

大気エアロゾルの直接採集に基づく 黄砂の大気化学的性質に関する研究：敦煌における気球観測

山田 丸¹・岩坂 泰信¹・松木 篤¹・D. Trochkine¹・金 涼潤¹
長谷徹志¹・長谷正博²・中田 淩²・石廣玉³・張代洲⁴
沈志宝⁵・陳彬³・李剛³

Studies on Kosa characterization of atmospheric chemistry
based on direct sampling of atmospheric aerosol:
Balloon-borne measurement in Dunhuang, China

By

Maru YAMADA¹, Yasunobu IWASAKA¹, Atsushi MATSUKI¹, D. TROCHKINE¹, Y.S. KIM¹,
Tetsushi NAGATANI¹, Masahiro NAGATANI², Hikaru NAKATA², G.-Y. SHI³, D. ZHANG⁴,
Z. SHEN⁵, B. CHEN³, and G. LI³

Abstract : Individual aerosol particles were directly collected with balloon-borne aerosol sampler in the free troposphere over Dunhuang, China (40.15° N, 94.68° E) on 30 August 2002 and 24 March 2003, in order to investigate detailed information about physical and chemical characteristics of aerosol particles over a source area. We made it possible to collect particles in the three different layers of 3-5km, 5-7km, and 7-9km above sea level, by using three sets of low volume impactors each with two stages. The shape, size, and elemental composition of the collected particles were individually examined by using scanning electron microscope and energy dispersive X-ray analyzer. The absence of sulfur on the mineral particles indicated that there was no significant sulfur uptake by mineral dusts was taking place in the free troposphere over the source region.

In this paper, we present a summary and advantages of balloon-borne measurement, and characterization of individual aerosol particles based on direct collecting.

概要

2002年8月29日および2003年3月24日、中国敦煌 (40.15° N, 94.68° E)において、
気球にエアロゾルサンプラーを搭載し、黄砂発生源上空の自由対流圏中に存在するエアロゾル
粒子を直接採集した。サンプラーには2段式のロー・ボリューム・インパクターを3つ取り付け、
異なる3層の高度 (3 - 5 km, 5 - 7 km, 7 - 9 km) でエアロゾルの採集を可能にした。サ

¹名古屋大学大学院環境学研究科

²名古屋大学太陽地球環境研究所

³中国科学院大气物理研究所

⁴熊本県立大学環境共生学部

⁵中国科学院寒区旱区研究所

ンプリング終了後、ロープカッターにより気球とサンプラーを切り離し、GPSから受信したデータにより、回収を行った。採集されたエアロゾル粒子は、エネルギー分散型X線分析器(EDX; Horiba, EMAX-500)を搭載した走査型電子顕微鏡(SEM Hitachi, S-3000 N)を使用し、個々の粒子の形態、粒径、元素組成について観察された。

本論文では、気球観測の概要、利点および直接採集したエアロゾルの個々の性質について報告する。

重要語：黄砂、エアロゾルの直接採集、電子顕微鏡

1. はじめに

アジア大陸の乾燥、半乾燥地域に起源を持つ黄砂粒子は、しばしば太平洋域にまで輸送される [1, 2, 3, 4]。黄砂粒子は輸送中に放射吸支や雲物理過程に大きな影響を及ぼし、また化学反応場として重要な役割を果たす [5]。地球環境の分野ではこの点に大きな関心が寄せられており、現在数多くの観測が進行している。このような振る舞いを理解するためには、黄砂の輸送高度(自由対流圏)に存在するエアロゾル粒子を直接採集し、その一つ一つの形態や元素組成についての情報を得ることが重要である。これまで、航空機を使用し自由対流圏のエアロゾルを直接採集した事例はいくつかあるが [6, 7]、機体が大気とかなり大きい相対速度を持つため、機内に空気を取り込むさいに粒子同士の凝集やインレット管壁面への粒子付着による粒子損失といった問題が生じる [7, 8]。対して、飛翔式気球を用いたエアロゾルの採集では装置が気流と同じ運動をするために粒子損失といった問題は解決されるが、それにもかかわらず気球による直接採集はほとんど行われていないのが現状である。その理由の一つとして、上空で粒子を採集した後の回収作業において技術上の多くの問題があったことによる。中でも短時間のうちに回収することが極めて難しいということが挙げられる。今回の観測では、エアロゾル採集装置と気球を切り離すためのロープカッター、装置の軽量化、またGPSを搭載することによって地上で常時装置の位置を追跡できるようにし、これらの問題の解決をはかった [9]。そのことにより、試料の回収率は格段に上がった。本研究の目的は、実際に、黄砂発生源上空の自由対流圏にどのような粒子が存在しているかを調べることである。さらに、気球の特性を生かして異なる高度でエアロゾルを採集し、その組成や分布の違いについての情報を得ることである。

2. 気球による大気エアロゾルの直接採集

2002年8月29日午前3時31分(UT)および2003年3月24日午前1時43分(UT)、中国敦煌市気象局(40.15°N , 94.68°E)において、エアロゾルサンプラーを搭載した気球を放球し、自由対流圏中に存在するエアロゾルを直接採集した(図1)。敦煌は黄砂発生源のタクラマカン砂漠の東側に位置しており、上空の自由対流圏はタ克拉マカン砂漠で発生したダストの影響を非常に受けていると考えられている。

図2にサンプリングゾンデの飛跡およびエアロゾル採集ポイントを示す。また、サンプリング時間、気球の上昇速度、およびその時の気象状況などを表1に示す。夏は地上3kmあたりまで東寄りの風が卓越しており、それより上空はまったく異なり偏西風の影響を受け北西風になった。春は地上から一定して西寄りの風の影響を受けており、自由対流圏の風速は夏よりも速かった。

サンプリングゾンデは気球、巻き下げ器、ロープカッター、パラシュート、エアロゾルサンプラーからなっている(図3)。気球には天然ゴムに合成ゴムを添加したラテックスゴム3kg気球(TOTEX, TA-3000型)を使用し、パラシュートには傘の半径が145cm(TOTEX, T-290型)のものを使用した。今回の観測のように装置回収を伴う気球は、ガス量またはバラスト量の調整による浮遊高度の選択や大型装置の搭載が可能である大型のプラス

チック気球を使用するのが一般的である。しかし、ロープカッターの取り付けや装置の軽量化によってこれらの問題はほとんど解決でき、準備作業に要する簡便さといった面を考慮するとゴム気球を用いる方がはるかに実用的である。

サンプラーの大きさは 15 cm × 31 cm × 31 cm (高さ × 幅 × 奥行き) であり、バッテリー、ショックアブソーバー、ロープカッターなどを含めると総重量は 8 ~ 9 kg になる。サンプラーにはインパクターを 3 つ、そしてその吸気・排気部分にそれぞれバルブを取り付け、ダイアフラム式ポンプ、気圧センサー、GPS からなっている。バッテリーは、ポンプ部に単三リチウム電池 24 本、バルブ部には単三アルカリ電池 8 本を使用し、それぞれ 18 V、12 V の電力を供給した。サンプラーは気圧センサーあるいは GPS によって制御されている (図 4)。設定された高度 (GPS または気圧計からの情報) にサンプラーが達するとモーターが作動し、最初のバルブが開くようプログラムされている。その後、設定高度に達するとバルブが同時に開閉して 2 番目、3 番目のインパクター内にサンプリングエアが吸引され、高度の異なる 3 つの層のエアロゾル粒子を採取できるよう設計した。インパクターには 2 段式ロー・ボリューム・インパクターを使用した。インパクターの流量は地上で 1.8 l/min であり、カットオフ 50 % 径 (空気力学径) は一段目、二段目それぞれ $1.36 \mu\text{m}$, $0.10 \mu\text{m}$ である (図 5)。

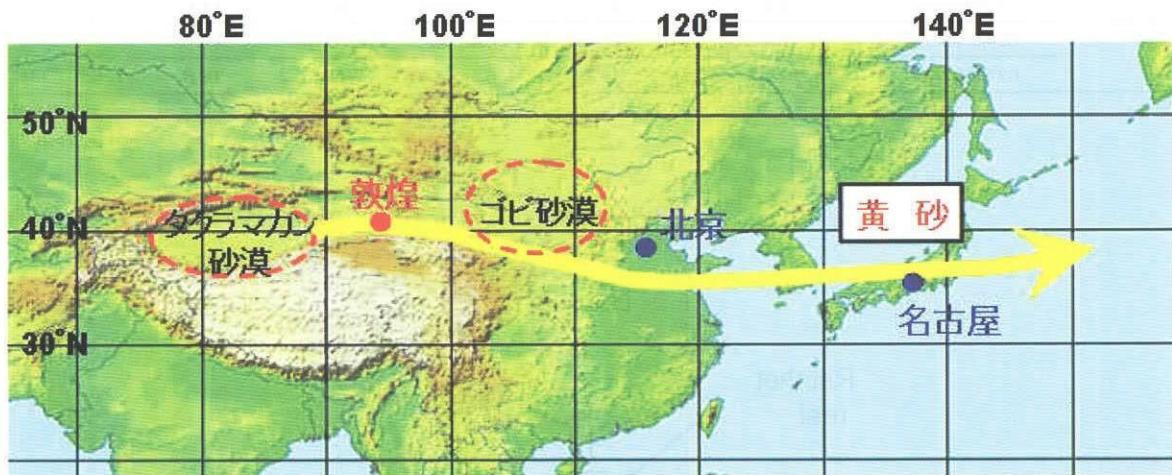


図1 黄砂の有力な発生源と代表的な拡散方向

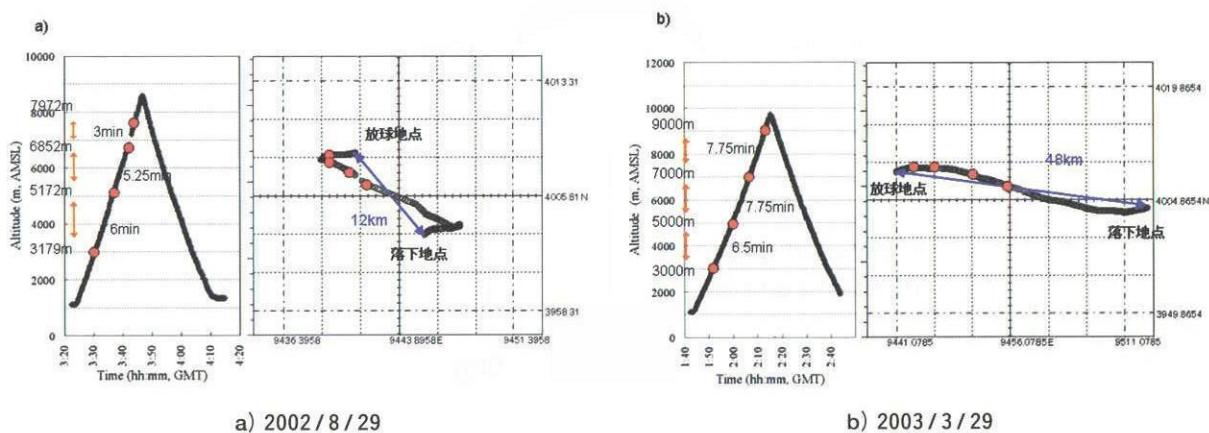


図2 サンプラーの飛跡とエアロゾル採集点

表1 観測状況 a) 2002/8/29, b) 2003/3/29

a)

Date	Time (hh:mm, GMT)	Altitude (km) (above sea level)	Ascending speed (m/min)	Sampling Time	Wind		Weather
					Direction	Speed (m/s)	
29-Aug-02	03:31-03:31	below 3.2km	290	—	ENE	6.6	
	03:31-03:37	3.2~5.2km	332	6min	NNE-WNW	5	
	03:37-03:42	5.2~6.9km	320	5.25min	NW	9.2	
	03:42-03:45	6.9~8.0km	374	3min	NNW-WNW	14.3	Fine

b)

Date	Time (hh:mm, GMT)	Altitude (km) (above sea level)	Ascending speed (m/min)	Sampling Time	Wind		Weather
					Direction	Speed (m/s)	
24-Mar-03	01:43-01:52	below 3km	237	—	WSW	6.5	
	01:52-02:00	3~5km	286	7.75min	W	11.6	
	02:00-02:07	5~7km	286	7.75min	WNW-W	16.8	
	02:07-02:13	7~9km	318	6.5min	WNW	18.6	Fine

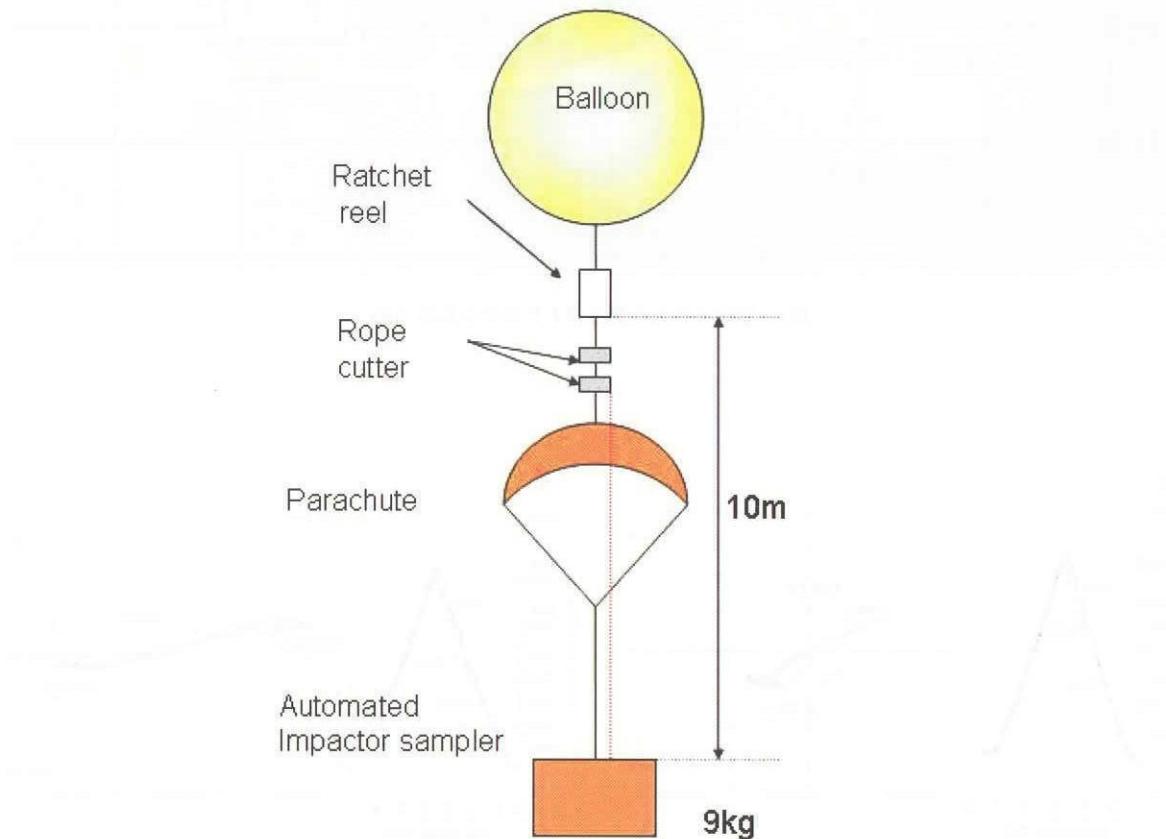


図3 気球の構成

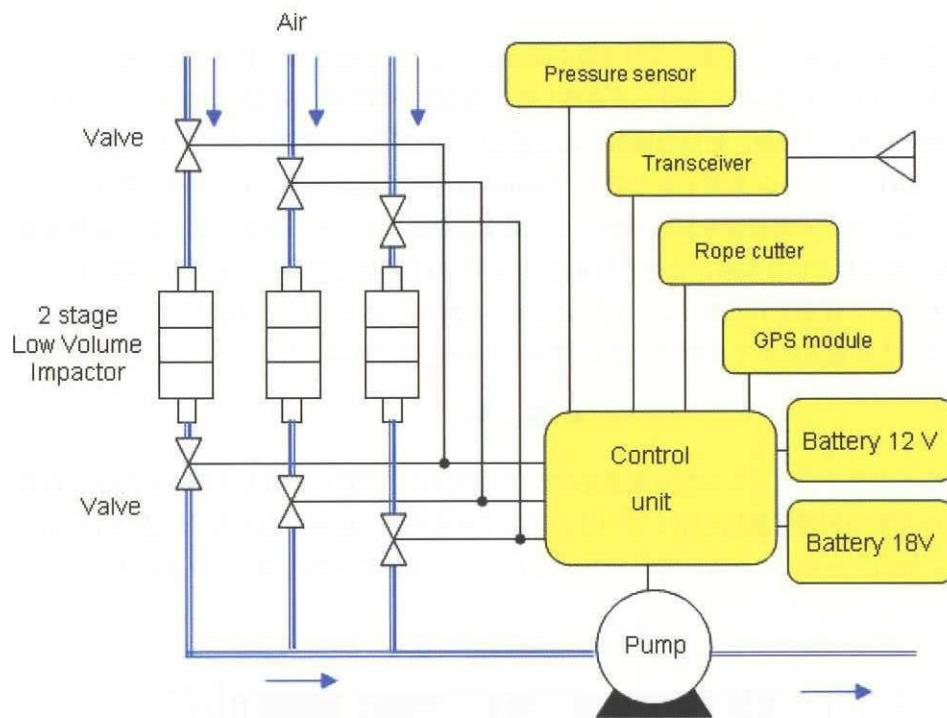


図4 サンプラーシステム

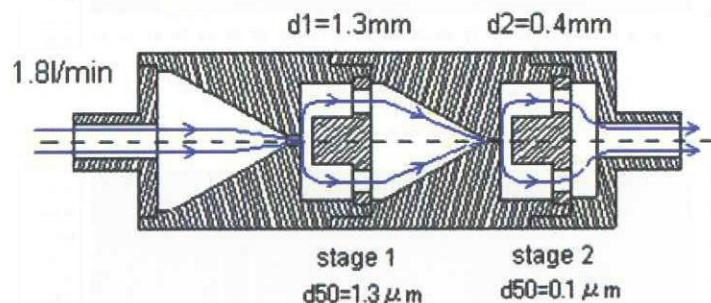


図5 インパクターと空気の流れ

サンプリングが終了するとすべてのバルブが閉じ、外部からの汚染を防ぐ設計になっている。ロープカッターにより気球とサンプラーが切り離され、GPSから受信したデータによりリアルタイムで位置情報を把握し、それとともに試料の回収を行った。

2002年夏の観測では図2に示されているように、最高高度で予定より早くサンプリングが終了してしまった。これは、気圧センサーによりポンプとバルブを制御していたために生じた気圧誤差によるものと考えられる。2003年春の観測では制御方法を気圧センサーからGPSの信号に切り替えた。サンプリング終了後、気球から切り離されたサンプラーはパラシュートによって下降速度が程度減速され、放球点から夏は約12km、春は約48km離れた地点に落下した。春・夏の観測ともに地上に落下後、数時間以内に試料回収が行えた。そのため、外部からの汚染が生じるような要因はほとんどないと思われる。

3. 試料の分析

気球によって採集された試料は、外部からの汚染を受けないように乾燥状態で日本に持ち帰り、エネルギー分散型X線分析器（EDX；Horiba, EMAX-500）を搭載した走査型電子顕微鏡（SEM；Hitachi, S-3000 N）を使用して分析された。個々の粒子の形態、粒径の観察には加速電圧10kV、ワーキングディスタンス5mm、EDXによる元素組成分析は20kV、ワーキングディスタンス15mmの条件下で行われた。エアロゾル粒子は、ニッケル製メッシュグリッドに張られた炭素蒸着をしたコロジオン膜上に採集した。そのため、もともと試料採取プレートにC, O, Niが試料に含まれているため、これらの元素についての定量的な議論はすることは難しい。インパクターの1段目（粗大粒子）で採集された粒子についてはすべて観察し、また2段目（微小粒子）については採集された粒子が非常に多いため適当に粒子を選び、数10個から100個程度観察した。

4. 結 果

図6は分析した個々の粒子についての相対質量比のグラフである。横軸に分析した個々の粒子、縦軸にそれぞれの粒子についての元素の相対質量比を示している。表2に示すのは、個々の粗大粒子（直径1μm以上）について含有元素ごとに分類したものである。岡田・甲斐〔10〕によるEDX分析を基にした次の式によって、分類を

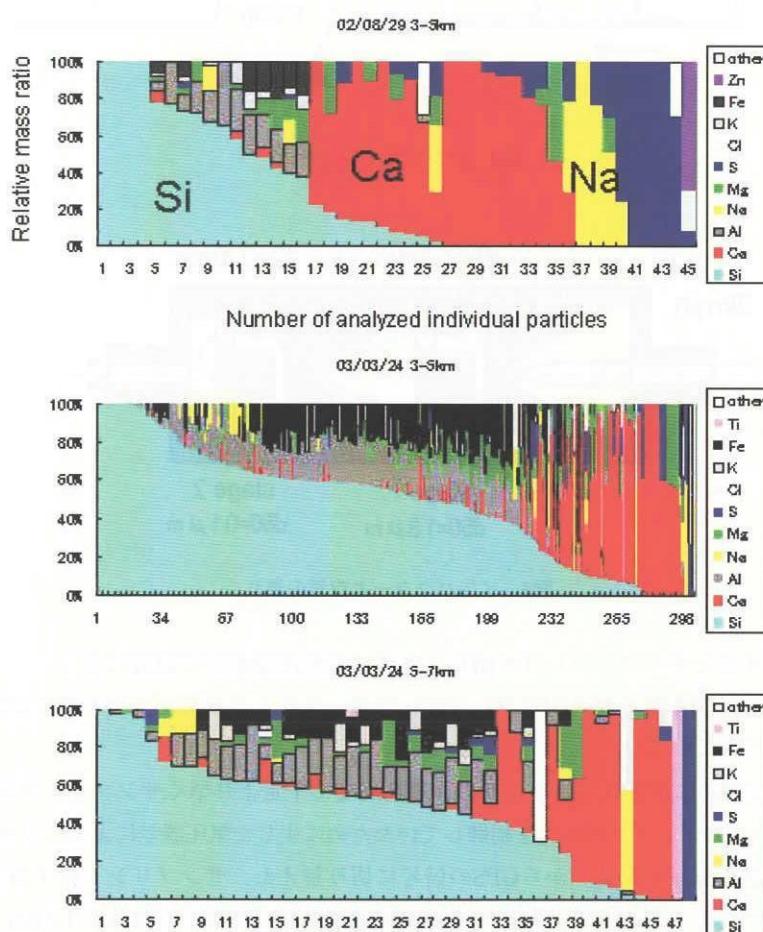


図6 中国敦煌上空の粗大粒子の元素分析結果。

上) 2002/8/29、3-5 km, 中) 2003/3/24, 3-5 km, 下) 2003/3/24, 5-7 km

表2 粗大粒子からの検出元素に基づいた分類

Type of Particles	2002/8/29 3-5km		2003/3/24 3-5km		2003/3/24 5-7km	
	number	%	number	%	number	%
Si-rich	16	35.6	220	72.4	33	68.8
Si-dominant	10		74		9	
Si + Al	3		90		15	
Si + Mg	0		5		2	
Si + Fe (+Al)	3		30		4	
others	0		21		3	
Ca-rich	17	37.8	65	21.4	11	22.9
Ca-dominant	15		37		6	
Ca + Si	0		5		3	
Ca + Mg	1		12		1	
Ca + S	0		6		0	
others	1		5		1	
Fe-rich	0		7	2.3	0	
Fe-dominant	0		3		0	
Fe + Si(+Al)	0		3		0	
others	0		1		0	
Ti-rich	0		2	0.7	1	2.1
Ti-dominant	0		2		1	
Na-rich	5	11.1	6	2.0	1	2.1
Na-dominant	2		0		0	
Na + Cl	0		3		1	
Na + S	1		2		0	
others	2		1		0	
Cl-rich	0		1	0.3	0	
Cl + Na	0		1		0	
S-rich	5	11.1	1	0.3	1	2.1
S-dominant	5		1		1	
Others	2	4.4	2	0.7	1	2.1
Total, #	45	100	304	100	48	100
<i>Ca-rich/Si-rich</i>	1.06		0.30		0.33	
<i>Si-rich + Ca-rich, %</i>	73.4		93.8		91.7	

している。例えば元素Xについては、

$$P(X) = X / (Na + Mg + Al + Si + S + Cl + K + Ca + Ti + Mn + Fe)$$

この表で使用されている“-rich”とは、検出された元素の中で最大重量比をもつ元素のことであり、また、粒子のコンビネーションの閾値には $P(X) > 65\%$ で与えられている。春のコンビネーションは 3-5 km, 5-7 km と高さにほとんど関係なく Si-rich 粒子がメインであり、粗大粒子の 7 割近くを占めており、Ca-rich 粒子が 2 割程度であった。一方、夏は、全粒子に対して Si-rich が 36 %、Ca-rich が 38 %、さらに塩類鉱物と考えられる Na-rich が 11 % であり、これらの粒子で全体の 8 割強を占めている。

夏の 5-7 km, 7-8 km および春の 7-9 km で採集された粗大粒子の数は、いずれも数個であり、作業プランクによる可能性もある。よって、ここではその粒子についての議論は省く。

5. 結果の検討とまとめ

5.1. 発生源上空自由対流圏中の鉱物粒子の存在

前述したように、敦煌上空の自由対流圏中に存在する粗大粒子のほとんどが鉱物粒子であった。日本上空での飛行機観測では、4 km以下に存在する粒子数が春と夏で大きく異なり、夏は春に比べて86%も粒子数が減少することが報告されている[7]。この粒子数の減少は主に鉱物粒子の減少に伴うものである。単位時間当たりに採集された粗大粒子数を比較すると、3–5 kmで春は39.2個/分、夏は7.5個/分であり、夏は春に比べて81%も減少していた。さらに、夏の5 km以上ではほとんど粒子が観察されなかつたにもかかわらず、春は5–7 kmでも夏の3–5 kmの粒子数に匹敵する量(6.4個/分)のエアロゾルが採集された。このことは、夏にダストストームを発生させるような寒冷前線の通過が少なく、そのため敦煌よりも西側に起源に持つダストの減少に伴って、敦煌上空3–5 kmの濃度も春に比べて低かったという可能性が示唆される。

Sun et al. [11] は、タクラマカン砂漠起源の黄砂は5 km以上も舞い上がり、そして長距離輸送されると提案している。このことから、5 km以上に存在する鉱物粒子は敦煌周辺での局地的大気の対流によって上空まで持ち上げられたとは考えにくく、タ克拉マカン砂漠内で発生したダストが5 km以上まで舞い上がって敦煌上空を通り過ぎた可能性も考えられる。

5.2. 鉱物組成の違い

そこで、粗大域の粒子組成に注目してみると、春は、3–5 km, 5–7 km共に、Si-rich粒子とCa-rich粒子で9割以上を構成していた。わずかではあるが、Naを含む蒸発岩(halite; NaCl, thenardite; Na₂SO₄, mirabilite; Na₂SO₄·10 H₂O)と考えられる鉱物も検出された。これらの鉱物は中国新疆の砂漠周辺でしばしば観測される[12]。

一方、夏の3–5 kmはSi-rich粒子が36%，Ca-rich粒子が38%，Na-rich粒子が11%であり、春の時とはかなり異なっていた。さらに、S-rich粒子やZnとCl, Sのコンビネーションを持つ粒子が検出された。これまで敦煌においてエアロゾルの高さ方向の粒径分布を調べるために、気球にOPCを搭載し、各季節の観測が行われている。その温位や粒子濃度から、夏期は約4 km辺りまで境界層が発達すると報告されている[13]。これらの粒子は人為起源によるものと考えられ、4 km辺りまで発達した境界層によって、敦煌周辺の都市域からの人間活動に由来した粒子が日中に混合された可能性が考えられる。

鉱物粒子の組成また粒子数に差があったものの春・夏共に鉱物粒子が支配的であることには変わりなかった。またOPCの観測から自由対流圏中では季節を問わず、粗大粒子にピークが見られた[13]。これらの観測結果を踏まえると発生源上空の自由対流圏には、常に鉱物粒子が供給されており、風系の条件さえ整えば日本や太平洋域までこれらの鉱物粒子が輸送される可能性もあり[14]、放射過程や物質循環に及ぼす影響は無視できないと考えられる。

5.3. 硫酸塩の取り込み

黄砂は大気中を浮遊し、日本や太平洋域に拡散される間に中国の工業地域から排出された硫黄酸化物や窒素酸化物と反応し、それによって変質を受けると考えられている。実際に、日本上空または太平洋上の黄砂から硫黄酸化物や窒素酸化物が検出されている[15, 16]。対して、発生源付近の地上の鉱物粒子には硫黄の大幅な取り込みは見られなかった[10, 17]。しかしながら、これまで発生源上空に存在している鉱物粒子の化学的性質は調べられておらず、鉱物粒子の長距離輸送中の変質を議論するうえで、今回の観測は非常に有意義なものである。

図7はアルミニウム、カルシウム、硫黄の相対質量比のグラフである。グラフ中に引かれている線は、カルシウム含有粒子の典型的な粒子である石膏(Gypsum; CaSO₄·H₂O)のCaとSの質量比を示している。この線よりもCa/S比が高い値を取れば、検出された硫黄は石膏のような鉱物由来の硫黄である可能性が考えられる。Alを指標とした理由は、Siを含む鉱物粒子にはほとんどAlを伴っているため(鉱物粒子の代表格であるアルミノシリケイ

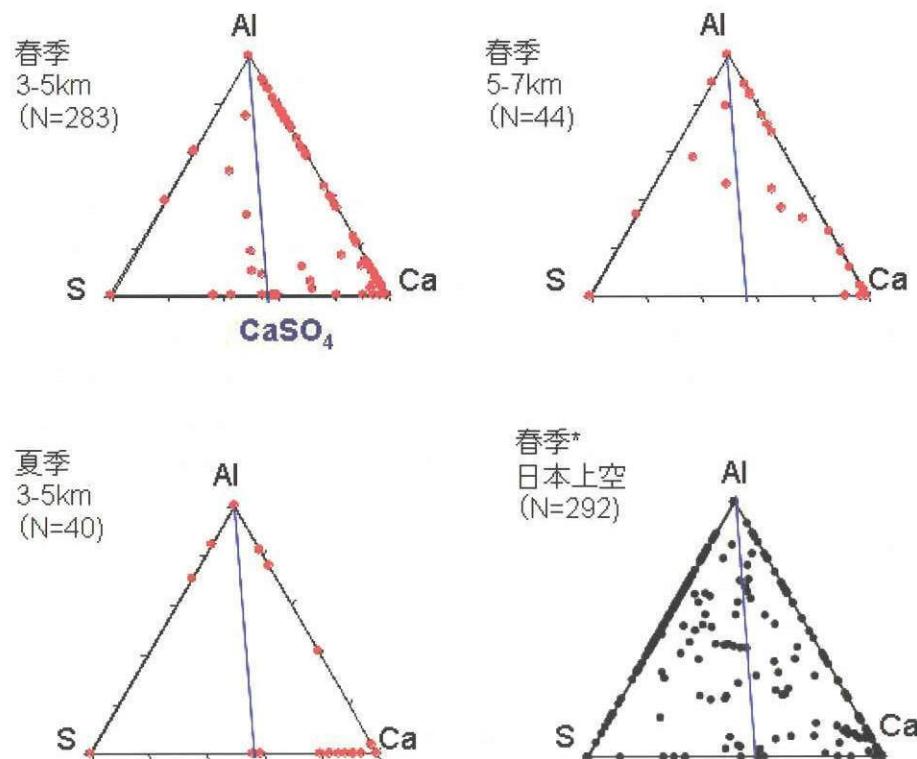


図7 Al, S, Caの相対質量費

ト), 一つの粒子中に含まれる質量相対比の小さいアルミニウムを指標としたほうが、硫黄の取り込みの度合いをより詳しく見ることができるためである。敦煌上空に存在するほとんどの粒子はこのCa/S比よりも小さい値を示しており、鉱物粒子による硫黄の大幅な取り込みは確認されなかった。一方、日本上空では、黄砂による硫黄の取り込みがはっきりと確認された [17]。このことから、発生源上空に存在する鉱物粒子はまだ硫黄の大幅な取り込みはなされておらず、これから長距離輸送されるさいに硫黄を取り込むポテンシャルを大きく残しているといえる。

5.4. 個々の粒子観測法と気球

今回の観測では、電子顕微鏡観察を使用して採集された粒子一つ一つに注目して分析を行った。そのため、バルク分析のように大量の試料は必要とせず、試料が極微量でも粒子一つ一つの情報を得ることができ、またエアロゾル粒子の混合状態を知ることもできる。大気エアロゾル、特に黄砂の環境影響を考える立場からは、黄砂粒子一つ一つの表面で生じている物理化学的なプロセスの解明が重要であり、その点において大気中のエアロゾル粒子を直接採集し粒子一つ一つについて微視的な観察をする研究が必要である。

さらに、バルク分析では一般的に試料採集中数時間程度必要とするのに対して、個々の粒子の分析では数分から10分間程度でことが足りる。都市部や砂漠地域の地上といった粒子濃度の高い場所では1分程度もサンプリングを行えば、分析するには十分な量の粒子を採集することができる。例えば300 m/min程度の速度で上昇する気球を使用してエアロゾル粒子を直接採集した場合、2 kmの層の粒子を採集できる。時間に換算すると6, 7分間のサンプリングになるが、それでも大気中のエアロゾルの状態に関しての情報は十分に得ることができる。くわえて、短時間のサンプリングはその瞬間の大気の状態をよく反映した情報をもたらしてくれる。

5.5. 今後の展開

我々の研究グループでは、これまで敦煌で3回ほど気球による大気エアロゾルの直接採集を試みている。試料

採集装置は重量の軽減を図るとともに、なるべく近距離に採集試料を落下させるようにした（高度約9.5kmで気球と試料を切り離す）。装置の飛揚中、採集終了後のパラシュートで試料を緩降下させる途中、落下点の位置などはGPS装置から送られてくるデータによって常時モニタリングした。観測を重ねるごとに一連の準備から回収までの作業がスムーズに行われるようになったのも、最近の2回立て続けの成功の要因である。特に試料回収については、現地の地理をよく知る地元スタッフの力によるところが大きいと感じる。

粒子のサンプリングのほかに、前述したOPCを気球に搭載した観測、またライダー（Lidar: Light detection and ranging）によって得られた、高さ方向の粒径-粒子数濃度、粒子の形態、時間変化、粒子組成の情報をもとに、エアロゾルのフラックスや粒子の変質、また放射への影響を議論することができる。

試料の回収を絶対条件とする気球観測は、必然と地理的な条件に恵まれた国に偏りがちである。例えば、上空を漂ううちに国境を越えるような場所、森林地帯や海洋上、あるいは人口密集地などの観測は非常に困難となる。そのため、国土の広いアメリカやオーストラリアといった国ではこの種の観測は盛んである。しかしながら、今回のように自由対流圏に主眼を置いた観測では高度10km前後で気球を切り離すため、その多くの場合試料は放球点から100km以内に落下するであろう。また、今回はゴム気球を用いたため準備には数人程度でことなり、特殊な場所や設備等の制限を受けずに作業できる。

将来的には、このような比較的簡便なゴム気球を使用することでさまざまな場所で大気エアロゾルの直接採集が行われ、放射や物質循環、そして個々の粒子の微物理化学的なプロセスを解明するための手法の一つとして定着することが期待される。

謝 辞

本研究では、現地観測を行うにあたり敦煌市気象局からさまざまな技術支援を受けた。また、平成12～15年度日本学術振興会重点研究国際協力事業研究「オゾン、エアロゾルなどの気球観測に基づく対流圏成層圏物理化学の研究」（代表岩坂泰信）による研究費の一部を使った。あらためて関係者に謝意を表します。

参 考 文 献

- [1] Duce, R. A., C. K. Unni, B. Ray, J. M. Prospero, and J. T. Merrill, Long-range atmospheric transport of soil dust from Asia to the tropical North Pacific: Temporal variability, *Science*, 209, 1522-1524, 1980.
- [2] Iwasaka, Y., H. Minoura, and K. Nagaya, The transport of special scale of Asian dust-storm clouds: a case study of the dust-storm event of April 1979, *Tellus*, 35B, 189-196, 1983.
- [3] Uematsu, M., R.A. Duce, J.M. Prospero, L.Q. Chen, J.T. Merrill, and R.L. McDonald, Transport of mineral aerosol Asia over the North Pacific Ocean, *J. Geophys. Res.*, 88, 5343-5352, 1983.
- [4] Gao, Y., R. Arimoto, M. Y. Zhou, J. T. Merrill, and R. A. Duce, Relationships between the dust concentrations over Easter Asia and the remote North Pacific, *J. Geophys. Res.*, 97, 9867-9872, 1992.
- [5] Dentener, F. J., G. R. Carmichael, Y. Zhang, J. Lelieveld, and P. J. Crutzen, Role of mineral aerosol as a reactive surface in the global troposphere, *J. Geophys. Res.*, 101, 22869-22889, 1996.
- [6] Mori, I., Y. Iwasaka, K. Matsunaga, M. Hayashi, and M. Nishikawa, Chemical characteristics of free tropospheric aerosols over the Japan Sea coast: aircraft-borne measurements, *Atmos. Environ.*, 33, 601-609, 1999.
- [7] Matsuki, A., Y. Iwasaka, K. Osada, K. Matsunaga, M. Kido, Y. Inomata, D. Trochkin, C. Nishita, T. Nezuka, T. Sakai, D. Zhang, and S.-A. Kwon, Seasonal dependence of the long-range transport and vertical distribution of free tropospheric aerosols over east Asia: On the basis of aircraft and lidar measurements and isentropic trajectory analysis, *J. Geophys. Res.*, 108 (D23), Art. No. 8663, 2003.
- [8] 渡辺征春、岩坂泰信、長谷正博、中田滉、山形定、猪俣弥生、酒井哲：航空機搭載光散乱式粒子計数器によるエ

- アロゾル粒子数混合比の観測、南極試料、46, 1A, 177-229, 2002
- [9] 長谷正博, 中田 滉: 気球搭載エアロゾルサンプラーとGPSを利用した気球の追跡、名古屋大学太陽地球環境研究所、第14回技術研修報告書、15-26, 2003.
- [10] Okada, K., and K. Kai, Features and elemental composition of mineral particles collected in Zhangye, China, *J. Meteorol. Soc. Japan*, 73, 947-957, 1995.
- [11] Sun, J., M. Zhang and T. Liu, Spatial and temporal characteristics of dust storms in China and its surrounding regions, 1960-1999: Relations to source area and climate, *J. Geophys. Res.*, 106, 10325-10333, 2001.
- [12] Yabuki, S., A. Okada, A. Ueda, Q. Chang, and Z.-L. Fan, Sulfur isotope study of salt materials in saline lands and salt deposits around the desert areas in Xinjiang, China - Implications to the study of the source of the Aeolian dust of inland Asia -, *J. Arid Land Studies*, 7-2, 127-138, 1997.
- [13] Kim, Y. S., Y. Iwasaka, T. Shibata, T. Nagatani, G.-Y. Shi, D. Trochkine, A. Matsuki, M. Yamada, D. Zhang, M. Nagatani, and H. Nakata, Dust particles in the free atmosphere over the desert areas in the Asian continent: Four seasons measurements with balloon-borne and lidar DunHuang, China, *J. Geophys. Res.*, 2003 (in press).
- [14] Iwasaka, Y., G.-Y. Shi, M. Yamada, A. Matsuki, D. Troshkine, Y.S. Kim, D. Zhang, T. Nagatani, T. Shibata, M. Nagatani, H. Nakata, Z. Shen, G. Li, and B. Chen, Importance of dust particles in the free troposphere over the Taklamakan desert: Electron microscopic experiments of particles collected with a balloonborne particle impactor at Dunhuang, China, *J. Geophys. Res.*, 108 (D23), Art. No. 8644, 2003.
- [15] Iwasaka, Y., M. Yamato, R. Imasu, and A. Ono, Transport of Asian dust (KOSA) particles; importance of weak KOSA events on the geochemical cycle of soil particles, *Tellus*, 40B, 494-503, 1988.
- [16] Okada, K., H. Naruse, T. Tanaka, O. Nemoto, Y. Iwasaka, P. Wu, A. Ono, R. Duce, M. Uematsu, and J. Merrill, X-ray spectrometry of individual Asian dust-storm particles over the Japanese islands and the North Pacific Ocean, *Atmos. Environ.*, 24A, 1369-1378, 1990.
- [17] Trochikine, D., Y. Iwasaka, A. Matsuki, M. Yamada, Y.-S. Kim, T. Nagatani, D. Zhang, G.-Y. Shi, and Z.-B. Shen, Mineral aerosol particles collected in Dunhuang, China, and their comparison with chemically modified particles collected over Japan, *J. Geophys. Res.*, 108 (D23), Art. No. 8642, 2003.