

アジア大陸から日本へ海洋大気を通して輸送される粒状物質の研究

Study of particles transported from the Asian continent to the Japanese Islands through the marine atmosphere

代表研究者 北海道東海大学工学部助教授 植松光夫
Assoc. Prof., Sch. of Eng., Hokkaido Tokai Univ.
Mitsuo UEMATSU

Concentrations of atmospheric aluminum, sodium, vanadium, and manganese have been measured weekly since September 1989 at Sapporo (43°N, 141°E), Japan and Vladivostok (43°N, 132°E), USSR as a Japan-USSR co-operative project. Both stations were located on the same latitude band, and the Sapporo site was located 730 km distant down wind from the Vladivostok site during the winter season.

Mean concentration of atmospheric aluminum at Vladivostok ($2.88 \mu\text{g m}^{-3}$) was 4 times higher than that at Sapporo ($0.72 \mu\text{g m}^{-3}$). The lowest concentration at Vladivostok was 10 times higher than that at Sapporo during the sampling period. The highest concentration of atmospheric aluminum ($5.33 \mu\text{g m}^{-3}$) was observed at Vladivostok during the Kosa event in early April. The corresponded peak of atmospheric aluminum was observed at Sapporo during the same period. These results suggested that the mineral (alumino-silicates) particles in the atmosphere from the east coast of the Asian continent can be a source of the particles in the marine atmosphere over the Sea of Japan and can be transported to the North Pacific by Westerlies.

Sodium is a good indicator of seasalt particles. The very similar mean concentrations of atmospheric sodium were obtained from these sites. At Vladivostok, the contribution of sodium from mineral particles was expected to be significant.

The ratios of vanadium/aluminum and manganese/aluminum were relatively constant through the period except for a few months in the winter at both sites. However, the mean ratios of V/Al and Mn/Al at Sapporo were different from those at Vladivostok. The ratios of these elements can be used as tracers to identify the sources of aerosols.

Further investigation will be continued using the satellite images, the individual particle analysis, and chemical analysis including rare earth elements and major anions.

研究目的

日本で毎年春先に見られる黄砂現象は、アジア大陸から日本列島を越え、北太平洋全域に土壌粒子が運ばれる大気の流れであることが明らかになってきた。近年、外洋の表層水、極地の雪中等から高濃度の鉛が検出されている。これなどは大気を通して広がった全地球規模での環境汚染の例である。特に中緯度付近の偏西風が物質の長距離輸送の大きな役割を果たしている。

日本には春先の黄砂だけでなく、冬期間アジア大陸からの強い偏西風で多量の物質が運ばれている。自然界の物質だけではなく、ソ連極東域、朝

鮮半島、中国沿岸域でのめざましい工業化によって発生する汚染物質も同様に運ばれて来るであろう。これらの物質の発生源地帯での大気中の濃度や特徴がわかれば日本で受ける影響の大きさや発生源の同定が可能となる。

本研究はソ連の極東地域沿岸の最大都市ウラジオストクと、ほぼ同じ緯度に位置する札幌の2地点にエアロソル(大気浮遊粒子状物質)捕集装置を設置し同時連続観測を行った。各都市のエアロソルの化学的特徴、粒子中の化学成分の季節変動、大気大循環の流れによる大陸起源物質の日本への輸送、間に挟まれた日本海の環境への大気粒

状物質の影響の大きさなどを明らかにすることを目的とした。

研究経過

エアロソル捕集装置（エアサンプラー）の試作
冬期間に氷点下 20°C で稼働し、雪の影響を受けないでエアロソルの捕集が出来るハイボリュームエアサンプラー（吸引量；0.3~0.4 min⁻¹）に風向風力センサーを取り付け、大陸内部からの偏西風が卓越する冬期間、太平洋から高気圧の吹き出しのある夏期間など、季節的に変化する風向を選んで採取できるように改良した。またポンプは従来の月 1 度の炭素ブラシ交換を必要としないプロタイプを採用した。これによって 2~3 年はポンプ自身について保守する必要がなくなった。フィルターホルダーについてはフィルターに接する部分にテフロンテープを使用するなど、重金属をはじめ微量元素の分析が可能のように材質を選んだ。フィルターはワットマン 41 フィルター（20×25 cm）を用いた。このフィルターは微小粒子（<1 μm）については捕集効率が 80~95% と低下するが、安価で取り扱いやすく、長期にわたる大気観測用として世界的に広く利用されているものである。

サンプリング条件

こうして 4 台を製作し、札幌では観測点として本学屋上（標高 185 m + 地上高 51 m）を選び、ポンプ作動範囲を冬期間の偏西風が直接来る北西方向を中心としたもの（SapporoN）と、札幌市街地方向の北東から南東の範囲に設定したもの（SapporoE）2 台を設置した。他の 2 台はウラジオストクにある太平洋海洋研究所のアニキエフ（Anikiev）、メドベデフ（Medvedev）両博士の研究グループとの共同研究として、同研究所の屋上に札幌と同様の条件で設置した。

サンプリングは札幌とウラジオストクで 1989 年 9 月上旬から同時に始められたが、両観測点で風向風速センサーの異常により電子回路基板が作動不可能になる事態が生じ、原因解明とその対策に数ヶ月を要した。その結果、ウラジオストクでは 1990 年 4 月上旬までセンサーを用いず、1 台だけで連続運転を実施した。札幌では、2 台とも

変則的なサンプリングとなった。

フィルター交換は毎週 1 回、両観測点で同じ日に行った。得られた各試料はそれぞれの研究室で 2 分割し、片方を相手方に送りそれぞれ興味ある成分について分析を行った。現在（1990 年 10 月）、この観測は継続中である。

試料の化学分析

札幌で 1989 年 9 月から 1990 年 7 月まで 2 台のエアサンプラーで採取されたフィルター 100 試料、1989 年 9 月から 1990 年 4 月まで採取されたウラジオストクからの 40 試料について、米国ロードアイランド大学海洋学大学院に設置されている研究用原子炉（2MW）を用いて中性子放射化分析を行った。分析はフィルターの一部を切り取り、中性子フラックス $4 \times 10^{12} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ の条件下で 60 秒間照射し、発生するガンマ線を Ge (Li) 検出器で測定した。この条件で得られる元素の中で粒子の発生源の指標となるものを選んだ。アルミニウムは土壌粒子（アルミノケイ酸塩粒子）、ナトリウムは海塩粒子、バナジウムは発電用重油の燃焼等の指標となる。またマンガンは通常土壌粒子の指標となるが、地域によっては樹木の燃焼時に発生する粒子に多く含まれているという報告がある。得られる大気中濃度の誤差は空気吸引量の測定誤差や分析誤差を含め 15% 以下である。

中性子放射化分析に用いたフィルター試料の残りの一部は、ポーランドから客員教授としてロードアイランド大学に滞在していたトムザ（Tomza）博士が、東欧の大気観測網の比較試料として、希土類元素をはじめとする重金属を長時間中性子放射化分析により分析している。その成果は共同研究として発表する予定である。

また各試料の一部は、将来水溶性の陰イオン（NO₃⁻、SO₄²⁻ など）の分析を行う予定で保存している。

研究成果

観測点毎に大気中アルミニウムとナトリウム濃度の時間変化を図 1 に示す。また測定した元素について、1989 年 9 月 18 日から 1990 年 4 月 16 日までの観測点の平均濃度を表 1 にまとめた。但

し、風向き、機器の作動不良で空気の吸引量が 200 m^3 以下の試料については得られる濃度の誤差が大きくなるので議論に用いなかった。

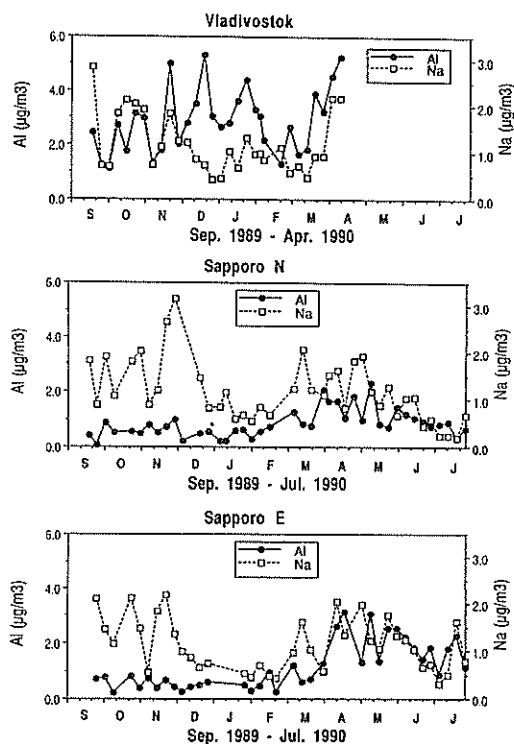


図1. ウラジオストクと札幌で測定した大気中アルミニウムとナトリウム濃度の時間変化。札幌ではポンプ作動範囲を冬期間季節風が直接来る北西方向を中心にしたサンプラー (Sapporo N) と札幌市街地方方向の北東から南東の範囲に設定したもの (Sapporo E) の結果を示す、しかし風向センサーが安定して作動をはじめたのは4月以降である。

観測点による大気中元素濃度の違い

陸起源鉱物粒子の指標である大気中の平均アルミニウム濃度はウラジオストクでは札幌の約4倍の $2.9 \mu\text{g m}^{-3}$ と顕著な違いが観測された。ウラジオストクの観測期間中の最小値も $1.1 \mu\text{g m}^{-3}$ と札幌 (Sapporo N) の最小値の10倍程度高い (表1)。最高値は4月上旬に観測された黄砂現象の時の $5.3 \mu\text{g m}^{-3}$ であり、ほぼ同時期に札幌でも $2 \mu\text{g m}^{-3}$ と高いピークを示した。このことから夏の終わりから春先にかけての期間、アジア大陸東沿岸地域の気団は常に、日本海や日本への土壌粒子の供給源として影響を与える可能性があることがわかった。特に冬期間は北西季節風によって東方へ運ばれると考えられる。ウラジオストクの観測点での大気中土壌粒子はどこに発生源を持つのか今後明らかにすべき点である。

ナトリウム濃度は海面で生成される海塩粒子の寄与を見積るのによく用いられる指標である。観測期間の大部分は北西の季節風が卓越し、アジア大陸内部からの気団がウラジオストクを通過し、日本海を横切り札幌の観測点に到達すると考えれば、札幌では日本海で発生した海塩からのナトリウム濃度が高くなることが予想できる。ナトリウムの $2 \mu\text{g m}^{-3}$ を越える高い濃度が札幌の11~12月にかけて観測された (図1)。しかし二つの観測点から得られた平均ナトリウム濃度は $1 \mu\text{g m}^{-3}$ 程度でほぼ同じであった。このことは土壌粒子中にも数%ナトリウムが含まれており、土壌粒子濃度の高いウラジオストクでは海塩からだけではなく、陸起源性粒子からのナトリウムも大きく寄与していることで説明できる。

表1. ウラジオストクと札幌の各元素の平均大気中濃度 ($\mu\text{g m}^{-3}$)

	Al		Na		Mn		V	
	Average	Std. dev.	Average	Std. dev.	Average	Std. dev.	Average	Std. dev.
Vladivostok	2.88	1.19	1.18	0.63	0.0404	0.0187	0.0121	0.0055
Sep. '89-Apr. '90	(1.09-5.33)*		(0.42-2.84)		(0.0108-0.0920)		(0.0032-0.0264)	
Sapporo N	0.72	0.48	1.35	0.66	0.0148	0.0084	0.0024	0.0013
Sep. '89-Apr. '90	(0.07-2.07)		(0.55-3.16)		(0.0061-0.0384)		(0.0005-0.0062)	
Sapporo E	0.68	0.51	1.14	0.60	0.0131	0.0093	0.0023	0.0012
Sep. '89-Apr. '90	(0.21-2.61)		(0.44-2.19)		(0.0045-0.0427)		(0.0008-0.0056)	

* 括弧内は最小値、最大値を示す。

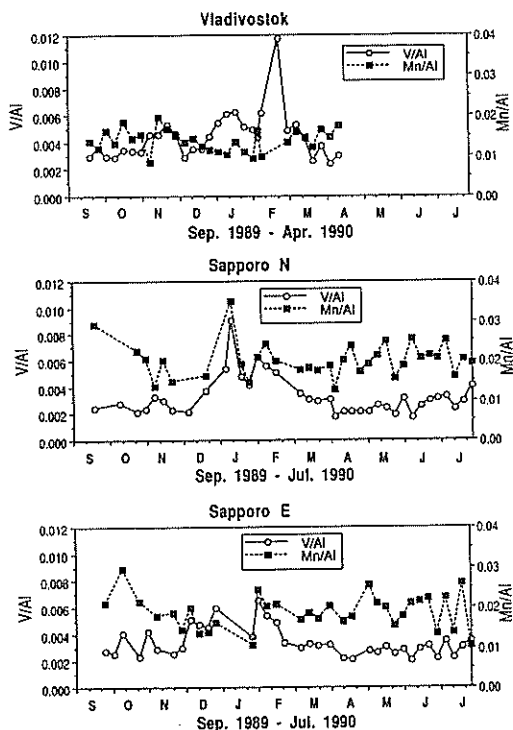


図2. ウラジオストクと札幌で測定したエアロソル中のバナジウム/アルミニウム、マンガン/アルミニウムの時間変化。

塩素濃度も同様に海塩の指標として用いられるが、塩素/ナトリウム比は必ずしも起源の海水と同じ比にならず、人為的な塩素ガスの放出や大気中の酸性物質の影響で、その比が海水比より大きくなったり、小さくなったりすることが報告されている。今後、アルミニウム、ナトリウム、塩素濃度を用いて、自然界以外から発生する化学物質の影響を見積ることが可能となるであろう。

観測点での元素比の違い

バナジウムは発電用に用いられる重油の燃焼によって発生する部分と、土壌粒子に含まれている部分が大気中に粒子として存在する。図2からウラジオストクでも札幌でも12月から3月までバナジウム/アルミニウム比はその他の期間に比べて高いことが観測された。このことからどちらの都市も自然界以外からの過剰バナジウムが放出されていると考えられる。この冬期間を除いた期間の比は二つの都市とも比較的一定でウラジオスト

クでは0.0035、札幌では0.0020とバックグラウンドレベルで組成比に違いがあることがわかった。

バナジウムに比べて、マンガン/アルミニウム比は全観測期間を通してほぼ一定であり、マンガンの大部分は土壌粒子に含まれていることが明らかになった。バナジウム/アルミニウム比のバックグラウンドレベルと同様にウラジオストクではその比が0.013、札幌では0.020と観測点によって組成比が異なっていた。

これらのバックグラウンドレベルでの化学組成の比を用いて、現在の1週間ごとのフィルター交換を24時間毎にあるいは集中観測で数時間単位で行えば、どのような気団、気象条件で大陸から日本あるいは太平洋に大気を通して物質がどの程度運ばれているのか推定が可能となる。すなわちエアロソルの元素比の変化によって、大陸から運ばれてきた粒子なのか日本の観測点周辺で発生した粒子なのかの同定が可能となる。また化石燃料などの燃焼で大気中に放出される物質についても、その量や長距離輸送で日本に運ばれてきたものか近隣からのものか、その寄与の度合いが推定できるようになると考える。

今後の課題と発展

観測は現在も継続されているが、すでに8ヵ月間の分析結果の比較で、同じような緯度環境下の2都市でのエアロソル化学組成の特徴が明らかになってきた。この違いを用いて定量的に冬期間の大陸性物質の輸送量を把握できる見通しがついた。今後、長期の大気環境の変化を観測し、発生源からどのように拡散していくのか理解するためには、

- 1) 長期間の連続観測が可能な測点を、大気大循環の最も動きの活発な中緯度付近に増やす。
- 2) 衛星による画像を利用し、黄砂現象や火山の噴火などからの粒子がどの程度の速さでどの方向にどれくらいの広さに拡がっていくのか知る必要がある。
- 3) 得られた試料中の個々の粒子についても、それぞれの発生源の特徴を持っている。走査型電子顕微鏡とX線マイクロアナライザーそして画

像解析装置などを用いた従来の全分析以外の分析法で解析を行う必要がある。

4) 多量の大陸からの物質が日本海に運び込まれている。これらの影響は海水中、あるいは堆積物に残されている可能性がある。今後、ウラジオストクと札幌に挟まれた日本海での環境試料採取と、洋上での観測を積極的に進めたいと考えている。

5) 微量元素を測定することによって、物質の動きを調べようと試みているが、直接環境に影響を及ぼすエアロソル中の硫酸イオンや硝酸イオン、リン酸イオンなどの測定も体制が整い次第、進めていく予定である。

いずれにしろ本研究は緒についたばかりであり、今後国際共同研究として地球環境の変化を明らかにすることを目指したい。

謝 辞

本研究を始めるにあたって新しいエアロソル捕集装置の試作と改良に尽力下さった紀本電子(株)の紀本岳志専務に感謝する。ソ連ウラジオストクでの試料採取はソ連科学アカデミー極東支部太平洋海洋研究所の地球化学部門のアニキエフ、メドベデフ両博士のグループとの共同研究の一環として行った。

また米国での中性子放射化分析法による試料分析にあたって、ロードアイランド大学(Rhode Island Univ.)デュース(Duce)教授に便宜をはかって頂いた。渡米旅費の一部は秋山記念科学財団と東海大学総合研究機構の助成によった。

第15回日産学術研究助成による1年間の奨励研究助成金は本研究を遂行するにあたって不可欠であったことを明記し、日産科学振興財団および選考委員の方々に感謝するしだいである。

研究発表

著書

- 1) Prospero, J., M. Uematsu and D. Savoie: Mineral Aerosol transport to the Pacific Ocean. In: Chemical Oceanography, vol. 10. Edited by J. Riley and R. Chester, Academic Press, London, pp. 187-218 (1989).
- 2) Uematsu, M.: Mineral aerosol over and deposition to the Pacific Ocean, in press, In: a special

book, The influence of interfaces, frontal zones and anthropogenic factors upon the life of the Pacific. Edited by V. Anikiev, D. Reidel Publishing Co., Dordrecht (1991).

- 3) 植松光夫: 太平洋上での黄砂観測, "黄砂", 名古屋大学水圏科学研究所編, 印刷中, 古今書院(1991).
- 4) 植松光夫: 太平洋の海底の堆積物と黄砂, "黄砂", 名古屋大学水圏科学研究所編, 印刷中, 古今書院(1990).
- 5) 植松光夫: 深海堆積物は空から, "海と地球環境-海洋学の最前線", 日本海洋学会編, 印刷中, 東京大学出版(1991).

学 術 論 文

- 1) Merrill J., Uematsu, M. and Bleck, R.: Meteorological analysis of long range transport of mineral aerosols over the North Pacific. *J. Geophys. Res.*, 94, 8584-8598 (1989).
- 2) Savoie, D., Prospero, J., Merrill, J. and Uematsu, M.: Nitrate in the atmospheric boundary layer of the tropical South Pacific: Implications regarding sources and transport". *J. Atmospheric Chem.*, 8, 391-415 (1989).
- 3) Okada, K., Naruse, H., Tanaka, T., Nemoto, O., Iwasaka, Y., Wu, P.-M., Ono, A., Duce, R., Uematsu, M., Merrill, J., and Arao, K.: X-ray spectrometry of individual Asian dust-storm particles over the Japan islands and the North Pacific Ocean". *Atmospheric Environment*, 24A, 1369-1378 (1989).
- 4) Young, R., Carder, K., Betzer, P., Costello, D., Duce, R., Ditullio, J., Tindale, N., Laws, E., Uematsu, M., Merrill, J. and Feely, R.: Atmospheric iron inputs and primary productivity: phytoplankton responses in the North Pacific". submitted to *Global Biogeochemical Cycles* (1990).

口 頭 発 表

- 1) 植松光夫: "北半球中緯度帯の対流圏における粒子状物質の循環", IGAC 計画ワークショップ, 東京, 1989年10月23-24日.
- 2) 植松光夫: "衛星画像を基にした北太平洋上の陸起源エアロソルの分布と降下量の見積"重点領域研究「衛星による地球環境の解明」第一回研究会, 東京, 1990年7月20日.
- 3) 植松光夫: "大気中に存在する個々の粒子の粒径と元素分析による挙動解析の試み"日本地球化学会年会, 新潟, 1990年10月3-5日, p. 109.
- 4) Uematsu, M., Duce, R. and Prospero, J.: Atmospheric Beryllium-7 concentrations over the Pacific Ocean, 32nd IUPAC Congress, p. 42, Stockholm, Sweden, August 1989.

- 5) Uematsu, M.: Mineral aerosol over deposition to the North Pacific Ocean", The 1989 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies, Honolulu, USA, December 1989.
- 6) Uematsu, M., Tsunogai, S., Duce, R., and Prospero, J.: Mineral aerosol over and deposition in the western and the central North Pacific Ocean", 7th International Symposium of the Commission on Atmospheric Chemistry and Global Pollution, Chamrousse, France, September 1990.
- 7) Uematsu, M.: Chemical substances in aerosol over and deposition to the North Pacific Ocean", 11th Japan-USSR Energy Symposium on Energy Utilization and Environmental Problems, Vladivostok, USSR, October 1990.