

## 長崎県福江島と沖縄県辺戸岬における大気エアロゾル中微量元素の特徴

鶴田治雄<sup>1</sup>、須藤重人<sup>2</sup>、米村正一郎<sup>2</sup>、菊地信行<sup>3</sup>、片桐秀一郎<sup>4</sup>  
白砂裕一郎<sup>5</sup>、平野耕一郎<sup>5</sup>、世良耕一郎<sup>6</sup>、斉藤義弘<sup>7</sup>、二ツ川章二<sup>8</sup>  
高村民雄<sup>9</sup>、早坂忠裕<sup>10</sup>、中島映至<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 東京大学気候システム研究センター  
277-8568 千葉県柏市柏の葉 5-1-5

<sup>2</sup> 独立行政法人農業環境技術研究所  
305-8604 茨城県つくば市観音台 3-1-3

<sup>3</sup> 独立行政法人国立環境研究所  
305-8506 茨城県つくば市小野川 16-2

<sup>4</sup> 宇宙航空研究開発機構 地球観測研究センター  
305-8505 茨城県つくば市千現 2-1-1

<sup>5</sup> 横浜市環境科学研究所  
235-0012 横浜市磯子区滝頭 1-2-15

<sup>6</sup> 岩手医科大学サイクロトロンセンター  
020-0173 岩手県岩手郡滝沢村滝沢字留が森 348-58

<sup>7</sup> (社)日本アイソトープ協会滝沢研究所  
020-0173 岩手県岩手郡滝沢村滝沢字留が森 348-58

<sup>8</sup> (社)日本アイソトープ協会アイソトープ部  
113-8941 東京都文京区本駒込 2-28-45

<sup>9</sup> 千葉大環境リモートセンシング研究センター  
263-8522 千葉市稲毛区弥生町 1-33

<sup>10</sup> 東北大学大気海洋変動観測研究センター  
980-8578 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-3

### 1 はじめに

2006年3月～4月に、国立環境研究所と総合地球環境学研究所が東アジアで実施した大気集中観測の一環として、長崎県福江島と沖縄県辺戸岬で、両地点(約650km南北に位置している)での大気エアロゾルの化学特性を明らかにすることを目的として、観測を行ったので、その概要を報告する<sup>1)</sup>。

## 2 測定方法

### 2.1 エアロゾル測定

(1) 測定地点：長崎県福江島の大気環境観測施設（総合地球環境学研究所所属）と沖縄県辺戸岬の大気・エアロゾル観測ステーション（国立環境研究所所属）で、2地点間の直線距離は約650kmである(32.75N, 128.68E; 26.87N, 128.25N)。

(2) 測定期間：2006年3月13日-3月22日および4月4日-4月12日

(3) 測定項目：大気エアロゾル：エアロゾル試料を外気から直接インパクター法 MCI 採取装置により連続的に採取した。4段のMCIインパクターで粒径別( $d < 1.0\mu\text{m}$ ,  $1.0 < d < 2.5\mu\text{m}$ ,  $2.5 < d < 10\mu\text{m}$ ,  $10\mu\text{m} < d$ )に半日あるいは1日毎に、フッ素樹脂処理ガラス繊維フィルター、石英繊維およびポリカーボネートフィルター上に採取し、質量濃度とともに、元素炭素(EC)と有機炭素(OC)をOC/EC炭素分析計(Thermal/optical(Improved)法)、水溶性イオンをIC、微量元素をPIXEで分析した。

### 2.2 大気塊の輸送経路

NOAA-HYSPLIT モデルによる後方流跡線解析結果を利用した。

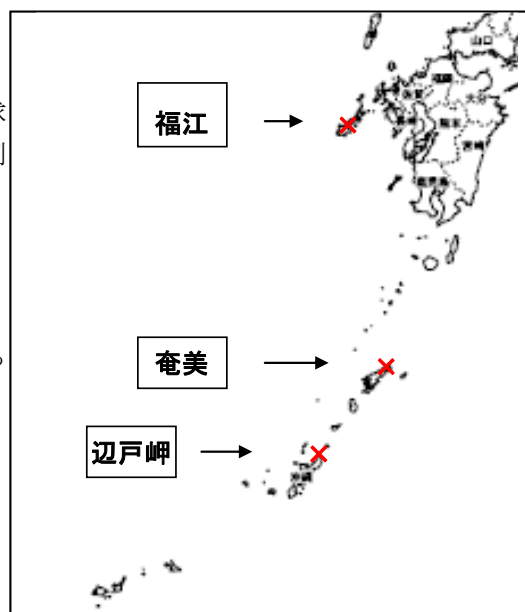


図1 3観測地点(福江、奄美、辺戸岬)の位置

## 3 結果

### 3.1 気象と黄砂の状況

3月13日から冬型の気圧配置となり、3月16日と18日に低気圧が日本列島を通過し、その後は移動性高気圧に覆われた。なお黄砂は気象庁での観測<sup>2)</sup>によれば、3月19日に西日本では、九州から那覇および宮古島まで広範囲に観測され(福江では観測されず)、それ以前の3月17日と18日でも、奄美大島の名瀬では観測された。また4月3日に冬型の気圧配置となったが、4日に移動性高気圧が広く日本列島をおおい、6日にはふたたび、冬型の気圧配置となった。4月8日から9日にかけては、移動性高気圧に覆われ、西日本から関東地方および東北地方の一部にかけて黄砂が広域に観測された。

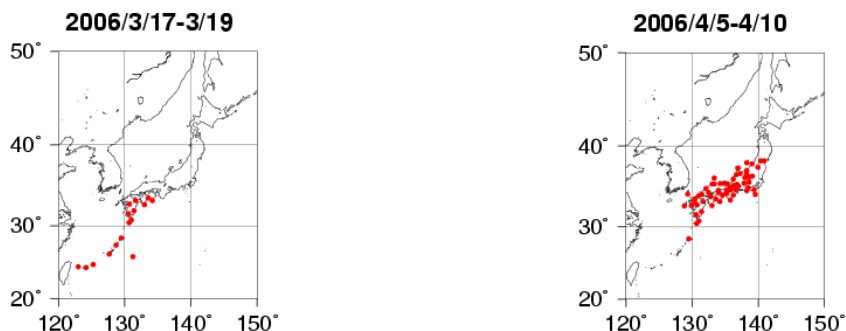


図2 2006年3月17日-3月19日(左図)と4月5日-4月9日(右図)に日本で黄砂を観測した地点<sup>3)</sup>(福江では4月8日だけ観測され、両日とも、名瀬では観測されたが那覇では観測されなかった)。なお、4月4日は福岡と佐賀で、4月5-7日は熊本だけで観測された。

### 3.2 質量濃度

図3に示すように、3月の観測期間中の質量濃度は微小粒子および粗大粒子ともに、福江よりも辺戸

のほうが高かった。辺戸でのBC濃度の連続測定によれば、3月14日の午後から3月19日の午前中まで  $0.4\mu\text{g m}^{-3}$  以上と高く、後方流跡線解析によれば、大気塊は中国東部から輸送されていた。

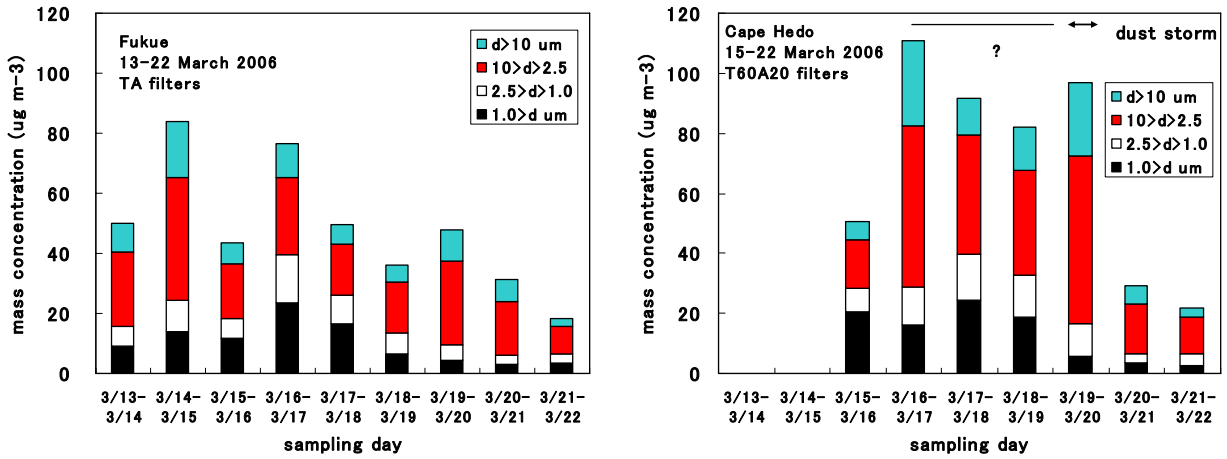


図3 福江(左)と辺戸(右)の大気エアロゾルの粒径別質量濃度(2006年3月13日-3月22日)

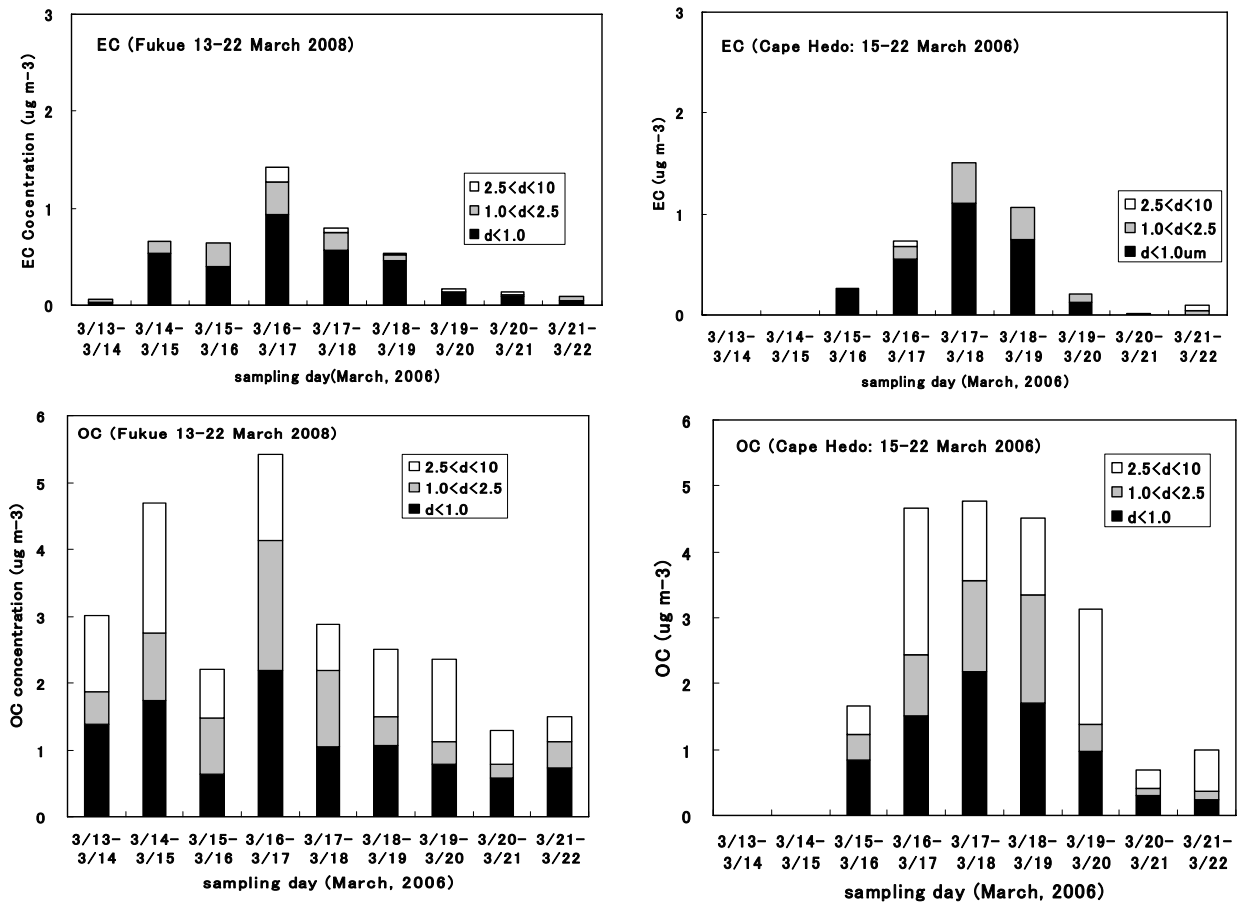


図4 福江(左)と辺戸(右)のEC(上段)とOC(下段)の粒径別濃度(2006年3月13日-3月22日)

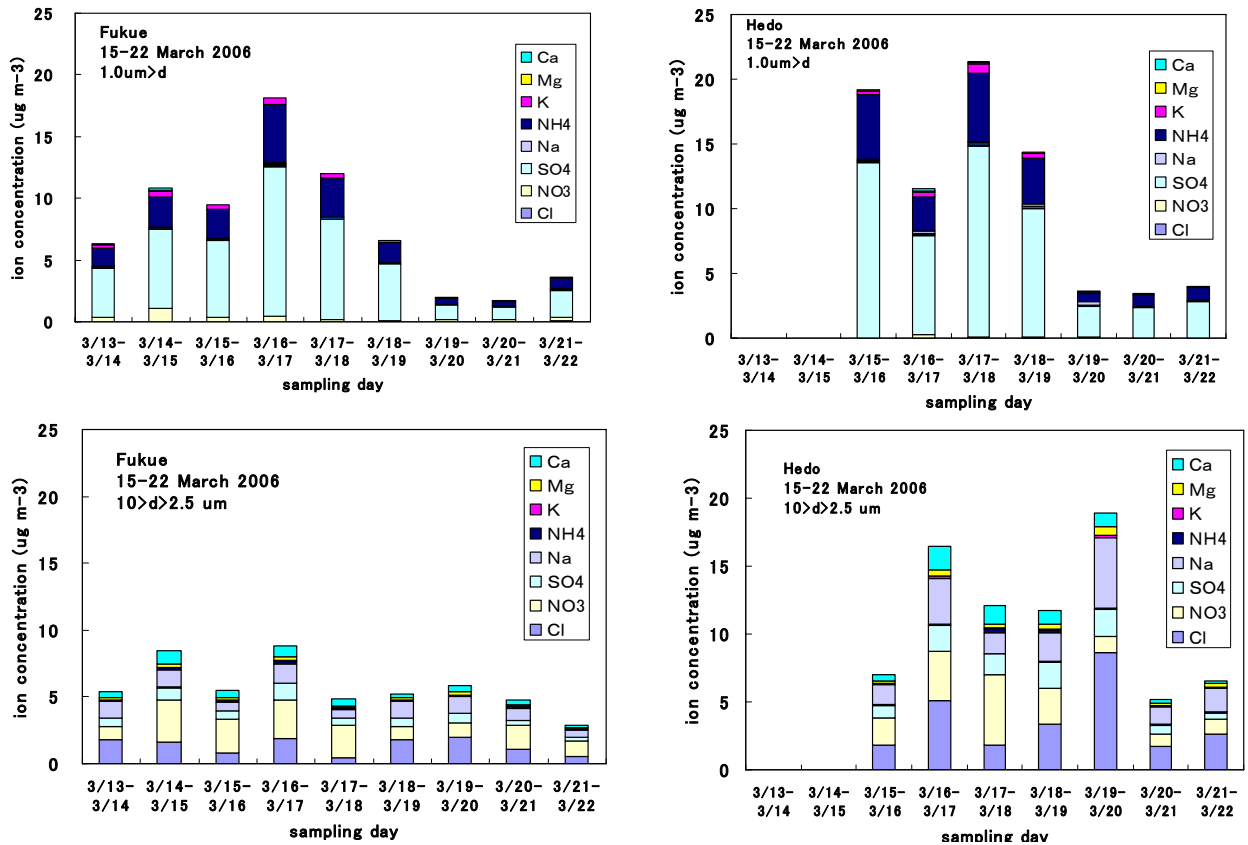


図5 福江(左)と辺戸(右)の微小(上)と粗大粒子(下)中の主な水溶性イオン濃度(3月13日-3月22日)

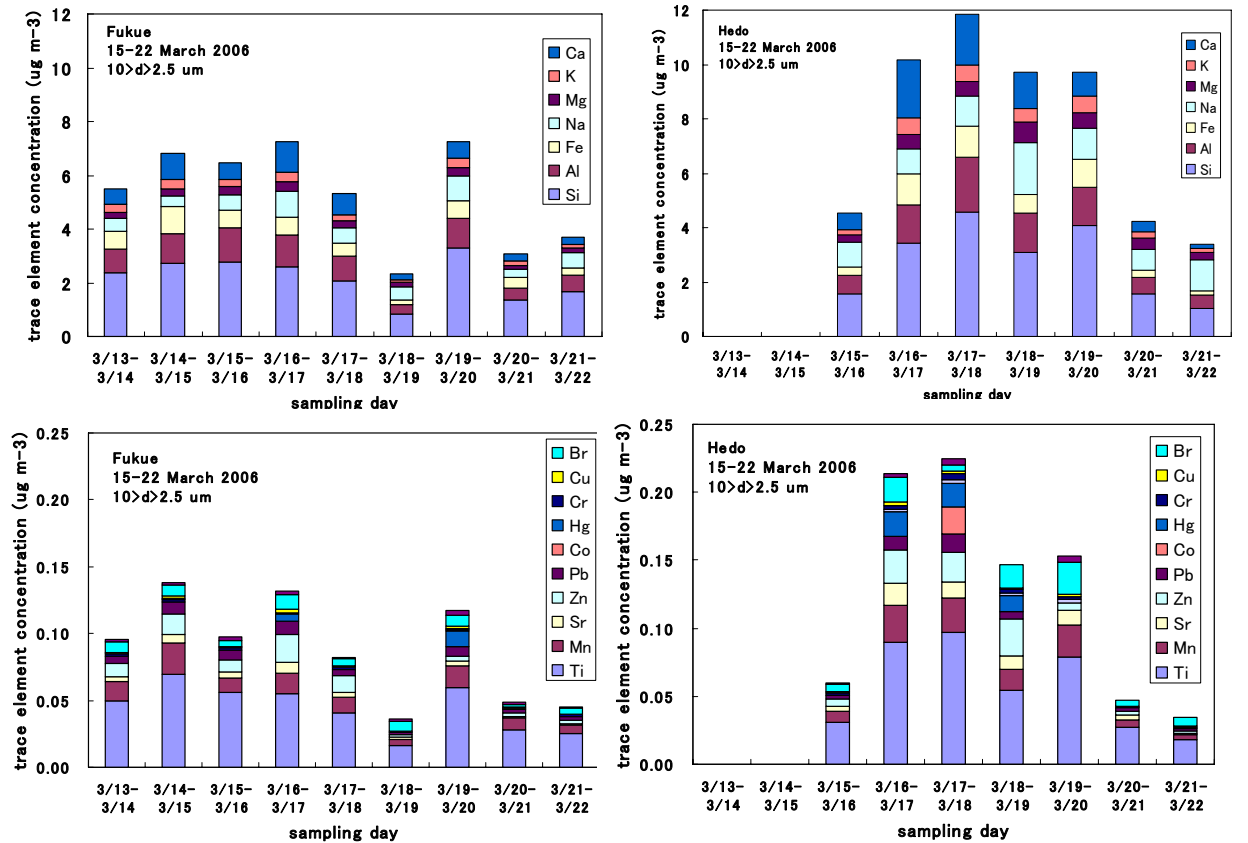


図6 福江(左)と辺戸(右)の粗大粒子中の微量元素濃度:Si-Ca(上)、Ti-Br(下)(3月13日-3月22日)

### 3.3 化学成分濃度

ここでは3月の結果を主に述べる。

- (1) この期間の大気エアロゾル濃度は、辺戸のほうが福江よりも、特に粗大粒子 ( $d > 2.5 \mu\text{m}$ ) が高かった(図3)。これは、後述するように、海塩粒子と土壌粒子が多かったためである。
- (2) 2地点とも、ECは微小粒子(粒径  $2.5 \mu\text{m}$  以下)の中に全体の94%以上が存在したが、OCは、粗大粒子中に全体の35%(福江), 38%(辺戸)が存在していた(図4)。
- (3) 微小粒子中の水溶性イオンの90%以上は、2地点とも  $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$  であった(図5)。
- (4) 粗大粒子中の水溶性イオンのほとんどは、2地点とも  $\text{NO}_3^-$  と海塩粒子であり、辺戸のほうが福江よりも2倍だった(図5)。
- (5) おもに土壌粒子に由来する微量元素の濃度も、辺戸のほうが福江よりも高かった(図6)。

## 4 考察

### 4.1 ECと $\text{SO}_4^{2-}$ の関係

微小粒子中のECと $\text{SO}_4^{2-}$ 濃度は、2地点とも正の強い相関があり、有意差は見られなかった(図7)。また、回帰直線の傾きはほぼ0.10であり、奄美大島での2001年と2003年の春季の値(0.12)<sup>4)</sup>と大きな差は見られなかった。これらから、これらの回帰係数は、春季の南西諸島で観測される中国からの汚染気塊中での平均的な値と推定される。

### 4.2 海洋生物起源のOCの可能性

前述したように、福江や辺戸でのOC濃度は、粗大粒子中に占める割合が全体の約1/3と大きかった(図8)。タイのピマイにおける大気エアロゾルの測定結果<sup>5)</sup>によれば、乾期の全粒子中のOC濃度に占める粗大粒子中の割合は約20%と、今回の測定結果よりずっと小さかった。この原因として、化石燃料の燃焼で直接排出された有機エアロゾル、およびガス状の有機物が粗大粒子中に取り込まれるだけでなく、海洋起源の直接・間接の有機エアロゾルの可能性が考えられる。粗大粒子中のOC濃度とCl<sup>-</sup>濃度、およびCl<sup>-</sup>濃度と全Br濃度との間には正の相関があり(図9、図10)、これらは海塩粒子中にOCが取り込まれている可能性を示している。また、この時期の海洋表面は、クロロフィルa濃度の分布(図11)<sup>6)</sup>にみられるように、春季の微生物活動で高くなっており、有機物生産が増大している時期なので、その海水飛沫中の海洋生物起源の有機物濃度も高くなると推測される。またこの海域での海洋上のガス状の $\text{CH}_3\text{Br}$ 濃度は、2000年12月は約20pptだったが、2001年4月は50-200pptと高くなり、緯度が低いほど濃度は高かった<sup>7)</sup>。これは、海水温は緯度が低くなるにつれて高くなるので、春季の海洋表面の生物活動の高まりを示唆している。この推測はあくまで仮説であるが、海塩粒子の影響の少ないタイのピマイでは、OC濃度の割合が福江や辺戸よりもずっと小さいので、今後の詳細な調査研究が必要である。

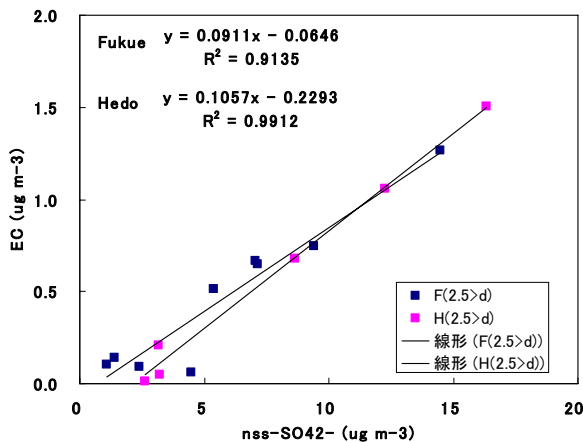


図7 微小粒子中のECと $\text{SO}_4^{2-}$ の散布図

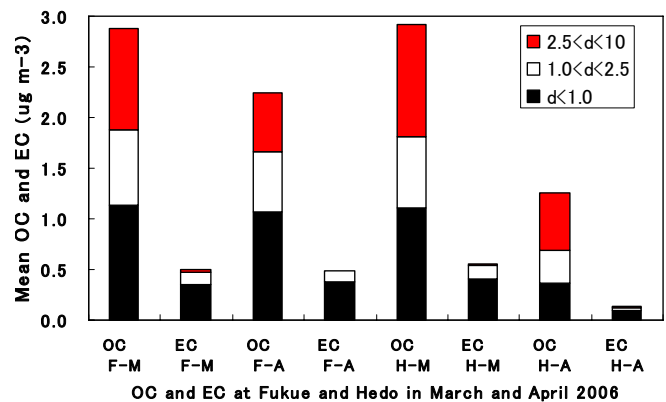


図8 福江(F)と辺戸(H)の3月(M)と4月(A)における粒径別ECとOCの平均濃度

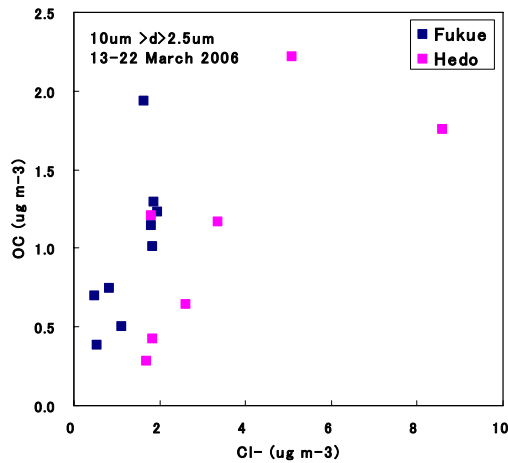


図9 粗大粒子中のOC濃度とCl<sup>-</sup>濃度との関係

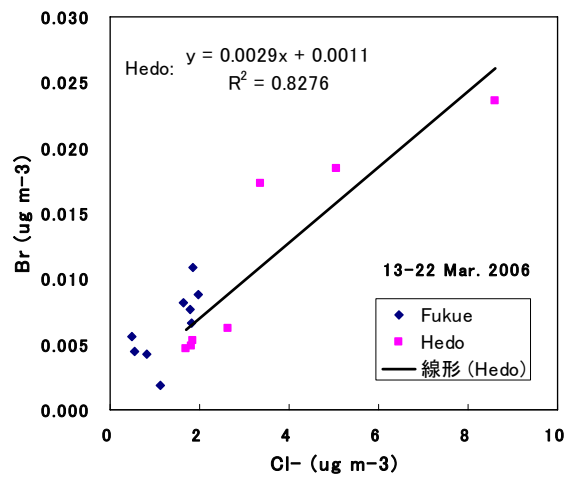


図10 粗大粒子中のCl<sup>-</sup>濃度とBr濃度との関係

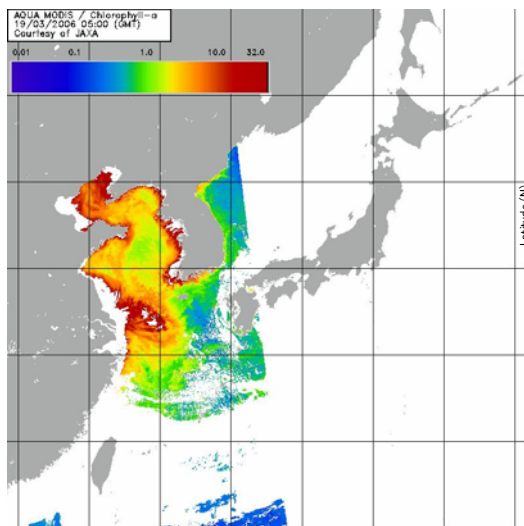


図11 MO DISによる東アジア海域のクロロフィルa濃度<sup>6)</sup>: mg m<sup>-3</sup>  
(2006年3月19日05UT)

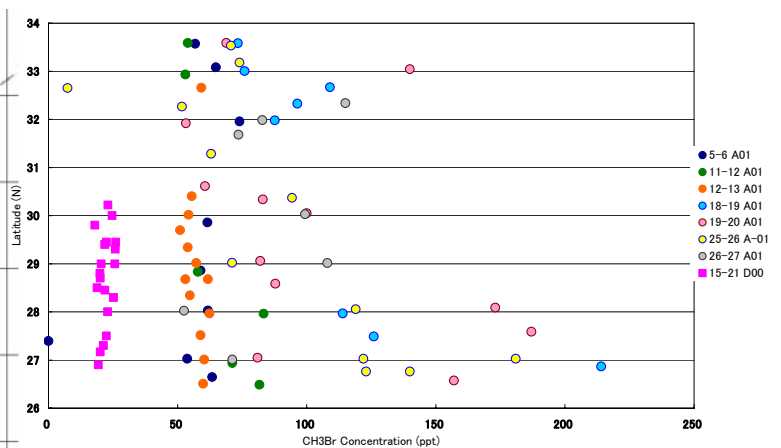


図12 博多-那覇間の海上での緯度方向のCH<sub>3</sub>Br濃度(2001年4月).  
ピンクのデータは2000年12月の鹿児島～名瀬/那覇間の海上のCH<sub>3</sub>Br濃度<sup>7)</sup>

### 4.3 土壌粒子の発生源推定

4月の観測期間中における大気エアロゾルの質量濃度は、黄砂が観測された4月8日前後に、2地点ともに、高くなった(図13)。福江と辺戸の大気エアロゾル中のSiとAl濃度の回帰直線式は、ほとんど等しかった(図14)。これは、2地点の距離が約650kmと離れているにもかかわらず、同じ性質の土壌粒子が広範囲に輸送されたことを強く示唆している。しかし、回帰係数は、3月は約2.2だったが、4月では2.6と異なっていた。図2に示すように、黄砂は、3月のときは南西諸島だけで観測され、4月は九州、四国および東北部以南の本州に限られていたので、その発源地域が異なっていたと推測される。NOAA/HYSPLITの後方流跡線解析<sup>8)</sup>を利用して福江と辺戸に到達した大気塊の履歴を調べた結果、3月15日から3月18日までの間、辺戸では、中国東部の沿岸域あるいは黄土高原を通過した大気塊が到達しており、福江でもほぼ同様な輸送経路を示していた(図15)。一方、4月では、福江も辺戸も、ゴビ砂漠方面からの大気塊が到達しており、明らかに3月の場合とは、発源地域が異なっていた(図16)。一方、中国の黄土高原やタクラマカン砂漠地帯の表層土壌や砂の化学分析によれば、地域によって、SiO<sub>2</sub>と

Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の組成比が異なっていた<sup>9)</sup>。これらを総合的に考えると、SiとAlの回帰係数が異なっていた原因は、3月と4月とで高濃度を示した土壌元素の発生源が異なり、その土壌に含まれるSiとAlの組成比が異なったためと推測されるが、今後、さらに人工衛星によるデータ解析や、黄砂の発源地域の土壌中の化学組成などの分析を含めて、詳細に検討する必要がある。

#### 4.4 高濃度のエアロゾルの発生源分類

奄美大島での測定によれば、海塩粒子を除いた高濃度のエアロゾルで、図17に示す領域Iの地域から輸送された事例では、大きく二つに分類されることが明らかになっている<sup>4)</sup>。微小粒子中のECとSiとを、それぞれ大気汚染物質と土壌粒子の指標とすると、図18に示すように、黄砂が飛来するような土壌粒子が卓越する場合は、EC濃度は最大でも約1 $\mu\text{g m}^{-3}$ であり、ECがそれ以上と高濃度の汚染気塊ではSi濃度は最大でも2.5 $\mu\text{g m}^{-3}$ であった。今回の3月の辺戸の場合も、図18に示すように、前者の場合に近いと推測される。

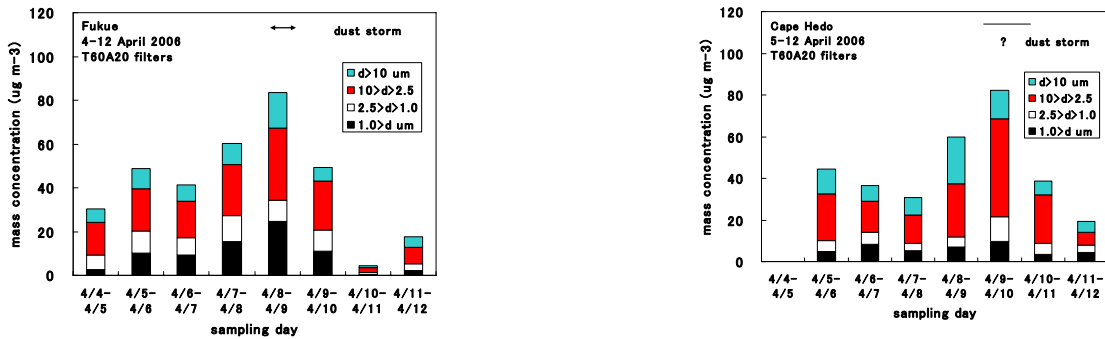


図13 福江(左)と辺戸(右)の大気エアロゾルの粒径別質量濃度(2006年4月4日-4月12日)

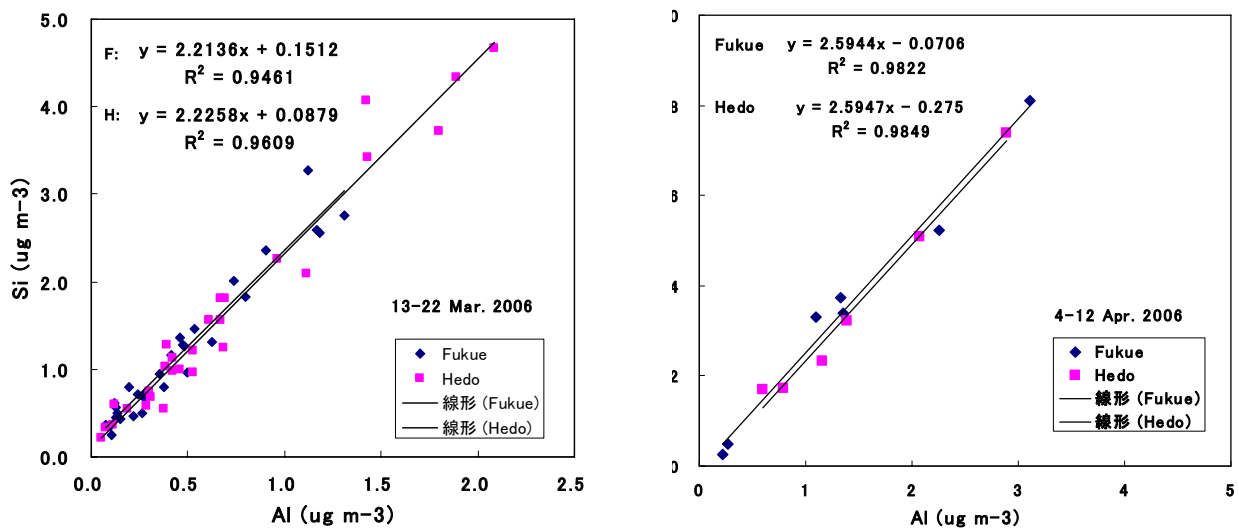


図14 福江と辺戸における3月(左図)と4月(右図)の大気エアロゾル中のSiとAlとの関係



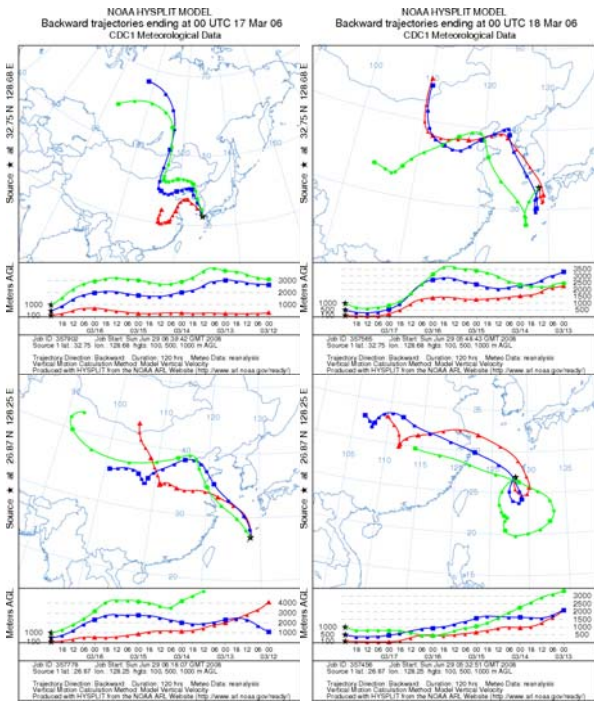


図 15 福江 (上段) と辺戸 (下段) での 3 月 17 日 (左図) と 3 月 18 日 (右図) の 00 時 (UT) の後方流跡線解析。  
高度 100m (赤)、500m (青)、1000m (緑)

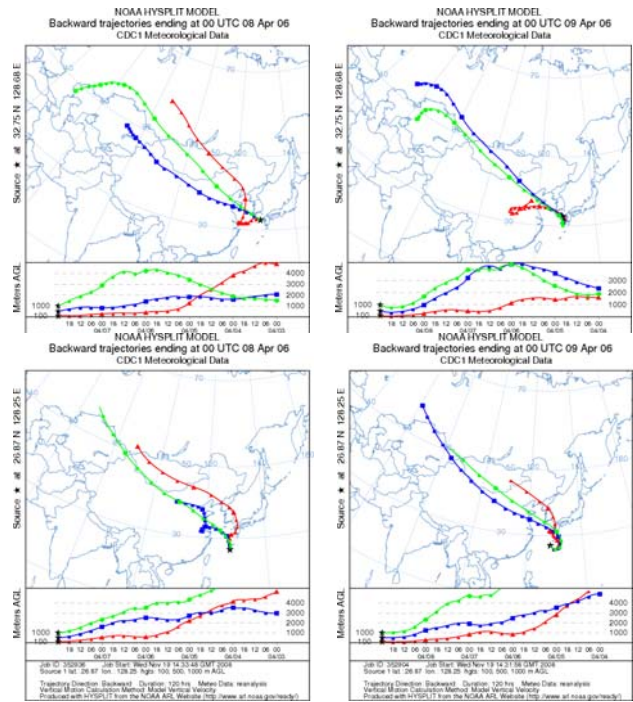


図 16 福江 (上段) と辺戸 (下段) での 4 月 8 日 (左図) と 4 月 9 日 (右図) の 00 時 (UT) の後方流跡線解析。  
高度 100m (赤)、500m (青)、1000m (緑)

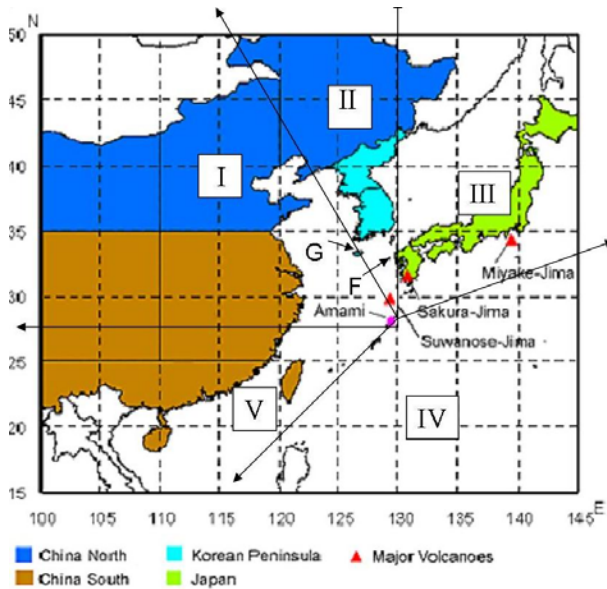


図 17 奄美大島に到達した気塊を分類した 5 風系の範囲 (I-V)。F は福江島。

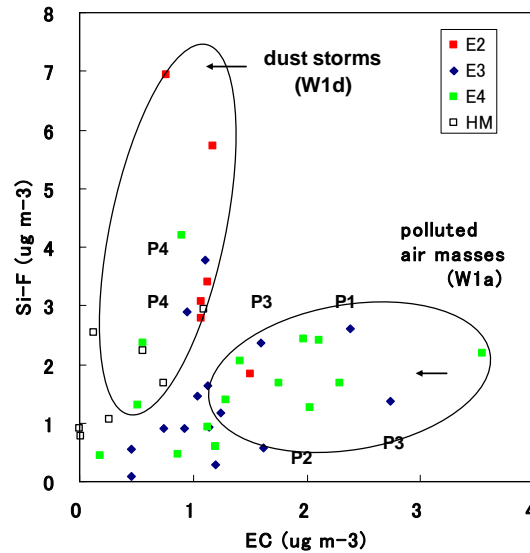


図 18 W1 の気塊における微小粒子中の EC 濃度と Si-F 濃度の関係。E2、E3、E4 は各 2001、2003、2004 年の奄美大島の 3-4 月、HM は辺戸の 2006 年 3 月の結果。



## 参考文献

- 1) 鶴田治雄・須藤重人・菊地信行・片桐秀一郎・世良耕一郎・二ツ川章二・早坂忠裕・中島映至, 2008 : 長崎県福江島と沖縄県辺戸岬における春期の大气エアロゾルの化学組成、2008 年度秋季大会講演予稿集, 190
- 2) 気象庁, 2006 : 2006 年黄砂観測日および観測地点一覧, 「地球環境データベース」黄砂 ([http://www.data.kishou.go.jp/obs-env/kosahp/kosa\\_table\\_2006.html](http://www.data.kishou.go.jp/obs-env/kosahp/kosa_table_2006.html))
- 3) 気象庁, 2008 : 4.3.1: 2006 年の黄砂現象, 大气・海洋環境観測報告第 8 号 (2006 年観測成果) .
- 4) 鶴田治雄・矢吹正教, 2008: 奄美大島の春季における大气エアロゾルの化学組成と光学特性、気象研究ノート、218、45-66.
- 5) 中島映至・鶴田治雄・木本昌秀・高橋正明・住 明正・柴崎亮介・上田完次, 2008 : 東アジアにおける広域大气汚染の評価、平成 19 年度 AGS 報告書 (印刷中)
- 6) The Ministry of the Environment ・ the Northwest Pacific Region Environmental Cooperation Center (NPEC): Chlorophyll-a Concentration in NOWPAP Area (<http://www.nowpap3.go.jp/jsw/eng/callender/index.html>)
- 7) 野島邦一, 2002 : 大气微量ガスのフラスコサンプリングとその解析(東シナ海洋上にて)、近畿大学修士論文
- 8) NOAA: NOAA ARL HYSPLIT MODEL (<http://www.arl.noaa.gov/ready/hysplit4.html>)
- 9) Honda, M., S. Yabuki and H. Shimizu, 2004: Geochemical and isotopic studies on Aeolian sediments in China, *Sedimentology*, 51, 211-230.

## Chemical characterization of atmospheric aerosols measured at Fukuejima and Cape Hedo in the spring of 2006

H. Tsuruta<sup>1</sup>, S. Sudo<sup>2</sup>, S. Yonemura<sup>2</sup>, N. Kikuchi<sup>3</sup>, S. Katagiri<sup>4</sup>  
 Y. Shirasuna<sup>5</sup>, K. Hirano<sup>5</sup>, K. Sera<sup>6</sup>, Y. Saitoh<sup>7</sup>, S. Futatsugawa<sup>8</sup>, T. Takamura<sup>9</sup>,  
 T. Hayasaka<sup>10</sup> and T. Nakajima<sup>1</sup>

<sup>1</sup>CCSR, The University of Tokyo, 5-1-5 Kashiwanoha, Kashiwa, Chiba 277-8568, Japan

<sup>2</sup>NIAES, 3-1-3 Kannondai, Tsukuba, Ibaraki 305-8604, Japan

<sup>3</sup>National Institute for Environment Studis, 16-2 Onogawa, Tsukuba, Ibaraki 305-8506, Japan

<sup>4</sup>JAXA-EORC, 2-1-1 Sengen, Tsukuba Ibaraki 305-8505, Japan

<sup>5</sup>Yokohama City Institute of Environmental Sciences, 1-2-15 Takigashira, Yokohama 235-0012, Japan

<sup>6</sup>Cyclotron Research Center, Iwate Medical University, 348-58 Tomegamori, Takizawa, Iwate 020-0173, Japan

<sup>7</sup>Takizawa Institute, Japan Radioisotope Association, 348-1 Tomegamori, Takizawa, Iwate 020-0173, Japan

<sup>8</sup>Japan Radioisotope Association, 2-28-45 Honkomagome, Bunkyo, Tokyo 113-8941, Japan

<sup>9</sup>CeRES-Chiba University, 1-33 Yayoicho, Inage, Chiba Chiba, 263-8522, Japan

<sup>10</sup>Center for Atmospheric and Oceanic Studies, Tohoku University  
 6-3 Aramaki Aoba, Aoba-ku, Sendai, Miyagi 980-8578, Japan

### Abstract

An intensive field program was performed to measure atmospheric aerosols at Fukuejima (32.752°N, 128.682°E) in Nagasaki prefecture, and at Cape Hedo (26.867°N, 128.249°E) in Okinawa prefecture, located in west and southwest Japan, respectively, during 13-22 March and 4-12 April 2006. A distance between the two sites was 650km. Chemical analysis of the collected aerosols with the four size ranges was made for elemental and organic carbons (EC/OC) by an thermal/optical OC/EC analyzer with improved method, water soluble ions by ion chromatography, and trace elements by PIXE. Two dust storms called as Kosa were observed in the measured period of March and April, when the mass concentration of atmospheric aerosols increased. A highly positive correlation between EC and nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> in fine particles was shown at the both sites, and the slope of linear regression equation was almost equal to that measured at Amami-Oshima (28.444°N, 129.697°E) in the spring of 2001 and 2003. The ratio of the OC concentration in coarse particles to that in the total OC was about 0.35 and 0.38 at Fukue and Hedo, respectively, and which were much higher than that measured at Phimai (15.184°N, 102.565°E) in Thailand where the dominant aerosol was emitted from biomass burning in dry season. In coarse particles at Hedo, a positive correlation was found between OC and Cl<sup>-</sup>, and total Br and Cl<sup>-</sup>, which strongly suggests that a source of some OC might be a biogenic one produced in the surface sea. According to a satellite data analysis by JAXA, the chlorophyll-a concentration in the surface water observed north of and

around the sites was high. Moreover,  $\text{CH}_3\text{Br}$  in gas phase over the sea surface increased with the lower latitude from Fukue/Kagoshima to Naze/Naha in the spring of 2001 (E2). These phenomena could support the biogenic emission of some OC in atmospheric aerosols. A highly positive correlation between Si and Al in coarse particles was also found in the spring time at the both site. The slope of linear regression equation was, however, 2.2 and 2.6 in March and April 2006 at the both sites, respectively. This significant difference in the slope between March and April indicates that the possible source region of soil dusts was different, while the same value of slope at the both sites demonstrates that the wide region including Fukue and Hedo could be covered by soil dusts with the similar property. According to the backward trajectory analysis by the NOAA HYSPLIT model, air masses arrived at Fukue/Hedo in the strong dust storm event was transported from a different inland region of eastcoast China, between March and April. The future study on soil chemistry among the different desert area in China and Mongolia should be needed.