗大粒子であるが、沈着速度はストークスの沈着速度式からおよそ $10^{-2} \sim 1 \text{ cm s}^{-1}$ 程度の速度であり、このような粒径の乾性沈着は非常に時間を要する緩慢なプロセスである。一方、エアロゾルの定量分析にはイオンクロマトグラフィーや原子吸光分析法などの総量分析といったバルク的な方法が用いられることが多い。このような方法は黄砂などのエアロゾル粒子の量を正確に定量できる点で非常に有用であるが、分析可能な量を得るためには数日から一週間といった比較的長時間の試料採取が不可欠となってしまう。一方、黄砂現象は数時間から長くとも数日以内の現象であり、長時間の採取では降水などの影響が懸念されるため、単一の黄砂イベント時の乾性沈着による影響評価という視点においては適していない。

本研究では、走査電子顕微鏡と特性 X 線分析による個別粒子分析手法を用いて、乾性沈着粒子試料の分析を行った。この方法は粒子一粒一粒を分析する手法であることから、ごく微量の試料についての分析が可能である。電子顕微鏡を用いた粒子の個別分析は浮遊粒子についてこれまで数多く報告されており、浮遊粒子の研究について有効な手法として確立されている (e.g. Okada et al., 2001; Okada and Kai, 2004; Zhang et al., 2003a,b). この方法を用いれば、黄砂の乾性沈着のような比較的緩慢な過程の試料についても分析が可能となる。また、この手法を用いることで、個々の粒子について元素組成や形状特徴について浮遊粒子と沈着粒子とを直接比較することができる。沈着粒子と浮遊粒子の違いの検証には、大気中から海洋や陸域へ沈着する黄砂粒子の影響を評価する上

で重要な意味がある。

1.3 黄砂の散乱への寄与

電磁波の総称を放射と呼ぶ。電磁波はその波長によって様々な名称があるが、地球の放射に関しては紫外線から可視光線、赤外線、そしてマイクロ波にかけてが重要である。地球の放射に係わる電磁波を発生源別によって、太陽からの太陽放射、大気と地表面が出す放射を地球放射に分けられる。太陽放射の99%以上は4 μm 以下の短い波長領域であり、一方で地球放射は3 μm 以上の波長であるため、前者を短波放射、後者を長波放射と区別する場合もある(浅野, 2010)。

放射は大気中を伝播する際に、大気を構成する物質により散乱・または吸収されることにより減衰する。この散乱または吸収による放射の減衰を消散と呼称する。この消散に関わる要素としては、空気分子や、その他のガス状物質およびエアロゾル(雲粒、水滴を含む)がある。図1.6に示すのは、IPCC第四次報告書にまとめられた大気中のガス状物質および粒子状物質の放射影響の相対的な寄与率である。大気放射への正の強制力として二酸化炭素やメタンなどのガス状物質が挙げられるが、エアロゾルは主に負の放射強制力、すなわち地球の冷却化に寄与している。しかしながら、図1.6に示される通り、エアロゾルの放射強制力の推定には大きなばらつきが見られる。これはエアロゾルの時空間的な分布が複雑であることや、組成情報の不足などが原因として考えられている(Hansen et al., 1997)。

黄砂を含むエアロゾルは太陽放射および地球放射を消散することで気候に影響を与えている。エアロゾルの太陽・地球放射への影響は、そのプロセスから直接効果と間接効果に分けられる(図1.7)。直接効果はエアロゾル粒子自身が放射を散乱・吸収して放射収支に影響し、間接効果はエアロゾル粒子が凝結核や氷結核として作用し雲物理過程に影響

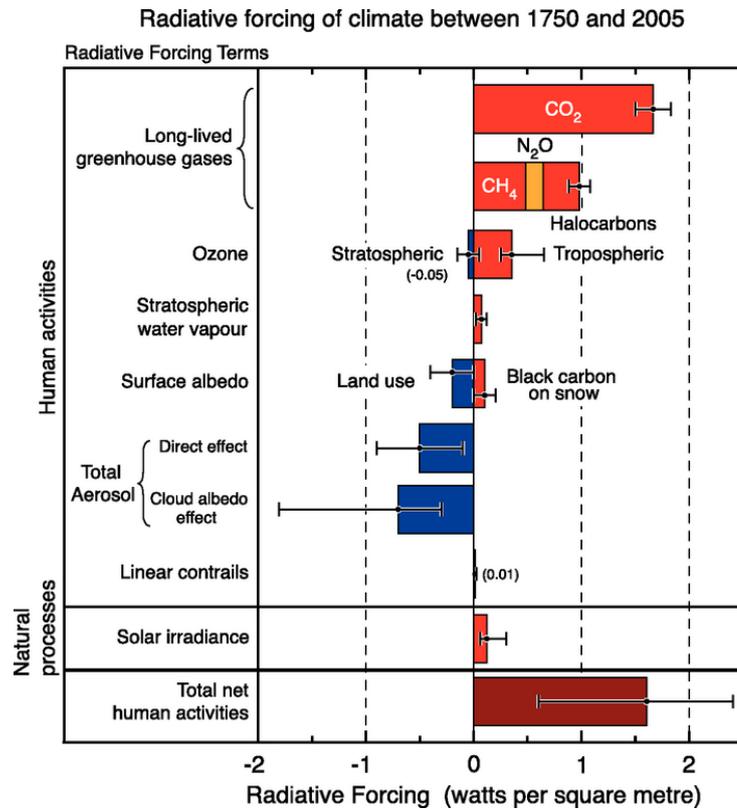


図 1.6: 大気中の気体および粒子状物質の放射強制力 (IPCC-AR4, 2007).

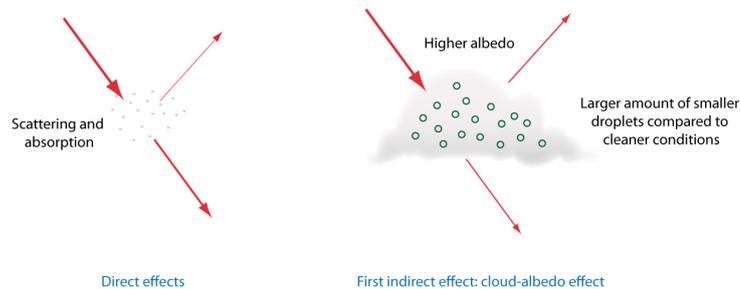


図 1.7: エアロゾルの放射影響（直接効果と間接効果）(Goosse, 2015).

する。

黄砂は、大気中では太陽放射の散乱や雲核・氷雪核として機能し、気候に影響を与えている。黄砂が訪れる晩冬から春にかけて、日本には通常の大気とは異なり、特に粗大粒子が数十倍、時には数百倍もの粒子が浮遊しており、大気の放射は大きく変化したものになると考えられる。黄砂が空間的にどの程度影響を地域に与えているかについては、水平的な黄砂現象の広がりについての知見が少ないため未解明な部分が多い。観測によって黄

砂の影響でどの程度放射場が乱されているかを議論することが重要である。

黄砂をはじめとするエアロゾルの放射特性は、エアロゾルを構成する粒子の性状に依存している。本研究では、電子顕微鏡を用いて個々の粒子の化学組成や、形状特徴、エアロゾルとしての組成と大気放射を比較した。これまでには、粒子の成分としてバルク分析が広く用いられてきたが、本研究では個別分析の立場から粒子の放射への寄与を議論した。このことは、粒子の物理・化学的な特性が放射へどのように寄与するのかについての知見を広げ、エアロゾルの放射影響評価についての不確かさの解消に貢献できると考えられる。

1.4 海洋大気中における黄砂の変質

黄砂は発生源地域から離れ、海洋大気中に曝されると、海塩や水蒸気の影響で黄砂粒子の性状が変化する。中国沿岸部において観測される黄砂粒子はその大半が発生源における成分と一致したのに対し、西日本で観測される黄砂粒子は海塩成分 (Na, Cl) や汚染物質の指標となる硫黄 (S) が頻繁に検出された (Zhang et al., 2003a,b)。中国沿岸域で観測される黄砂粒子からは、およそ 10-25% の範囲で S が検出されたが、これは非黄砂時において中国北京市内で観測された鉱物粒子からの検出頻度に比べかなり低い値であった (Zhang and Iwasaka, 1999)。一方、西日本沿岸域における黄砂時の鉱物粒子からは Na, Cl, S などの元素が 80% を超える高い頻度で検出された。中国沿岸域の黄砂粒子からは Na, Cl, S などの元素の検出頻度は低く、黄砂粒子は発生源における組成に近いと推定された (Zhang et al., 2003a)。これらのことは海洋大気に曝される以前の黄砂粒子は発生源での状態に近く、海洋大気や汚染大気の影響が少ないことを示唆している。

また、黄砂を含む気団と汚染物質を含む気団の混合状態についてはその不均質性が報告されている。例えば、大陸から離れる以前では黄砂を含む気団と汚染物質を含む気団

とが隔離されていたが、日本においての観測ではある程度混ざっていたケースも報告されている (Uematsu et al., 2002; Matsumoto et al., 2003; Zhang et al., 2005b, 2006). 黄砂は大気不安定解消のために発生する移動性の温帯低気圧の寒冷前線を追うような形で移流拡散している. 汚染物質は温帯低気圧が率いる 2 つの前線のうち温暖前線の背後で、寒冷前線前方の暖域と呼ばれる領域に多く含まれる. 暖域の空気は比較的湿潤であり、大気は南～南西から北～北東と緩やかに移動する. 一方、寒冷前線後の空気塊は移動速度が暖域に比べて速く、西から東へと移動していく. これら 2 つの気団（暖域および寒冷前線後）の移動の特徴はそれぞれ異なっており、完全に混合することはない. このことから、黄砂を含む空気塊と汚染物質を含む空気塊とは不均質な混合が生じると考えられる.

黄砂粒子は海洋大気中を移動する間に海塩や水蒸気の影響を受ける. この過程は黄砂の沈着過程や沈着後への影響や、光学的な特性も変化させるために重要である. 東シナ海や日本海を超えて日本に到達する際にも海洋大気による変質が考えられる. 例えば、日本においては海塩成分と内部混合している黄砂粒子は 60% 以上の割合で観測されることが多い (e.g. Zhang et al., 2003b).

黄砂は中国内陸部乾燥地域を発生源とし、日本や北太平洋、時には地球を一周以上することが知られている (Uno et al., 2009). 日本や北大西洋、アメリカ西岸域などの異なる地域での黄砂濃度の測定において、その粒径分布のモードサイズがどの地域においてもほとんど同じであることが明らかにされた (e.g. Andreae et al., 1986). またサハラダストについても同様な結果が報告されている (Maring et al., 2003). 例えば、中国沿岸域と西日本の観測を比較では海塩との混合度合いに依らずモードサイズは 3-4 μm 前後であった (Zhang et al., 2003a,b). また日本において採集された黄砂粒子について、水透析法を用いた粒径の観察が行われ、その結果中国発生源から西日本に到達する間に粒径が

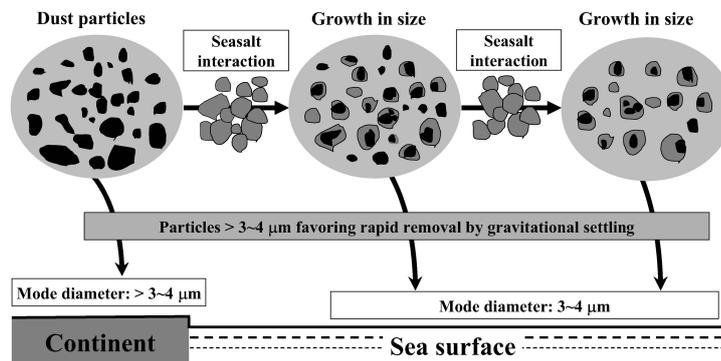


図 1.8: 黄砂粒子が海洋大気中において拡散する途中に海塩粒子との混合による大きさの変化および重力沈着の働きの模式 (Zhang et al., 2005a).

0.4-0.8 μm 程度成長していることが確認された (Zhang and Iwasaka, 2004). このような結果から Zhang et al. (2005a) は黄砂粒子の粒径分布は海塩との混合により, 移動距離に依存せずに維持されるというメカニズムを提唱した (図 1.8). このような海塩と鉱物粒子の混合は大気中での粒径分布に変化を与える要因の 1 つであり, 浮遊粒子と沈着粒子との違いが生じる要因となり得る.

一方, 水蒸気は黄砂の光学的な特性に変化を与える. 一般にエアロゾル粒子の光学的な特性は, 粒子のサイズや形状, 化学組成によって著しく変化する. 海洋大気は陸上の大気に比べ水蒸気を豊富に含んでいることから, 黄砂粒子に対して影響を与える. 通常, 黄砂粒子の形は『非球形』や『不規則な形状』と表現されることが多いが, 水蒸気の影響で水の膜に覆われれば, 黄砂粒子本来の形状から変化してしまい, 放射特性が異なってくる. 黄砂の光学的特性の正確な評価のためには, 水蒸気または湿度による粒子の変質特性を捉えることが重要である. また, 黄砂粒子や, 海塩粒子, 汚染物質エアロゾル粒子の湿度に対する変質特性は大きく異なっている (Tang et al., 1996; Tang, 1997; Tang et al., 1997; Liu et al., 2008; Li et al., 2014; Denjean et al., 2015). 更にこのような異なる粒子群は大気中を複雑な外部・内部混合状態で存在しており, それらの違いによる放射影響については未だ未解明な部分が多い.

これらのことから、大陸を離れた黄砂粒子が海洋大気中に曝されることによる変質は、黄砂粒子の性状を変化させ、粒子の沈着や、放射への寄与に変化を与えることが考えられる。エアロゾルの沈着や放射寄与といった物理過程は、個々の粒子の性状を統合した結果である。個別粒子の立場から得られる海洋大気中における黄砂をはじめとするエアロゾル粒子についての性状やその変化は、沈着や放射という物理的な過程を考察する上で重要な意義を持つ。

1.5 本研究の目的

黄砂をはじめとするエアロゾル粒子は陸域や海域へ沈着することで生態系へ影響を与えている。黄砂の沈着量の推定は生態系や、生態系の二酸化炭素吸収のサイクルを通じて気候に与える影響の評価をする上で非常に重要な情報である。黄砂の沈着量の推定には大気中の濃度と沈着速度から計算するという間接的な方法が用いられることが多い。しかしながら、実際に沈着した粒子と浮遊粒子との違いについて詳細に検討されていないのは重要な問題であると考えられる。

また、エアロゾルは放射を散乱・吸収することで気候に影響を与えている。時空間的な分布や組成情報についての知見の少なさから、エアロゾルの放射影響については大きな不確かさを孕んでいる。特にエアロゾルの組成が、大気の散乱にどのように寄与するのかを明らかにすることは、エアロゾルの放射強制力の不確かさの解消に貢献すると考えられる。

更に、黄砂粒子は大気中を輸送される間に、海塩や人為汚染物質と混合し、その性状が変化することが知られている。このような大気中における粒子の変質、内部混合状態が沈着過程や大気放射に与える影響については未解明な部分が多い。

本研究では、黄砂粒子の生態系への影響や気候への影響を考察する上で重要な基礎的な

情報として、黄砂粒子の乾性沈着と散乱特性について個別粒子の立場からの研究を行った。粒子試料は九州西岸域において、大陸からの移流が予測される空気塊から採集した。採取した粒子試料は、走査電子顕微鏡によって形状特徴や元素組成を分析した。また観測サイトでは浮遊粒子の濃度や、大気の散乱の強さを示す後方散乱係数を継続的に観測している。これらの観測の結果と、電子顕微鏡による粒子の個別分析の結果の比較を行った。

以上のことから、本研究において以下の2つの目的を定めた。

1. 九州西岸で同一黄砂時において採取された浮遊粒子と沈着粒子のサイズや組成の類似・相違について、電子顕微鏡を用いた個別粒子分析の立場から検証する。
2. 異なる湿度条件下で採取された浮遊粒子試料について、電子顕微鏡を用いた個別粒子分析の立場から、大気の散乱特性に対するエアロゾル組成の寄与を考察する。

第2章

黄砂の乾性沈着粒子と 浮遊粒子の比較

2.1 研究背景

黄砂の海洋や陸域への沈着は、生態系の維持に必要な栄養素を供給している (Chadwick et al., 1999). 特に、陸域からの栄養素の供給が乏しい外洋においては、黄砂などのダストの沈着による栄養素の供給が植物プランクの増殖の引き金となり得るということが議論されている (e.g. Wang et al., 2012a). 植物プランクトンの増殖は二酸化炭素循環に影響を与え、結果的に気候にも影響を与える。そのため、ダストの沈着量を推定することは大気を介した物質循環が気候に与える影響を評価する上で重要な課題である。黄砂などのダストの沈着研究の手法として、モデル計算によるシミュレーション、観測データからの推定、実測などの方法が用いられる。いずれの場合も沈着フラックス（単位時間、単位面積あたりに通過または沈着する物理量、例えば質量）は

$$F = C \times v_d \quad (2.1)$$

の式で表現される。ここで F は沈着フラックス、 C は大気中の濃度、 v_d は沈着速度を表している。モデルや観測結果に基づいて計算する方法はこの式の右辺によって間接的に計算されるため、しばしば間接法 (indirect method) や推定法 (inferencial method) と呼ばれる。一方で実測による直接的なフラックスの測定は直接法 (direct method) として区別される。粒子の沈着による生態系への影響を評価する場合、当然直接的な方法が理想であるが、特に海洋への影響など広大な範囲におけるフラックスの実測は現実的でない。そのため、多くの場合推定法が用いられる。

モデル計算の中で沈着フラックスがどのように表現されているか、例をあげて説明する。ダストなどのエアロゾル粒子の沈着過程を含む様々なモデルが研究・運用されている (e.g. In and Park, 2002; Liu et al., 2003; Park and In, 2003; Gong et al., 2003). 国内

のモデルとしては九州大学応用力学研究所の化学天気予報システム CFORS (Chemical weather FORecasting System, Uno et al. (2003)) や気象庁気象研究所の MASINGAR (Model of Aerosol Species IN the Global AtmospHeRe, Tanaka and Chiba (2005)) などがある。CFORS ではダストの沈着は乾性・湿性ともに組み込まれている。その中で乾性沈着は、ストークスの重力沈降速度式を用いて計算されている。ただし、このモデル中には粒子の凝集については無視されている (Uno et al., 2003)。また、MASINGAR においても同様に、鉱物粒子の除去過程は乾性・湿性を区別して記述されているが、乾性沈着は重力沈着とその他の沈着 (分子拡散などによる沈着など) を含んでいる。重力沈着については CFORS と同様にストークスの重力沈降速度式によって沈着速度を求め、沈着量を決定している (Tanaka and Chiba, 2005)。ダスト粒子は一般的には非球形であるが、このようなモデル計算においては粒子の形状を球形と仮定する。このような粒子の形状の仮定による計算結果への影響は、広域モデルにおいては少ないと見積もられている (Ginoux, 2003)。

モデル計算によると、世界のダスト発生量は低く見積もったもので $60\text{-}360 \text{ Tg yr}^{-1}$ 、多く見積もったものでおよそ 3000 Tg yr^{-1} 、平均では $1000\text{-}2000 \text{ Tg yr}^{-1}$ と推定されている (Judson, 1968; Hidy and Brock, 1970)。発生量は新しい結果ほど多く見積もられる傾向が見られた。Duce et al. (1991) のモデル計算の結果によると、年間におよそ 900 Tg m^{-2} ほどのダストエアロゾルが世界の海洋へと沈着 (乾性+湿性) していると推定されている。Jickells et al. (2005) の結果によると、年間およそ 1700 Tg が発生し、 450 Tg が海洋へと沈着していた。

直接的な沈着フラックスの観測には、自然表面法や代理表面法、渦相関法などが用いられている。自然表面法は、植物の葉の表面などに沈着した粒子を分析する方法であり、より自然状態に近い環境試料が得られる (Ruijgrok et al., 1997; Simon et al., 2014)。しか

し、キャリブレーションやコンタミネーションの観点から実用的でない問題も含んでいる。一方、代理表面法は、自然表面の代わりにテフロン片や、ビニール、プラスチック製のボトルなどを沈着表面として利用する方法で、比較的簡便であり、コンタミネーションの問題も最小限に留めることができることからしばしば用いられる方法である (Inomata et al., 2009; Hojati et al., 2012; Osada et al., 2014)。しかし代理表面法にも弱点はあり、それは乾性沈着過程には沈着表面に依存する過程が含まれており、この過程による違いを無視するという仮定が必要である。黄砂のような鉱物粒子は $1 \mu\text{m}$ を超えるような粗大粒子領域にモードを持つことから、重力沈降の影響が大きく、沈着表面に依存する過程の影響は少ないと考えられる。渦相関法は超音波風速計を用いた方法微気象学的方法であり、温室効果ガスのフラックス測定などに用いられるが、10 Hz もの高時間分解能での風速と濃度の測定を行う必要があるため、エアロゾルを始めとした大気汚染物質の測定には適さない。大気汚染物質などに適した方法としては、この渦相関法を応用した緩和渦集積法 (REA 法) があり、近年では硫酸塩などのエアロゾル成分の観測にも用いられるようになった (Meyers et al., 2006; Myles et al., 2007)。しかしながら、黄砂などのダスト粒子に用いられた例は見られない。このように様々な乾性沈着フラックスの測定方法があるが、ダスト粒子の乾性沈着の実測の報告はわずかに見られる程度である (Inomata et al., 2009; Hojati et al., 2012; Osada et al., 2014; Niu et al., 2016)。ダストの乾性沈着の実測の研究例が少ないのは主に2つの理由が考えられる。1つは粒子の乾性沈着は非常に緩慢な過程であり、沈着に非常に時間を要すること、もう1つは多くの場合分析に用いられる方法による。

エアロゾル成分の分析にはイオンクロマトグラフィーや原子吸光分析法などのように成分の総量を分析するバルク的な方法と、電子顕微鏡を用いた個別粒子について分析する方法がある (e.g. Mori et al., 2002; Wu et al., 2010; Okada et al., 1990; Zhang et al.,

2006). バルク的な方法は非常に簡便に行え、定量的なデータが得られるという長所があるが、一方で分析する試料がある程度の濃度に達しないと分析することが困難である。大気汚染物質や黄砂などの試料は短時間の試料採集ではその濃度の低さから、定量下限以上の量を確保することが難しい。そのためハイボリュームサンプラーと呼ばれるポンプで大量に空気を吸引し試料を採集する方法で、数日から数週間という比較的長時間の試料採集が不可欠である。しかし、乾性沈着試料の採取の場合は自然に沈着する過程を経た粒子であるから、ポンプで集めることはできない。黄砂のような鉱物粒子の沈着は非常に緩慢であり、濃度も低いため、必要量に達するのに非常に長い採集時間が必要である。一方、黄砂や大気汚染物質などが越境輸送するような総観規模の大気の流れに伴うイベントは数時間から数日内の現象である (e.g. Husar et al., 2001; Zhang et al., 2006) このことから、長時間の試料採集は複数のイベントを含んでしまう可能性があり、単一のイベントに対する評価を行う場合適切でないことがある。しかしながら、このような問題点を持ちつつも、バルク分析によって得られる総量データは非常に重要である。

一方で、粒子個別分析はこのようなバルク分析の結果に対して重要な補完情報となり得る。電子顕微鏡を用いた分析では粒子個々の形態や元素組成等を観察できるため、エアロゾルの混合状態をより詳細に捉えることが可能となる。エアロゾルの混合状態はエアロゾルの組成としての外部混合と、1つの粒子内での組成である内部混合とに区別される。バルク分析においてはこの外部混合状態と内部混合状態の区別が平均化されてしまう。エアロゾルの沈着による生態系への影響や気候への影響を正確に理解するためには内部混合状態の情報は不可欠である。電子顕微鏡を用いた浮遊粒子に対する個別分析はこれまで数多く行われてきた (e.g. Okada et al., 1990, 2001; Zhang et al., 2003a,b; Li et al., 2014)。また、電子顕微鏡を用いた方法は個別に粒子を分析する方法であるから、バルク的な方法で分析しきれないごく微量の試料に対しても有効である。短時間・少量の

空気の吸引によって採取した試料の分析が可能であり、これは即ち、時間分解能を高め、単一のエアロゾル移流イベントを捉え議論を行うことができる。一方で、個別分析は非常に分析に時間を要するために、分析可能な範囲が限られてしまう欠点を持つ。しかしながら、個別粒子についての混合状態や、形状特徴などの情報は、エアロゾルの生態系・気候への影響を議論する上で重要な情報であると言える。このような電子顕微鏡を用いた個別粒子の立場での手法は、乾性沈着という非常に緩慢な過程の試料であっても分析可能であると考えられる。

エアロゾル粒子は大気輸送中に変質する。エアロゾル粒子の変質とは発生した直後の粒子の状態から、大気輸送過程を経て、様々な粒子状物質やガス状と混合し、その性状が変化することである。粒子沈着の観点からは粒子の成長過程が重要となる。黄砂粒子は中国北部やモンゴルなどの乾燥・半乾燥地域で発生し、偏西風によって風下へと拡散されやがて海洋大気と混合する。日本において観測される黄砂粒子は高い頻度で海塩成分と混合している (Okada et al., 1990; Zhou and Tazaki, 1996; Zhang et al., 2003b)。海塩粒子との混合によって、九州西岸域で観測された黄砂粒子はおよそ $0.4\text{-}0.8\ \mu\text{m}$ 成長していた (Zhang and Iwasaka, 2004; Zhang et al., 2006)。しかしながら、粒子が海塩と混合することによる沈着への影響はモデルなどの計算においては考慮されていない。

これらのことから、同一黄砂時において実際に沈着した黄砂粒子と、浮遊していた黄砂粒子について個別粒子の立場で比較し、その混合状態やサイズの違いが沈着に与える影響について議論することを目的とした。これまでにも黄砂のようなダスト粒子の沈着量の実測は行われてきた (Inomata et al., 2009; Hojati et al., 2012; Osada et al., 2014)。浮遊粒子については個別粒子の立場からの結果は多いが、沈着粒子についての結果の多くはバルク的な分析によるものである。本研究では、黄砂時の浮遊粒子と沈着粒子を電子顕微鏡を用いた個別粒子分析を行い比較した。したがって、本研究によって沈着粒子と浮

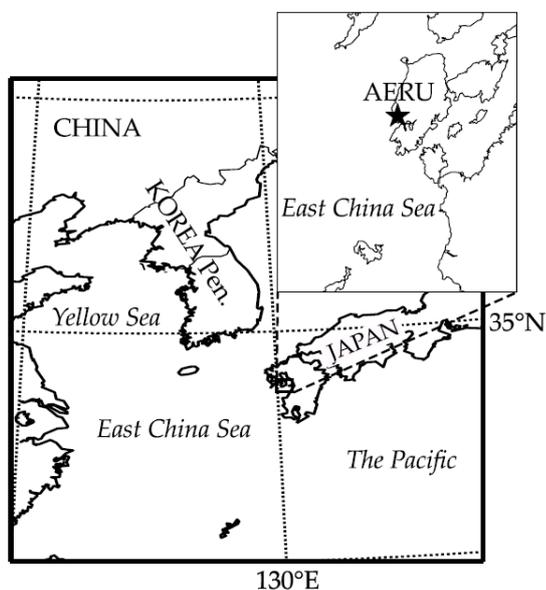
遊粒子の直接的な比較が実現した。これらの情報は、沈着粒子が生態系へ与える影響を評価する上で重要な情報となり得る。

2.2 方法

2.2.1 乾性沈着粒子の採取

沈着粒子の試料は 2010 年, 2011 年, 2012 年の 3 月に採集し, それぞれの試料を Case-1, Case-2, Case-3 とした。粒子試料は熊本県天草市天草町大江, 天草環境リサーチユニット AERU (Amakusa Environmental Research Unit, 32°19'N, 129°59'E, 35 m a.s.l.) および, ブルーアイランド天草で採取した。図 2.1a に AERU の位置を示した地図を, 図 2.1b に外観の写真を示す。ブルーアイランド天草は AERU からおよそ 500 m ほど離れた宿泊施設であり, AERU と観測の条件はほとんど変わらないと考えられる。これらの観測場所は九州西岸に位置し, 西側数十~百 m の距離に海を臨み, 北, 東, 南に主として農地が広がっている。工場などの人為汚染物質の固定発生源はなく, 自動車の排ガスによる影響も少ない。そのため, 大陸由来の空気塊の観測に非常に適した場所であると言える。秋から初冬, そして特に晩冬から春にかけて移動性高気圧・低気圧の総観規模の気象が支配的となり, 大陸内部で発生した低気圧によって黄砂粒子が輸送される。

乾性沈着試料採取にはバケツ型の乾性沈着ユニット (Case-1) と Sigma-2 (Case-2 と Case-3) (VDI) サンプラーを使用した。図 2.2a にバケツ型乾性沈着試料採取ユニットを, 図 2.2b に Sigma-2 サンプラーの写真を掲載する。Sigma-2 サンプラーは乾性沈着粒子採取用に設計されたサンプラーで, ある程度の降水の影響を抑え, かつ沈着粒子の再飛散を抑制することができる (VDI, 1997)。バケツ型サンプラーや Sigma-2 は AERU のコンテナ上に設置し, 更に Sigma-2 は AERU コンテナ上に鉄製の棒を用いて地上高約 5 m に固定した。試料は走査電子顕微鏡観察用の Ti 製のグリッド (NisshinEM, 目



(a) AERU の位置



(b) AERU の外観

図 2.1: 天草環境リサーチユニット AERU (Amakusa Environmental Research Unit, 32°19'N, 129°59'E) の位置 (a) と外観 (b).



(a) バケツ型



(b) Sigma-2 サンプラー

図 2.2: 乾性沈着試料採集器具.

隠し板) 上に採取した (図 2.3). 導電性確保を確保するため, Ti グリッドは観察試料台上にカーボンテープを用いて固定した. 対象とする鉱物粒子のモードが粗大粒子領域 ($1\ \mu\text{m}$ 以上) に存在することから, サンプリングの時間をおよそ 12-24 時間に設定した. サンプリング期間は 2010 年から 2012 年の 3 月, 黄砂の輸送が考えられる空気塊を狙っ

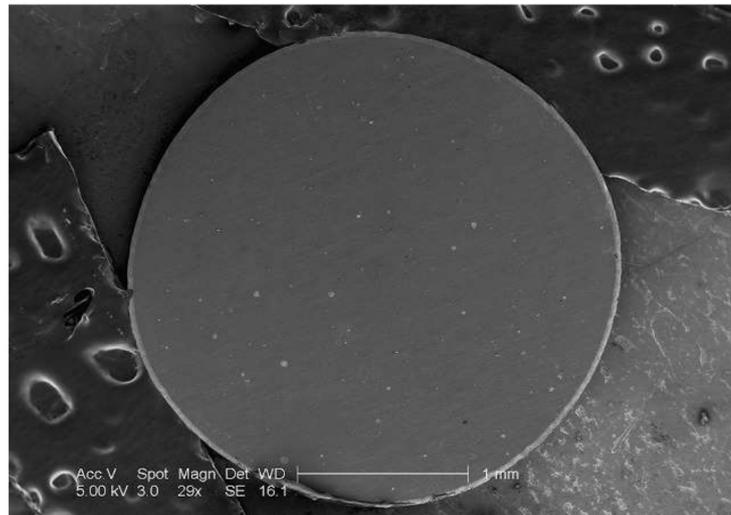


図 2.3: Ti 製グリッド (直径約 3 mm) の電子顕微鏡写真. 写真は Sigma-2 サンプラーを用いて乾性沈着粒子を採取したもの.

表 2.1: 沈着粒子試料の採取開始時刻と終了時刻.

Dust Event	Sampling Time(GMT+09:00)	
	Start Time	Stop Time
Case-1	16-Mar-10 14:20	17-Mar-10 15:30
Case-2	21-Mar-11 18:50	22-Mar-11 18:50
Case-3	24-Mar-12 06:15	24-Mar-12 18:15

た. 黄砂イベントの予測および判断は化学天気予報システム CFORS(Chemical weather FORecasting System, Kyushu Univ. (Uno et al., 2003)) および光散乱式粒子計測装置 (Optical particle counter, KC-01D&KC-01E, RION, 以下 OPC) の粗大粒子 ($2 \mu\text{m}$ 以上) の粒子数濃度の上昇を用いた. 表 2.1 に沈着粒子採集時の記録を示した.

2.2.2 浮遊粒子の採取

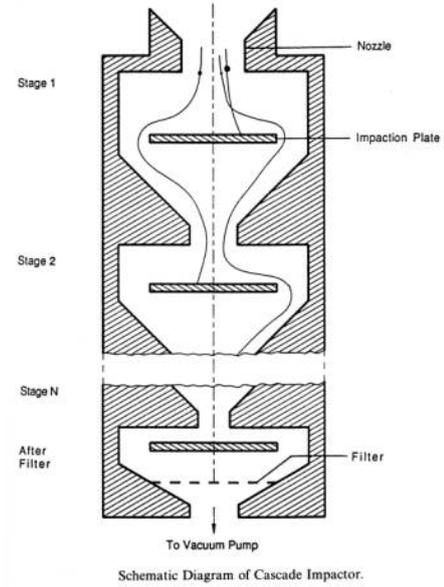
浮遊粒子はカスケードインパクト（Cascade impactors, PIXE inc.）の1または2ステージを用いて採取した。インパクトは慣性力を利用して粒子を粒径毎に分取するサンプラーである（図2.4）。粒子は乾性沈着試料と同じく走査電子顕微鏡観察用のTiグリッド上に採取した。採取時間は大気中の粒子数濃度に応じて0.5-3.0分の間で採取を行った。ポンプの採取流量は 1 L min^{-1} である。1ステージ、2ステージの50%カットオフ粒径は粒子密度 2.3 g cm^{-3} （鉱物の代表的な密度）に対してそれぞれ $0.16 \mu\text{m}$, $0.33 \mu\text{m}$, または粒子密度 1 g cm^{-3} （水の密度）に対してそれぞれ $0.25 \mu\text{m}$, $0.50 \mu\text{m}$ である。本来は特定の粒径区画毎に浮遊粒子を採取するのがこの器具の目的であるが、本研究においては鉱物粒子の粒径分布を正しく捉えるために、一段のみで使用し、カットオフ粒径以上の粒子すべて1段のステージに採取した。サンプリング期間は2010年から2012年の3月、大陸からの空気塊の流入が考えられる時に採取を行った。表2.2に浮遊粒子採集期間と気象条件を示した。気象データはAERUにおいて気象計（WXT-520, Vaisala）の観測を中心に、牛深気象台のデータも補完的に用いた。

2.2.3 個別粒子の分析

粒子は走査電子顕微鏡（ESEM XL-30, Philips）およびエネルギー分散型特性X線分析装置（Sapphire, EDAX）を用いて分析した。乾性沈着粒子はグリッド上全体におよそ均一に沈着しているため、グリッド（直径約3 mm）上すべての粒子を分析対象として、個々の粒子に対して画像解析用の電子顕微鏡写真の撮影および特性X線分析を行った。浮遊粒子の分析では粒子はカスケードインパクトによって採取されたため、グリッドの一部に集中している。粒子採取部は中心から外側に向かって同心円上に粒子サイズま



(a) カスケードインパクター



(b) カスケードインパクターの模式図

図 2.4: カスケードインパクターの写真と模式図 (Lodge and Chan, 1986).

表 2.2: 浮遊粒子試料の採集の日時, 時間, 相対湿度 (RH), 視程 (Visib.), 風向 (Dir.)・風速 (Spd).

Dust Event	Sampling (GMT+09:00)		RH [%]	Visib. [km]	Wind	
	Date	Period			Dir.	Spd [$m s^{-1}$]
Case-1	16-Mar-10	(1)15:12-15:17	46	< 15	WNW	5.1
		(2)15:20:15:23	46	< 15	WNW	5.1
Case-2	22-Mar-11	(1)07:23-07:26	73	< 15	WNW	1.9
		(2)18:35:18:36	60	< 15	NW	2.1
Case-3	24-Mar-12	(1)06:05-06:06	51	< 10	W	8
		(2)09:04-09:05	64	< 10	W	7.3
		(3)11:38-11:39	53	< 15	W	7.6
		(4)15:14-15:15	46	< 20	WNW	6.6

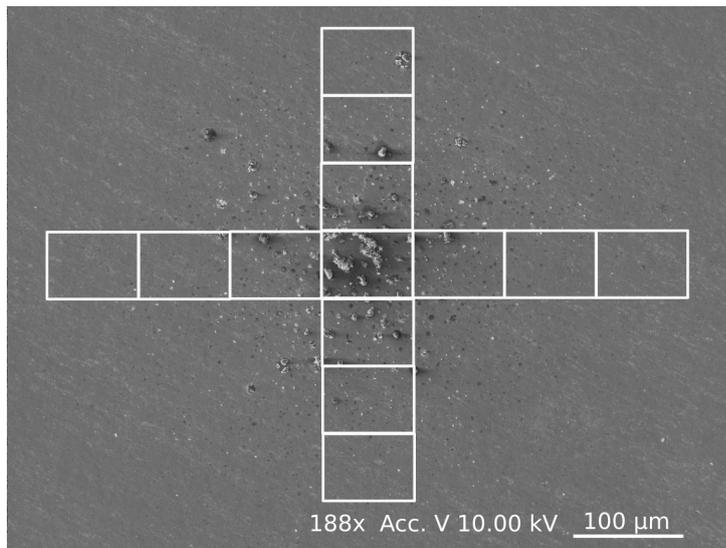


図 2.5: インパクター法で採集した浮遊粒子試料の分析領域の選択.

たは密度が小さくなるように採取されている．分析対象の選択はインパクターの採取部の中心から 5000 倍の倍率で連続的に分析領域の写真撮影．写真に写った領域中の $0.5 \mu\text{m}$ 以上の粒子すべてを形状特徴および元素組成分析の対象とした (図 2.5)．

粒子の形状特徴は画像解析ソフト ImageJ を用いて分析した．この方法では写真中の粒子を選択し二値化処理，平滑化処理を行いピクセルカウントにより粒子の面積と周囲長を行う．また，粒子形状の楕円近似を行い長径と短径（長径と直行する最長の径）を算出した．粒子写真または領域画像中に印字されるスケールバーまたは画像のメタ情報から画像のピクセル数と実際の長さの比 [$\text{pixel } \mu\text{m}^{-1}$] を算出し，得られた粒子の形状特徴情報を補正した (図 2.6)．補正済みの粒子の面積から，円等価径を算出し，これを粒子の粒径とした．

試料に入射した電子線のエネルギーの一部が特性 X 線として検出される．この X 線は元素に固有のエネルギーを持っており，元素組成の同定と原子量比や重量比といった半定量的なデータを得ることができる．本研究で用いた特性 X 線分析では標準無しの ZAF 補正により，元素組成の重量比を算出した．ZAF 補正は (Z) 原子番号効果，(A) 吸収効

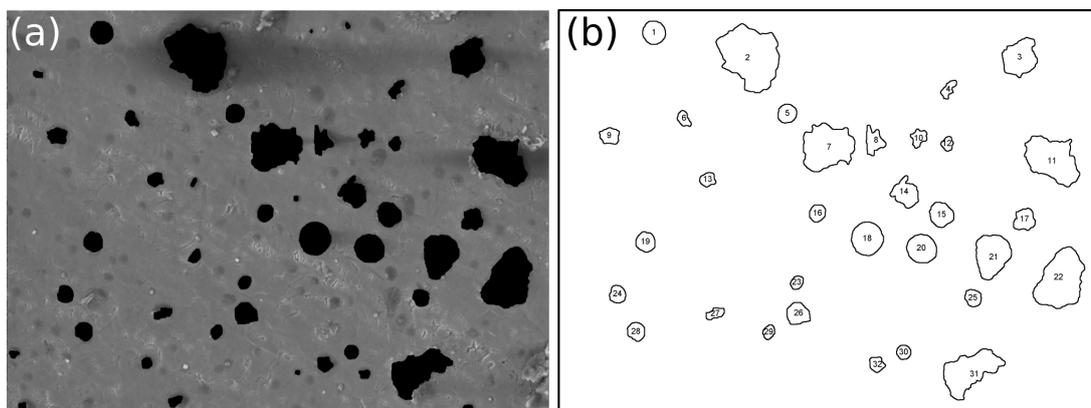


図 2.6: ImageJ を用いた画像解析, (a) 粒子の選択; (b) 粒子の形状特徴の計測.

果効果, (F) 蛍光励起効果を加味した補正法であり, 特性 X 線分析における元素の相対定量法として広く用いられている. この方法では炭素や窒素といった比較的軽元素から白金や金などの重い元素まで広く分析することができる. 本研究では鉱物粒子に多く含まれる Mg, Al, Si, Ca, Fe や海塩成分として Na, Mg, S, Cl, 硫酸塩の成分として S を分析対象の元素とした. その他 K や Mo など微量な元素が稀に検出されることがある. また C や N, O といった原子は過大評価されてしまうため, 元素検出の有無のみ記録し, 定量分析は Na 以上の原子番号の元素を対象とした. 個別粒子の元素組成情報は面分析によって加速電圧 20 kV, live time 30-60 s, 1000 cps 以上の条件で分析を行った.

2.3 結果

2.3.1 気象条件と粒子濃度の変動

図 2.7 に気圧の変動及び粒子数濃度の変動の時系列グラフを示す. 第一縦軸は単位体積空気あたりの粒子数濃度 (L^{-1}) である. OPC のデータは丸が粗大粒子 ($D_p \geq 2.0 \mu m$), 点線が蓄積モード粒子 ($0.3 \mu m \leq D_p < 1.0 \mu m$) の濃度をそれぞれ示している. 第二縦軸は気圧 (hPa) であり, 図中では実線で示している. 濃い影は降水の有無を示している

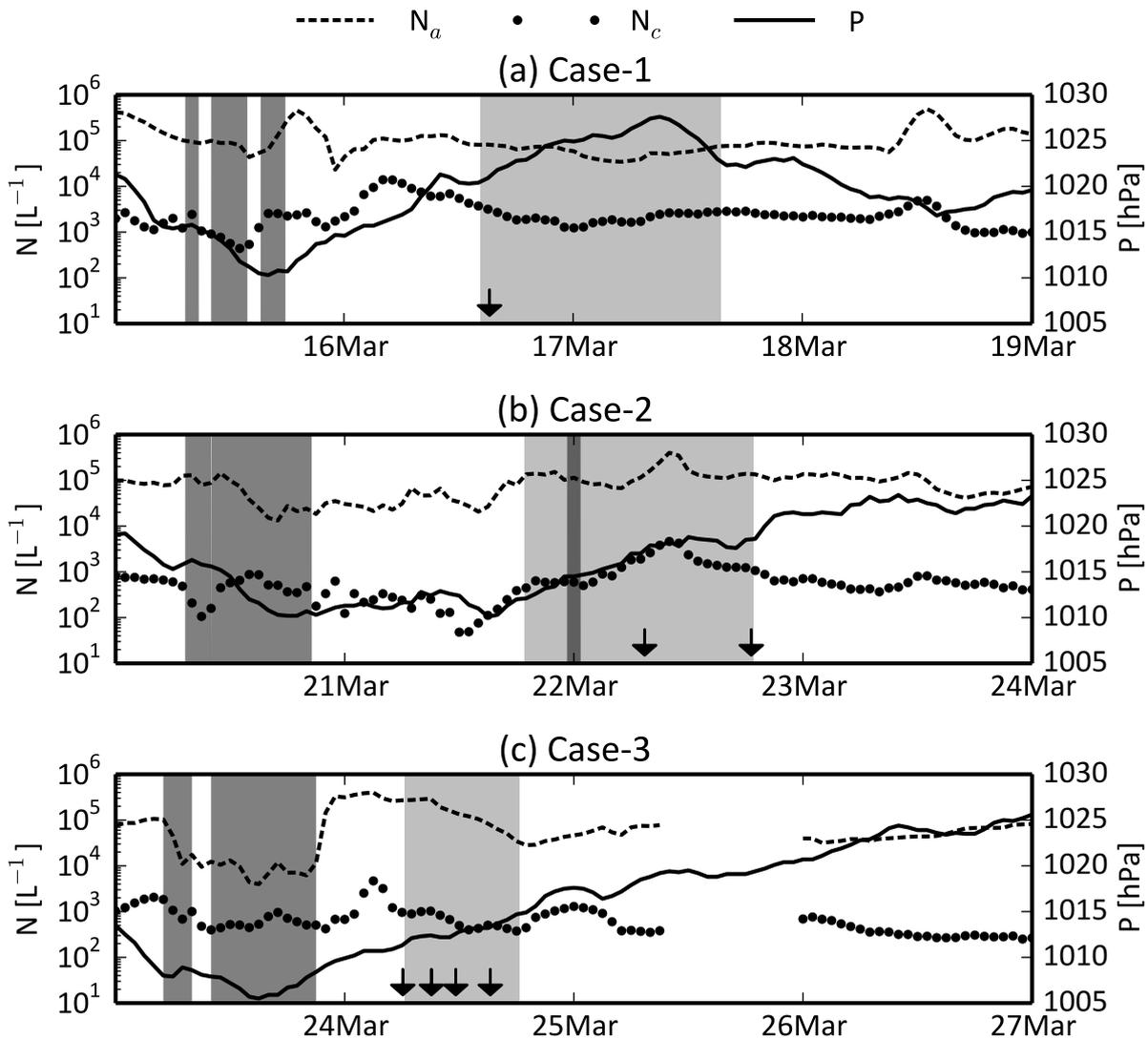


図 2.7: 試料採集前後の粒子数濃度と気象の変動。黒丸および破線は $2 \mu m$ 以上の粗大粒子および $0.3-0.5 \mu m$ の蓄積モードの数濃度，実線は気圧の変化をそれぞれ表している。濃い陰付きは降水の有無，薄い陰付きは乾性沈着試料の採取を表している。また，矢印で浮遊粒子使用の採取を示した。

が，降水の量・強度は示していない。薄い影は乾性沈着粒子の採取を示している。また，矢印で浮遊粒子試料の採取を示した。図 2.8 にはそれぞれのケース毎の代表として午前 9 時の天気図と，後方流跡線 (NOAA HYSPLIT online model) の結果を示した。

Case-1 では 3 月 15 日の午後に低気圧の通過に伴う降雨が観測された。粒子数濃度は降

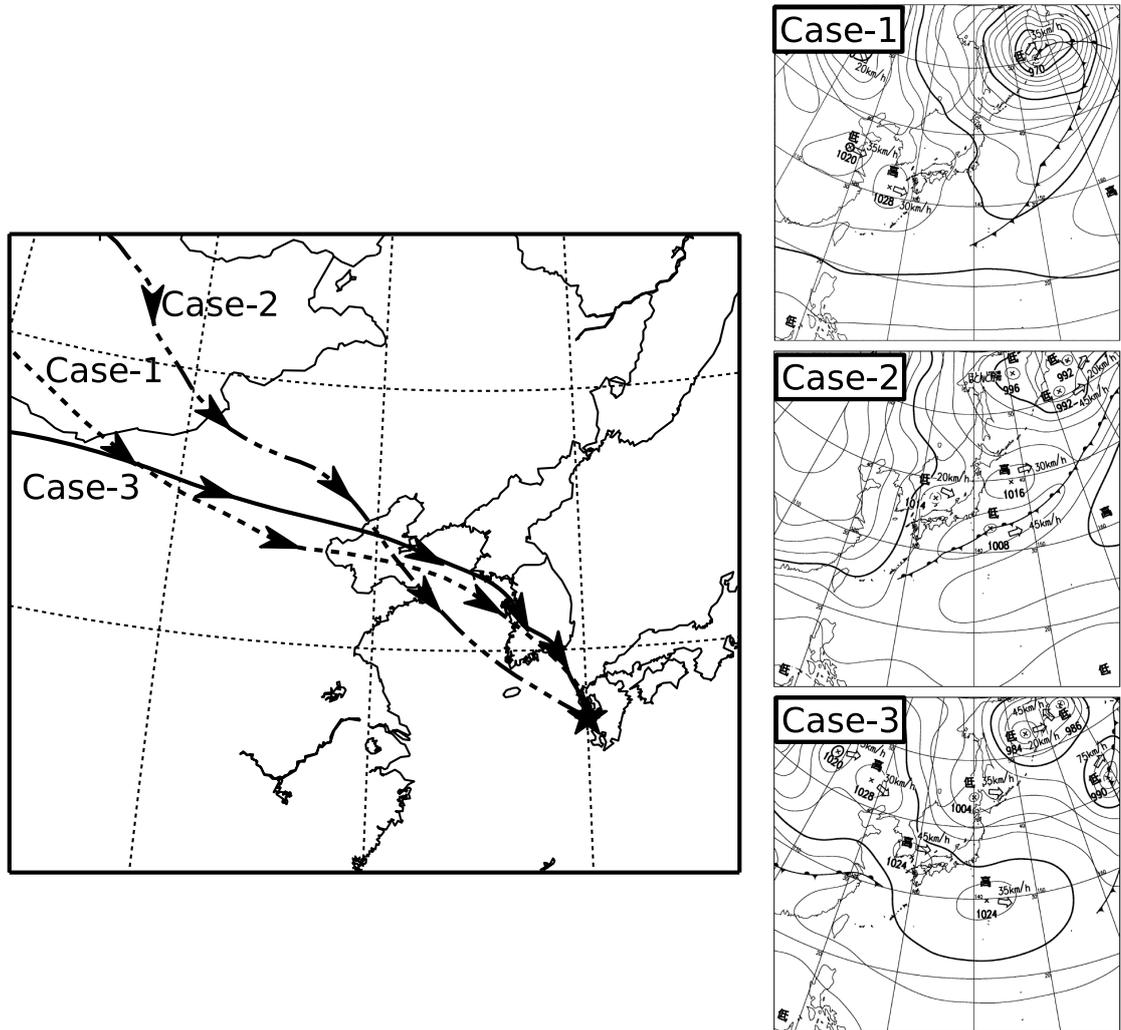


図 2.8: 試料採集時の後方流跡線 (NOAA HYSPLIT online model) と地上天気図 (北海道放送 HBC 専門天気図).

水によって低下したが、降水直後に蓄積モード粒子の数濃度が急激に上昇している。粗大粒子は降水中に濃度の上昇が見られ、降水直後の上昇は見られなかった。低気圧通過後、気圧の上昇とともに蓄積モードの粒子数濃度の変動は小さくなった。粗大粒子は 16 日午前 4 時から 6 時にかけて上昇し、その後緩やかに低下したが、その後高気圧の影響下にある期間を通じて比較的高い濃度を維持していた。沈着粒子は 3 月 16 日から 17 日にかけておよそ 24 時間採集した。浮遊粒子は乾性沈着粒子採集期間中に 1 度採集した。採集期間中の粒子数濃度は粗大・蓄積モードともに大きな変動は見られなかった (図 2.7(a)).

Case-2 では3月20日の午後に気圧の谷の通過に伴う降水が観測された。降水の前後で粒子数濃度は蓄積モードでは減少したが、粗大粒子では増加した。降水による除去率が粒径範囲ごとに変わらないと仮定すると、粗大粒子の粒子数濃度上昇は非常に大きかったと考えられる。22日から23日にかけて気圧の上昇にともなって粒子数濃度が上昇したが、とくに粗大粒子の濃度上昇が顕著であった。粒子の採集は気圧の変動が低下から上昇に変わった後から行った。浮遊粒子の採集は沈着粒子採集期間内に2回行った。粒子採取中に弱い雨 (1.5 mm h^{-1}) が観測されたが、Sigma-2による粒子採集には影響しないと考えられる。また、粒子採集中は粗大粒子の濃度が比較的高い値を維持していた (図 2.7(b))。

Case-3 では3月23日の午前から断続的な降水が観測された。降水中の粒子濃度の変動は、蓄積モード粒子の変動が非常に顕著で、大きく減少し、降水後に急激に上昇した。一方で、粗大粒子の変動は降水中および降水の前後でそれほど大きくなかった。気圧の上昇が始まり、高気圧接近時、粗大粒子の数濃度の上昇は、蓄積モード粒子濃度の上昇と比べると数時間遅れで、短時間で増加し減少した。その後、蓄積モード・粗大粒子濃度ともに穏やかに減少していった。粒子の採取は、低気圧通過後の粗大粒子増加の後、緩やかに減少するときに採集した。浮遊粒子の採集は乾性沈着試料の採集期間中に4回行った (図 2.7(c))。

3つケースに共通する特徴として、春季の移動性の低気圧に伴う前線、または気圧の谷の通過後の高気圧接近中の空気塊に粗大粒子の粒子数濃度が見られた。このような粒子の変動傾向や気象との関係性はこれまでに多く報告されているものと同様であった (Bates et al., 2004; Hatakeyama et al., 2004; Zhang et al., 2005b; Huang et al., 2010; Ogata et al., 2011)。また、沈着粒子採集時の後方流跡線解析の結果ではいずれのケースでも中国の北部やモンゴルなどの乾燥地域からの空気塊であった。これらのことから、沈着粒子

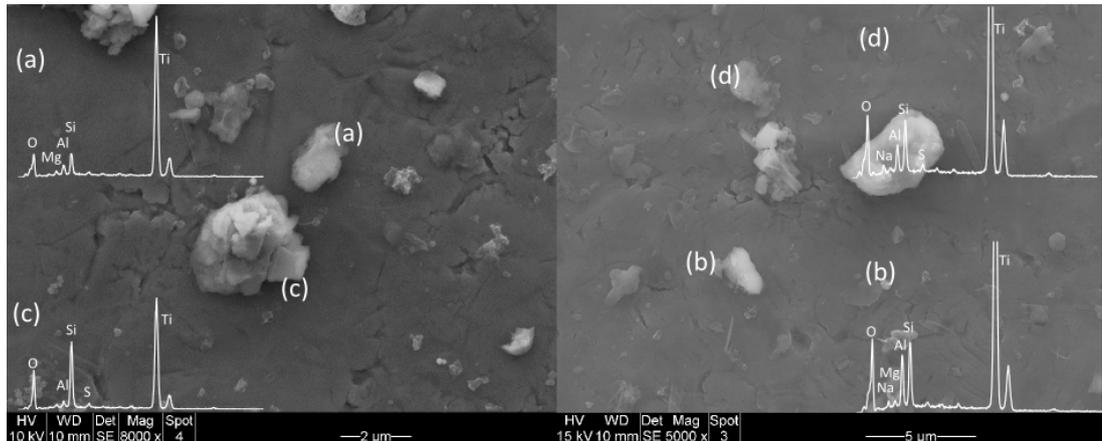


図 2.9: SEM 写真の例と EDX スペクトル. (a) nox-mixture (海塩成分, 硫酸塩成分ともに含まない鉱物), (b) Na-containing (海塩成分を含むが硫酸塩成分は含まない鉱物), (c) Na&S-containing (海塩成分と硫酸塩成分を共に含む鉱物), (d) S-containing (硫酸塩成分は含むが海塩成分は含まない鉱物).

および浮遊粒子の両試料に黄砂時のダスト粒子が含まれていると考えられる (図 2.8).

2.3.2 元素組成の比較

鉱物粒子の定義はその粒子の元素組成に Al と Si を含むものと定義した. この定義は黄砂粒子の主な成分としてアルミノケイ酸塩が含まれていることに基づいている (Fan et al., 1996; Okada and Kai, 2004). また鉱物粒子の内部混合状態を調べるために鉱物成分 (Al, Si), 海塩成分 (Na) と硫酸塩成分 (S) を区別し、それらの組み合わせから鉱物粒子を nox-mixture (海塩成分, 硫酸塩成分ともに含まない鉱物), Na-containing (海塩成分を含むが硫酸塩成分は含まない鉱物), Na&S-containing (海塩成分と硫酸塩成分を共に含む鉱物), S-containing (硫酸塩成分は含むが海塩成分は含まない鉱物) の 4 つのグループに分類した (図 2.9).

Na は海塩粒子の主成分であり環境によって変質しにくい性質であるために、海塩粒子の指標とした. 一方で S は硫酸塩成分の指標として利用したが、海塩の成分にも含まれ

る可能性がある。そのため海塩成分としての S と硫酸塩成分としての S とを区別する必要がある。本研究では天草で採取された新鮮な海塩粒子の試料から Na に対する S の元素組成比 ($\frac{S}{Na} \simeq 0.052$) を算出した。この結果は分析する機器によって異なるために、実際に粒子を分析する装置と同じ機器を用いて評価する必要がある。 $\frac{S}{Na}$ の値が 0.052 未満の場合は海塩成分としての S, 0.052 以上の場合は硫酸塩と海塩の成分が混合していると判断した。Na や S はそれぞれ海塩や硫酸塩の主成分であると同じく、鉍物の成分としても検出され (Wu et al., 2012), これらの元素は発生源近くの中国の北西部では比較的少ない値である (Zhang et al., 2003b; Okada and Kai, 2004)。海塩や硫酸塩と混合していない鉍物粒子は、大気輸送中に混合せずに試料採取場所まで到達し、これはつまり発生源での成分のままであると考えられる。

鉍物粒子の元素組成に従って分類した粒子数の割合を図 2.10 に示す。浮遊粒子のうち海塩・硫酸塩との混合が見られない非混合粒子の割合は 19-38% であり、Case-3 で最も低く Case-2 で最も高かった。沈着粒子では、非混合粒子の割合は浮遊粒子に比べて高く、62-80% の粒子が海塩または硫酸塩の成分と混合していなかった。海塩成分との混合が考えられる浮遊粒子の割合は 47-68% で、天草で採取された粒子のおよそ半分以上が海塩の成分と混合しているという結果であった。一方で、海塩成分と混合している沈着粒子の割合は 15-26% 程度であった。海塩成分は含まず硫酸塩とのみ混合している粒子の割合は浮遊粒子で 9-15%, 沈着粒子で 8-12% であった。硫酸塩成分と混合した浮遊粒子と沈着粒子で大きな差は見られなかったが、海塩成分と混合した粒子の割合は浮遊粒子の方が高いという結果であった。この結果は、非混合粒子の方が沈着しやすい可能性を示す。

次に個別粒子についての元素の定量的な比較について記述する。EDX を用いた元素分析では個別粒子の元素情報について組成 (半定量的) データが得られる。分析の結果から [Al+Si+Fe], [Na], [S] をそれぞれ鉍物成分, 海塩成分, 硫酸塩成分として, 図 2.11 の上

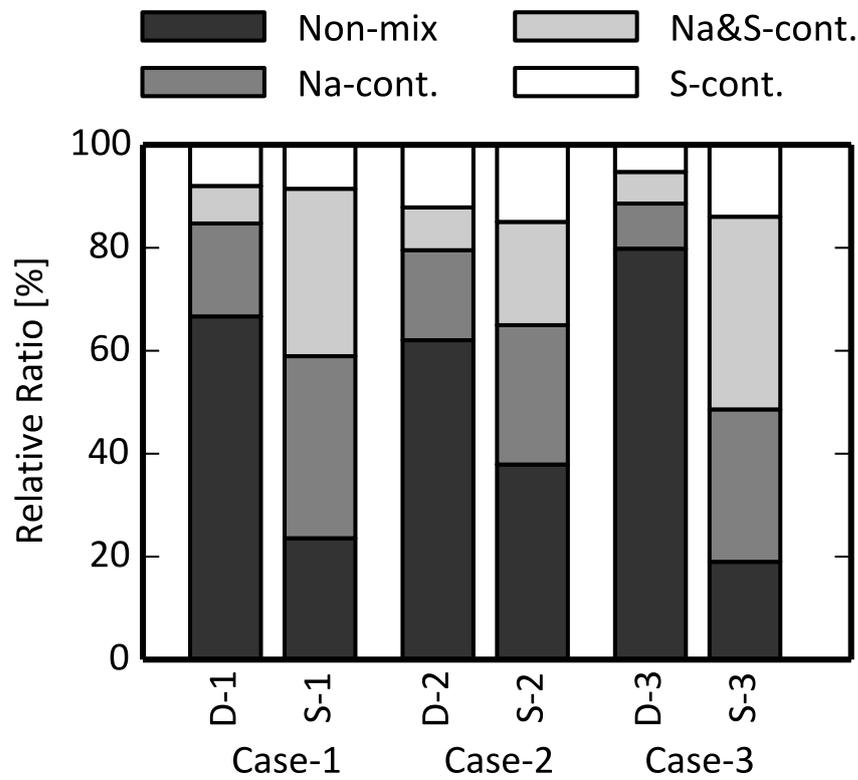


図 2.10: 鉱物粒子分類の結果, Non-mix, Na-cont., Na&S-cont., S-cont. は非混合粒子, 海塩成分との混合粒子, 海塩と硫酸塩成分との混合粒子, 硫酸塩成分との混合粒子を表す. D-1, S-1 はそれぞれ Case-1 における沈着粒子と浮遊粒子の試料であることを示している. D-2・D-3, S-2・S-3 も同様.

段 (a, b, c) にそれら 3 成分の重量比を三角ダイアグラムとして示す. 図中の黒いダイヤは沈着粒子, 白抜き黒丸は浮遊粒子を示す. また図 2.11 の下段 (d, e, f) には沈着粒子の鉱物, 海塩, 硫酸塩成分の合計に対する鉱物成分の相対度数を示す. 埋め込まれた図は浮遊粒子についての同様の結果を示している. 全ケースにおいて共通して, 沈着粒子は鉱物成分の割合が非常に高かった. Case-1 から Case-3 で鉱物成分の割合が 80% を超えるもの ($\frac{[Al+Si+Fe]}{[Al+Si+Fe+Na+S]} \geq 80\%$) の相対度数は沈着粒子でそれぞれ, 95%, 92%, 90% と非常に高い割合で, 浮遊粒子では 56%, 83%, 45% とばらつきが見られた. さらに沈着粒子中には海塩成分や硫酸塩成分を全く含まない ($\frac{[Al+Si+Fe]}{[Al+Si+Fe+Na+S]} = 0\%$) 粒子

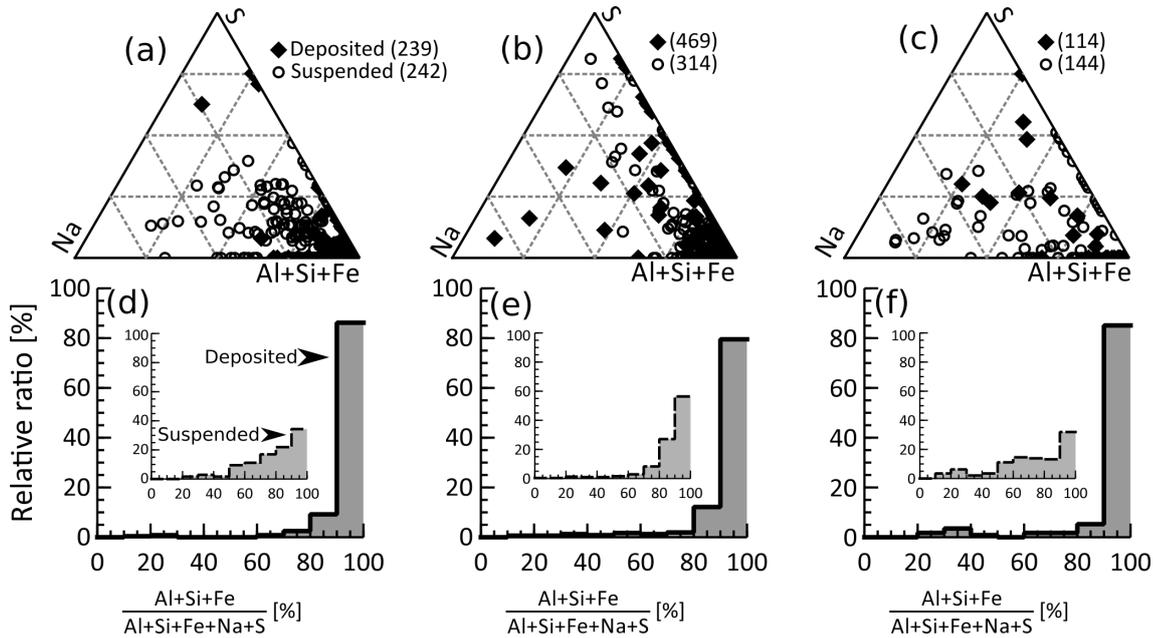


図 2.11: 上段：鉱物粒子中の 3 成分（鉱物成分 [Al+Si+Fe]，海塩成分 [Na]，硫酸塩成分 [S]）の相対重量。下段：沈着粒子に対する鉱物成分 [Al+Si+Fe] の割合の度数分布，埋め込まれたグラフは同 Case の浮遊粒子についてのグラフ。

も含んでおり，割合はそれぞれ 67%，62%，80% であった（図 2.10）。Case-2 は浮遊粒子の混合比も小さく，海塩や硫酸塩との混合はあまり進んでいなかったが，沈着粒子では海塩成分 [Na] と硫酸塩成分 [S]，浮遊粒子では硫酸塩成分 [S] の割合に大きなばらつきが見られた。Case-1 と Case-3 では浮遊粒子で海塩成分 [Na] の割合のばらつきが大きかった。

2.3.3 粒径分布の比較

次に沈着粒子と浮遊粒子の粒径分布について記述する。一般的にエアロゾルの粒径分布については対数正規分布または指数分布（Junge の分布則）などを前提とするが，本研究中では沈着粒子，浮遊粒子ともに対数正規分布であることを仮定する。すなわち，粒子の総数を N とすると，

$$N = \int_{-\infty}^{\infty} n(\ln D_p) d \ln D_p \quad (2.2)$$

で表され、これは実際の観測データではしばしば

$$N = \int_{D_{pmin}}^{D_{pmin}} n(\log D_p) d\log D_p \quad (2.3)$$

で表される。すなわち数-粒径分布 (number-size distribution) は、

$$n(\log D_p) = \frac{dN}{d\log D_p} \quad (2.4)$$

と、表現できる。

粒径分布の範囲は 0.5 から 10.0 μm で、区切りは 0.5, 1.0, 1.5, 2.0, 3.0, 5.0, 10.0 μm とし、沈着粒子と浮遊粒子について、非混合粒子 (NMX)、海塩成分または硫酸塩成分と混合した粒子 (MX) およびすべての鉱物粒子 (Total) に分けて粒子数粒径分布を作成した。図 2.12 に結果を示す。非混合粒子 (NMX) に対してモードサイズは沈着、浮遊粒子でそれぞれ、Case-1 で 5.0-10.0 μm , 1.0-3.0 μm (図 2.12, a と d), Case-2 で 3.0-5.0 μm , 2.0-3.0 μm (図 2.12, b と e), Case-3 で 1.0-5.0 μm (特に 3.0-5.0 μm), 2.0-3.0 μm (図 2.12, c と f) であった。沈着粒子では明らかに 5.0 μm 以上の粒子が目立つが、特にその傾向は Case-1 において顕著であった。一方で、浮遊粒子では 5.0 μm 以上の粒子はそれほど多く見られなかった。5.0 μm 以上の粒子の大気中での数濃度はより微小な粒子に比べて低いが、サイズに対する重力沈降の影響が大きくなるためであると考えられる。

どの Case においても沈着粒子についてすべての鉱物粒子 (Total) は非混合粒子のモードサイズと近く、Case-1, Case-2, Case-3 においてそれぞれ 5.0-10.0 μm , 3.0-5.0 μm , 3.0-5.0 μm であった。混合粒子 (MX) では沈着粒子、浮遊粒子それぞれ、Case-1 で 5.0-10.0 μm , 2.0-3.0 μm , Case-2 では 3.0-10.0 μm , 2.0-3.0 μm , Case-3 では 5.0-10.0 μm , 2.0-5.0 μm であった。どの Case においても混合・非混合粒子ともに沈着粒子の方

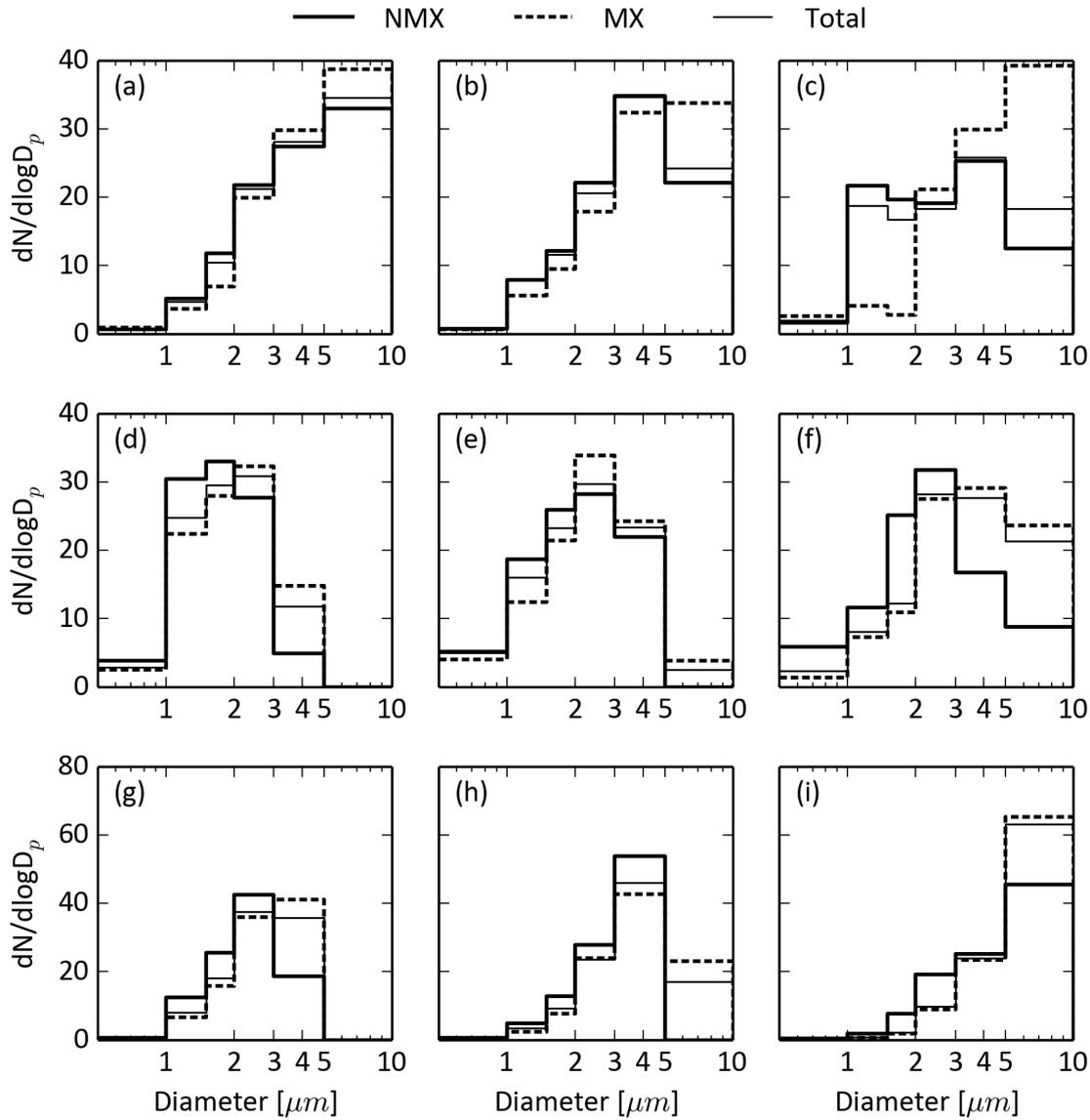


図 2.12: 沈着粒子 (a, b, c) と浮遊粒子 (d, e, f) に対する非混合粒子 (NMX), 海塩成分または硫酸塩成分と混合した粒子 (MX) およびすべての鉱物粒子 (Total) の数-粒径分布. 区切りは 0.5, 1.0, 1.5, 2.0, 3.0, 5.0, 10.0 μm . (g, h, f) は, 浮遊粒子の粒径分布 (d, e, f) に対して, 沈着速度による重み付けを行った結果.

が大きなモードサイズであった。特に混合粒子のモードサイズは $5.0 \mu\text{m}$ 以上にあった。このような粒径範囲において海塩成分との混合による粒子の成長が重力沈降による沈着速度の増加が顕著であることが知られている (Zhang, 2008)。鉱物粒子全体に対する非混合粒子が占める割合が高いことから、混合によって $5.0 \mu\text{m}$ 以上に成長した粒子は少なかったことを示している。混合の有無に関わらず、 $5.0 \mu\text{m}$ 以上の粒子はより小さい粒子に比べて重力沈降によって効率的に除去される。もしも、鉱物粒子の多くが $5 \mu\text{m}$ またはそれ以上の粒径に成長したならば、鉱物粒子全体のモードサイズは非混合粒子のモードサイズと一致しないはずである。

浮遊粒子の粒径分布はそれぞれ似たような分布であった (図 2.12, d と e と f)。モードサイズは Case-1 で $1.0\text{-}3.0 \mu\text{m}$ (ピークは $1.5\text{-}2.0 \mu\text{m}$)、Case-2 で $2.0\text{-}5.0 \mu\text{m}$ (ピークは $2.0\text{-}3.0 \mu\text{m}$)、Case-3 では非混合粒子は $2.0\text{-}3.0 \mu\text{m}$ で混合粒子で $2.0\text{-}5.0 \mu\text{m}$ であった。 $5.0 \mu\text{m}$ を超える粒子の割合は混合・非混合で少ないか、全く見られなかった。モードサイズは沈着粒子と浮遊粒子とで異なったが、どちらにも共通して $3.0 \mu\text{m}$ 以上の範囲で大きい粒子ほどより海塩と混合している傾向がみられた。

2.4 考察

沈着粒子のモードは $3.0\text{-}5.0 \mu\text{m}$ で、浮遊粒子のモードは $2.0\text{-}3.0 \mu\text{m}$ であった。沈着粒子は浮遊粒子が沈着の過程を経たものである。この過程を考慮し、沈着粒子と浮遊粒子のより正確な比較のために、浮遊粒子の粒径分布を沈着速度で重み付けを行った。

$$dN_w = \frac{v_d}{v_m} dN \quad (2.5)$$

ここで dN_w は重み付け後の粒子数、 dN は各粒子径階の粒子数、 v_d は各粒子径階の階級値 (中央値) で計算した沈着速度、 v_m はモードサイズにおける沈着速度である。沈着速

度は粒子は球形，層流領域での沈着と仮定し，ストークスの重力沈着速度式から求めた (Seinfeld and Pandis, 1996a).

重力沈着速度での重み付け後の浮遊粒子のモードサイズは Case-1 で 2.0-5.0 μm ，Case-2 で 3.0-5.0 μm ，Case-3 で 5.0-10.0 μm となった (図 2.12). Case-1 において，沈着粒子と重み付け後の浮遊粒子のモードサイズでは沈着粒子のモードサイズの方が大きかった．これは採集方法の違いによる影響が考えられる．Case-1 の乾性沈着粒子試料は乾性沈着ユニット (バケツ型) を用いており，Sigma-2 サンプラーとは粒子の採取に有効な粒径領域に違いが出ると考えられる．Case-2 では重み付け後の浮遊粒子のモードサイズは 3.0-5.0 μm となったがこれは沈着粒子のモードサイズと一致が良い結果となった．Case-3 では重み付け後の浮遊粒子のモードサイズは 5.0 μm 以上の領域にあり，これは沈着粒子のモードサイズとほとんど一致した．同様の結果が中国沿岸部青島で採取された沈着粒子について報告された (Niu et al., 2016). 更に粒子数と粒子から積算体積に換算した体積-粒径分布についても同様に比較を行ったが，浮遊粒子のモードサイズもより大きな粒径へと移動した．この結果は粒子の元素組成に比べて粒子のサイズが，沈着を決定する重要なパラメーターであることを支持するものである．これらの事実は海塩粒子の密度 (2.17 g cm^{-3}) に対して，鉱物粒子の密度 ($2.6\text{-}3.0 \text{ g cm}^{-3}$) が近い値であることに基づいている．Zhang (2008) によると，10.0 μm 以下の鉱物粒子の沈着速度に対して海塩との混合の割合はそれほど大きな影響を与えない．また，鉱物粒子の周りを薄い水の膜が覆うことがあるが，その場合も鉱物粒子の沈着速度への影響は小さいと考えられる．

鉱物粒子の元素分析の結果，沈着粒子では非混合粒子の割合は 62-80% で，浮遊粒子の 19-38% に比べて高い割合であった．また，個々の粒子における 3 成分 (鉱物，海塩，硫酸塩) の重量比も沈着粒子で高い結果であった．これらの数や重量の割合の違いは浮遊粒子に比べて沈着粒子の方がより鉱物成分を含んでいたことを示している．鉱物粒子がエ

アロゾル粒子として発生し、大気中で混合粒子へと変質するのは、海塩成分や人為汚染物質との混合の結果である。非混合粒子はこのような変質の過程経ずに、すなわち、発生源での成分の近い状態で大気中を輸送され、沈着したと考えられる。

浮遊鉍物粒子と海塩の混合についてはこれまでに慎重に研究・議論されてきており、海塩との混合によって鉍物成分の沈着が促進されていることが知られている (Niimura et al., 1998; Okada et al., 2001; Zhang and Iwasaka, 2004; Zhang et al., 2005a). 海塩との混合による粒子の成長は本研究においても確認された。混合によって鉍物粒子がある一定のサイズよりも大きくなると混合は沈着を促進させ、一方で、ある一定サイズよりも小さい場合は容易に大気中を長距離移動できる (Zhang et al., 2005a). これらの結果は特に $0.5 \mu\text{m}$ 以上の鉍物粒子のサイズが沈着を決定する重要なパラメーターであることによく一致する。

これらの結果からは沈着粒子と浮遊粒子ではその組成に違いがあることが推測される。鉍物粒子の沈着フラックスは混合・非混合粒子を含む粒子のサイズに依存する。粒子の組成が鉍物成分・海塩成分のどちらが優占するかによって、沈着する成分は大きく異なることが予想される。つまり、より正確な沈着フラックスの推定を行うためには、浮遊粒子の組成と濃度をもとに計算される沈着フラックス算出法（間接法）には、実際に沈着した粒子についての情報が含まれる必要がある。これらの違いを無視した計算は海塩成分について過大評価、鉍物成分については過小評価となる可能性がある。

2.5 まとめ

九州西岸域において、同一黄砂時における沈着粒子と浮遊粒子の試料採集をそれぞれ3回行った。これらの試料中の粒子について、電子顕微鏡法とエネルギー分散型特性 X 線分析を用いて、粒子の形状やサイズ、化学組成について詳細に比較を行った。その結果、

浮遊粒子のモードサイズは、沈着粒子に比べてやや小さい結果が得られた。しかし、分析した浮遊粒子の粒径分布に対して、重力沈降速度による重み付けを行った結果、浮遊粒子のモードサイズは沈着粒子のモードサイズと近い値になった。これは浮遊粒子の沈着の決定に対して粒子のサイズが重要なパラメーターであるということを支持している。

また、粒子を化学元素組成に基づいて分類を行い、浮遊粒子と沈着粒子とで分類毎の数の割合、および鉱物成分の重量比の違いがあることが見出された。沈着粒子では、海塩成分や硫酸塩成分と混合していない鉱物粒子の割合が優占しており、また、浮遊粒子に比べて、各粒子についても鉱物成分の割合が大きかった。これらの結果は海洋に対する鉱物粒子の沈着フラックス推定する上で、海塩との混合による鉱物粒子の変質を考慮する必要性があるということを示唆している。

第3章

エアロゾル粒子組成の散乱への寄与

3.1 研究背景

エアロゾルによる太陽放射の散乱・吸収過程は大気の放射収支に直接的に影響を与えている (Hansen et al., 1997). エアロゾルを構成する粒子の散乱に対する物理的・化学的な寄与について理解するためには、粒子の大きさや化学組成、水溶性などの性質について詳しく知る必要がある (Houghton et al., eds, 2001). 特に溶解性や吸湿性を持つ粒子は水蒸気を吸収することによって成長し、大気の放射へ影響も強めている (Seinfeld and Pandis, 1996b; Tang, 1997).

エアロゾルの散乱はこれまでも、モデル計算や野外観測の分野で数多く研究されてきた。数値計算モデルにおいては、放射の減衰（消散）は光学的厚さとして表現される。光学的厚さは大気中の物質による散乱と吸収の高度積分によって計算される (e.g. Takemura et al., 2002; Goto et al., 2011; Dai et al., 2015). 大気中の物質とは、空気やその他のガス状物質、エアロゾルなどが含まれる。このようなモデル計算において、主なエアロゾル粒子として、炭素性粒子、硫酸塩粒子、鉱物粒子、海塩粒子などが考慮されている (e.g. Takemura et al., 2002). 吸湿性を持つ粒子については、水蒸気を吸収することによる粒子の成長を考慮し、消散係数は相対湿度の関数として取り扱われている。また、モデルには内部混合状態や外部混合状態が想定されている。このようなモデル計算において、エアロゾルの組成についてはしばしば均一な混合状態が仮定される。粒子の形状は非常に重要な要素であり、例えばすす粒子は大気中での変質より吸湿性を持ち core-shell 構造をとる場合があり、この状態のすす粒子は通常のすす粒子の光学的特性とは大きく異なることが知られている (Chandra et al., 2004; Moffet and Prather, 2009). モデル計算においては大気中にサイズや組成など複雑な分布を持って浮遊するエアロゾル粒子の寄与をいかに表現するかが重要な課題となっている (Zhang and Thompson, 2014).

観測の立場では、ライダーやスカイラジオメーター、ネフェロメーターといった大気の放射測定機器を用いて、地上、船舶および航空機等で行われている (e.g. Hayasaka et al., 2007; Markowicz et al., 2008; Kitakoga et al., 2014). これらの大気の散乱や吸収の実測からは、エアロゾル粒子の温暖化・冷却化効果の評価のための定量的なデータが得られる。しかしながら、エアロゾルの成分についての分析では多くの場合、バルク的な手法が用いられる (e.g. Carrico et al., 2003; Liu et al., 2008). この方法では、エアロゾル総量についての情報は得られるが、個々の粒子の物理化学的な性状とエアロゾルの光学的特性との関係性について得られる知見は限られてしまう。エアロゾルの組成や大気中での変質による放射影響をより正確に記述する場合、このようなバルク的なデータだけでは不十分であり、粒子個々の形状や化学組成、混合状態の情報が不可欠である。

電子顕微鏡を用いたエアロゾル粒子の研究はこれまでに数多く行われてきた (e.g. Okada et al., 2001; Zhang et al., 2006). この方法は粒子一粒一粒について、形状や元素組成を分析する方法であることから、エアロゾル粒子の化学組成や、内部・外部混合状態、粒径、形状といった情報が得られる。エアロゾルを介する放射は個々のエアロゾル粒子の形状やサイズ、化学組成に依存する物理的な過程であるため、個別粒子分析による情報は大気の放射伝達の評価において重要な知見となる。例えば、Kandler et al. (2007) は、ダスト粒子の個別分析によって粒子の性質と光学的な特性との関係性を調査した。この研究によって、理論的な計算結果と実測結果との間に大きな違いがあり、個々の粒子の組成や形状のばらつきが原因であることが明らかとなった。また、最近の研究では Denjean et al. (2015) によってサハラダストについて、粒子の放射影響が大きく過大評価されている可能性を示唆された。これらの研究の結果は、個々の粒子の特性が放射へどのように寄与するのかに対する情報の不足と重要性を示唆している。このことから、電子顕微鏡を用いた個別粒子の立場からエアロゾル粒子の特性が放射への寄与を明らかにす

ることは、エアロゾルの気候影響評価のために重要な意味を持つ。

本研究では、九州西岸において大気の散乱と浮遊粒子の濃度を継続的に測定した。また、様々な気象条件で浮遊粒子を採取し、電子顕微鏡を用いた個別分析によって粒子の形状特徴やサイズ、内部・外部混合状態について分析を行った。これらの結果について大気の散乱と粒子の性状との関係について比較を行った。これまでには、放射影響、特に散乱の強さとエアロゾルの組成の関連性についてエアロゾルをバルク的に分析し比較する研究は行われてきた (e.g. Carrico et al., 2003; Liu et al., 2008)。しかし、個別粒子の立場からエアロゾルの放射への影響に関する情報は少ない。したがって、本研究によってより詳細なエアロゾル組成と放射への影響の関連性を議論することができる。これはライダーなどのリモートセンシングを用いた研究や、モデル計算による研究に対しても有用な情報となり得る。

3.2 方法

3.2.1 シーロメーターの測定原理

対流圏や成層圏内のエアロゾルの挙動についての遠隔計測技術としてライダー (LIDAR: Light Detection And Ranging) 観測が行われている。ライダー観測はレーザーを用いたリモートセンシング技術の一種であり、黄砂や汚染物質などの時空間的な分布の観測に用いられてきた (e.g. Iwasaka et al., 1983, 2003; Sugimoto and Lee, 2006; Sugimoto et al., 2015)。図 3.1 にライダー観測原理の模式図を示す。ライダーは上空に向かってレーザーを射出し、エアロゾル粒子や雲などの物質による後方散乱を検出することによって、高度毎の消散 (散乱+吸収) の強さを知ることができる。ライダー観測の利点はエアロゾルの高度分布を数十 m の分解能でほぼリアルタイムに観測できることである。しかしながら、厚い雲がある場合それよりも上空を観測することが難しい。また、

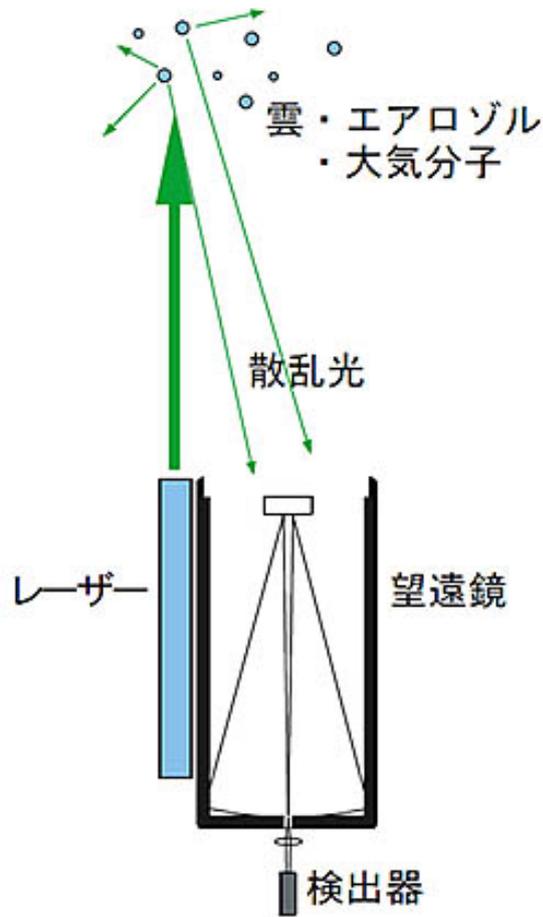


図 3.1: ライダー観測原理の模式図 (国立環境研究所のウェブページより引用).

一点による定点観測なので同時に水平分布を捉えることはできない。更に、観測される後方散乱からはエアロゾルの組成を知ることはできないなどの問題点がある。

ある高度 z と $z + dz$ の間の大気から後方に散乱されて、レーザー発射の $t (= \frac{2z}{c})$ 秒後から $t + dt$ ($dt = \frac{2dz}{c}$) 秒後の間に受信されるレーザー光と同じ波長の後方散乱エネルギー $P_r(z)$ は、ライダー方程式

$$P_r(z) = E_0 \frac{c}{2} \frac{A}{z^2} \beta(z) \exp \left\{ -2 \int_0^z \sigma(z') dz' \right\} \quad (3.1)$$

で与えられる。ここで

$P_r(z)$: ある瞬間 (t から $t + dt$) の距離 z から返ってくる強度 [W = Watt]

E_0 : 有効パルスエネルギー (光学的減衰を含む) [J = Joule = Ws = Watt - second]

c : 光速 ($= 2.99 \times 10^8 \text{ m s}^{-1}$)

A : レシーバー口径

z : 距離

$\exp \left\{ -2 \int_0^z \sigma(z') dz' \right\}$: 双方向の大気透過率, 往復の減衰

である. この方程式中には $\beta(z)$ と $\sigma(z)$ という 2 つの未知数を含むため, 数学的に解析解を求めることはできない. そのため状況に応じて様々な仮定や近似を用いて計算する必要がある. 実際の観測では距離補正ライダー信号 $X(z) = Pr(z)z^2$ の対数を取り, 最小二乗法によってその傾きを求め, 消散係数 $\sigma(z)$ を算出する. 体積後方散乱係数 $\beta(z)$ と消散係数 $\sigma(z)$ との関係は次式で表される.

$$\beta(z) = \frac{1}{s} \sigma(z) \quad (3.2)$$

この s をライダー比と呼ぶ. ライダー比としては経験的に 20-50 程度の値が用いられる.

3.2.2 後方散乱係数の測定

熊本県天草市天草町大江, 天草環境リサーチユニット AERU (Amakusa Environmental Research Unit, $32^\circ 19' \text{N}$, $129^\circ 59' \text{E}$, 35 m a.s.l.) において, 大気の大気散乱の強さを表す後方散乱係数とエアロゾル濃度を計測した. 観測期間は 2011 年から 2015 年までの 3 月から 5 月である. 本研究では大気の後方散乱はシーロメーター (CT25K, Visala) を用いて測定した. シーロメーターは対流圏中の雲の分布を測定するために開発されたライダーの一種である. 測定に用いる波長は $905 \pm 5 \text{ nm}$ であり, これは近赤外線域に入り, 若干の水蒸気の影響が考えられるが, 大気エアロゾルのサイズと近い波長である. そのため後



図 3.2: シーロメーター CT25K の写真.

方散乱係数の変化から混合層の高度だけでなく、エアロゾルの測定にも用いられる (e.g. Markowicz et al., 2008). 検出可能な高度範囲は 0-7500 m (a.g.l.), 空間分解能は 15-30 m, 時間分解能 (平均時間) は 15-120 s で調整可能である. 本研究中の観測では空間分解能 30 m, 時間分解能 120 s で測定を行った. レーザーの光源はインジウム・ガリウム・ヒ素 (InGAs) ダイオードを用いており, レーザーの拡散は ± 0.53 mrad である. 反射レーザーの検出器は two identical silicon avalanche photodiodes (APDs) であり, これは測定波長である 905 nm 周辺で感度が良い. レーザーの検出視野 (FoV) は極めて狭く (0.66 mrad), これは多重散乱の影響を抑制する.

CT25K は特殊なレンズデザイン (single-lens) により, ゼロ高度からの測定を比較的

正確に行うことができる。CT25K のレーザーダイオードは 20-25 °C に保たれるように設計されており、20°C 以下になると発熱することで温度が維持される。レーザー光源は 905 nm を用いているが、この値は気温によって 0.25 nm K^{-1} の割合で変動する。この変動は水蒸気の吸収帯に近づく可能性があるために重要なパラメータである。また、CT25K の信号は水蒸気によって高度とともに大きく減衰することが考えられるために、湿度の影響に注意を払う必要がある。減衰補正した信号強度 S は以下の式で表される。

$$S = CBT_r^2 \quad (3.3)$$

ここで C は機器による定数でライダー定数とも呼ばれる。 B はレイリー散乱とエアロゾルの後方散乱係数の和である。水蒸気の後方散乱は非常に小さくここでは無視される。 T_r は大気の透過率で

$$T_r = T_R T_A T_{H_2O} \quad (3.4)$$

で表される。ここで、 T_R はレイリー透過率、 T_A はエアロゾル透過率、 T_{H_2O} は水蒸気の透過率である。つまり、射出されたレーザーは大気的气体物質、エアロゾル、水蒸気によって減衰される。

シーロメーターを含むライダーの測定において、定量的により正確な測定を行う場合、オーバーラップ補正と水蒸気の減衰補正の2種類の補正を考える必要がある。オーバーラップ補正は測定原理上生じるオーバーラップ現象による影響を補正する。オーバーラップ現象はレーザーの射出と検出の際に生じてしまう。射出されたレーザーは上空に向かって伝播し、もしその上空に粒子状物質が存在すると、その濃度に応じた後方散乱が返ってくる。この散乱を検出して、後方散乱係数を算出している。後方散乱は入射、つまり射出されたレーザーの進行方向を $\theta = 0$ とした場合の $\theta = \pi$ にあたる方向への散乱である。しかし、実際には射出や検出範囲はいくらかの幅を持っている。図 3.3 にオーバーラップ

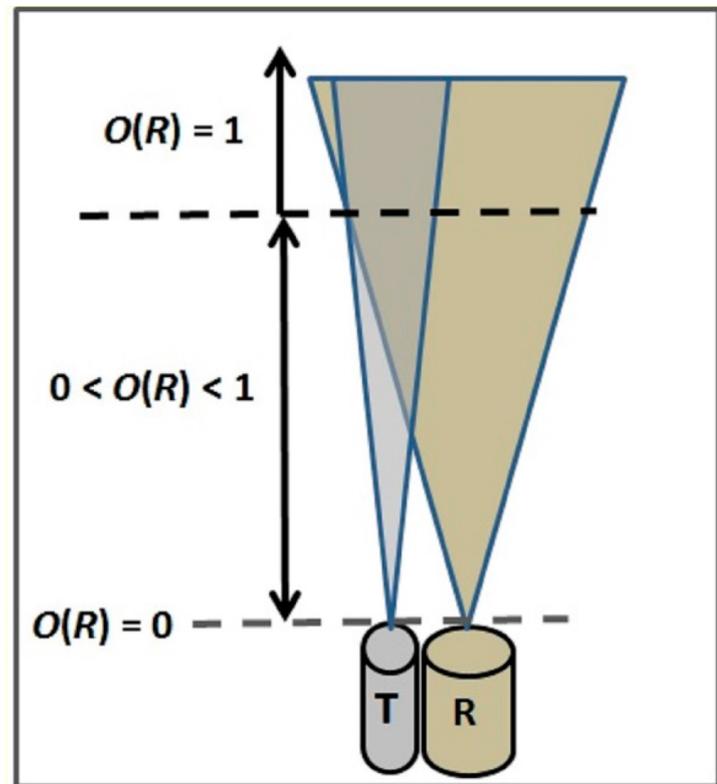


図 3.3: オーバーラップ現象の模式図.

現象の模式図を示す．このように，射出レーザーと検出範囲が完全にオーバーラップされない領域がある高度まで続いてしまう．完全にオーバーラップされる領域とそうでない領域との後方散乱検出の違いを補正する必要がある．オーバーラップ補正を正しく行うには観測に用いる機器を使って観測点からの距離ごとのオーバーラップによる減衰率を測定する必要がある．そのため，大気の状態が可能な限り清浄（つまり減衰の原因になる粒子状物質がない）で，かつ水平方向に水蒸気の濃度が均一な条件下で測定し，補正値を定めなければならない．しかしながら，本研究では同一高度の後方散乱係数の相対的な変動に注目しているため，オーバーラップ現象による減衰の補正は必要ないと考えられる．

一方，シーロメーター CT25K の測定波長（905 nm）は僅かに水蒸気によって減衰される．図 3.4 に波長に対する水蒸気の吸収スペクトルを示す．水蒸気は 900 nm 付近に吸収スペクトルを持つために水蒸気による減衰率も考慮する必要がある．水蒸気に対す

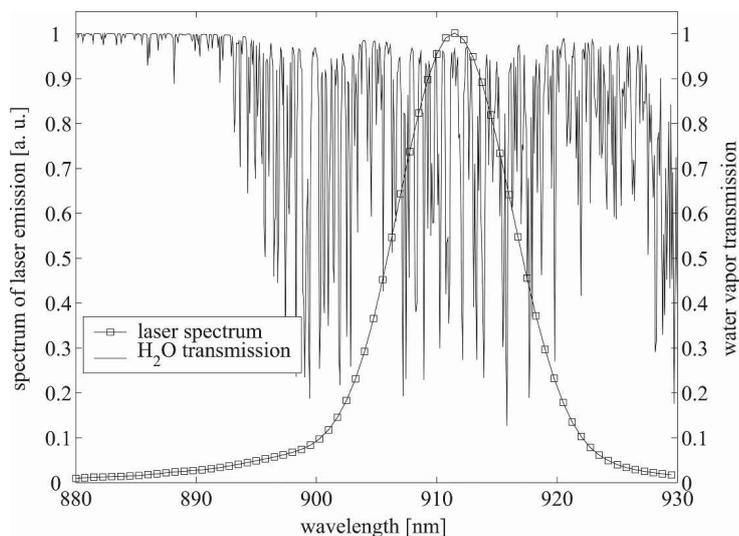


図 3.4: 水蒸気による吸収スペクトル (Markowicz et al., 2008).

るレーザーの透過率は可降水量 1 g cm^{-2} に対して 0.91 程度である (Markowicz et al., 2008).

本研究ではシーロメーターで観測する後方散乱係数は地上高 30 m のものであり、つまり双方向（往復）の伝播距離はおよそ 60 m である。この伝播距離 60 m に対して、気温が 15°C 、湿度が 80% を仮定して可降水量を計算するとおよそ 0.06 g cm^{-2} 程度である。つまりこのような距離の観測においては水蒸気による減衰はほとんど無視することができる。

3.2.3 エアロゾル濃度の測定

エアロゾル濃度の測定には光散乱式粒子計測装置 OPC(Optical Particle Counter, KC01-D(2012-2014) および KC01-E (2015), RION) を用いて観測した。この装置はエアロゾル粒子を含む空気を吸入し、そのエアロゾル流に対しレーザーを照射し、個々の粒子から散乱されるパルス状の散乱光を検出することで、パルス数から粒子数を、散乱光から粒径についての情報が得られる。KC01-D および KC01-E は観測サイト AERU に設置されており、サイトコンテナの屋根のインレットから空気をチューブで導入している。

測定の設定は流量 2.83 L min^{-1} で 1 分間空気を測定し、粒子数のカウントを行った。測定粒径範囲は $> 0.3 \mu\text{m}$, $> 0.5 \mu\text{m}$, $> 1.0 \mu\text{m}$, $> 2.0 \mu\text{m}$, $> 5.0 \mu\text{m}$ の 5 段階である。

3.2.4 データの変換と比較

シーロメーターでの観測において、後方散乱係数は高度分解能 30 m ごとに得られるが、観測サイトにおいて OPC で地上観測している粒子数濃度と比較するために、もっとも低い高度の結果である 30 m の後方散乱係数を地上の後方散乱係数として考えた。また、環境におけるエアロゾルのような多分散系の場合、後方散乱係数はその粒子の体積濃度との関係が線形一次に近くなることが知られている (Pinnick et al., 1980)。後方散乱係数との比較のために、粒子数濃度を観測粒径に応じた体積濃度に変換した。体積濃度 IPV は、

$$IPV = \frac{\pi}{6} \int_{0.3\mu\text{m}}^{10.0\mu\text{m}} D_p^3 n(D_p) dD_p \quad (3.5)$$

と近似できるように算出した。ここで D_p は粒子の粒径、 $n(D_p)$ は粒径分布を表す。また粒子数濃度、後方散乱係数、気象データは短時間での変動の影響を取り除くため一時間平均をとった。

3.2.5 後方散乱効率因子の計算

エアロゾルの光学的特性を観測する場合多くは可視光領域 ($[360-400]-[760-830] \text{ nm}$)、特に 550 nm の波長の計測機器が用いられる。しかし本研究では後方散乱係数の測定波長は 905 nm を使用しているため、散乱係数のこの波長に対する感応性を検証する必要がある。

後方散乱係数は粒子による散乱の強度を表す散乱係数のうち入射角度 ($\theta = 0$) に対す

る後方散乱角 ($\theta = \pi$) の値である。より厳密には散乱角はある程度の幅を持った値と考えるべきであるが、ここでは簡単のため後方散乱角 ($\theta = \pi$) の場合について記述する。多分散系の散乱係数 β_{scat} は、

$$\beta_{scat}(\lambda, \tilde{m}) = \int_{D_{pmin}}^{D_{pmax}} \frac{\pi D_p^2}{4} Q_{scat}(x, \tilde{m}) n(D_p) dD_p \quad (3.6)$$

で表される。ここで D_{pmin} , D_{pmax} はそれぞれ観測粒径の下限と上限, Q_{scat} は散乱効率因子 (無次元), $n(D_p)$ は粒径分布である。また, λ は波長, \tilde{m} は複素屈折率で, 粒子の散乱・吸収の強さを表す。 $x (= \frac{\pi D_p}{\lambda})$ はサイズパラメーターであり, 波長 λ に対する粒子の相対的な大きさを表す。散乱効率因子は幾何的断面積 $\frac{\pi D_p^2}{4}$ に対する散乱断面積 σ_{scat} の比であり, この値は散乱過程によって散乱されたエネルギーが粒子の幾何学的断面積に入射するエネルギーの何倍であるかを表す。散乱効率因子は散乱する粒子サイズと入射する光の波長の比であるサイズパラメーターと, 粒子の複素屈折率によって大きく変化することが知られている。

今回は観測波長をシーロメーターの 905 nm および一般に広く用いられる 550 nm に設定し, 粒子の粒径 (サイズパラメーター) の変動に伴う散乱効率因子の変化を計算した。計算に用いたプログラムは Bohren and Huffman (2008) の Mie コード (<https://code.google.com/p/scatterlib/wiki/Spheres>) である。このコードは Mie 理論に従ってサイズパラメーターと複素屈折率を指定することで散乱効率因子, または後方散乱効率因子を計算することができる。

3.2.6 浮遊粒子の採集と分析

熊本県天草市大江のブルーアイランド天草の屋上で, エアロゾル粒子試料の採集を行った。浮遊粒子はカスケードインパクトター (Cascade impactors, PIXE inc.) の 1 または

表 3.1: 浮遊粒子採集時における相対湿度 (RH[%]), 気温 (T[°C]) 粗大粒子および微小粒子の粒子数濃度 N_c, N_a [L^{-1}] および後方散乱係数 BSC [$10^{-4} \text{ sr}^{-1} \text{ m}^{-1}$].

ID ^a	Datetime ^b	RH	T	N_c	N_a	BSC
D1	07:00-08:00 24-Mar-12	53	10.6	21	36511	2.7
D2	09:00-10:00 24-Mar-12	53	11.4	25	46429	3.0
D3	11:00-12:00 24-Mar-12	53	11.4	18	16091	2.4
D4	15:00-16:00 24-Mar-12	50	10.0	12	9797	1.9
D5	13:00-14:00 22-Mar-15	66	16.3	49	81395	6.8
W1	06:00-07:00 19-Mar-14	92	17.9	2	31766	5.8
W2	15:00-16:00 26-Mar-14	92	13.7	3	4830	8.0
W3	06:00-07:00 22-Mar-15	90	10.3	18	13577	2.6

^a ID のアルファベットは粒子が採取時の湿度が 70% 未満の場合は D, 70% 以上の場合は W で示した.

^b Datetime は気象データと粒子数濃度, 後方散乱係数のデータの 1 時間平均値の平均時間.

2 ステージを用いて採取した. インパクターは慣性力を利用して粒子を粒径毎に分取するサンプラーである. 粒子は乾性沈着試料と同じく走査電子顕微鏡観察用の Ti グリッド上に採取した. 採取時間は大気中の粒子数濃度に応じて 0.5-3.0 分の間で採取を行った. ポンプの採取流量は 1 L min^{-1} である. 1 ステージ, 2 ステージの 50% カットオフ粒径は粒子密度 2.3 g cm^{-3} (鉱物の代表的な密度) に対してそれぞれ $0.16 \mu\text{m}$, $0.33 \mu\text{m}$, または粒子密度 1 g cm^{-3} (水の密度) に対してそれぞれ $0.25 \mu\text{m}$, $0.50 \mu\text{m}$ である. サンプリング期間は 2012 年から 2015 年の 3 月, 大陸からの空気塊の流入が考えられる時に採取を行った. 表 3.1 に沈着粒子採集時データを示す.

採集した粒子試料は走査電子顕微鏡とエネルギー分散型特性 X 線分析装置を用いて, 粒子のサイズや形状, 元素組成を分析した. 元素組成分析の結果に基づいて粒子を鉱物 (Mineral: Al と Si を含むもの), 海塩との混合粒子 (Mixture: Al と Si と Na を含むもの), 海塩粒子 (Sea salt: Na を含むもの), 硫酸塩粒子 (Sulfate: S を含むもの), すず

粒子 (Soot: C を含み, 形状にフラクタル性があるもの), フライアッシュ (Fly ash: Si や Al や Fe を含むが形状が球形であるもの), その他 (other) に分類した.

3.3 結果

3.3.1 散乱効率因子の計算

図 3.5 に粒子サイズ (0 から 10 μm) に対する後方散乱効率因子 ($\lambda = 905 \text{ nm}$) と一般的に用いられる ($\lambda = 550 \text{ nm}$) の計算の結果を示す. 複素屈折率は粒子の散乱効果・吸収効果の強さを決める物理量である. 複素屈折率の実数部は散乱効果の強さを表し, 虚数部は吸収効果の強さを表す. この複素屈折率の実数部は 1.30-1.96 など様々な値が用いられる. 本研究ではエアロゾルの平均値として複素屈折率 $\tilde{m} = 1.52 - 0.0i$ の値を用いた (Tegen and Lacis, 1996). 虚数部は 0 とし, 粒子の吸収効果はないものと仮定した.

計算の結果では, どちらの波長においても粒径が 0 から 2 μm の間にピークが見られた. 905 nm (黒線) および 550 nm (灰線) はそれぞれ粒径 1.5 μm , 0.75 μm で散乱効率因子の値は極大値およそ 4.5 となった. どちらの波長でも粒径が大きくなるにつれて, 振動しながら振幅をおよそ 2.3 前後に収束した. また, 粒径が小さいほど, 散乱効率の値に大きな振れ幅が見られた. これは 905 nm の観測波長に対して, 1 μm 前後の比較的小さな粒子の散乱係数への寄与の大きさを示す. したがって, 放射を評価する際に一般に用いられる 550 nm の波長による観測に比べると, 特に 2 μm 以下の粒径分布に考慮が必要であるが, エアロゾル全体としては比較可能であると考えられる. ただし, 式 3.6 に示される通り, 散乱係数への寄与は散乱効率因子だけでなく, 粒子の断面積や数濃度分布にも依存することに注意が必要である.

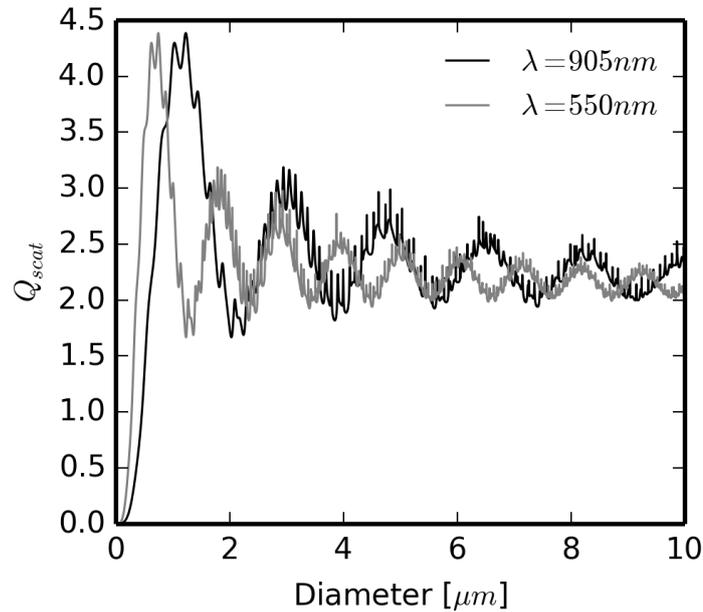


図 3.5: シーロメーターでの観測波長 905 nm (黒線) と 550 nm (灰線) における粒径に対する後方散乱係数効率因子の分布。

3.3.2 後方散乱とエアロゾル濃度

地上の後方散乱係数 (BSC) とエアロゾル濃度 (IPV) の関係を図 3.6 に示す。後方散乱係数は非常に大きな範囲で変動していた。全体的な傾向として、後方散乱係数とエアロゾル濃度に線形一次の関係が見られる部分と、2 量に関係性が見られない部分が見られた。線形的な関係が見られるのは主に IPV の値が $10 \times 10^4 [\mu\text{m}^3\text{L}^{-1}]$ 以上の領域であり、部分的には非常に高い相関関係が考えられる。一方で IPV の値が $10 \times 10^4 [\mu\text{m}^3\text{L}^{-1}]$ を下回ると、エアロゾル濃度に対して非常に高い後方散乱係数を取る場合があった。これらのことはエアロゾルによる散乱の強さは濃度に比例する場合と濃度だけでは決定しない場合があることを示している。

天草地域におけるエアロゾル濃度、特に黄砂粒子が多く含まれると考えられる $5 \mu\text{m}$ 以上の粗大粒子の濃度と、潮解性・吸湿性エアロゾル粒子の成長に大きく影響する湿度に

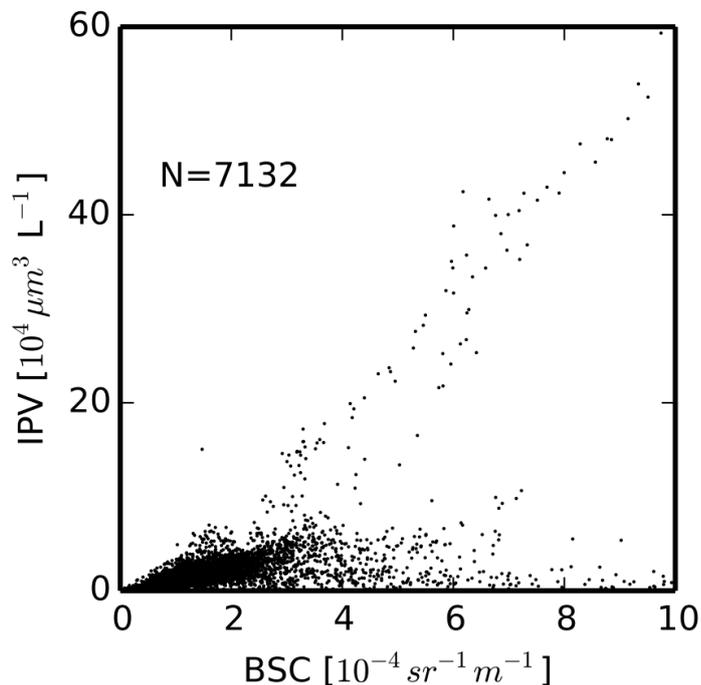


図 3.6: 後方散乱係数 (BSC) とエアロゾル濃度 (IPV) の関係.

よって後方散乱係数とエアロゾル濃度の関係を分類した. 単位空気容量あたりの $5 \mu\text{m}$ 以上の粒子の数濃度 $N_{5.0}$ によって以下のように分類した.

$$\text{EX: } N_{5.0} \geq 25 [L^{-1}]$$

$$\text{IN: } 10 [L^{-1}] \leq N_{5.0} < 25 [L^{-1}]$$

$$\text{LO: } N_{5.0} < 10 [L^{-1}]$$

更に相対湿度 $RH = 70\%$ をしきい値とし,

$$\text{Dry: } RH < 70\%$$

$$\text{Humid: } RH \geq 70\%$$

に分類した. 分類した結果を図 3.7 に示す. 乾燥で粗大粒子の濃度が高い (Dry-Ex) 条件において決定係数の値が最も高く ($R^2 = 0.76$), 同じ乾燥条件下で粗大粒子の濃度が低

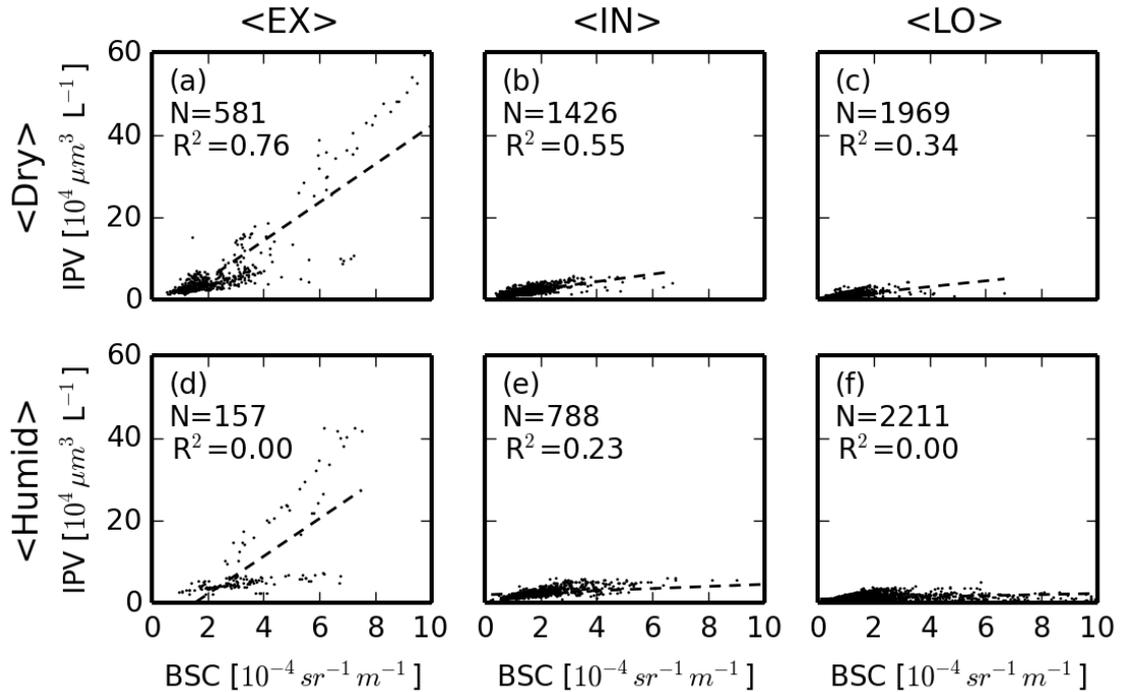


図 3.7: 粗大粒子の濃度と相対湿度に応じて分類した IPV と BSC の関係。

くなるにつれて相関が弱くなった (Dry-IN: $R^2 = 0.55$; Dry-LO: $R^2 = 0.34$). ただし, Dry-IN, Dry-LO のときの傾きは大きく異なっていた. 一方で, 湿潤条件ではほとんど相関が見られないという結果であったが, 粗大粒子の濃度がある程度 ($10 \times 10^4 [\mu\text{m}^3 \text{L}^{-1}]$) 以上高い部分に限定すると, 後方散乱係数とエアロゾルの体積濃度との間に相関関係が見られた. 一般的には高いエアロゾル濃度に対して高い後方散乱係数が得られると理解される.

観測毎の粒子濃度の違いを考慮し, 散乱と濃度の関係を比較するため, 単位濃度あたりの後方散乱係数を BSC/IPV で推定した. 更にこの値の相対湿度 40% 未満の平均値で除することで標準化した. 相対湿度が 40% 以下になると, 想定される主要な潮解性・吸湿性エアロゾル粒子 (海塩粒子や硫酸塩粒子) が固相として存在し, 吸湿による成長が起きていないと仮定することができる (Tang et al., 1996; Tang, 1997). 標準化した BSC/IPV の値が 1 に近いということはすなわち, 後方散乱係数とエアロゾルの体積濃度

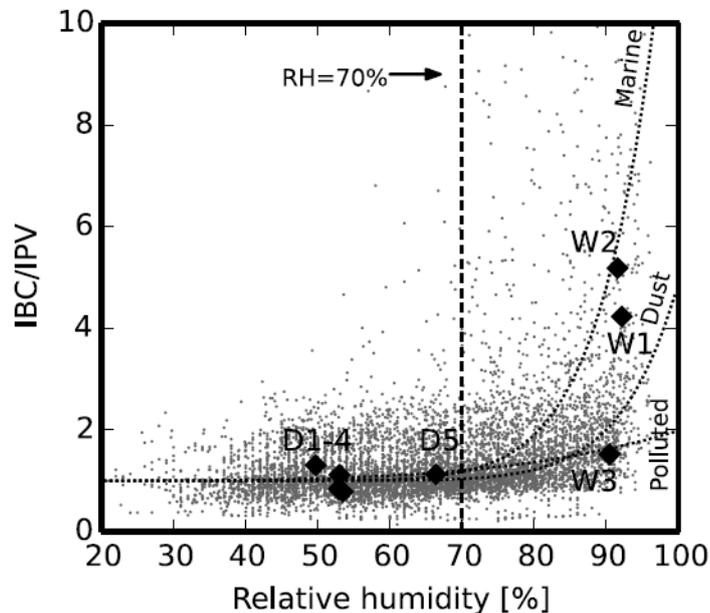


図 3.8: 単位体積濃度あたりの後方散乱係数 (BSP/IPV) と相対湿度の関係。BSP/IPV は相対湿度 40% 未満の平均値で標準化している。また個別粒子試料採取時のデータを黒い菱形で示した。3本の破線は Carrico et al. (2003) の結果の引用で、それぞれ海洋大気、ダストを含む大気、汚染物質を含む大気における後方散乱係数の相対湿度に対する成長度を表している。

が比例することを示す。図 3.8 に標準化した BSC/IPV と相対湿度の関係について示す。湿度 70% 以下の条件では値が 2 よりも小さく、1 に近い値であった。この結果は乾燥条件下では後方散乱係数はエアロゾル粒子の体積濃度によっておおよそ決定されることを示唆している。一方で、相対湿度が 70% を超えてくると値のばらつきが非常に大きくなり、比較的大きな値をとるようになった。これは、湿度による影響が均一的なものでなく、エアロゾルの組成によって大きく異なることを示唆している。

3.3.3 エアロゾル粒子組成の影響 (乾燥条件)

相対湿度が 70% 以下の乾燥条件下でエアロゾル粒子のサンプル (D1-D5) を採取した。試料採取時の標準化 BSC/IPV の値は 1 に近い値であった (図 3.8)。D1 から D4 の試料

はダスト移流イベント時の試料である。D1 と D2 は低気圧背後の黄砂ピークの直後の大気であり、D3 と D4 はその後の粗大粒子の濃度が低下した大気から採取を行った。粒子濃度の低下に伴い後方散乱係数の値も同様に $2.7 - 3.0 [10^{-4} \text{ sr}^{-1} \text{ m}^{-1}]$ (D1 と D2) から $1.9 - 2.4 [10^{-4} \text{ sr}^{-1} \text{ m}^{-1}]$ (D1 と D2) に低下した (表 3.1)。D5 の試料採取時はエアロゾル粒子の試料を採取した全 8 ケース中エアロゾル粒子濃度は最大であり、後方散乱係数も乾燥条件下 (D1-D5) で最も高い値であった。後方流跡線解析 (NOAA HYSPLIT online model, URL:http://www.arl.noaa.gov/HYSPLIT_info.php) の結果では乾燥条件下の D1-D5 の空気塊は主に中国の北西部を起源とすると推定された (図 3.9)。またこれらの空気塊の輸送の特徴として、中国北部やモンゴルなどの乾燥地域から天草の観測サイトまでの比較的長い距離を短時間で移動していた。このような空気塊輸送のパターンはこれまでに同地域で行われた研究においても黄砂観測時によく見られた (e.g. Zhang et al., 2006)。

エアロゾル粒子の組成はケース毎に大きく異なっていた (図 3.10 (a))。D1 では鉍物成分を含む粒子がおおよそ 40% (非混合 12%, 混合 25%) であり、海塩粒子が 50% ほどを占めていた。ダストの影響が小さくなる D2 では鉍物や海塩の割合が低下し、硫酸塩粒子が 20% を占めていたが、その他の粒子も多く含まれていた。D3, D4 になると、海塩粒子が大半 (D3:76%;D4:94%) を占め、鉍物粒子を含むそれ以外の粒子の割合は小さくなった。D1-D4 とは異なり、D5 ではすす粒子の割合が 55% に達し、鉍物粒子の割合は 18% であった。

3.3.4 エアロゾル粒子組成の影響 (湿潤条件)

相対湿度が 70% を超える比較的湿潤な条件下では、粒子の体積濃度が同じような値であっても後方散乱係数の値に大きなばらつきが見られた。同様に標準化した BSC/IPV

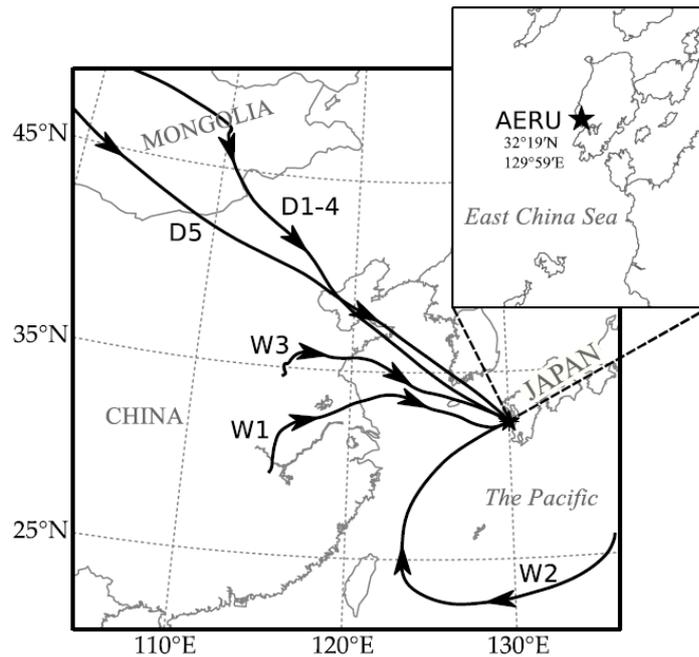


図 3.9: 個別粒子試料採集時の観測サイト上空 1000m の空気塊に対する後方流跡線解析 (NOAA HYSPLIT online model) の結果. 星形で観測サイト (AERU) の位置を示した.

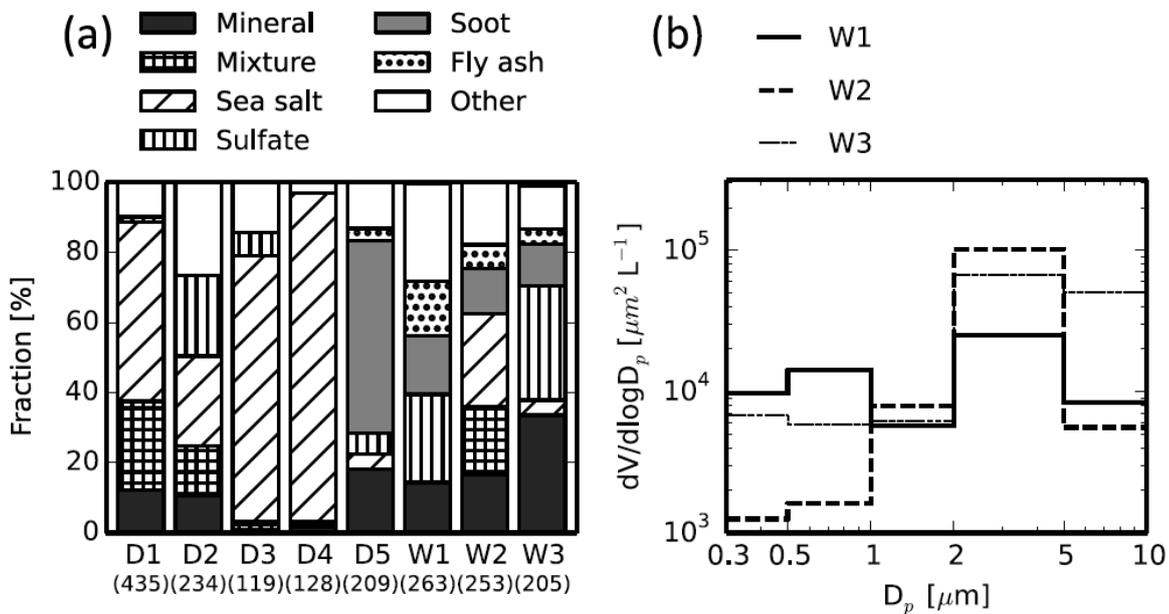


図 3.10: (a) :個別粒子による粒子分類 (Mineral, Mixture, Sea salt, Sulfate, Soot, Fly ash, other) の組成 (b) 湿潤条件下で粒子試料を採集した時の浮遊粒子の体積-粒径分布.

の値にもばらつきが見られた。このばらつき，またはその幅は相対湿度の増大とともに大きくなる傾向が見られた。多くの場合，後方散乱係数の値は乾燥条件の場合と比べて大きくなり，中には10倍以上になることもあった。W1からW3の試料は，高湿度（90-92%）の条件で採取された。W3の試料採取時，標準化BSC/IPVの値はD1-D5の場合に比べて僅かに高い程度であった。一方でW1とW2の場合の値は，W3やD1-D5に比べて大きな値となった（図3.8）。粒子の個別分析の結果から，W2の試料からはW1やW3に比べて高い割合（47%）で海塩粒子と混合粒子を含んでいた。それに対してW1やW3ではそれらの割合は低かったが，硫酸塩粒子の割合が高かった（図3.10）。後方流跡線解析の結果ではW1とW3は中国の中部の沿岸部からの空気塊であり，W2は海洋大気からの空気塊であった（図3.9）。

3.4 考察

比較的乾燥している環境における後方散乱係数の値は粒子の組成や構成に依らない結果が得られた。この結果は散乱の強さは粒子の濃度のみによって決定されることを意味している。電解質が少なく，親水性の弱さから大気輸送過程で変質していない鉱物粒子が溶解する相対湿度はおよそ94%以上である（Shi et al., 2008; Denjean et al., 2015）。一方で，海塩は75%以上の相対湿度で溶解する（Wexler and Seinfeld, 1991）。つまり海塩と混合することによって，鉱物粒子が溶解する相対湿度は海塩のものに近づくことが予想される。ケースD1-D4の粒子の構成は海塩や海塩と混合した鉱物粒子の割合が高かったが，その時の相対湿度はおよそ50%程度と低い値であった（表3.1，図3.10）。つまり，粒子は溶解していない固相として大気中に存在していたと考えられる。D5の場合は相対湿度がやや高く66%であったが，粒子の構成は主にスス粒子や鉱物粒子が占めており，吸湿による溶解の影響は殆ど見られないと考えられる。スス粒子は相対湿度が63-76%か

ら溶解し始めることが知られている (Li et al., 2014). 図 3.11 に粒子の走査電子顕微鏡写真を示す. 多くの粒子の形状が非球形でイレギュラーな形をしており, これは粒子の凝集や溶解が起こっていないことを示している (図 3.11 (a)). つまり, 比較的乾燥した大気中の粒子の後方散乱係数は, 水にコーティングされていない裸の, もしくは溶解していない粒子の散乱によるものであった. 少数の (技術的) 先行研究において, 乾燥条件下 (相対湿度が 40-60% 以下) では後方散乱係数と粒子の体積または質量濃度が比較されており, おおよそ比例 (線形一次) の関係が報告されている (Lowenthal and Kumar, 2004; Munkel et al., 2004; Wang et al., 2012b).

相対湿度が 90% 以上高湿度な条件の場合, 海塩粒子や硫酸塩粒子はその吸湿性・潮解性から液相として, または湿った粒子として存在していることが予想される (Wexler and Seinfeld, 1991). 実験室による先行研究では, 海塩の主成分である塩化ナトリウムの粒子は, 湿度 90% でその成長度が 1.5 くらいの値になることが明らかにされている (Tang, 1997). つまり, 海塩粒子や, 海塩と混合した鉱物粒子, 硫酸塩粒子は水蒸気の吸収によって成長したと考えられる. D1-D5 の粒子の様子に比べ, W2 の粒子は明らかに多くの粒子にコーティングの様子が見られ, これらは高湿度下での粒子の溶解と矛盾しない結果であった (図 3.11 (b-d)).

また, W1-W3 の粒子の体積-粒径分布では, W1 の時は W2, W3 の場合とは異なり, 粒径範囲 $0.3-10.0 \mu\text{m}$ で, 二つ山の分布であった. 共通のモードである $2.0-5.0 \mu\text{m}$, に加えて W1 には W2 および W3 には見られない小さい粒径モード ($0.5-1.0 \mu\text{m}$) が見られた (図 3.10(b)). これら 2 つのモードを含む粒径範囲 ($0.5-5.0 \mu\text{m}$) の積算体積濃度を比較すると, W1 でおよそ $5.5 \times 10^4 \mu\text{m}^2\text{L}^{-1}$, W3 の場合でおよそ $8.6 \times 10^4 \mu\text{m}^2\text{L}^{-1}$ で, それほど大きな差ではなかった. つまり, W3 に比べて W1 では $0.5-1.0 \mu\text{m}$ の粒子の体積濃度が高いことが大きな後方散乱係数の原因となっていると考えられる. これらの

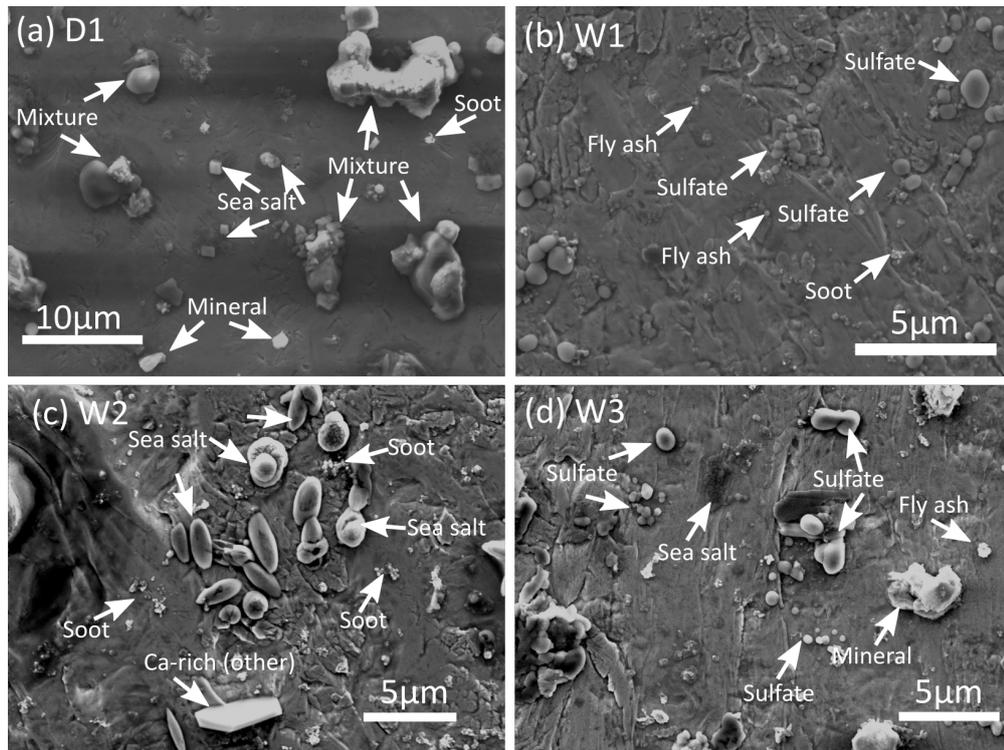


図 3.11: 電子顕微鏡写真の例 (a):乾燥条件下 (D1) で採取された試料, (b-d): 湿潤条件下 (W1-3) で採取された試料.

範囲は OPC と Ceilometer の両方の計測波長とで共通して検出可能な粒径範囲である.

W1 と W3 では潮解性粒子としては海塩粒子は少なく, 主要なものは硫酸塩粒子であった (図 3.10(a)). 多くの粒子で S のみが検出されたことから, 硫酸塩粒子は主に硫酸アンモニウム形で存在していると予想される. これらの粒子は小さな粒子が凝集することによって蓄積モードサイズまで成長したと考えられる. 個別粒子の分析で, 形状は球形なものも多く, また粒径も $1 \mu\text{m}$ より小さい粒子が多く, これは海塩や海塩と混合した鉱物粒子よりも小さいと考えられる (図 3.11).

これらの結果は湿度が高い条件下での後方散乱係数はエアロゾル粒子の組成や, サイズ分布によっても大きく変化することを示している. 海塩のように, 比較的大きく, 散乱に大きく影響を与える粒子が, 高湿度の条件下では大気の散乱に支配的な影響を与えていると考えられる. そしてこれらの粒子の成長がさらに影響を強めることが考えられる.

次に、小さなモード（0.5-1.0 μm ）の粒子が、エアロゾルの体積濃度にどの程度寄与するのかを検証した。図 3.12(a) に相対湿度に対する標準化した BSP/IPV の値を再掲する。さらに、この図には体積濃度分布において、大きなモード（2.0-5.0 μm ）に対する小さなモード（0.5-1.0 μm ）の寄与率を

$$\log_{10} \left(\frac{PV_{0.5-1.0}}{PV_{2.0-5.0}} \right) \quad (3.7)$$

という式を用いて算出した。ここで $PV_{0.5-1.0}$ および $PV_{2.0-5.0}$ はそれぞれ 0.5-1.0, 2.0-5.0 μm の粒径範囲の粒子の積算体積を表している。図 3.12(a) ではこの寄与率を色の变化で示している。丸の色が赤いほど、大きなモードに対する小さなモードの体積濃度分布に対する寄与率が高いことを示している。また図 3.12(b) には湿度について 10% ごと

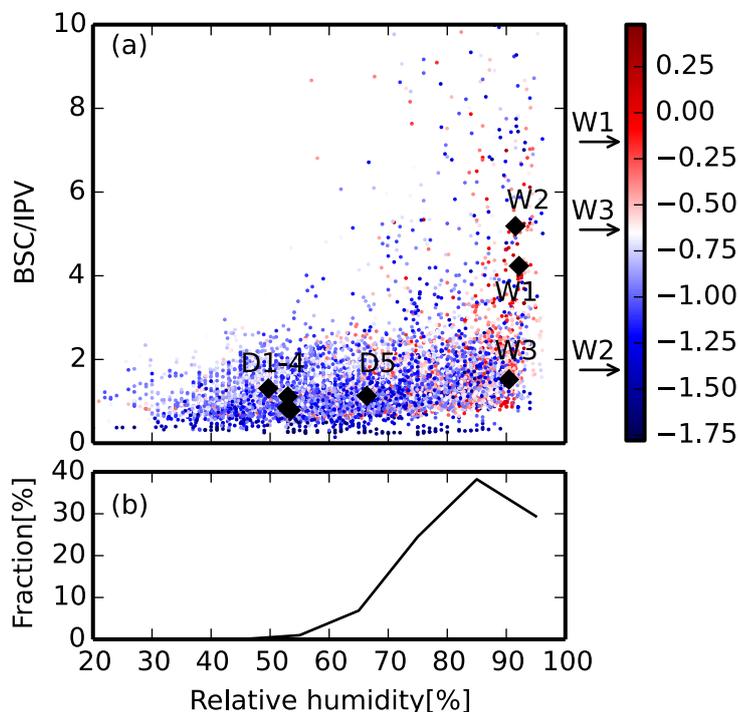


図 3.12: (a):浮遊粒子の体積濃度に対する 0.5-1.0 μm の粒子の体積の寄与。カラーで大きなモード（2-5 μm ）に対する小さなモード（0.5-1.0 μm ）の相対的な寄与率を示した。(b):各相対湿度階（10% 毎）における、小さいモードの寄与率が高いデータの割合。

との区画でこの寄与率が > 0 となるデータの割合を示した。小さなモードの寄与率が 0 より大きくなるようなデータ、即ち、体積粒径分布に対する寄与率が大きなモードと同等以上になるデータの割合は湿度 60-70% から急激に上昇し、80-90% の区画で最大値およそ 40% に達した。言い換えると湿度がおよそ 70% よりも高くなると、小さなモードの粒子体積の大きなモードの粒子体積に対する割合大きくなるデータが多くなるという結果であった。これは湿度が高くなると、エアロゾル粒子が吸湿によって小さなモード (0.5-1.0 μm)、つまり蓄積モードまで成長し、体積粒径分布を変化させる可能性を示唆している。また、図 3.5 に示されるように観測波長 905 nm における小さなモード (0.5-1.0 μm) の散乱効率因子はおよそ 3.04 であるのに対し、大きなモード (2.0-5.0 μm) の散乱効率因子は 2.36 であり、やや小さなモードの方が高い値であった。これらのことから、高湿度条件下では小さなモードの体積粒径分布に対する寄与率が上昇し、大気の散乱を強める可能性を示唆している。

3.5 まとめ

九州西岸の観測サイトにおいて、冬季から春季の大気の後方散乱係数と、粒子数濃度を継続的に計測した。エアロゾルの組成の散乱への寄与を検証するために、個別粒子の試料を異なる気象条件下で 8 ケース採集した。これらの個別粒子の試料は、電子顕微鏡法とエネルギー分散型特性 X 線分析によって解析を行った。湿度が 70% 以下の比較的乾燥した条件下では、組成が異なるにも関わらず、後方散乱係数の値はおおよそエアロゾルの濃度に比例する傾向が見られた。一方、比較的高い湿度の場合、大気の後方散乱係数はエアロゾルの組成、とくに海塩などの潮解性を持つ粒子の影響が強く、さらに粒径分布にも依存する傾向が見られた。これらの結果は、(1) 観測波長に比較的近い、海塩などの潮解性の強い粒子が高湿度条件下で成長することで、大気の散乱に強く影響する可能性、

(2) 乾燥条件時は、後方散乱係数はエアロゾルの組成のいかんを問わず、粒子濃度に比例する可能性を示唆している。

第 4 章

結論

黄砂粒子は、自身が太陽放射を散乱することによって、または雲核や氷雲の氷結核として機能することによって気候へと影響を与えている。また、黄砂粒子は海域や陸域へと沈着することによって、植物プランクトンの増殖などの一次生産に影響を与え、生態系維持に寄与し、二酸化炭素循環系を通じて気候へと影響を与えている。本研究においてこれまでに、主に黄砂時の空気塊から採取した粒子について継続的に研究を行ってきた。同一黄砂イベント時に、浮遊粒子、沈着粒子を採取し、個別粒子分析の手法を用いて直接的な比較を行った。また、観測サイトでは晩冬から春季にかけてエアロゾルの粒子数濃度と大気の後方散乱係数を継続的に観測した。これらの観測データと浮遊粒子についての個別分析の結果を比較し、次の結果を得た。

4.1 黄砂の沈着粒子と浮遊粒子の比較

海洋生態系への粒子沈着の影響を評価するためには、粒子の沈着量を推定する必要がある。多くの場合、モデル計算や観測データから、大気中の粒子濃度と粒径分布に応じた沈着速度から間接的に沈着量が求められる。これまでのところ浮遊粒子と沈着粒子には違いがないという前提に基づいて沈着量の推定や生態系への影響などが議論されてきたが、実際に沈着した粒子と浮遊粒子との違いについての検証は行われてこなかった。これは沈着粒子と浮遊粒子の比較を行う上で重要な意味を持つ。従って本研究において、同一黄砂時に浮遊粒子と沈着粒子を採取し、そのサイズや形状、元素組成の違いを比較した。

2010年、2011年、2012年の3月、大陸から黄砂の粒子の輸送が予測されるときに沈着粒子と浮遊粒子の採取を行った。採取した粒子は、走査電子顕微鏡による形状やサイズの分析と、エネルギー分散型特性X線分析装置による元素組成分析を行った。元素組成分析の結果をもとに鉱物粒子を海塩や硫酸塩成分との内部混合状態にある粒子と、それらの成分との混合していない、非混合粒子に分類した。採取された沈着粒子では非混合粒

子の割合が高く、浮遊粒子では海塩または硫酸塩成分との内部混合状態にある粒子の割合が高かった。また、個々の粒子中の鉍物成分、海塩成分および硫酸塩成分の重量比の比較も行った。沈着粒子では、浮遊粒子に比べて鉍物成分の重量比が優占していた。粒子のサイズについては、分析した沈着粒子と浮遊粒子の粒径分布を作成し比較した。沈着粒子のモードサイズに比べて、浮遊粒子のモードサイズは小さかった。しかし、浮遊粒子の粒径分布に対し、粒径に応じた重力沈着速度によって重み付けを行い比較すると、浮遊粒子の粒径分布から推定される沈着粒子のモードサイズは、実際に沈着した粒子のモードサイズと近い値になった。

これらの結果から粒径が粒子の沈着を決定する重要なパラメーターであること、粒子の沈着による海洋生態系への影響をより正しく評価するためには、海塩との混合による沈着の影響、成分の違いを考慮する必要があるということが示唆された。

4.2 浮遊粒子の組成が大気の散乱に及ぼす影響

エアロゾルの大気放射への影響を正しく評価するためには、エアロゾル粒子の形状やサイズ、化学組成についての知見が不可欠である。しかし IPCC 第四次報告書に示される通り、エアロゾルの放射強制力については非常に大きな不確かさを孕んでいる。主要因の1つとしてエアロゾル粒子の内部・外部混合状態の違いによってどのような影響がでるのかについて未解明であることが挙げられる。従って、本研究では西日本西岸域での後方散乱係数とエアロゾル濃度の比較、および異なる空気塊から採取したエアロゾル粒子の組成やサイズの寄与について考察した。

九州西岸の観測サイトにおいて、冬季から春季の大気の後方散乱係数と、粒子数濃度を継続的に計測した。エアロゾルの組成の散乱への寄与を検証するために、個別粒子の試料を異なる気象条件下で8ケース採集した。これらの個別粒子の試料は、電子顕微鏡法とエ

エネルギー分散型特性 X 線分析によって解析を行った。湿度が 70% 以下の比較的乾燥した条件下では、組成が異なるにも関わらず、後方散乱係数の値はおおよそエアロゾルの濃度に比例する傾向が見られた。一方、比較的高い湿度の場合、大気の後方散乱係数はエアロゾルの組成、とくに海塩などの潮解性を持つ粒子の影響が強く、さらに粒径分布にも依存する傾向が見られた。

したがって、本研究の結果から、海塩などの潮解性の強い粒子が高湿度条件下で成長することで大気の散乱に強く影響すること、乾燥時の後方散乱係数はエアロゾルの組成違いに依らず、粒子濃度に比例する可能性が個別粒子の立場から見出された。

4.3 まとめと今後の展開

本研究において、個別粒子分析の立場から黄砂時の沈着粒子と浮遊粒子の類似点と相違点が初めて見出された。即ち、沈着粒子の粒径分布については大気中の粒子の粒径分布から推定することは可能であるが、粒子の組成については実測による検証が必要であると考えられる。これは、鉱物粒子の密度と海塩粒子の密度が近く、西日本において観測される粒径範囲での海塩との混合では密度の差が沈着速度に対して有意な影響とならないことによる。今後は黄砂時における浮遊粒子と沈着粒子の元素組成の違いが生じる原因を物理・化学的な視点から証明していく必要がある。さらに本研究で比較した試料は九州西岸（熊本県天草）において採取されたものであることから、本研究の結果が他の地域における結果にどの程度適応することができるかを検証・評価し、結果の一般性を高めていく必要があると考えられる。

また、本研究によって空気塊の湿度条件によってエアロゾル粒子組成の放射への寄与についての知見が明らかにされた。空気塊が乾燥している場合、エアロゾル粒子の組成が異なっても散乱の強さはエアロゾルの濃度に比例する可能性がある。これは、粒子が吸

湿・潮解の影響を受けないような低い湿度の場合、エアロゾル粒子濃度から散乱の強さを推定可能であることを示唆している。一方、湿度が高い条件ではエアロゾル粒子の化学組成や内部混合状態、粒径分布の影響が強くなることが示唆された。今後は、様々な湿度やエアロゾルの起源などの条件下で調査を行い、エアロゾルの組成や粒径分布がどの程度影響するのかを定量的に検証していく必要がある。さらに実際に観測された湿度や組成情報、粒径分布を用いて散乱の強さを計算することで、具体的な寄与を明らかにしていくことが重要である。

本研究によって得られた結果は、黄砂粒子の沈着による海洋生態系への影響評価に対する不確かさ、エアロゾル粒子の組成および粒径分布による放射強制力の不確かさの解消に貢献するものと考えられる。

謝辞

本研究を実施するにあたり、本当にたくさんの方にご協力を賜りました。ここに深く感謝の意を表します。

研究活動における熱心な指導や日常での悩みなど格別なるご指導やご高配を賜りました、指導教官である熊本県立大学環境共生学部張代洲教授に、心より感謝を申し上げます。

本論文の審査過程において、様々なご助言とご指導を賜りました熊本県立大学環境共生学部有菌幸治教授、古賀実教授に心より感謝を申し上げます。

研究の過程において、粒子採取や実験、および研究室での議論に際し、多くのご助言を賜りました熊本大学理学部小島知子准教授に心より感謝を申し上げます。

論文の執筆において、研究方法や議論、検討に当たり有益なご意見とご指導を賜りました名古屋大学柴田隆教授、東北大学片桐秀一郎博士、早坂忠裕教授に心より感謝を申し上げます。

これまでの研究課程や学生生活において数々のご指導、ご助言を賜りました、熊本県立大学環境共生学部の諸先生方に心より感謝を申し上げます。

学生生活や研究、セミナーにおいて、色々のご協力頂いた大気環境学研究室の皆様へ感謝いたします。

これまでの研究・学校生活を支えてくださった、父：福島五美、母：福島都、様々なご支援を頂いた友人達、疲れたときにそっと寄り添って癒やしてくれた亡き愛犬ロッキーに感謝いたします。

ありがとうございました。

参考文献

- Andreae, Meinrat O, Robert J Charlson, Frank Bruynseels, Hedwig Storms, Rene Van Grieken, and Willy Maenhaut**, “Internal mixture of sea salt, silicates, and excess sulfate in marine aerosols,” *Science*, 1986, *232* (4758), 1620–1623.
- Bates, Timothy S, Patricia K Quinn, Derek J Coffman, David S Covert, Theresa L Miller, James E Johnson, Gregory R Carmichael, Itsushi Uno, Sergio A Guazzotti, David A Sodeman et al.**, “Marine boundary layer dust and pollutant transport associated with the passage of a frontal system over eastern Asia,” *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012)*, 2004, *109* (D19).
- Bohren, Craig F and Donald R Huffman**, *Absorption and scattering of light by small particles*, John Wiley & Sons, 2008.
- Boyd, Philip W, Timothy Jickells, CS Law, S Blain, EA Boyle, KO Bueseler, KH Coale, JJ Cullen, HJW De Baar, M Follows et al.**, “Mesoscale iron enrichment experiments 1993-2005: Synthesis and future directions,” *science*, 2007, *315* (5812), 612–617.
- Buseck, Peter R and Kouji Adachi**, “Nanoparticles in the atmosphere,” *Elements*, 2008, *4* (6), 389–394.
- Carrico, Christian M, Pinar Kus, Mark J Rood, Patricia K Quinn, and Timothy S Bates**, “Mixtures of pollution, dust, sea salt, and volcanic aerosol during ACE-Asia: Radiative properties as a function of relative humidity,” *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012)*, 2003, *108* (D23).
- Chadwick, Oliver A, LA Derry, Peter M Vitousek, Barry J Huebert, and Lars O Hedin**, “Changing sources of nutrients during four million years of ecosystem development,” *Nature*, 1999, *397* (6719), 491–497.
- Chandra, Shekhar, SK Satheesh, and J Srinivasan**, “Can the state of mixing of black carbon aerosols explain the mystery of ‘excess’ atmospheric absorption?,”

- Geophysical Research Letters*, 2004, 31 (19).
- Dai, Tie, Guangyu Shi, and Teruyuki Nakajima**, “Analysis and evaluation of the global aerosol optical properties simulated by an online aerosol-coupled non-hydrostatic icosahedral atmospheric model,” *Advances in Atmospheric Sciences*, 2015, 32 (6), 743–758.
- Denjean, C, Sandrine Caquineau, K Desboeufs, B Laurent, M Maille, M Quiñones Rosado, P Vallejo, OL Mayol-Bracero, and P Formenti**, “Long-range transport across the Atlantic in summertime does not enhance the hygroscopicity of African mineral dust,” *Geophysical Research Letters*, 2015, 42 (18), 7835–7843.
- Duce, RA, PS Liss, JT Merrill, EL Atlas, P Buat-Menard, BB Hicks, JM Miller, JM Prospero, RCTM Arimoto, TM Church et al.**, “The atmospheric input of trace species to the world ocean,” *Global biogeochemical cycles*, 1991, 5 (3), 193–259.
- Fan, Xiao-Biro, Kikuo Okada, Noriko Niimura, Kenji Kai, Kimio Arao, Guang-Yu Shi, Yu Qin, and Yasushi Mitsuta**, “Mineral particles collected in China and Japan during the same Asian dust-storm event,” *Atmospheric Environment*, 1996, 30 (2), 347–351.
- Gieré, Reto and Xavier Querol**, “Solid particulate matter in the atmosphere,” *Elements*, 2010, 6 (4), 215–222.
- Ginoux, Paul**, “Effects of nonsphericity on mineral dust modeling,” *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012)*, 2003, 108 (D2).
- Gledhill, Martha and Kristen N Buck**, “The organic complexation of iron in the marine environment: a review,” *Frontiers in microbiology*, 2012, 3.
- Gong, SL, XY Zhang, TL Zhao, IG McKendry, DA Jaffe, and NM Lu**, “Characterization of soil dust aerosol in China and its transport and distribution during 2001 ACE-Asia: 2. Model simulation and validation,” *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012)*, 2003, 108 (D9).
- Goosse, Hugues**, *Climate System Dynamics and Modeling*, Cambridge University Press, 2015.
- Goto, D, T Nakajima, T Takemura, and K Sudo**, “A study of uncertainties in the sulfate distribution and its radiative forcing associated with sulfur chemistry in a global aerosol model,” *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2011, 11 (21), 10889–10910.
- Guo, Lin, Ying Chen, Fujiang Wang, Xi Meng, Zhifang Xu, and Guoshun**

- Zhuang, “Effects of Asian dust on the atmospheric input of trace elements to the East China Sea,” *Marine Chemistry*, 2014, 163, 19–27.
- Hansen, J, Mki Sato, R Ruedy et al., “Radiative forcing and climate response,” *JOURNAL OF GEOPHYSICAL RESEARCH-ALL SERIES-*, 1997, 102, 6831–6864.
- Hatakeyama, Shiro, Akinori Takami, Fumio Sakamaki, Hitoshi Mukai, Nobuo Sugimoto, Atsushi Shimizu, and Hiroshi Bandow, “Aerial measurement of air pollutants and aerosols during 20–22 March 2001 over the East China Sea,” *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012)*, 2004, 109 (D13).
- Hayasaka, Tadahiro, Shinsuke Satake, Atsushi Shimizu, Nobuo Sugimoto, Ichiro Matsui, Kazuma Aoki, and Yoshitaka Muraji, “Vertical distribution and optical properties of aerosols observed over Japan during the Atmospheric Brown Clouds–East Asia Regional Experiment 2005,” *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012)*, 2007, 112 (D22).
- Hidy, GM and JR Brock, “An assessment of the global sources of tropospheric aerosols,” *Proceedings of the Int. Clean Air Congr. 2nd*, 1970, pp. 1088–1097.
- Hojati, Saeid, Hossein Khademi, Angel Faz Cano, and Ahmad Landi, “Characteristics of dust deposited along a transect between central Iran and the Zagros Mountains,” *Catena*, 2012, 88 (1), 27–36.
- Houghton, J. T., Y. Ding, D. J. Griggs, M. Noguer, P. J. van der Linden, X. Dai, K. Maskell, and C. A. Johnson, eds, *Climate change 2001: The scientific basis*, Cambridge University Press, 2001.
- Hsu, S-C, G-C Gong, F-K Shiah, C-C Hung, S-J Kao, R Zhang, W-N Chen, C-C Chen, CC-K Chou, Y-C Lin et al., “Sources, solubility, and acid processing of aerosol iron and phosphorous over the South China Sea: East Asian dust and pollution outflows vs. Southeast Asian biomass burning,” *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 2014, 14 (15), 21433–21472.
- Hsu, Shih-Chieh, Fujung Tsai, Fei-Jan Lin, Wei-Nai Chen, Fuh-Kwo Shiah, Chuan Huang Jr, Chuen-Yu Chan, Chung-Chi Chen, Tsun-Hsien Liu, Hung-Yu Chen et al., “A super Asian dust storm over the East and South China Seas: Disproportionate dust deposition,” *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2013, 118 (13), 7169–7181.
- Huang, Kan, Guoshun Zhuang, Juan Li, Qiongzheng Wang, Yele Sun, Yanfen Lin, and Joshua S Fu, “Mixing of Asian dust with pollution aerosol and

- the transformation of aerosol components during the dust storm over China in spring 2007,” *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012)*, 2010, 115 (D7).
- Husar, Rudolf B, DM Tratt, BABA Schichtel, SR Falke, F Li, D Jaffe, S Gasso, T Gill, Nels S Laulainen, F Lu et al.**, “Asian dust events of April 1998,” *Journal of Geophysical Research*, 2001, 106 (D16), 18317–18330.
- In, Hee-Jin and Soon-Ung Park**, “A simulation of long-range transport of Yellow Sand observed in April 1998 in Korea,” *Atmospheric Environment*, 2002, 36 (26), 4173–4187.
- Inomata, Yayoi, Yasuhito Igarashi, Masaru Chiba, Yoshihiro Shinoda, and Hiroshi Takahashi**, “Dry and wet deposition of water-insoluble dust and water-soluble chemical species during spring 2007 in Tsukuba, Japan,” *Atmospheric Environment*, 2009, 43 (29), 4503–4512.
- IPCC-AR4**, “Climate change 2007: The physical science basis,” *Agenda*, 2007, 6 (07), 333.
- Iwasaka, Y, T Shibata, T Nagatani, G-Y Shi, YS Kim, A Matsuki, D Trochne, D Zhang, M Yamada, M Nagatani et al.**, “Large depolarization ratio of free tropospheric aerosols over the Taklamakan Desert revealed by lidar measurements: Possible diffusion and transport of dust particles,” *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012)*, 2003, 108 (D23).
- Iwasaka, Yasunobu, Hiroaki Minoura, and Katsuhiko Nagaya**, “The transport and spacial scale of Asian dust-storm clouds: a case study of the dust-storm event of April 1979,” *Tellus B*, 1983, 35 (3).
- Jickells, TD, ZS An, Katrine K Andersen, AR Baker, G Bergametti, N Brooks, JJ Cao, PW Boyd, RA Duce, KA Hunter et al.**, “Global iron connections between desert dust, ocean biogeochemistry, and climate,” *science*, 2005, 308 (5718), 67–71.
- Judson, Sheldon**, “EROSION OF THE THE LAND, or What’s Happening to Our Continents?,” *American Scientist*, 1968, pp. 356–374.
- Kandler, Konrad, Nathalie Benker, Ulrich Bundke, Emilio Cuevas, Martin Ebert, Peter Knippertz, Sergio Rodríguez, Lothar Schütz, and Stephan Weinbruch**, “Chemical composition and complex refractive index of Saharan Mineral Dust at Izana, Tenerife (Spain) derived by electron microscopy,” *Atmospheric Environment*, 2007, 41 (37), 8058–8074.
- Kitakoga, Shiho, Yoko Inoue, Makoto Kuji, and Tadahiro Hayasaka**, “Char-

- acteristics of Aerosol Properties of Haze and Yellow Sand Examined from SKYNET Measurements over East China Sea,” *Journal of the Meteorological Society of Japan*, 2014, *92* (0), 57–69.
- Li, Weijun, Jianwei Chi, Zongbo Shi, Xinfeng Wang, Bin Chen, Yan Wang, Tao Li, Jianmin Chen, Daizhou Zhang, Zifa Wang et al.**, “Composition and hygroscopicity of aerosol particles at Mt. Lu in South China: Implications for acid precipitation,” *Atmospheric Environment*, 2014, *94*, 626–636.
- Liu, Ming, Douglas L Westphal, Shigong Wang, Atsushi Shimizu, Nobuo Sugimoto, Jun Zhou, and Yan Chen**, “A high-resolution numerical study of the Asian dust storms of April 2001,” *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012)*, 2003, *108* (D23).
- Liu, Xingang, Yafang Cheng, Yuanhang Zhang, Jinsang Jung, Nobuo Sugimoto, Shih-Yu Chang, Young J Kim, Shaojia Fan, and Limin Zeng**, “Influences of relative humidity and particle chemical composition on aerosol scattering properties during the 2006 PRD campaign,” *Atmospheric Environment*, 2008, *42* (7), 1525–1536.
- Lodge, James P and Tai L Chan**, *Cascade impactor: sampling & data analysis*, American Industrial Hygiene Association, 1986.
- Lowenthal, Douglas H and Naresh Kumar**, “Variation of mass scattering efficiencies in IMPROVE,” *Journal of the Air & Waste Management Association*, 2004, *54* (8), 926–934.
- Ma, Chang-Jin, Mikio Kasahara, Robert Höller, and Tomihiro Kamiya**, “Characteristics of single particles sampled in Japan during the Asian dust-storm period,” *Atmospheric environment*, 2001, *35* (15), 2707–2714.
- Maring, H, DL Savoie, MA Izaguirre, L Custals, and JS Reid**, “Mineral dust aerosol size distribution change during atmospheric transport,” *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012)*, 2003, *108* (D19).
- Markowicz, KM, PJ Flatau, AE Kardas, J Remiszewska, K Stelmaszczyk, and L Woeste**, “Ceilometer retrieval of the boundary layer vertical aerosol extinction structure,” *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 2008, *25* (6), 928–944.
- Martin, John H**, “Glacial-interglacial CO₂ change,” *Paleoceanography*, 1990, *5* (1), 1–13.
- Matsumoto, Kiyoshi, Mitsuo Uematsu, Teruaki Hayano, Katsuhiko Yoshioka, Hiroshi Tanimoto, and Takao Iida**, “Simultaneous measurements of

- particulate elemental carbon on the ground observation network over the western North Pacific during the ACE-Asia campaign,” *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* (1984–2012), 2003, 108 (D23).
- Meyers, TP, WT Luke, and JJ Meisinger**, “Fluxes of ammonia and sulfate over maize using relaxed eddy accumulation,” *Agricultural and forest meteorology*, 2006, 136 (3), 203–213.
- Moffet, Ryan C and Kimberly A Prather**, “In-situ measurements of the mixing state and optical properties of soot with implications for radiative forcing estimates,” *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 2009, 106 (29), 11872–11877.
- Mori, Ikuko, Masataka Nishikawa, Hao Quan, and Masatoshi Morita**, “Estimation of the concentration and chemical composition of kosa aerosols at their origin,” *Atmospheric Environment*, 2002, 36 (29), 4569–4575.
- , – , **Toshifumi Tanimura, and Hao Quan**, “Change in size distribution and chemical composition of kosa (Asian dust) aerosol during long-range transport,” *Atmospheric Environment*, 2003, 37 (30), 4253–4263.
- Münel, Christoph, Stefan Emeis, Wolfgang J Müller, and Klaus P Schaefer**, “Aerosol concentration measurements with a lidar ceilometer: results of a one year measuring campaign,” in “Remote Sensing” International Society for Optics and Photonics 2004, pp. 486–496.
- Myles, LaToya, Tilden P Meyers, and Larry Robinson**, “Relaxed eddy accumulation measurements of ammonia, nitric acid, sulfur dioxide and particulate sulfate dry deposition near Tampa, FL, USA,” *Environmental Research Letters*, 2007, 2 (3), 034004.
- Niimura, N, K Okada, X-B Fan, KAI KENJI, ARAO KIMIO, G-Y Shi, and S Takahashi**, “Formation of Asian dust-storm particles mixed internally with sea salt in the atmosphere,” *Journal of the Meteorological Society of Japan*, 1998, 76 (2), 275–288.
- Niu, Hongya, Daizhou Zhang, Wei Hu, Jinhui Shi, Ruipeng Li, Huiwang Gao, Wei Pian, and Min Hu**, “Size and elemental composition of dry-deposited particles during a severe dust storm at a coastal site of Eastern China,” *Journal of Environmental Sciences*, 2016.
- Ogata, Hiroko, Dizhou 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*, 2011,

- 46 (1), 10–19.
- Okada, Kikuo and Kenji Kai**, “Atmospheric mineral particles collected at Qira in the Taklamakan Desert, China,” *Atmospheric Environment*, 2004, 38 (40), 6927–6935.
- , **Hiroshi Naruse, Toyoaki Tanaka, Osamu Nemoto, Yasunobu Iwasaka, Pei-Ming Wu, Akira Ono, Robert A Duce, Mitsuo Uematsu, John T Merrill et al.**, “X-ray spectrometry of individual Asian dust-storm particles over the Japanese islands and the North Pacific Ocean,” *Atmospheric Environment. Part A. General Topics*, 1990, 24 (6), 1369–1378.
- , **Miwako Ikegami, Yuji Zaizen, Yukio Makino, Jorgen B Jensen, and John L Gras**, “The mixture state of individual aerosol particles in the 1997 Indonesian haze episode,” *Journal of Aerosol Science*, 2001, 32 (11), 1269–1279.
- Okin, Gregory S, Natalie Mahowald, Oliver A Chadwick, and Paulo Artaxo**, “Impact of desert dust on the biogeochemistry of phosphorus in terrestrial ecosystems,” *Global Biogeochemical Cycles*, 2004, 18 (2).
- Osada, K, S Ura, M Kagawa, M Mikami, TY Tanaka, S Matoba, K Aoki, M Shinoda, Y Kurosaki, M Hayashi et al.**, “Wet and dry deposition of mineral dust particles in Japan: factors related to temporal variation and spatial distribution,” *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2014, 14 (2), 1107–1121.
- Park, Soon-Ung and Hee-Jin In**, “Parameterization of dust emission for the simulation of the yellow sand (Asian dust) event observed in March 2002 in Korea,” *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012)*, 2003, 108 (D19).
- Pinnick, RG, SG Jennings, and Petr Chýlek**, “Relationships between extinction, absorption, backscattering, and mass content of sulfuric acid aerosols,” *Journal of Geophysical Research: Oceans (1978–2012)*, 1980, 85 (C7), 4059–4066.
- Ruijgrok, Walter, Hans Tieben, and Peter Eisinga**, “The dry deposition of particles to a forest canopy: a comparison of model and experimental results,” *Atmospheric Environment*, 1997, 31 (3), 399–415.
- Seinfeld, J. H. and S. N. Pandis**, “Dynamics of single aerosol particles,” in J. H. Seinfeld and S. N. Pandis, eds., *Atmospheric Chemistry and Physics*, New York: John Wiley & Sons, 1996, pp. 452–490.
- and – , “Radiative effects of atmospheric aerosols: Visibility and climate,” in J. H. Seinfeld and S. N. Pandis, eds., *Atmospheric Chemistry and Physics*, New York: John Wiley & Sons, 1996, pp. 1113–1192.
- Shi, Zongbo, Daizhou Zhang, Masahiko Hayashi, Hiroko Ogata, Hezhe**

- Ji, and Wataru Fujiie**, “Influences of sulfate and nitrate on the hygroscopic behaviour of coarse dust particles,” *Atmospheric Environment*, 2008, 42 (4), 822–827.
- , **Michael D Krom, Timothy D Jickells, Steeve Bonneville, Kenneth S Carslaw, Nikos Mihalopoulos, Alex R Baker, and Liane G Benning**, “Impacts on iron solubility in the mineral dust by processes in the source region and the atmosphere: A review,” *Aeolian Research*, 2012, 5, 21–42.
- Simon, Edina, Edina Baranyai, Mihály Braun, Csaba Cserhádi, István Fábrián, and Béla Tóthmérész**, “Elemental concentrations in deposited dust on leaves along an urbanization gradient,” *Science of the Total Environment*, 2014, 490, 514–520.
- Srinivas, Bikkina, MM Sarin, and Ashwini Kumar**, “Impact of anthropogenic sources on aerosol iron solubility over the Bay of Bengal and the Arabian Sea,” *Biogeochemistry*, 2012, 110 (1-3), 257–268.
- , – , and **R Rengarajan**, “Atmospheric transport of mineral dust from the Indo-Gangetic Plain: Temporal variability, acid processing, and iron solubility,” *Geochemistry, Geophysics, Geosystems*, 2014, 15 (8), 3226–3243.
- Sugimoto, Nobuo and Choo Hie Lee**, “Characteristics of dust aerosols inferred from lidar depolarization measurements at two wavelengths,” *Applied optics*, 2006, 45 (28), 7468–7474.
- , **Tomoaki Nishizawa, Atsushi Shimizu, Ichiro Matsui, and Hiroshi 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*, 2015, 150, 107–113.
- Takemura, Toshihiko, Teruyuki Nakajima, Oleg Dubovik, Brent N Holben, and Stefan Kinne**, “Single-scattering albedo and radiative forcing of various aerosol species with a global three-dimensional model,” *Journal of Climate*, 2002, 15 (4), 333–352.
- Tan, Sai-Chun, Guang-Yu Shi, and Hong Wang**, “Long-range transport of spring dust storms in Inner Mongolia and impact on the China seas,” *Atmospheric Environment*, 2012, 46, 299–308.
- Tanaka, Taichu Y and Masaru Chiba**, “Global simulation of dust aerosol with a chemical transport model, MASINGAR,” *Journal of the Meteorological Society of Japan*, 2005, 83, 255–278.
- Tang, Ignatius N**, “Thermodynamic and optical properties of mixed-salt aerosols

- of atmospheric importance,” *JOURNAL OF GEOPHYSICAL RESEARCH-ALL SERIES-*, 1997, *102*, 1883–1893.
- , **AC Tridico, and KH Fung**, “Thermodynamic and optical properties of sea salt aerosols,” *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012)*, 1997, *102* (D19), 23269–23275.
- **et al.**, “Chemical and size effects of hygroscopic aerosols on light scattering coefficients,” *JOURNAL OF GEOPHYSICAL RESEARCH-ALL SERIES-*, 1996, *101*, 19–245.
- Tegen, Ina and Andrew A Lacis**, “Modeling of particle size distribution and its influence on the radiative properties of mineral dust aerosol,” *JOURNAL OF GEOPHYSICAL RESEARCH-ALL SERIES-*, 1996, *101*, 19–237.
- Uematsu, Mitsuo, Akifumi Yoshikawa, Hiroaki Muraki, Kimio Arao, and Itsushi Uno**, “Transport of mineral and anthropogenic aerosols during a Kosa event over East Asia,” *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012)*, 2002, *107* (D7), AAC–3.
- Uno, I, GR Carmichael, DG Streets, Y Tang, JJ Yienger, S Satake, Z Wang, Jung-Hun Woo, S Guttikunda, M Uematsu et al.**, “Regional chemical weather forecasting system CFORS: Model descriptions and analysis of surface observations at Japanese island stations during the ACE-Asia experiment,” *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012)*, 2003, *108* (D23).
- Uno, Itsushi, Kenta Eguchi, Keiya Yumimoto, Toshihiko Takemura, Atsushi Shimizu, Mitsuo Uematsu, Zhaoyan Liu, Zifa Wang, Yukari Hara, and Nobuo Sugimoto**, “Asian dust transported one full circuit around the globe,” *Nature Geoscience*, 2009, *2* (8), 557–560.
- VDI**, “Measurement of particulate precipitations - Microscopic differentiation and size fractionated determination of particle deposition on adhesive collection plates - Sigma-2 sampler,” in “VDI/DIN Handbuch Reinhaltung der Luft” 1997.
- Wang, Sheng-Hsiang, N Christina Hsu, Si-Chee Tsay, Neng-Huei Lin, Andrew M Sayer, Shih-Jen Huang, and William KM Lau**, “Can Asian dust trigger phytoplankton blooms in the oligotrophic northern South China Sea?,” *Geophysical Research Letters*, 2012, *39* (5).
- Wang, Xinming, Xiang Ding, Xiaoxin Fu, Quanfu He, Shaoyi Wang, Francöis Bernard, Xiuying Zhao, and Dui Wu**, “Aerosol scattering coefficients and major chemical compositions of fine particles observed at a rural site in the central Pearl River Delta, South China,” *Journal of Environmental Sciences*,

2012, *24* (1), 72–77.

Wexler, Anthony S and John H Seinfeld, “Second-generation inorganic aerosol model,” *Atmospheric Environment. Part A. General Topics*, 1991, *25* (12), 2731–2748.

Wu, Feng, Daizhou Zhang, Junji Cao, Hongmei Xu, and Zhisheng An, “Soil-derived sulfate in atmospheric dust particles at Taklimakan desert,” *Geophysical Research Letters*, 2012, *39* (24).

Wu, Guangjian, Baiqing Xu, Chenglong Zhang, and Shaopeng Gao, “Atmospheric dust aerosols over the Eastern Pamirs: major element concentrations and composition,” *Environmental Earth Sciences*, 2010, *61* (6), 1227–1237.

Zhang, Daizhou, “Effect of sea salt on dust settling to the ocean,” *Tellus B*, 2008, *60* (4), 641–646.

– **and Yasunobu Iwasaka**, “Nitrate and sulfate in individual Asian dust-storm particles in Beijing, China in spring of 1995 and 1996,” *Atmospheric Environment*, 1999, *33* (19), 3213–3223.

– **and** – , “Size change of Asian dust particles caused by sea salt interaction: Measurements in southwestern Japan,” *Geophysical Research Letters*, 2004, *31* (15).

– , **Jiaye Zang, Guangyu Shi, Yasunobu Iwasaka, Atsushi Matsuki, and Dmitri Trochkin**, “Mixture state of individual Asian dust particles at a coastal site of Qingdao, China,” *Atmospheric Environment*, 2003, *37* (28), 3895–3901.

– , **Yasunobu Iwasaka, and Guangyu Shi**, “Sea salt shifts the range sizes of Asian dust,” *Eos, Transactions American Geophysical Union*, 2005, *86* (50), 523–523.

– , – , **Atsushi Matsuki, Kazunori Ueno, and Tatsuya Matsuzaki**, “Coarse and accumulation mode particles associated with Asian dust in southwestern Japan,” *Atmospheric Environment*, 2006, *40* (7), 1205–1215.

– , – , **Guangyu Shi, Jiaye Zang, Atsushi Matsuki, and Dmitri Trochkin**, “Mixture state and size of Asian dust particles collected at southwestern Japan in spring 2000,” *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012)*, 2003, *108* (D24).

– , – , – , – , **Min Hu, and Chanyi Li**, “Separated status of the natural dust plume and polluted air masses in an Asian dust storm event at coastal areas of China,” *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012)*, 2005, *110* (D6).

Zhang, Qing and JE Thompson, “Effect of particle mixing morphology on aerosol

- scattering and absorption: A discrete dipole modeling study,” *GeoResJ*, 2014, 3, 9–18.
- Zhang, Xiao-Ye, SL Gong, TL Zhao, R Arimoto, YQ Wang, and ZJ Zhou**, “Sources of Asian dust and role of climate change versus desertification in Asian dust emission,” *Geophysical Research Letters*, 2003, 30 (24).
- Zhou, Guoping and Kazue Tazaki**, “Mineralogical characteristics of aerosols collected at Matsue and Kanazawa-with a special reference to neutralizing effect on acid pollutants.,” *The Journal of the Geological Society of Japan*, sep 1996, 102 (9), 787–803.
- 小倉, 義光, 一般気象学, 東京大学出版会, 1984.
- 浅野, 正二, 大気放射学の基礎, 朝倉書店, 2010.

副論文

1. Fukushima, Satoshi, Daizhou Zhang. "Comparison in size and elemental composition of dust particles deposited to the surface and suspended in the air on the southwest Japan coast." *Atmospheric Environment* 118 (2015): 157-163.
2. Fukushima, Satoshi, Daizhou Zhang, Takashi Shibata, Shuichiro Katagiri, Tadahiro Hayasaka. "Dependence of backscattering coefficients of atmospheric particles on their concentration and constitution under dry and humid conditions at southwestern Japanese coast in spring." *Aerosol and Air Quality Research* (in press).

個人履歴と在学中の発表論文と学会発表
略歴

(ふりがな)	ふくしま さとし
氏名	福島 聡
生年月日	1986年6月14日
性別	男
本籍	熊本県合志市幾久富 1656-285
在学歴	
● 2007年4月から2011年3月	熊本県立大学 環境共生学部 学士生
● 2011年4月から2013年3月	熊本県立大学 大学院 環境共生学研究科 修士生
● 2013年4月から2016年3月	熊本県立大学 大学院 環境共生学研究科 博士生

発表論文

- Fukushima, Satoshi, Daizhou Zhang. "Comparison in size and elemental composition of dust particles deposited to the surface and suspended in the air on the southwest Japan coast." *Atmospheric Environment* 118 (2015): 157-163.
- Fukushima, Satoshi, Daizhou Zhang, Takashi Shibata, Shuichiro Katagiri, Tadahiro Hayasaka. "Dependence of backscattering coefficients of atmospheric particles on their concentration and constitution under dry and humid conditions at southwestern Japanese coast in spring." *Aerosol and Air Quality Research* (in press).

学会発表等

- Fukushima, Satoshi, Daizhou Zhang (2013), "Airborne Particles and Deposited Particles Associated with Asian Dust at Kyushu Western Coast, Case Study", 12th International Conference on Atmospheric Sciences and Applications to Air Quality, Seoul, Korea.
- 福島聡, 告畑有紀, 張代洲 (2013), "天草西岸における黄砂時の浮遊粒子と沈着粒子の比較: 2010~2012年の観測", 第30回エアロゾル科学・技術研究討論会, 京都大学.
- 福島聡, 告畑有紀, 張代洲 (2013), "浮遊黄砂粒子と沈着黄砂粒子は似ているか", 第30回エアロゾル科学・技術研究討論会特別セッション, 京都大学.
- Fukushima, Satoshi, "Comparison of Airborne Particles and Deposition parti-

- cles Associated with Asian Dust.”, Bilateral Exchange Program Joint Research, 3rd, August, 2013, Prefectural University of Kumamoto, Kumamoto, Japan.
- Fukushima, Satoshi, Yuki Tsugehata, Daizhou Zhang (2013) ”Comparison of Airborne and Deposition Dust Particles Collected at Western Coast of Kyushu Islet in Japan”, JSPS-NSFC 二国間共同研究, 中国海洋大, 青島, 中国
 - Fukushima, Satoshi, Yuki Tsugehata, Daizhou Zhang (2013) ”Deposited and Suspended Particle Associated with Asian Dust Event on Kyushu Western Coast”, JSPS-NSFC 二国間共同研究, 山東大学, 済南, 中国.
 - Fukushima, Satoshi, Yuki Tsugehata, Daizhou Zhang (2013) ”Comparison of Deposition Dust and Airborne Dust at Kyushu islet”, JSPS-NSFC 二国間共同研究, 西安, 中国.
 - 福島聡 (2014), ”熊本県天草で採取された黄砂粒子とすす粒子の混合状態の観察”, 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, 九州大学応用力学研究所.
 - 福島聡, 告畑有紀, 松岡竜太郎, 村田浩太郎, 張代洲, 柴田隆 (2014), ”地上粒子数濃度の変動と境界層内エアロゾル粒子の高度分布の関連性について”, 第 31 回エアロゾル科学・技術研究討論会特別セッション, 筑波大学.
 - Fukushima, Satoshi, Daizhou Zhang (2014), ”Comparison between Deposition and Airborne Dust Particles Collected at the Kyushu Western Coast Case Study; 2010 - 2012 Spring”, 2014 International Aerosol Conference, Busan, Korea.
 - 福島聡, 告畑有紀, 松岡竜太郎, 村田浩太郎, 張代洲, 柴田隆 (2014), ”境界層内エアロゾルの高度分布の変動:2010 2014 年九州西岸での観測”, 日本気象学会 2014 年度秋季大会, 福岡.
 - Fukushima, Satoshi, Yuki Tsugehata, Ryutaro Matsuoka, Kotaro Murata, Takashi Shibata, Daizhou Zhang (2014), ”Aerosol Concentration in Dust and Anthropogenic Events on the Surface and in the Boundary Layer at Kyushu Western Coast”, JSPS-NSFC 二国間共同研究, 邯鄲, 中国.
 - Fukushima, Satoshi, Daizhou Zhang, ”Comparison between Airborne and Deposition Dust Particles Collected at Kyushu Western Coast”, JSPS-NSFC 二国間共同研究, 中国鋳業大学 (北京), 北京, 中国.
 - 福島聡, 告畑有紀, 松岡竜太郎, 村田浩太郎, 張代洲, 柴田隆 (2014), ”黄砂時地上付近エアロゾルの変動”, 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, 九州大学応用力学研究所.
 - Fukushima, Satoshi, Yuki Tsugehata, Ryutaro Matsuoka, Kotaro Murata,

Takashi Shibata, Daizhou Zhang (2015), "Aerosol Particle in Dust and Anthropogenic Events on the Surface and in the Boundary Layer at Kyushu Western Coast", Tohoku University, Sendai, Miyagi, Japan.

- Fukushima, Satoshi, Yuki Tsugehata, Ryutaro Matsuoka, Kotaro Murata, Takashi Shibata, Daizhou Zhang (2015), "Evolution of Aerosols near the Surface at AERU on the southwestern Japan Coast in 2010-2014", T&T International Aerosol Conference, Kitakyushu, Fukuoka, Japan.
- Fukushima, Satoshi, Yuki Tsugehata, Ryutaro Matsuoka, Kotaro Murata, Takashi Shibata, Daizhou Zhang (2015), "Evolution of Aerosols near the Surface at AERU on the southwestern Japan Coast in 2010-2014", Asian Aerosol Conference, Kanazawa, Ishikawa, Japan.
- Fukushima, Satoshi, Yuki Tsugehata, Ryutaro Matsuoka, Kotaro Murata, Takashi Shibata, Daizhou Zhang (2015), "Aerosol Concentration in Dust and Anthropogenic Events on the Surface and in the Boundary Layer at Kyushu Western Coast", JSPS-NSFC 二国間共同研究, 東北大学, 宮城, 日本
- Fukushima, Satoshi, Daizhou Zhang, Takashi Shibata, Shuichiro Katagiri, Tadahiro Hayasaka, "Dependence of backscattering coefficients of aerosol particles on their concentration and constitution under dry and humid conditions at southwestern Japanese coast in spring", JSPS-NSFC 二国間共同研究, 熊本県立大学, 熊本, 日本