

## 大気汚染質の取り込みによる黄砂粒子の形態変化過程の実時間観測に成功

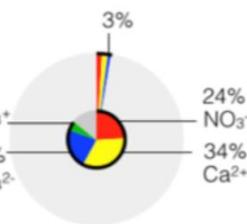
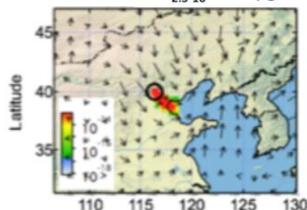
黄砂と高濃度の人為起源大気汚染が混合すると、両者は非常に複雑な相互作用を生じ重大な大気環境の変化を引き起こすことが知られています。発生時の黄砂粒子は表面が角張った非球形な形状をしています。大気汚染質に覆われると球形の形態に変化します。その結果、日射の散乱・吸収効率が変わり大気の放射収支が変動すると共に、雲の凝結核として発生時黄砂よりも効率的に働くため雲・降水過程にも影響を及ぼし、地球の大気環境に大きなインパクトを与えます。しかし、この大気汚染質との混合による黄砂の形態変化過程を環境大気中での実時間で把握することは、測定の高難度から、これまで出来ていませんでした。

九州大学応用力学研究所の鶴野伊津志教授、同大気環境統合研究センターの Pan Xiaole 助教（現中国科学院大気物理研究所教授）、中国科学院大気物理研究所、国立環境研究所、山梨大学らの共同研究グループは、北京に設置した最新の偏光式光学粒子計測器を用い、2015年3月末から4月初旬の中国北京での黄砂イベント時に黄砂粒子の形態変化過程の実時間観測に成功しました。

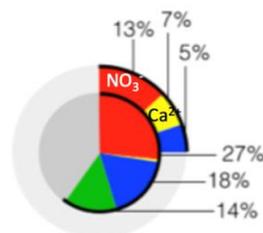
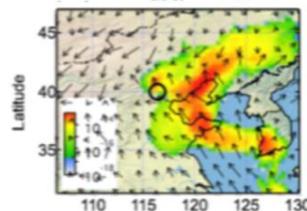
北京での観測では、黄砂に同期して粗大硝酸塩  $\text{NO}_3^-$  の増加が顕著でした。これは黄砂粒子の表面に人為起源の窒素酸化物  $\text{NO}_x$  から生成された硝酸ガス  $\text{HNO}_3$  が取り込まれ、主に硝酸カルシウム  $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$  が形成されたため、硝酸カルシウムの高い潮解性のため粒子が球形化していくことが示唆されています。そして、この黄砂粒子の非球形性の変化（粒子の縦横比の変化）を、光散乱の理論計算から確認することが出来ました。今後は、気温・湿度の異なる気象と大気汚染濃度の条件で観測事例を積み上げ、黄砂の形態変化過程を調べ、より定量的な解析を進めることが可能です。この研究成果はアジアスケールの雲・降水過程の変調や気候変化の解析への活用が期待できます。

本研究成果は、2017年3月23日（木）午前10時（英国時間）に英国科学誌「Nature Scientific Reports」の電子版で公開されました。

黄砂到達時  $\text{PM}_{2.5}=63$ ,  
 $\text{PM}_{2.5-10}=1184\mu\text{g}/\text{m}^3$



2日後  $\text{PM}_{2.5}=168$ ,  
 $\text{PM}_{2.5-10}=173\mu\text{g}/\text{m}^3$  T



内側円は $\text{PM}_{2.5}$ 成分、  
外側円は $\text{PM}_{2.5-10}$ 成分

（参考図）

北京への黄砂到達時と2日後の黄砂粒子成分の分析の結果。（左）その時点の北京大気に影響を与える範囲、（右）粒子内の水溶性化学組成。2日後には、粗大成分中の硝酸塩  $\text{NO}_3^{2-}$  の寄与が大幅に増加している。

研究者からひとこと：

角張り非球形の黄砂が、大気汚染質と混合することで、どの程度の時間スケールで形態変化するかは、環境大気中では未知でした。今回の観測は、高濃度の黄砂と大気汚染時の北京で行われた結果を国際共同研究として取りまとめたものです。我々の結果は非常に重要な事実を提示しており、今後の発展を期待したいと思います。

## ■内容

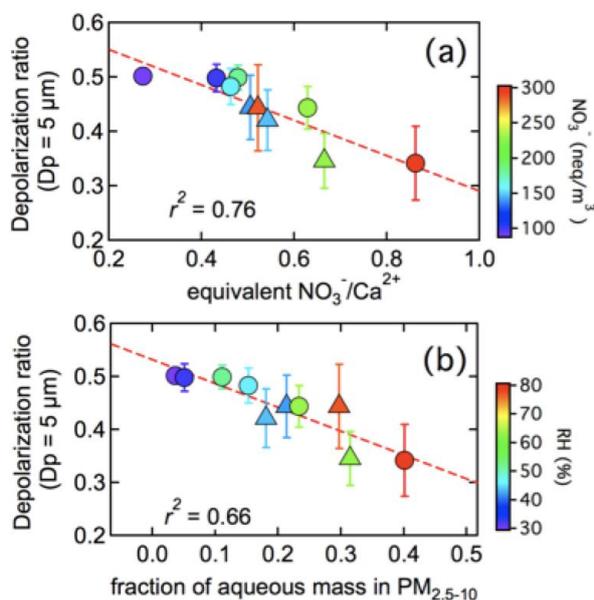
春季に中国内陸の乾燥域から飛んでくる黄砂は古くから知られています。黄砂は中国の大都市域や工場地帯の上空を通過し、東シナ海から日本域に飛来する過程で、大気汚染ガスを吸収し、「汚れた」黄砂となって越境汚染の一役を担っています。黄砂粒子は発生時には表面は乾燥し、角張っており非球形な形態をしています。この状態では、雲の凝結核としては効率的に働きません。しかし、高濃度の大気汚染地域を通過する過程で、黄砂中に多く存在する炭酸カルシウム  $\text{CaCO}_3$  と大気汚染ガスが、 $2\text{HNO}_3 + \text{CaCO}_3 \rightarrow \text{Ca}(\text{NO}_3)_2 + \text{CO}_2 + \text{H}_2\text{O}$  の不均質反応で非可逆的に  $\text{NO}_3^-$  として取り込まれます。その結果、 $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$  の高い潮解（※1）性のため黄砂表面を水溶性の「膜」で覆うことになり、黄砂の形態の非球形性が「球形」へと変化し、光の散乱・吸収特性が変化し、雲の凝結核としても作用しやすくなります。この反応生成の主要な部分は、黄砂が中国華北平原を中心とする大規模な大気汚染発生域から日本に輸送される過程で生じていると考えられますが、環境大気中で、どの程度の時間スケールで形態変化が生じているか良くわかっていませんでした。

我々の研究グループは、北京の大気物理研究所に設置された最新の偏光式光学粒子計測器 (POPC) による黄砂粒子の偏光特性解析とエアロゾルの化学分析解析を、2015年3月末から4月初旬に発生した黄砂イベントに対して行いました。この黄砂イベントでは、黄砂気塊は北京域を通過後に、天津・河北省に流れだしますが、移動性高気圧の後面の反時計回りの流れで再び北京域に戻ることがシミュレートされ、同じ履歴の黄砂気塊の追跡を通して、北京・天津・河北省域の高濃度汚染大気中での変質過程をとらえることに成功しています。その結果のハイライトは、リリース記事の図に示したように、2日後には粒径の大きな黄砂（粗大黄砂）の表面に  $\text{NO}_3^-$  成分が多く存在することと、下図のように黄砂中の  $\text{NO}_3^-$  の割合と水分の増加で黄砂の偏光解消度（※2）が減少することからも確認されました。

観測された粒子の偏光解消度の変化を、光散乱理論計算 (T Matrix 法) で確かめました。その結果、黄砂粒子の縦横比（アスペクト比）（※3）が 1.7 から 1.3 に減少し非球形性が減少し、黄砂の表面を潮解性の  $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$  で覆うことで説明出来ることも示しました。

## ■今後の展開

今回観測された黄砂と大気汚染が混合する気象条件は、北京では春季に年数回起こると考えられます。我々が利用した POPC 測定器は現在も連続稼働中であり、観測データの蓄積が期待できます。今後は、気温・湿度の異なる気象と大気汚染濃度の条件で観測事例を積み上げ、黄砂の形態変化過程を調べ、より定量的な解析を進めることが可能です。この研究成果はアジアスケールの雲・降水過程の変調や気候変化の解析への活用が期待できます。



(a) 粒子径  $5\mu\text{m}$  の粒子中の硝酸塩  $\text{NO}_3^-$  とカルシウム  $\text{Ca}^{2+}$  に対する偏光解消度（縦軸）の変化。偏光解消度が小さいほど粒子の非球形性が減少することになる。

(b) 粒子径  $5\mu\text{m}$  の粒子中の水分比に対する偏光解消度（縦軸）の変化。硝酸カルシウム  $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$  の高い潮解性のため粒子中の水分比が増加すると粒子表面が覆われ粒子の非球形性が減少することを説明している。

## ■論文

タイトル : Real-time observational evidence of changing Asian dust morphology with the mixing of heavy anthropogenic pollution

著者 : Pan, X.L, I. Uno, Z.Wang, T. Nishizawa, N. Sugimoto, S. Yamamoto, H. Kobayashi, Y. Sun, P. Fu, X. Tang, and Z.F. Wang

掲載雑誌 : *Nature Scientific Reports*, 7, article number SREP-16-35951-T doi:10.1038/s41598-017-00444-w (2017). (<http://www.nature.com/articles/s41598-017-00444-w>)

## ■用語解説

(※1) 潮解 :

粒子が空気中の水蒸気を取り込んで、自発的に水溶液となることを言う。潮解性の高い物質としては、水酸化ナトリウム NaOH, 塩化マグネシウム  $MgCl_2$  などがある。硝酸カルシウム  $Ca(NO_3)_2$  も相対湿度 20% を越えると潮解が始まる。

(※2) 偏光解消度 :

直線偏光したレーザー光が、球形の粒子に当たるとその後方散乱光の偏光特性は変化しない。一方、黄砂や氷のような非球形粒子の場合には、粒子の非球形性の度合いに応じて、後方散乱光の偏光特性が変化し、粒子の球形性の判定が可能となる。レーザー光の中の水平偏光成分と垂直偏光成分の比を偏光解消度と言う。

(※3) 縦横比 (アスペクト比) :

粒子の長軸と短軸の比。完全球形の場合には 1 となり、細長くなるほど 1 より大きくなる。