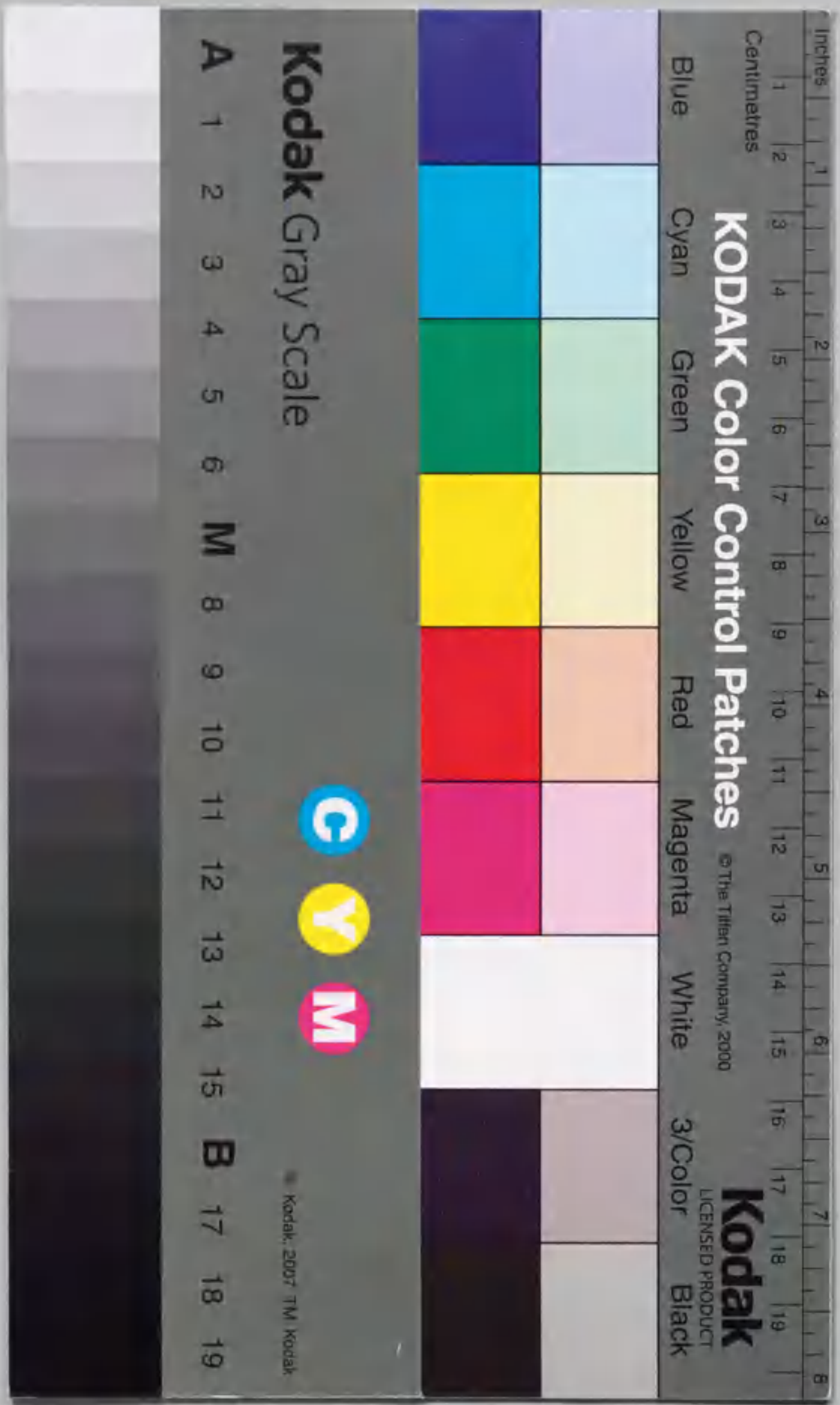


黄砂エアロゾルによる物質搬送と
それに伴う化学組成変化

西川 雅彦



報告番号 乙第 4053 号

①

黄砂エアロゾルによる物質輸送と
それに伴う化学組成変化

西川雅高

目 次

| | |
|-------------------------------------|----|
| 要旨 | i |
| 第1章 序論 | 1 |
| 第2章 日本列島における多点観測網 | |
| 2.1節 多点同時観測の重要性 | 9 |
| 2.2節 試料の採取および観測 | 13 |
| 2.3節 採取試料の前処理および超微量分析 | 14 |
| 第3章 大気圏を通しての黄砂エアロゾルの物質輸送と降下量 | |
| 3.1節 β 線吸収法の黄砂エアロゾルに対する定量性の評価 | 19 |
| 3.2節 日本列島上における黄砂現象の時間および地域的推移 | 27 |
| 3.3節 黄砂エアロゾルの年間通過量と降下量 | 31 |
| 第4章 黄砂エアロゾルのたどる化学組成変化と物質収支 | |
| 4.1節 中国・乾燥地帯および日本の表層土の化学組成の比較 | 43 |

4. 2 節 ”日本の大気で汚れていない” 黄砂エアロゾルの化学組成の特徴

4. 2. 1 黄砂エアロゾルの主な成分 45

4. 2. 2 黄砂エアロゾルの粒径別濃度分布 58

4. 3 節 黄砂エアロゾルの化学的変質 71

4. 4 節 黄砂エアロゾルは酸かアルカリか? 79

第5章 黄砂エアロゾルの環境への寄与

5. 1 節 酸性ガス (HNO_3) の取り込み 85

5. 2 節 雨水中の陰イオン (NO_3^- 、 SO_4^{2-}) の中和 86

第6章 総括 92

謝辞 95

文献 96

要 旨

中国の砂漠や黄土地帯で発生した黄砂エアロゾルは、朝鮮半島、日本を超えて、時には中部太平洋域まで飛来することが知られている。この黄砂エアロゾルに関する研究は、気象学や地球化学などの分野で広く行われてきたが、環境科学的に興味深い物質として新たな研究対象とってきた。例えば、国家間の汚染物質の流れを解明するためのトレーサーとしての研究や、輸送過程における汚染物質の取り込みに関する研究などが挙げられる。そのような状況の中で、環境庁は、1987、1988年に「黄砂エアロゾルに関するプロジェクト」を実施した。本研究は、そのプロジェクトの中で担当した全国9カ所で採取した黄砂エアロゾルの化学分析と12カ所のβ線エアロゾル濃度観測データを基にして行われた。本論文は、日本に飛来する黄砂エアロゾルの定量的な見積りに関する研究、黄砂エアロゾルの本質的な化学組成に関する研究、黄砂エアロゾルと汚染物質（特に酸性物質）との反応に関する研究を柱として、黄砂エアロゾルの環境化学的な挙動について考察を行ったものである。

黄砂現象は突発的な現象であり、測定機器による常時観測が難しいとされてきた。そのため、気象分野では目視観測項目となっている。環境あるいは公害を監視する目的で、全国に千カ所以上のモニタリングステーションが整備されているが、それらの観測地点では、毎正時ごとに大気粉じん濃度の監視を行っている。この濃度監視システムは、主に3通りに分類される。それらのうちのβ線吸収法による方法は、捕捉エアロゾルに一定強度のβ線を照射した時、その透過強度が、捕捉エアロゾルの性状によらず重量にだけ比例する原理を利用した方法であるので、黄砂エアロゾルも定量的に濃度を監視できると考えた。全国12カ所におけるβ線吸収法による大気粉じんモニタリングの結果を解析し、その有効性の確認を行った。その結果、気象観測で認識できないような弱い黄砂エアロゾルも、β線吸収法で観測できることがわかった。それらの結果から推定された黄砂エアロゾルの1988年の飛来量は、東経140度付

近で年間260万トン、年間降下量は、約3 ton/km²に達した。

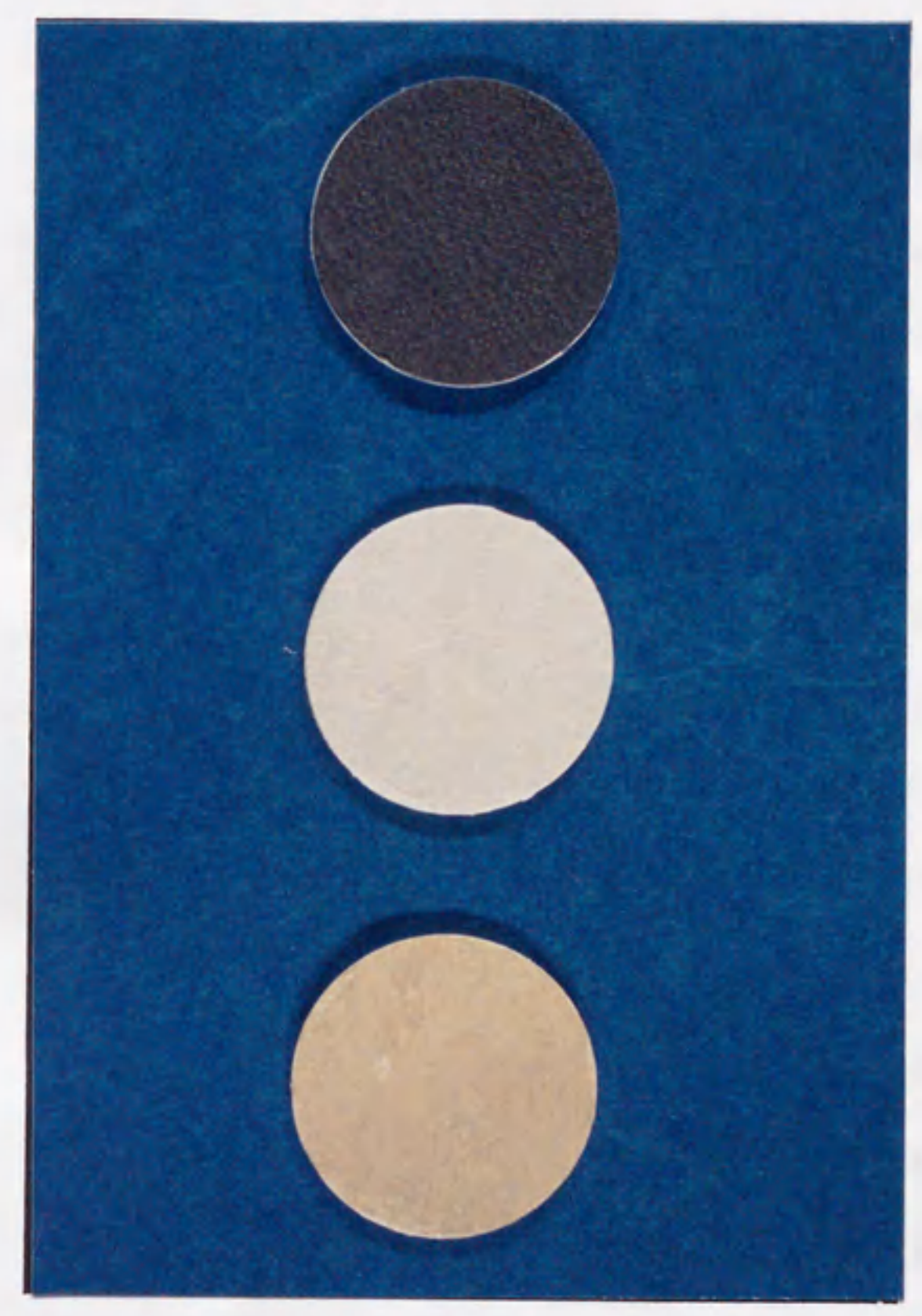
黄砂エアロゾルは、日本に飛来した時には、発源地での巻き上げ土壌粒子だけでなく、海塩粒子や人為起源粒子などとの混合物となっている。もともとの土壌粒子を分離して調べることは、飛来の途中で付け加わった物質を明らかにするための、有益な手法となる。アルミノケイ酸塩鉱物がほとんど水に溶けないのに比べ、海塩粒子や人為起源系の多くの粒子は水に易溶性な形態で存在する割合が高い。それゆえ、水溶性部分と水不溶性部分に分離することにより、黄砂エアロゾル中の主要構成物質である土壌粒子の飛来途中で付け加わった物質の種類と化学組成を推定することができた。その結果、黄砂エアロゾルと非黄砂エアロゾルの水不溶性成分の化学組成は非常に類似し、さらに日本の表層土の組成にも似ていることが明かとなった。黄砂エアロゾルは、この水不溶性成分の他に、水に溶け易い海塩粒子や、石灰化集積作用で生じたカルサイト (CaCO₃)、人為由来と思われるイオウおよび窒素化合物と重金属元素を含んでいた。もともとの発源地土壌に由来する成分は、日本に飛来した時、輸送距離に応じて大気中の濃度が低くなったけれども、組成比の変化は殆ど見られないことが初めて明らかになった。このことは、黄砂エアロゾルが従来指摘された2~3 μmを中心とした粒径範囲を超えて広く均一に存在していることを意味している。事実、粒径0.5~30 μmの範囲で、土壌起源元素に関する組成比が、ほとんど一致することを明らかにした。

黄砂エアロゾルは、飛来時に、汚染に由来する酸性物質を取り込み変質するといわれていたが、それが具体的に実証されたことがなかった。非海塩起源のSO₄²⁻やNO₃⁻は、春先の非黄砂エアロゾルの場合、微小粒径範囲だけに存在するのに対し、黄砂エアロゾルの場合、微小粒径と粗大粒径範囲の両方に存在することがわかった。その粗大粒径範囲のSO₄²⁻やNO₃⁻は、黄砂エアロゾルの粒子表面に取り込まれ、輸送されることが初めて定量的に明らかになった。強酸性の陰イオン種と強塩基性の陽イオン種のバランスは、黄砂エアロゾルの場合、極端に陽イオン側に偏っており、そ

の主な原因はカルサイトの溶解に因ることがわかった。非黄砂エアロゾルの場合、先のバランスが均衡していることが多いことと比べると、これは黄砂エアロゾルの重要な特徴である。黄砂エアロゾルの強酸性イオンおよび強塩基性イオンのバランスが陽イオン側に偏っていることが、その輸送過程において酸性物質と反応し、硫酸塩や硝酸塩として取り込む過程を促進していると推定された。

日本に飛来する黄砂エアロゾルでは、上述のごとく、強酸性および強塩基性イオンのバランスが陽イオン側に偏っているが、さらに、日本各地に降下後も、酸性物質に対して中和作用を示す能力がある。つまり、酸性雨中の硫酸イオンや硝酸イオンと反応し、雨水のpHを高める効果が期待される。長崎県の山間部で1988年に4月から5月に降った9回の降雨について一雨ごとのpHを測定した結果では、非黄砂現象時の雨水のpHが5.6以下の酸性であったのに対し、黄砂現象時に降った2例では、pHが6以上の高い値を示した。確定的なことは言えないが、黄砂エアロゾルを取り込んだため雨水のpHが高くなった可能性が高い。1988年に飛来した黄砂エアロゾルの場合、その中和能を見積もると、pH4.7の雨水が200mm降ったときに含まれている強酸性の陰イオン量に相当した。酸性雨による植物被害を考えると、植物の発芽や発葉にとって重要な春先に、毎年、黄砂エアロゾルが飛来することは、非常に意味があるものと思われる。

（Faint, illegible text on the left page, likely bleed-through from the reverse side of the book.)



都市の大気エアロゾル
(大阪市内)

非黄砂時の大気エアロゾル
(屋久島)

黄砂時の大気エアロゾル
(屋久島)

ハイボリュームサンプラーで24時間
採取した時の大気エアロゾルの色

第 1 章 序論

黄砂現象は、春先に多くみられる気象現象の一つである。歴史をひもとけば、紀元前 12 世紀には、既に中国の歴史書の中にこの現象に関する記述 (Zhang, 1984) がある。中国の歴史書の中で、黄砂現象は、“雨黄土”あるいは“雨土”、“下黄土”などと記述されている、つまり、黄砂現象が黄砂エアロゾルに由来することは、3000 年前にもう知られていたことを示している。Zhang (1983, 1984) の報告によると、古来よりその発生地域に大きな変化は認められていないので、朝鮮半島や日本にも有史以来頻繁に飛来してきたものと想像できる。

黄砂現象とその原因物質である黄砂エアロゾルについての研究は、いろいろな学問分野で行われ、学問的興味の変遷を経てきたように思われる。黄砂エアロゾルの科学的な報告を初めて行ったのは、池本正之 (1915) や高山四郎 (1921) 等と云われている。高山四郎の報告した大正 10 年 4 月 13 日 - 17 日の黄砂現象は、大正時代における最大級の黄砂現象であったという報告がある (岡田武松、1935)。高山は、中国の天津では 15 m 先が見えず、1 cm 余りも黄砂が積もったと記し、日本の福井でさえ、霧粒が降るように見え、鼻孔から侵入する感じがしたと記している。大正から昭和初期の間に行われた黄砂現象に関する研究は、満州や朝鮮半島への飛行便・船便の視界障害や降灰による人畜の被害をもたらすという観点から、その発生・広がり・移動に関する気象学的な解析を中心に行われた。それを体系的にまとめたのは、小泉浩吉 (1932、1933)、岡田武松および淵秀隆 (1939) であろう。小泉によると、大正 4 年から昭和 2 年の 13 年間に北支那および中部支那地域で観測された黄砂現象は 64 回であり、この期間に日本本州で観測された黄砂現象は 38 回であったと報告されている。それ故、これらの観測結果から、中国大陸で発生した黄砂現象のうち、約 6 割が日本にまで達すると推定される。現在では、気象官署で黄砂現象と認められないような“弱い黄砂現象”も確認されており、日本にまで達する割合はもっと高いと推

定される。

黄砂現象に関する研究の一番目の山を1930年代(昭和初期まで)とすると、2番目の山は、1950年後半～60年代であろう。2番目の山の特徴は、雲物理学の重要な研究課題の一つである氷晶核に関する研究の中で、黄砂エアロゾルが研究対象物質となったことである。磯野ら(1958)、Isono et al. (1959(a)、1959(b)、1960、1971)は、精力的にこの分野の研究を行い、黄砂エアロゾルが、火山灰粒子とともに、大気中で氷晶核として重要な役割を果たしていることを明らかにした。彼らの報告によれば、黄砂エアロゾルの風送により、北米における氷晶核濃度が高まる場合さえあることがわかった。田中豊顕(1987)は、富士山頂での5年間にわたる氷晶核の観測期間中、1973年4月22日から26日の黄砂現象時に、氷晶核濃度が非常に高くなったことを報告している。また、富士山頂での観測結果から、黄砂エアロゾルの飛来頻度の高い3月から5月にかけて氷晶核濃度も、毎年、年間で最も高くなることを明らかにした。

黄砂エアロゾルに関する研究の3番目の山は、1970年後半～80年代にある。この3番目の山は、さらに3峰に分かれる。1峰は、ライダー観測や気象衛星観測、気象観測網などの技術の発達と密接な関係があり、飛来する黄砂エアロゾルの空間分布に関する気象物理学分野での研究(Iwasaka et al., 1983; Kobayashi et al., 1985; Arao and Ishizaka, 1986; Sasano and Browell, 1989)が行われるようになった。この分野の研究から、黄砂エアロゾルは、日本上空に輸送されてくる時、主に1-2 kmあるいは4 km以上の2つの異なった高度範囲で輸送されてくるらしいことがわかった。また、ライダーなどによる空間分布から見積もった黄砂エアロゾルの輸送量は、激しい黄砂現象が生じるような場合で $1 \sim 2 \times 10^9$ トン程度と推定された。2峰では、黄砂エアロゾルが日本沿岸および北西太平洋地域への物質移動に果たす役割について、地球化学分野で研究(Duce et al., 1980; 石坂ら、1981; Uematsu et al., 1983, 1985; Merrill et al., 1985; Arimoto et al., 1985, 1987; Tsunogai et a

l., 1985; Noriki and Tsunogai, 1986; Suzuki and Tsunogai, 1988) が行われ、黄砂エアロゾル中には、石英、長石および粘土鉱物が多量に含まれていることがわかった。それら中国大陸から輸送されてきた鉱物粒子の海底泥への寄与は、当然のごとく、より発生源に近い日本近海の方が、中部北太平洋地域よりも格段に大きいことがわかった。土壌粒子の降下量は、中部北太平洋域で年間約 0.1 g/m^2 程度であり、日本近海では、それよりも1桁高いと言われている。3峰は、都市大気汚染のバックグラウンドエアロゾルという視点から進めた研究 (Mizohata et al., 1976, 1978; 角脇, 1978, 1979; Kadowaki, 1979; 田中ら, 1983, 1986, 1989) であり、黄砂エアロゾルと人為由来のエアロゾルとの組成の違いについて調べたものが多い。黄砂エアロゾルは、空気力学径で $4 \mu\text{m}$ 付近に極大値をもつ一山型の粒径分布をしており、 $1 \mu\text{m}$ 以下の微小粒径部分にほとんど存在しない、したがって、微小粒径部分に多く存在する人為起源系金属元素と区別できるとされている。

そして今、黄砂エアロゾルに関する4番目の山を迎えつつあるように思える。それは、黄砂エアロゾルが輸送過程あるいは沈着後に変質する過程を探る環境化学的な研究である。この萌芽は、1980年代後半に芽生えた (Okada et al., 1987; Iwasaka et al., 1988; Winchester et al., 1989)。Okada et al. (1987) や Iwasaka et al. (1988) は、カルシウム薄膜法による電子顕微鏡観察の結果、定性的であるけれども、表面が硫酸イオンでコーティングされたような黄砂エアロゾルを見つけた。さらに、Iwasaka et al. (1988) は、KOSARP 87 (Kosa Research Project 1987) の共同研究者が硝酸イオンでコーティングされた黄砂エアロゾルらしきものを同様の手法で見つけたことも報告している。Winchester et al. (1989) は、日本からハワイに至る地域まで採取したバルクの黄砂エアロゾル中の陽イオン (主に、カルシウムイオン) と陰イオン (主に硫酸イオン) とのイオンバランスの統計解析結果から、黄砂エアロゾルが積極的に硫酸イオンを取り込むと推定した。しかし、この報告では、対象であるカルシウムイオンと硫酸イオンの粒径別濃度分布が一致しているという前提

が必要となる。このように、4番目の山に入る研究は、まだまだ端緒についたばかりであり、3番目の山をベースとして今後進展するものと考えられる。

以上に、黄砂エアロゾルの研究を、年代と研究分野を考慮して4つの山に分類したが、この分類に含めなかった黄砂エアロゾルに関する研究には以下の研究がある。黄砂現象が気象学上の分類で”塵・煙霧”の中に入っている現象であることから、農業気象でも関心が持たれ、植物の光合成量への影響（氷高ら，1983）や、太陽光の放射収支に及ぼす影響に関する報告（Nakajima et al., 1989）がなされた。また、気候学の分野でも、前述のZhang（1984）による過去1500年間の黄砂現象と気温との相関から、北半球の寒冷期に黄砂現象が多く観測されることが報告されている。その他に、中国大陸での黄砂の発生のしくみに関する研究（村山ら，1983: 1984）があり、ゴビ砂漠の砂粒よりタクラマカン砂漠周辺部あるいは黄土高原の砂粒の方が弱い風でも舞い上がりやすいことが報告されている。また、砂塵風によって舞い上がった砂粒は、粒径によってその到達輸送距離が決まり、日本にまで達する土壌粒子は、20 μ m程度以下と推定されているが、Betzer et al.（1988）の観測では、中部北太平洋で直径100 μ mに近い土壌粒子系のエアロゾルが見出されている。村山（1991）は、煙霧に関する3時間おきの地上気象観測データ（SYNO P）の解析から黄砂エアロゾルの輸送過程での広がりについて調べ、総観気象規模が大きく影響することを明らかにした。日本に飛来する典型的な黄砂エアロゾルは、中国大陸の内陸部で発生後、内陸から黄海あたりにかけて発達した高気圧内で水平方向に広がり、その後、日本近傍の低気圧に伴う前線へ後面から吹き込む気流にのって一気に東進し、発生から1-2日後には日本にまで達することを指摘した。SYNO Pの観測結果を見る限り、水平方向の広がり、発生直後の内陸部での広がり、日本付近にまで一気に輸送されてくる時は、あまり南北方向に広がらずに流れてくる場合が多いことも指摘した。しかし、黄砂エアロゾルの発生・輸送機構については、まだ明かになっていないことが多いようである。

砂漠・乾燥地帯で発生する砂塵嵐は、世界中で一般的にみられる現象であり、黄砂エアロゾルと同様な発生機構のエアロゾルが、世界各地で観測されている。したがって、前述のように分類した研究の流れは、他の砂漠由来のエアロゾルに関する研究についても見出され、サハラ砂漠を源とするサハラダストに関する研究が多く報告されている。それらの中には、サハラダストの氷晶核としての作用に関する報告 (Stein and Georgii, 1985; Desalmand, 1987) や、大気の大気熱収支バランスへの影響に関する報告 (Carlson and Benjamin, 1980; Andersen et al., 1988)、その輸送量に関する報告 (Carlson and Prospero, 1972; Ganor and Mamane, 1982; D'Almeida, 1986; Prospero et al., 1987; Bergametti et al., 1989)、その組成に関する報告 (Savoie et al., 1980, 1989; Schneider, 1985; Coude-Gaussen et al., 1987) などがある。しかし、サハラダストについても、前述の4番目の山に入るような環境化学的な研究は、ほとんど見あたらない。

先に、3番目の山 (特に大気汚染に関する分野) が、4番目の山と密接な関係にあると述べたが、3番目の山の3峰に位置づけられた大気汚染に関する分野の研究は、どれも黄砂エアロゾルの化学組成に重点を置くものである。溝畑ら (1978) は、大阪で分級捕集した黄砂エアロゾルについて放射化分析を行い、Al、Fe、Caなどの元素濃度が粗大粒子部で異常に高くなることを報告した。Kadowaki (1979) は、名古屋で採取した大気エアロゾルの分析結果から、日本における土壌由来の大気エアロゾル濃度は夏から冬にかけて $14 (\mu\text{g}/\text{m}^3)$ 程度と推定したが、黄砂現象の見られる春には2倍くらいに高まると報告した。田中ら (1989) は、国設大気測定網 (NASN) の10年間にわたる浮遊粒子状物質の組成分析結果から、黄砂期の大気エアロゾル中のCa/Al濃度比は、タクラマカン砂漠土壌の比に近づくことを示した。石坂ら (1981) は、粒径ごとに黄砂エアロゾルの含有鉱物種の同定を行い、イライト、方解石、石コウなどの他に、緑泥石やカオリナイトの粘土鉱物が黄砂現象時に特徴的に見出されることを報告した。しかしながら、黄砂エアロゾルと酸性ガス成分との反応や

地上に到達後の溶解過程など4番目の山に係わる環境化学的研究は、これらの報告では十分に取扱われていない。例えば、中国大陸の乾燥土壌中には硫酸カルシウムが存在することが知られており、Hseung and Jackson (1952) は、場所によっては10%を超える含有率を示す土壌もあると指摘している。日本で捕集した黄砂エアロゾル中に含まれる硫酸イオンが、黄砂エアロゾル中に元来含まれていた成分かまたは飛来中に取り込まれた成分かを区別したい時、従来の化学的な報告では十分でない。逆に、もともと含まれていた硫酸イオン量に比べて、飛来中に黄砂エアロゾル中に取り込まれた量は非常に小さいという報告(田中ら, 1986)さえあり、黄砂エアロゾルの大気中での化学的な変質は、一般には必ずしも認められているわけではなかった。さらにまた、日本に飛来・沈着した黄砂エアロゾルについて、どのような組成変化をし、環境にどのような影響を与えるのかという視点からなされた研究は、非常に少なかった。Jenkins et al. (1987) は、エヴェレストの標高5600から7100mの間で採取した100個に近い新雪試料を分析した結果、春期にpHが高い試料では、カルシウム濃度も高いことを報告している。彼らは、その原因を中国からソビエトにわたる乾燥地帯から飛来する土壌粒子中の炭酸カルシウムによると推定したが、それを実証し、さらに定量的に説明しようとする視点は持たなかった。当時の報告では、微量元素を含む各成分の全含有量に興味の中心があり、水溶性と不溶性に代表されるような各成分の存在状態、あるいは地上に沈着後、天然水に与える影響などについては殆ど関心がなかった。以上のように、黄砂エアロゾルに関する従来の研究を俯瞰的に検討した結果、今後進められるべき研究は、次のような視点に立って行われなければならない。

「黄砂エアロゾルは中国北部の乾燥地帯から湿度の高い海上を経て日本に到達するので、水の存在を常に意識して研究を進める必要がある。また、低層大気中を輸送されるので、中国大陸および日本国内で発生した汚染物質(酸性ガス成分など)を含んだ空気塊と接触混合、反応するチャンスも多い。酸性ガス成分は、アルカリ性物質と

反応するだけでなく、水に溶解し易い物質でもある。それ故、黄砂エアロゾルは、発生-輸送-沈着の過程において、中国大陸で発生した時の物質がそのままの状態では沈着するわけではなく、飛来中に多くの物質を取り込み、反応することが予想され、さらに地上に沈着後も、酸性雨などと化学的な反応を起こすことができる可能性がある。」

黄砂エアロゾルの輸送過程での化学的変質を追跡しようとするような研究では、輸送時間（輸送距離）に応じた多点観測を行うことが必要である。また、試料の採取もバルク捕集のみならず分級捕集を行い、その化学分析も化学的変質を想定した形態別の分析を行う必要がある。その結果、次のような研究成果が得られるものと期待される。

(1) 全国で、同一の黄砂現象時に、黄砂エアロゾルを一斉に採取することができれば、飛来距離に応じて組成変化が生じるかどうかを調べることができ、そして、黄砂エアロゾルの組成変化が認められた場合、もともとの組成の違いに由来するのか、輸送過程での化学的変質によるのかを明らかにすることができる。そのような同時採取地点を、日本列島の東シナ海・日本海沿岸に多点で設定できれば、日本で発生した汚染物質で汚れる前の黄砂エアロゾルが採取でき、汚染物質の長距離キャリアとなっているかどうかを調べることができる。

(2) 黄砂エアロゾルの組成分析を行う時、水溶性と水不溶性の形態別に分けることにより、黄砂エアロゾルが水に濡れた場合の化学的な挙動について推定することができる。ケイ酸塩などの鉱物中に組み込まれた元素は容易に水に溶け出さないで、このような形態別の比較から、黄砂エアロゾルに元来含まれていた土壌粒子の化学組成を鮮明にすることができる。さらに、黄砂エアロゾルと酸性雨との大気中での反応、あるいは沈着後の反応についても推定することができる。

(3) 従来の目視による気象観測で見逃していたような”弱い黄砂現象”を含む全ての黄砂現象について、黄砂エアロゾルを定量的に把握することができれば、従来、詳細に推定できなかった黄砂エアロゾルの年間輸送量あるいは降下量の見積りが可能となる。年間の輸送量や降下量がわかれば、黄砂エアロゾルによるわが国の環境への寄与などを見積もる時の基礎データとなる。そのためには、黄砂エアロゾルの多点観測を全国規模で常時行えるようなシステムを整備する必要がある。

本研究では、上記(1)、(2)、(3)の問題点を強く意識して調査・研究を行い、さらに、それらの結果および従来の報告にも基い、沈着後の黄砂エアロゾルによる酸性物質(主にガスおよびミスト)の大気中での取り込み、黄砂エアロゾルと酸性雨との反応などに関する地球化学的および環境化学的検討を行うことを主要な目的とした。黄砂エアロゾルは、これまで長年にわたって多くの学問分野で研究対象となってきたけれども、今後も学問的興味がつきない物質の一つであろう。

第2章 日本列島における多点観測網

2.1節 多点同時観測の重要性

黄砂エアロゾルの輸送量や降水量あるいは化学的な変質について詳細な研究を行う時、多点観測を是非とも行なわなければならない。しかし、黄砂エアロゾルは、突発的に飛来する物質であるために、計画的に試料を採取することは1地点でさえも難しいので、多点観測を行うことには相当な困難が伴う。幸い、大規模な「黄砂エアロゾルに関するプロジェクト」が、1987、1988年に環境庁により実施された際、これに参加し、観測地点の設定から試料の分析（主に、微量金属を含む無機成分の分析）およびデータ解析の一部を担当する機会に恵まれた。このプロジェクトでは、地方自治体およびプロジェクト参加委員の協力により、化学分析のための大気エアロゾル試料について、多点同時採取を2年間に異なる黄砂現象時に4回、平常時（非黄砂現象時）に2-5回行うことができた。また、このプロジェクトを利用して、黄砂エアロゾルの輸送現象の解明のために、 β 線吸収法による大気エアロゾルの濃度監視を行っている全国の一般大気汚染測定局のうち12カ所を選定し、そのモニタリング結果の解析をも行った。調査にあたっては、黄砂エアロゾルの本質を捉えることを目的とし、中国大陸に面している東シナ海および日本海沿岸を中心に観測地点を設定した。採取地点および観測地点の概略を、図1および表1に示す。各試料採取地点の周辺状況の詳細は、次の通りである。

(1987年度)

(1) 新潟（新潟市曾和）

新潟県衛生公害研究所の屋上で採取。市のはずれに位置し、周辺は田園地帯で、地上高約15m。

(2) 間瀬（新潟県西蒲原郡岩室村）



表1 試料採取の概要

| 捕集方法 | 調査年 | 調査地点 | 黄砂現象に関する気象情報 |
|----------------------------|------|-------------------------|---|
| ハイポリューム サンプラー (24hr) | 1987 | 相川、新潟、岐阜、 長崎、福江島 | 3/5-6に九州から関東にかけて 黄砂現象、新潟では降雪あり |
| | 1988 | 輪島、金沢、筑波、 福江島、長崎、屋久島 | 4/13-14、4/18-21、4/22-25の 3回全国規模の黄砂現象あり |
| アンダーセン サンプラー (48hr) | 1987 | 新潟、名古屋、 福江島 | 同上 |
| | 1988 | 屋久島 | 同上 |

間瀬海岸沿いの2階建て村営施設の屋上で採取。地上高約15m。

(3) 名古屋(名古屋市千種区不老町)

名古屋大学水圏科学研究所の別館屋上で採取。周辺は住宅街で地上高約7m。

(4) 長崎(長崎市滑石町)

長崎県衛生公害研究所の屋上で採取。市のはずれの小高い丘の上であり、周辺は住宅街で、地上高約15m。

(5) 福江島(長崎県南松浦郡玉之浦町)

五島列島の福江島にある国民宿舎七岳荘の屋上で採取。長崎市より西南西に110km離れた東シナ海にある島で、周辺には人為発生源がほとんどない。地上高約12m。

(1988年度)

(1) 輪島(石川県輪島市鳳至町)

輪島保健所の屋上で採取。市のはずれの小高い丘の上であり、海から800mの位置にある。地上高5m。

(2) 金沢(石川県金沢市三馬)

石川県衛生公害研究所の屋上で採取。市街地の端にあり、周辺は住宅街で、地上高約15m。

(3) 筑波(茨城県つくば市)

国立公害研究所(現、国立環境研究所)の屋上で採取。周辺は田園地帯で、地上高約15m。

(4) 福江島

前述と同じ。

(5) 長崎

前述と同じ。

(6) 屋久島 (鹿児島県熊毛郡屋久町)

九州本土最南端から60 kmの東シナ海にある屋久島の県合同庁舎屋上で採取。屋久町の端にあり、大きな人為発生源はない。地上高約12 m。

2. 2節 試料の採取および観測

(A) 化学分析のための黄砂エアロゾルの採取は、以下の方法で行なわれた。

(1) ハイボリュームサンプラー

原則として、24時間サンプリングとした。

装置は、紀本電子工業製のModel-120、121あるいは柴田科学器械工業製のHVC-1000を用いた。吸引流量は、1000-1500 l/min. の間の任意の一定流量とし、ろ紙には、石英ろ紙であるPallflex2500QAOT、東洋QR100あるいはテフロンろ紙であるAF07P (住友電工製)を用いた。

(2) アンダーセンサンプラー

原則として、48時間サンプリングとした。

装置は、ダイレック製のAN-200型 (8段分級)を用いた。名古屋では、さらに4段を追加して12段分級で行った。吸引流量は、28.3 l/min. とし、捕集材にはポリエチレンシート (十条セントラル製、ワンラップフィルム)を、支持材にはテフロンコーティングフィルターTX40 HI20WW (Pallflex製)を用いた。また、バックアップフィルターとして、Millipore Filter (type RAWP)を用いた。

(B) 黄砂エアロゾルの毎正時ごとの濃度観測は、各地方自治体に設置してある一般大気測定局の β 線吸収法による大気エアロゾル観測結果を利用した。

(3) β 線式大気エアロゾル濃度測定装置

各一般大気測定局で用いられているおもな装置は、柴田科学器械工業製のBAM-102型あるいはD K K製のDUB-12および32型である。測定原理は、次の通りである。15-20

l/min. の一定流量で約1時間近くガラス繊維ろ紙上に浮遊粒子状物質（粒径 $10\mu\text{m}$ 以下の大気エアロゾル）をろ過捕集（捕集面の直径は、約 10mm ）した後、その捕集エアロゾルに一定強度の β 線（線源は、 ^{14}C か ^{147}Pm を使用することが多い）を照射する。エアロゾルによる β 線の吸収強度は、主にエアロゾルの単位面積当りの質量濃度に比例して大きくなることから、逆に、その透過強度を測定して大気中のエアロゾル濃度を求める方法である。ただし、定量下限は、 $10\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度とあまり感度はよくないが、上限は、約 $2\sim 3\text{mg}/\text{m}^3$ まで測定可能である。この方法の校正は等価膜によって行われているけれども、実際の浮遊粒子状物質濃度を正確に示しているわけではないので、精度の高い測定値を得るためには、基準測定法である粒径 $10\mu\text{m}$ の分級器付きローボリュームサンプラーとの並行測定を行い、各測定地点ごとの補正係数を少なくとも季節毎に求めなければならない。しかし、本研究で利用できた一般大気測定局の公表結果は、このような基準測定法との比較による補正を行っていない値である。

2. 3節 採取試料の前処理および超微量分析

採取した大気エアロゾル試料中のいろいろな成分について、黄砂エアロゾルの本質を明らかにするために、水溶性成分と水不溶性成分に分別・定量できるように前処理を行った。その概要を以下に示す。

【ハイボリューム試料】

前処理の実験操作の概略を図2に示した。ハイボリューム試料は、1試料の大きさが、 $25 \times 25\text{cm}$ あり、それから、抜き取った直径 4cm の試料片を用いて、図のように水浸出法と混酸による全分解法で各成分含有量を測定した。直径 0.8cm の試料片を用いて、全炭素、全窒素含有量を測定した。測定結果は、数回の繰り返し分析の平均値を採用した。さらに、 $4 \times 4\text{cm}$ 試料片を用いて、試料中に含まれている鉱物種の同定も行った。

【アンダーセン試料】

前処理の実験操作の概要を図3に示した。分級捕集（アンダーセン）試料は、各分離段ごとに直径約8 cmのポリエチレンフィルム上にインパクト方式で大気エアロゾルを付着させた試料である。試料量が微量なため、フィルムごと図の手順で前処理を行った。各試料は、20 mlの蒸留水で水浸出後、孔径0.2 μmのメンブランフィルターでろ過し、速やかにろ液中の水溶性成分の測定をした。ろ紙上の粒子状物質は、混酸による全分解後、その成分を測定した。

【分析装置】

図2、3の分析に用いた方法・装置は、以下の通りである。

(1) プラズマ発光分析法 (Inductively coupled plasma atomic emission spectrometry、以下ICP-AESと略す)

・・・Jarrell-Ash社製、Plasma Atomcomp Model 975

(2) イオンクロマトグラフ法 (Ion chromatography、以下I.C.と略す)

・・・Dionex社製、Ion Chromatograph Model 10

(3) 元素分析法 (Elemental Analysis)

・・・Carlo Erba社製、Model-1106

(4) X線回折法 (X-ray diffraction method)

・・・理学電機社製、AFC-6B

定量に使用する標準溶液は、精密分析用の金属あるいは塩を溶解して調製した。測定は、常に複数回以上行い、その平均値を採用した。定量値の信頼性を高めるために、これらの分析装置による測定の際、NBSやNIESの標準試料などでクロスチェックを行い、相対誤差は、常に5%以内におさまるようにした。表2に、各分析装置の定量限界値と標準試料の分析結果の一例を示す。

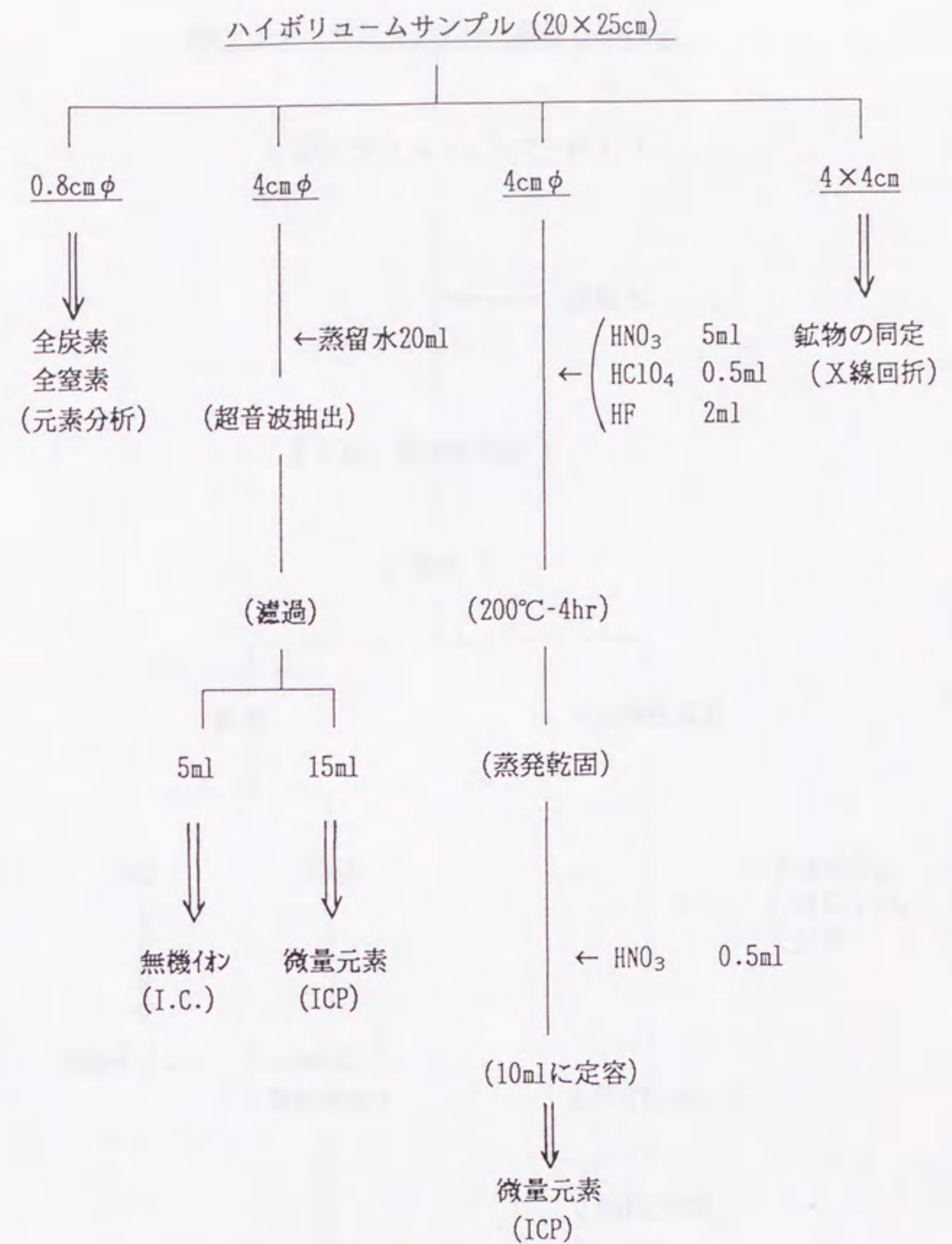


図2 ハイボリューム試料の分析の実験操作

8段アンダーセンサンプル (各段, 8cmφ)

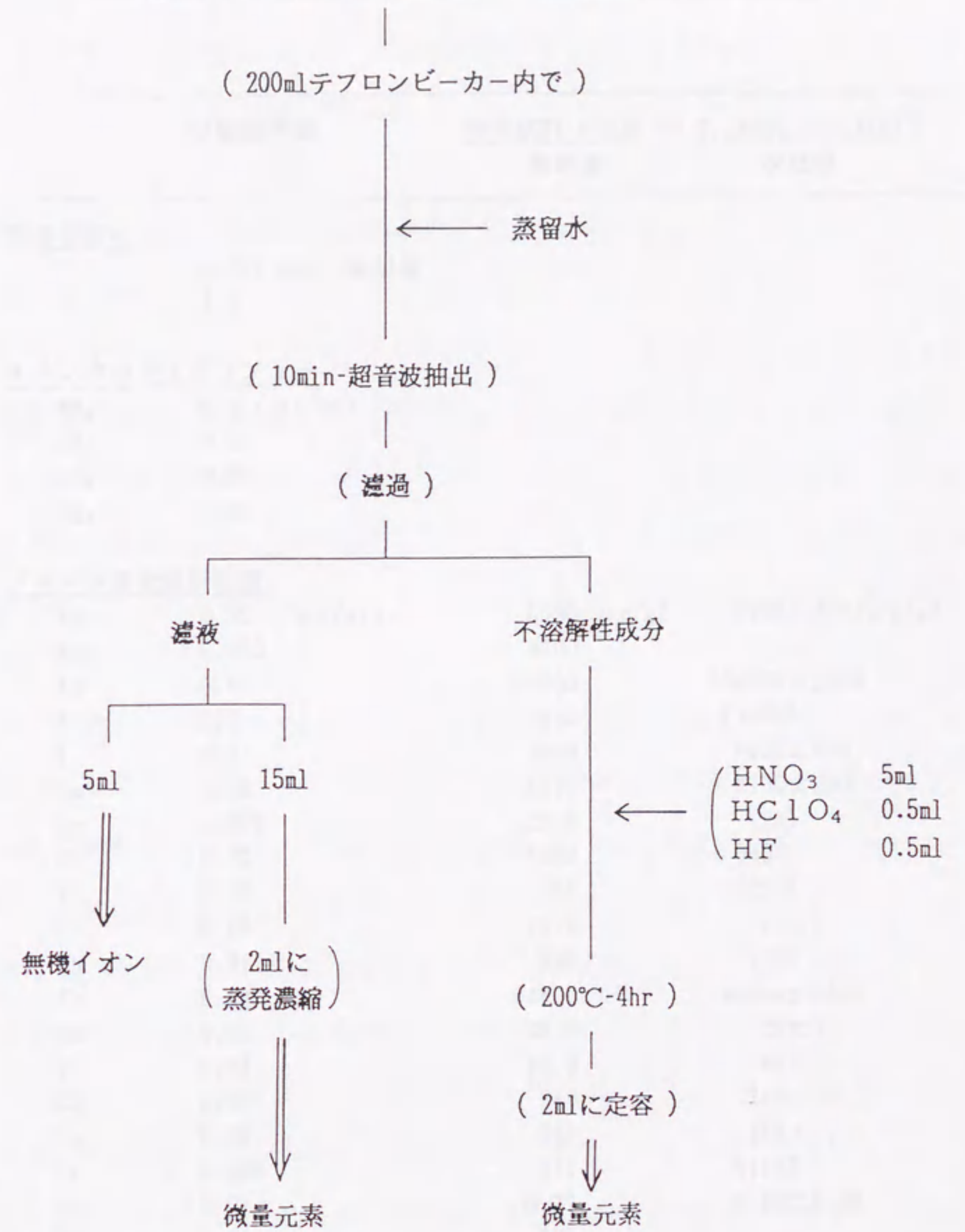


図3 アンダーセン試料の分析の実験操作

表2 各分析装置の定量限界値と標準試料の測定例

| | 定量限界値 | 標準試料 (NIES NO.8, POND SEDIMENT) | |
|---------------------|----------------------------------|---------------------------------|---|
| | | 測定値 | 保証値 |
| 元素分析計 | | | |
| C | 0.8 (μg) - 絶対値 | | |
| N | 1.5 | | |
| イオンクロマトグラフィー | | | |
| NH_4^+ | 0.2 ($\mu\text{g}/\text{ml}$) | | |
| Cl^- | 0.1 | | |
| NO_3^- | 0.05 | | |
| SO_4^{2-} | 0.05 | | |
| プラズマ発光分析装置 | | | |
| Na | 0.05 ($\mu\text{g}/\text{ml}$) | 5690 ($\mu\text{g}/\text{g}$) | 5700 \pm 400 ($\mu\text{g}/\text{g}$) |
| Mg | 0.005 | 8300 | |
| Al | 0.05 | 108000 | 106000 \pm 5000 |
| P | 0.2 | 1540 | (1400) |
| K | 0.5 | 7060 | 6800 \pm 600 |
| Ca | 0.05 | 8170 | 8100 \pm 600 |
| Sc | 0.008 | 28.6 | (28) |
| Ti | 0.02 | 6300 | 6400 |
| V | 0.02 | 268 | (250) |
| Cr | 0.03 | 75.1 | 75 \pm 5 |
| Mn | 0.01 | 822 | (770) |
| Fe | 0.03 | 64600 | 65300 \pm 3500 |
| Co | 0.02 | 28.9 | 27 \pm 3 |
| Ni | 0.04 | 40.0 | 40 \pm 3 |
| Cu | 0.02 | 249 | 210 \pm 12 |
| Zn | 0.02 | 341 | 343 \pm 17 |
| Sr | 0.005 | 111 | (110) |
| Cd | 0.01 | 0.77 | 0.82 \pm 0.06 |
| Ba | 0.01 | 325 | |
| Pb | 0.1 | 108 | 105 \pm 6 |

第3章 大気圏を通しての黄砂エアロゾルによる物質輸送と日本における降下量

3.1節 β 線吸収法の黄砂エアロゾルに対する定量性の評価

黄砂現象は突発的に起きる現象であるため、黄砂エアロゾルを捕集するためには非常な努力が必要である。さらに、個々の黄砂エアロゾルを毎回必ず観測や捕集することは、自動観測装置でもなければ不可能に近い。また、個々の黄砂エアロゾルは、日本の広い範囲を被いながら西から東方向へ移動するので、その全体像を把握するためには、多点同時観測を行うことが必要である。両方の要求を合わせると、黄砂エアロゾルの研究において、多点ネットワークシステムを設け、しかも昼夜連続観測ができることが最も望ましい。

平常時の大気エアロゾルの自動観測が、日本全国の大気測定局で行われており、その局数は、全国に千カ所以上ある（環境庁, 1989）。それらの観測結果が、黄砂エアロゾルの観測にも利用できるかどうか検討を行った。多くの一般環境大気測定局では、 β 線吸収法か光散乱法あるいは圧電天秤法により、粒径 $10\mu\text{m}$ 以下の大気エアロゾルを指す浮遊粒子状物質の連続監視を毎正時ごとに自動的に行なっている。大気エアロゾル濃度の基準測定方法は、ろ過捕集法であり、いずれの自動測定方法も $10\mu\text{m}$ 分粒子付きのローボリュームサンプラーと比較校正を行うことになっている。この3法のうち、全国に広く普及しているのは、光散乱法と β 線吸収法を利用した装置であり、両法で90%以上を占めている。 β 線吸収法は、光散乱法に比べ感度が劣るけれども、いろいろな種類の大気エアロゾルに幅広く感知できる方法であることから、平常時の大気エアロゾルと違う性状の黄砂エアロゾルに対しても、定量的に反応している可能性が高い。図4は、黄砂現象時に光散乱法と β 線吸収法で同時測定を行った結果を例示したものである。光散乱法に比べ、 β 線吸収法の方が黄砂エアロゾルに対する応答

黄砂現象の発生は、主に中国西部から東部へと吹送される。この黄砂は、大気中のエアロゾル濃度を大幅に増加させ、視程を著しく低下させる。本研究では、黄砂現象発生時の大気エアロゾル濃度を、β線吸収法と光散乱法を用いて観測し、その結果を比較した。

観測結果は、黄砂現象発生時にβ線吸収法と光散乱法の両方で濃度が急激に増加することを示している。特に、β線吸収法は、黄砂現象発生時の濃度を約250 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ まで上昇させた。一方、光散乱法は、黄砂現象発生時の濃度を約150 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ まで上昇させた。

この結果から、黄砂現象発生時の大気エアロゾル濃度を、β線吸収法と光散乱法を用いて観測することが有効であると判断される。

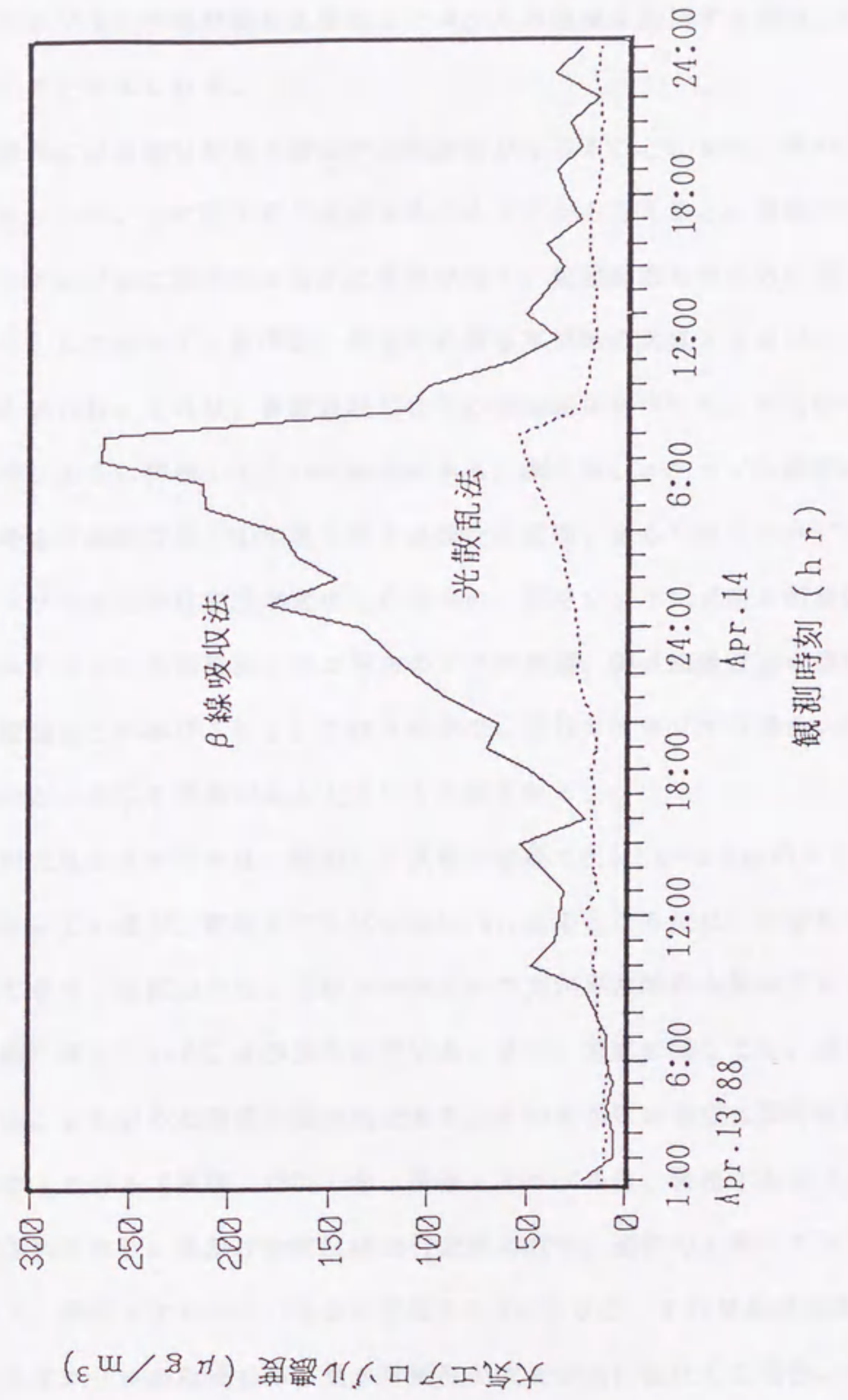


図4 黄砂現象時のβ線吸収法と光散乱法による観測結果の比較

性が良いことがわかる。しかし、 β 線吸収法による大気エアロゾルの連続観測は、上記のように粒径 $10\mu\text{m}$ 以下の平常時の大気エアロゾルを対象としているため、平常時の大気エアロゾルと性状が異なる黄砂エアロゾルの観測に利用する場合、いろいろな制限が生じると考えられる。

黄砂現象時には直達日射量の減少や視程障害が生じること、また、車のフロントガラスなどにザラザラした粒子群が沈着することなどから考えると、黄砂エアロゾルは平常時のエアロゾルに比べてはるかに濃度が高く、粒径分布も粗い方に偏っていると実感される。したがって、化学的、物理的性質も平常時の大気エアロゾルと随分異なっていると思われ、それ故、 β 線吸収法による測定結果について、平常時の値と黄砂時の値と同じように評価できない可能性がある。例えば、エアロゾル濃度が異常に高くなった時の β 線吸収法の①定量上限や直線性の問題、あるいはエアロゾルの粒径分布やエアロゾルの見かけ密度が変化した場合の、②サンプリング時の捕集効率の変化や③捕捉エアロゾルの捕集面上での分布のムラの問題、④ β 線吸収法の質量吸収係数が変わる問題などが挙げられる。これらの中で、黄砂エアロゾルの場合、粒径分布や密度の違いから生じる問題が最も大きいと予想される。

平常時の大気エアロゾルは一般的に空気動力学径で 0.5 と $4\sim 5\mu\text{m}$ のところに分布のピークをもっているが、黄砂エアロゾルは $4\sim 5\mu\text{m}$ のところにピークをもつ一山型の分布をしており、粒径分布は、黄砂エアロゾルの方が平常時の大気エアロゾルよりも粗大粒径側に偏っていることが知られている。また、密度に関しても、通常の大気エアロゾルは、いろいろな物質の混合物であり、その見かけの密度は母材密度よりかなり小さくなっている（高橋，1982）が、黄砂エアロゾルは、後述するように土壌粒子から構成されており、見かけの密度は母材密度に近い。通常の大気エアロゾルの見かけ密度を 1 、黄砂エアロゾルの見かけ密度を 2.5 とすると、その見かけの密度比は 2.5 となる。エアロゾルの粒径分布と見かけ密度が大きい方に変化した場合、サンプリング孔から捕集面までの粒子到達率が減少することが考えられる。例えば、雪国で冬季

に社会問題となっているスパイクタイヤ粉じんは、アスファルトが削られて生じる鉱物性のエアロゾルであり、黄砂エアロゾルと同様に、平常時の大気エアロゾルに比べ粒径分布と見かけ密度がともに大きい特徴がある。スパイクタイヤ粉じんは、4~6 μ mのところピークのある粗大粒子側に広い分布をしており、黄砂エアロゾルの粒径分布形に似ている。しかも、土壌に近い成分で構成されているので、密度も黄砂エアロゾルに近いと考えられる。氏家ら(1989)は、スパイクタイヤ粉じんが顕著な期間に、ろ過捕集法と β 線吸収法によるエアロゾル濃度を比較した結果、 β 線吸収法の測定値が、ろ過捕集法の値の1/2~1/4の値となったこと、その理由として、粒径分布と見かけ密度が平常時の大気エアロゾルに比べて大きいためであると報告した。黄砂エアロゾルの測定においても同様の現象が生じるものと考えられ、その測定値は、スパイクタイヤ粉じんの例から類推するとバルク濃度の1/2~1/4になる可能性がある。

ところで、 β 線吸収法の質量吸収係数は、測定物質の真の密度によって変わることが知られている。通常の大気エアロゾルは、いろいろな物質の混合物であるので真の密度を求めることは難しいが、化学組成からみると、不定形炭素粒子(すす)、土壌粒子、花粉などの有機物、アンモニウム塩、水分が、主な割合を占めており、ケイ酸塩鉱物などから成る土壌由来の黄砂エアロゾルに比べると、真の密度は小さいと思われる。 β 線吸収法の測定値は質量吸収係数の比に応じて変化するが、種々の物質の質量吸収係数(cm^2/mg)は、それぞれ、 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ (0.153), $\text{CaSO}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$ (0.152), SiO_2 (0.154), CaCO_3 (0.154), C (0.154), Fe_2O_3 (0.163), NaCl (0.172), PbSO_4 (0.193)である。例えば、比重の違う硫酸アンモニウム(比重1.77)と硫酸鉛(比重6.2)とを比べると、比重比は、 $1.77/6.2=0.29$ であり、質量吸収係数の比は、 $0.153/0.193=0.79$ である。比重比に比べ質量係数の比はあまり変わらず、両者の測定値の差は、約20%程度にとどまる。黄砂エアロゾルの場合、その構成成分から考えると、 β 線吸収法による測定結果に上述の例ほどには影響を及ぼさないと思われる。

β 線吸収法による黄砂エアロゾルの測定において、以上のようないくつかの誤差要

因が含まれると考えられるが、 β 線吸収法による多点同時観測網を黄砂エアロゾルの観測に利用する場合、最も重要なことは、複数の観測局で、いろいろな黄砂エアロゾルを観測した時、同じ検量線で黄砂エアロゾル濃度を表すことができるかどうかという点にある。そのような観点から、 β 線吸収法による多点同時観測結果を検討した。図5(a)(b)は、4月14日、4月18日、4月22日の3回の異なる黄砂現象時にハイボリュームサンプラーを用いてバルクの大気エアロゾル濃度を測定し、その同一捕集時間における β 線吸収法による大気エアロゾル濃度との比較をした結果をまとめたものである。非黄砂現象時にも同様の並行試験を行った。図より、ハイボリュームサンプラーにより測定したエアロゾル濃度と β 線吸収法によるエアロゾル濃度との間には、

$$Y = 3.3X - 33, \text{ 相関係数} = 0.96 \text{ (} n = 21 \text{)}$$

再現性の良い定量的な関係で認められた。黄砂時と非黄砂時に分ければ、図5(b)に示すように

$$Y = 3.3X - 31, \text{ 相関係数} = 0.90 \text{ (} n = 9 \text{)} \quad \text{(黄砂時のみ)}$$

$$Y = 3X - 29, \text{ 相関係数} = 0.75 \text{ (} n = 12 \text{)} \quad \text{(非黄砂時のみ)}$$

となった。但し、統計解析上、結果的に上述のような式で表せたけれども、 β 線吸収法によるエアロゾル濃度測定装置は、どれも0点を通る傾きをもって補正するように設計されている。つまり、本来、図5(b)中の点線で示す直線で換算される。非黄砂時の場合、その傾きは、1.7となり、黄砂エアロゾルの場合3となる。これは、前述の氏家らのスパイクタイヤ粉じんの場合と同様に、粒径分布や見かけ密度の違いによると考えられ、予想されることであった。

図5(b)の黄砂エアロゾルの場合における、傾きが3になったことについて検討した。

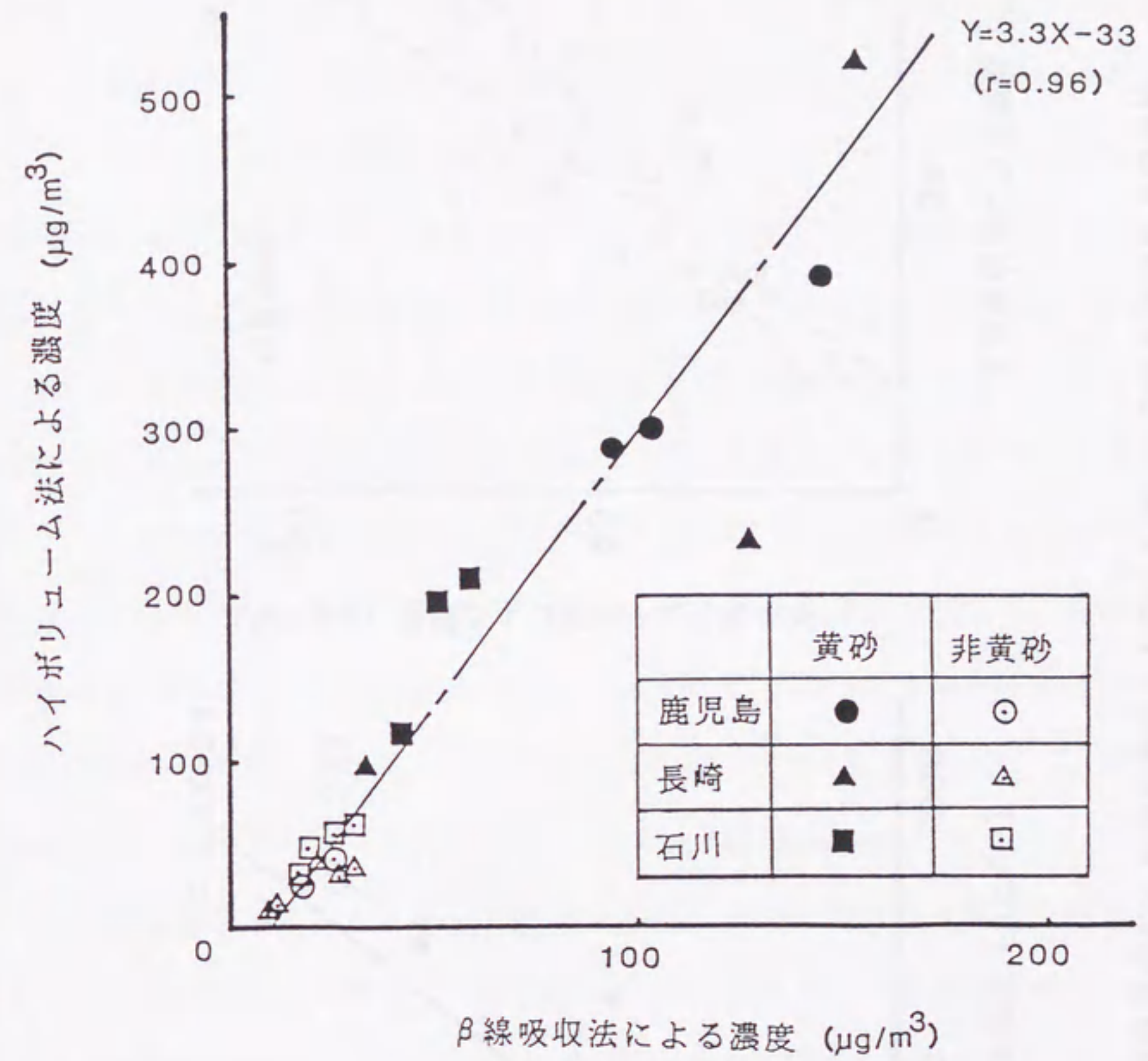


図5(a) β 線吸収法による測定濃度と黄砂エアロゾルのバルク濃度との関係



| 測定値 | 計算値 | 誤差 |
|-----|-----|----|
| 10 | 10 | 0 |
| 20 | 20 | 0 |
| 30 | 30 | 0 |
| 40 | 40 | 0 |
| 50 | 50 | 0 |
| 60 | 60 | 0 |
| 70 | 70 | 0 |
| 80 | 80 | 0 |
| 90 | 90 | 0 |
| 100 | 100 | 0 |

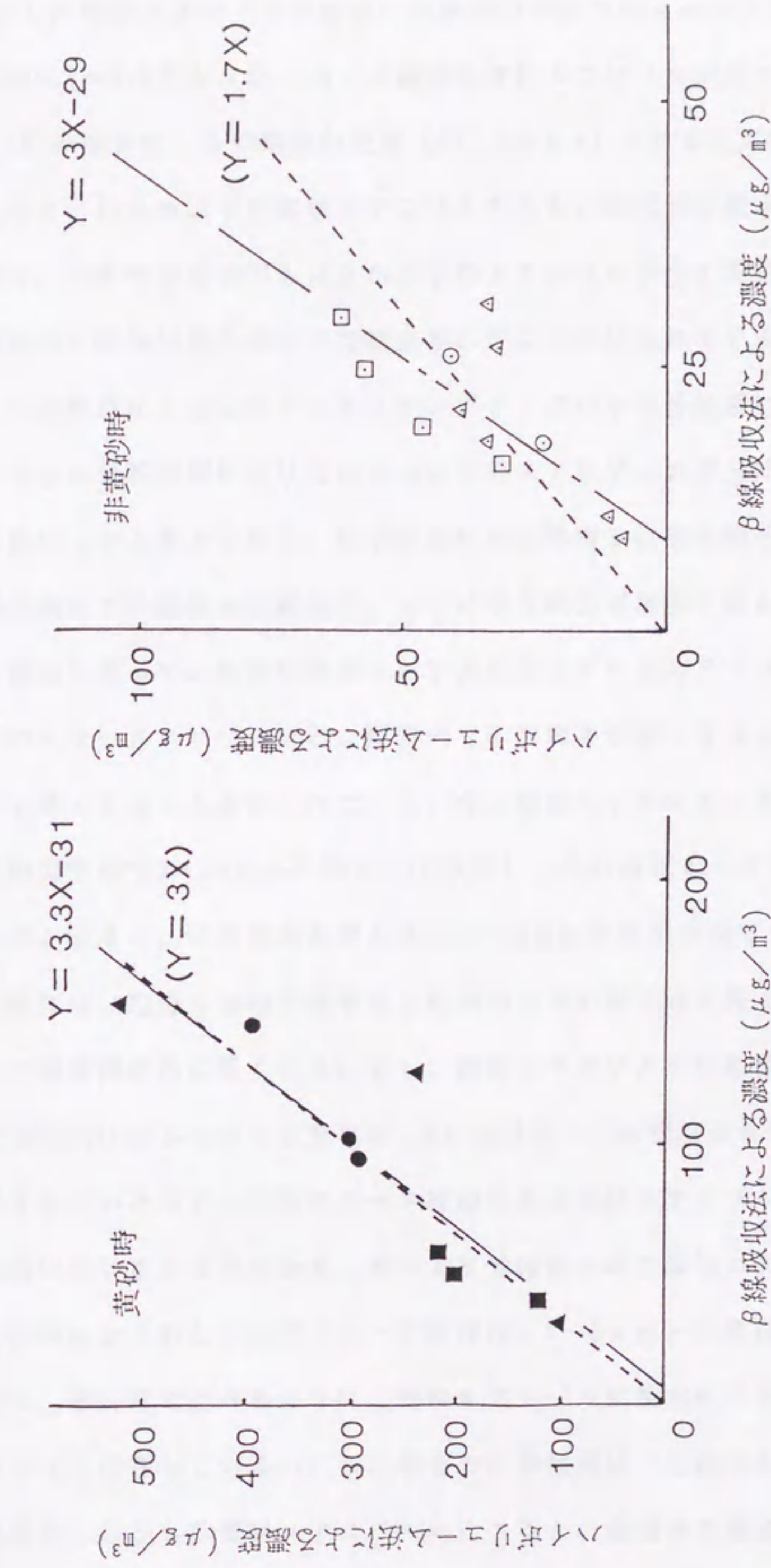


図5(b) β 線吸収法による測定濃度と大気エアロゾルのバルク濃度との関係

図5(b)に示した黄砂エアロゾルの場合、空気動力学径で $10\mu\text{m}$ 以下のバルク量に対する割合は、約 $0.7\sim 0.8$ であった。 $10\mu\text{m}$ 以下の黄砂エアロゾルが全て測定部に届かならば、図5(b)の傾きは、この割合の逆数(約 $1.3\sim 1.4$)となる。実測値である傾き3から類推すると、 $10\mu\text{m}$ 以下の黄砂エアロゾルのうち、約50%が測定部に届かなかったことになる。平常時の場合でも $10\mu\text{m}$ 以下のエアロゾルが全て測定部に届くわけではなく、経験的に約20%程度が途中で除去されることが知られている。黄砂エアロゾルの場合、この割合がさらに多くなり、サンプリング口から分岐管における管内での粒子沈着や $10\mu\text{m}$ 分粒器部における $10\mu\text{m}$ 以下のエアロゾルの部分除去などが合わさって約50%になったと考えられる。粒子除去には粒路内の状態や輸送する大気の状態、粒子の輸送過程での凝集・分離など、いろいろな要因が複雑に絡んでいると考えられるが、一般的に言って、粒径分布が大きい方に偏っているエアロゾルほど、また、見かけ密度の大きいエアロゾルほど、配管内での沈着率が高くなるし、分粒器部での部分沈着率も高くなることが知られている。今、黄砂エアロゾルの重量濃度の粒径分布を、空気動力学径で $1\sim 10\mu\text{m}$ の間に一山分布し、その分布ピークを $5\mu\text{m}$ と仮定する。単純にまとめると、50%の除去率とは、 $5\sim 10\mu\text{m}$ の部分が全て欠けた分布形を意味する。実際には、粒径ごとの沈着率は、粒径の大きい部分ほど高く、粒径が小さくなるに従って指数関数的に低くなる。もし、黄砂エアロゾルの小粒径部分の沈着が、分粒器部で支配的に生じているとすれば、 $5\mu\text{m}$ 付近で10%程度の沈着率がある分粒器が多く使用されているので、分布のピーク粒径にある黄砂エアロゾルは、その大部分が測定部に届いていることがわかる。①いままで報告された黄砂エアロゾルの分布形は、どれも非常によく似た一山型(ピーク粒径は、 $4\sim 5\mu\text{m}$)の単純な形をしていること、さらに、第4章で述べるように、黄砂エアロゾルは粗大粒子部を中心に広い粒径範囲にわたって存在しているのだが、②その化学組成は、小粒子から大粒子まで非常に均一であり、しかも非黄砂エアロゾルに比べると、③個々の黄砂エアロゾルの化学組成が驚くほど一様であることがわかった。したがって、これら3つの理由により、

仮に分布ピークから粒径の大きい方の半分が欠けても、ピーク粒径から小さい方の濃度を押さえれば、全体のおよその濃度を類推することができると考えられる。

一番の問題は、複数の測定局で黄砂エアロゾルを測定したとき、同じ検量線でバルク濃度が推定できるかどうかという点にある。図5に示すとおり、複数の測定局で、異なった黄砂エアロゾルを測定した結果、0.9以上の良い相関係数を持った直線関係が認められ、一般大気測定局の β 線吸収法による測定結果は、黄砂エアロゾルの多点同時観測結果として充分利用できるものと考えられる。 β 線吸収法による測定結果は、黄砂エアロゾルの全量を捉えていないけれども、結果的に、バルク濃度値との間に常に良い相関が認められたので、1黄砂現象程度の時間分解能で考える時、各一般環境大気測定局における β 線吸収法による黄砂現象時のモニタリング測定値を約3倍することにより、黄砂エアロゾルのおよそのバルク濃度の見積りが可能と考えられる。

3. 2節 日本列島上における黄砂現象の時間および地域的推移

鹿児島県串木野の環境大気測定局を例として、 β 線吸収法による大気エアロゾル濃度の観測が、黄砂エアロゾルのモニタリングに応用できるかどうかを検討した。図6は、1988年における β 線吸収法による大気エアロゾル濃度の観測結果である。3、4、5月の大気エアロゾルの平均濃度は、それぞれ26、50、35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、日常の濃度変動は多くの場合10から70 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲にあった。したがって、100 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超すような高濃度の突然の出現は、地上大気中にエアロゾル濃度の増加を起こすようななにか異常な現象が生じたことを意味している。約100 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上の高濃度の出現は、3月に3回、4月に4回、5月に3回認められた。一方、(財)日本気象協会発行の「気象」(1988)に記載されている「天気図日記」によればこの期間の黄砂現象は、各地で5回観測された。気象観測に基づく黄砂現象は、3月に山陰地方の一部地域でのみ1回観測され、4月の4回は、九州地域を含む広い範囲にわたって観測されたことが報告されている。串木野では、この4月の4回の黄砂

鹿兒島県串木野の気象観測による大気エアロゾルのモニタリング結果を示す。図6は、3月、4月、5月の大気エアロゾル濃度（ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）の時間経過を示す。縦軸は濃度を表し、横軸は日数を示す。3月の濃度は概して50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下に維持されている。4月には、15日頃に顕著な濃度上昇（約250 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）が観察され、これは「気象観測による黄砂現象」として記載されている。5月の濃度は3月に類似し、概して50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下に維持されている。

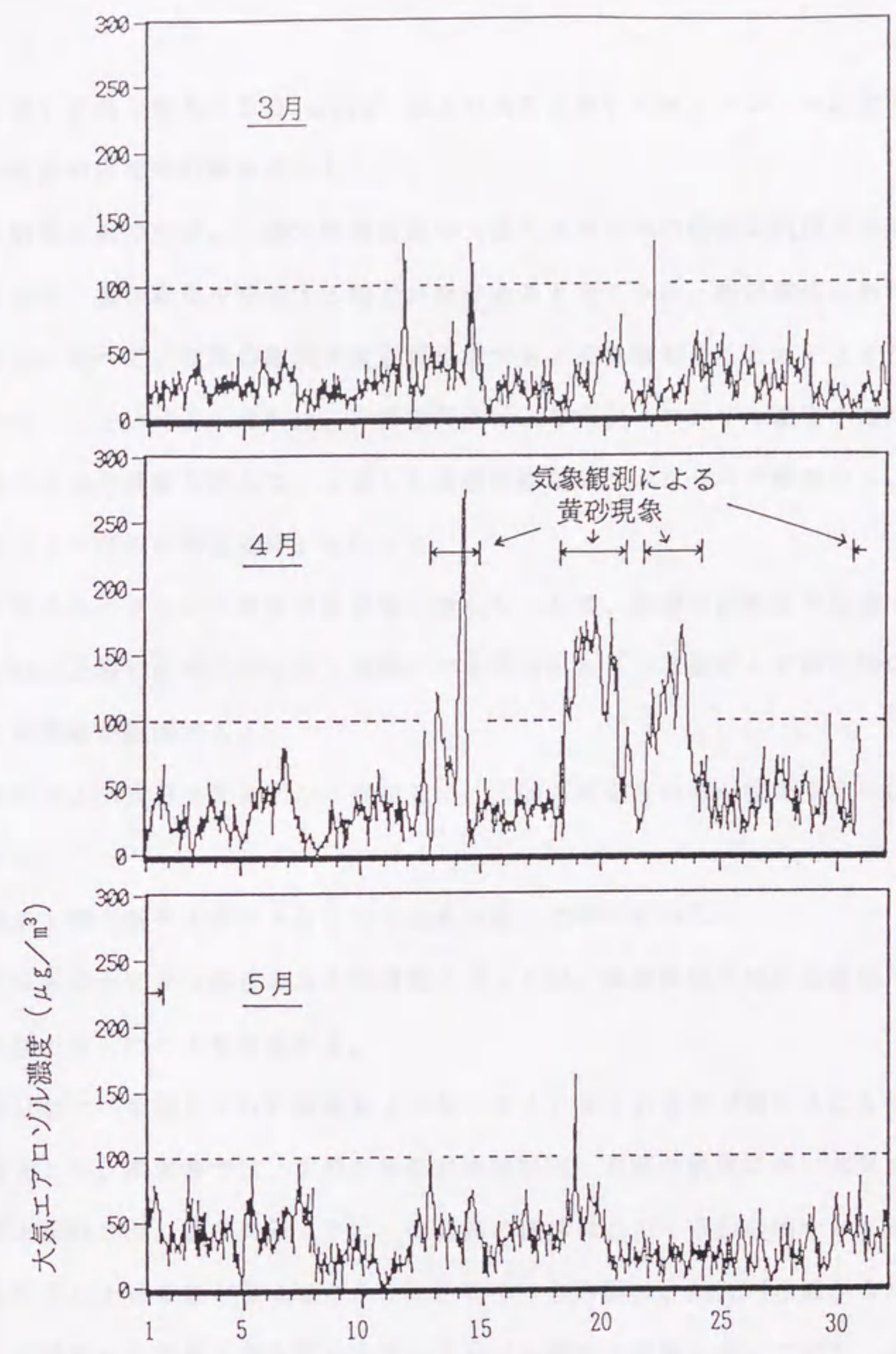


図6 β 線吸収法による大気エアロゾルのモニタリング結果（鹿兒島県串木野）

現象時にはいずれの時も $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上の異常に高い大気エアロゾル濃度を観測し、黄砂現象の出現を明確に感知した。

以上の結果に基づけば、一般大気測定局で大気エアロゾルの監視に利用されている β 線吸収法は、黄砂現象を感知する能力が充分あると考えられ、特に現在行われている目視観測に比べて、夜間の観測や黄砂現象の大きさを見積もることができるなどの点で優れているといえる。それ故、 β 線吸収法による大気エアロゾル濃度の観測から、黄砂現象の出現の推定を試みた。上述した黄砂現象時のモニタリング結果から、以下の「黄砂エアロゾルの判定基準」を作った。

- (1) 日常のモニタリング濃度の変動幅に照らしてみても、急激な高濃度を観測する。
- (2) 50km以上離れた他の測定局（複数）でも同時にあるいは前後して同じ様に急激な高濃度を観測する。
- (3) 前日および当日の天気図から判断して、大陸方面からの風が吹きやすい状態にある。
- (4) 周辺土壌の巻き上げがあるほどの強風が地上で吹いていない。
- (5) β 線吸収法による測定のための捕捉スポットが、高濃度出現時に茶褐色から黄褐色であったことを確認する。

以上5項目がすべて満たされれば最もよいが、(4)までの項目が満たされることを最低条件とした。串木野では、3月から5月の期間に10回の異常に高い大気エアロゾル濃度を記録した。表3に示ように、鹿児島島の風速はこの10回の場合とも周辺土壌を大量に巻き上げるほど強くはなかった。このうち8回は、北九州地域から北陸にかけて、同時期に平常値よりも高い大気エアロゾル濃度を記録した。つまり、高いエアロゾル濃度の空気塊が、広範囲な地域を一時的に被ったと判断できる。この時の天気図から、いずれの場合も大陸方面からの風が吹いていた。したがって、この3カ月間に気象観測で認識されなかった黄砂現象を含めて8回の黄砂エアロゾルの飛来があったと推定できた。このように β 線吸収法による大気エアロゾル濃度の観測は、黄砂

表3 β線吸収法による大気エアロゾルのモニタリング結果
 -ピーク濃度と黄砂現象の関係(1988年) -

| 高濃度 観測期間 | ピーク濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) | 気象観測による 黄砂現象 | 他局でも 高濃度出現 | * 風速 (m/sec.) | |
|-------------|---------------------------------------|-----------------|---------------|---------------|------|
| | | | | 平均 | 最大 |
| 3/11 | 40 | 3/7-8 | | 3.1 | 7.9 |
| 3/14 | 131 | なし | あり | 3.6 | 9.4 |
| 3/22 | 116 | なし | あり | 2.8 | 8.1 |
| 4/13-14 | 131 | なし | なし | 3.6 | 8.1 |
| 4/18-21 | 274 | 4/13-14 | あり | 3.3 | 7.8 |
| 4/22-23 | 194 | 4/18-19 | あり | 2.7 | 10.1 |
| 4/29-30 | 171 | 4/21-22 | あり | 3.0 | 8.0 |
| 5/7 | 102 | 4/30 | あり | 2.1 | 5.5 |
| 5/12-13 | 91 | なし | なし | 4.0 | 8.7 |
| 5/18 | 100 | なし | あり | 3.4 | 7.9 |
| 5/18 | 162 | なし | あり | 2.0 | 4.0 |

* 風速; 気象庁月報「全国気象表」(鹿児島測候所)から

鹿児島県 (串木野)

気測定局における大気エアロゾル濃度（ β 線吸収法）のモニタリング結果である。長崎のモニタリング結果から、4月13日3時ころに小規模な黄砂現象があり、4月14日6時ころに大きな黄砂現象があったことがわかる。4月14日の黄砂現象についてまとめたのが表4である。図7および表4から、日本の西南域から東北域にかけて黄砂現象の出現時刻が徐々に遅れ、しかもピーク濃度もだんだんと小さくなっていくことがわかる。各地の黄砂現象の出現時刻についてマップ（図8）をつくると、その移動方向がさらに鮮明になる。図8は、（a） β 線吸収法による黄砂現象の発現時刻と（b）気象情報による黄砂発現時刻を比較したものである。（a）（b）両者とも、西南域から関東東北域にかけて発現時刻の移っていく様子がよく対応し、黄砂エアロゾルを運ぶ空気塊は、図8（a）に示す矢印方向に動いたと考えられる。事実、笹野、林田（1989）の行った、黄砂エアロゾルの空気塊が通ることが多いといわれる高度約2 kmと4 kmの等温位面による流跡線解析の結果（図9）は、当日、図8の矢印方向に空気塊が流れていたことを示している。したがって、図7のモニタリング結果は、中国大陸で発源した黄砂エアロゾルが、日本列島を西から東へ降下しながら風送されていく様子を定量的に捉えたものといえる。また、長崎、石川、秋田など日本海側に面している地点に比べて、山口、大阪、岐阜、千葉などの地点のモニタリング波形が少しブロードになるようであった。これは、黄砂エアロゾルを運ぶ空気塊が山岳地帯を通過するときに乱れることに因ると思われる。

3. 3節 黄砂エアロゾルの年間通過量と降下量

β 線吸収法による大気エアロゾルのモニタリング結果から、各地の黄砂エアロゾルの通過量を次式から見積った。ここでいう通過量とは、地面に対して垂直に立ち、黄砂エアロゾルの移動方向に対して直角な面（幅1 km x 高さ2 km）を1黄砂現象中に通過した黄砂エアロゾル量と定義する。

黄砂エアロゾルの発生は、主に中国大陸の砂漠地帯から吹来する。この黄砂は、大気中に長時間滞留し、日本列島に到達する。黄砂の発生は、中国大陸の砂漠地帯から吹来する。この黄砂は、大気中に長時間滞留し、日本列島に到達する。黄砂の発生は、中国大陸の砂漠地帯から吹来する。この黄砂は、大気中に長時間滞留し、日本列島に到達する。

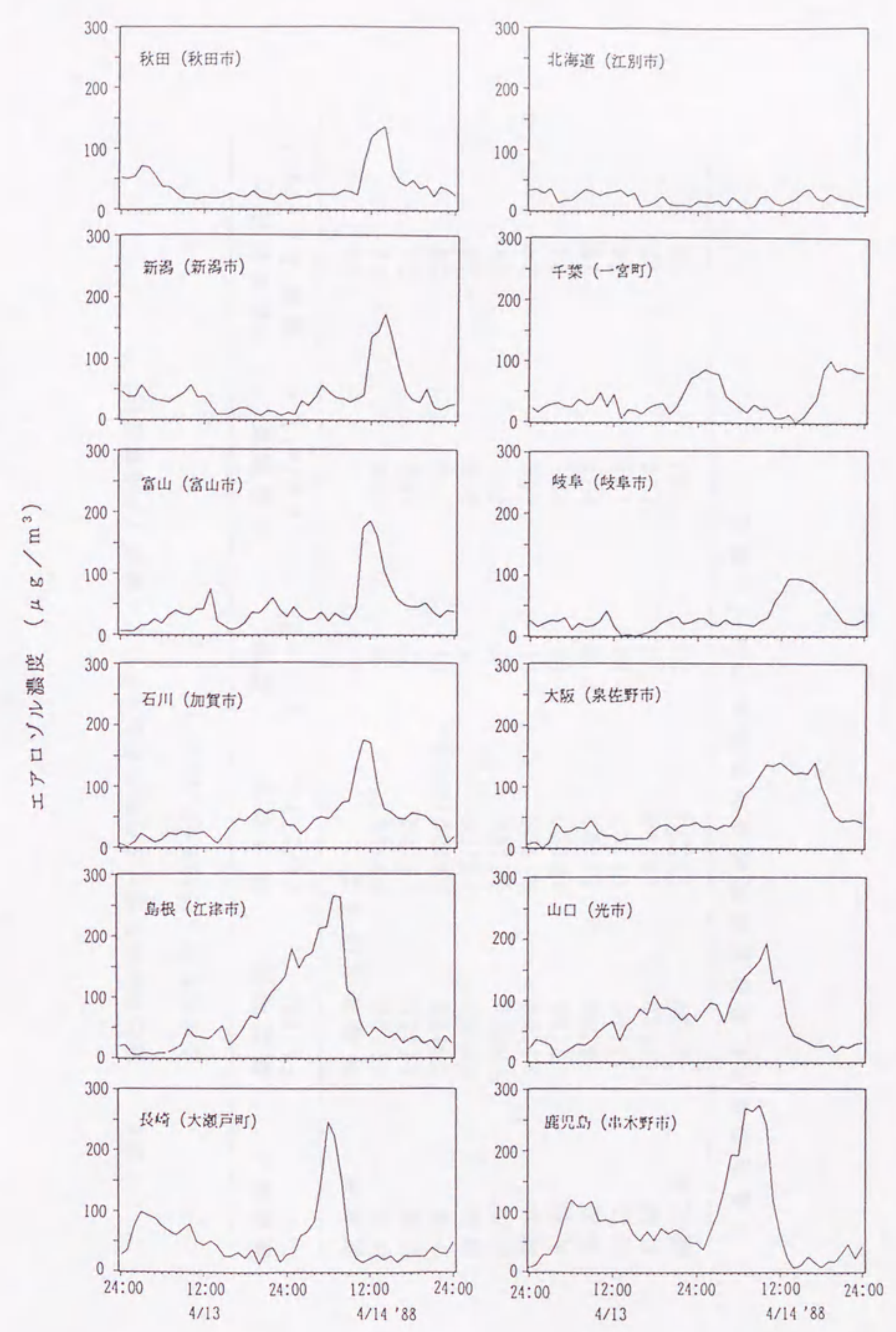


図7 β線吸収法による黄砂エアロゾル(1988年4月13-14日)のモニタリング結果



表4 黄砂現象時における各地の平均エアロゾル濃度(β線吸収法)と出現期間(1988年4月14日)

| 観測地点 | 発現時刻 (4/14) | 終了時刻 (4/14) | 期間 (hr) | 平均濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) | *非黄砂時の 濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) |
|------|----------------|----------------|------------|--------------------------------------|---|
| 北海道 | 高濃度出現せず | | | | |
| 秋田 | 11:00 | 16:00 | 6 | 95 | 15 |
| 新潟 | 11:00 | 17:00 | 7 | 108 | 32 |
| 千葉 | 16:00 | 2:00(4/15) | 11 | 76 | 31 |
| 富山 | 10:00 | 16:00 | 7 | 114 | 29 |
| 石川 | 9:00 | 15:00 | 7 | 111 | 36 |
| 岐阜 | 11:00 | 21:00 | 11 | 68 | 33 |
| 大阪 | 7:00 | 18:00 | 12 | 121 | 34 |
| 島根 | 3:00 | 11:00 | 9 | 174 | 34 |
| 山口 | 4:00 | 13:00 | 10 | 126 | 29 |
| 長崎 | 2:00 | 10:00 | 9 | 128 | 39 |
| 鹿児島 | 2:00 | 12:00 | 11 | 174 | 29 |
| | | | | | 30 |

* 各地の4月における非黄砂時の平均エアロゾル濃度

| 観測所 | 観測時刻 | 観測結果 | 備考 |
|-----|-------|------|----|
| 1 | 10:00 | 11 | |
| 2 | 10:00 | 11 | |
| 3 | 10:00 | 11 | |
| 4 | 10:00 | 11 | |
| 5 | 10:00 | 11 | |
| 6 | 10:00 | 11 | |
| 7 | 10:00 | 11 | |
| 8 | 10:00 | 11 | |
| 9 | 10:00 | 11 | |
| 10 | 10:00 | 11 | |
| 11 | 10:00 | 11 | |
| 12 | 10:00 | 11 | |
| 13 | 10:00 | 11 | |
| 14 | 10:00 | 11 | |
| 15 | 10:00 | 11 | |
| 16 | 10:00 | 11 | |
| 17 | 10:00 | 11 | |
| 18 | 10:00 | 11 | |

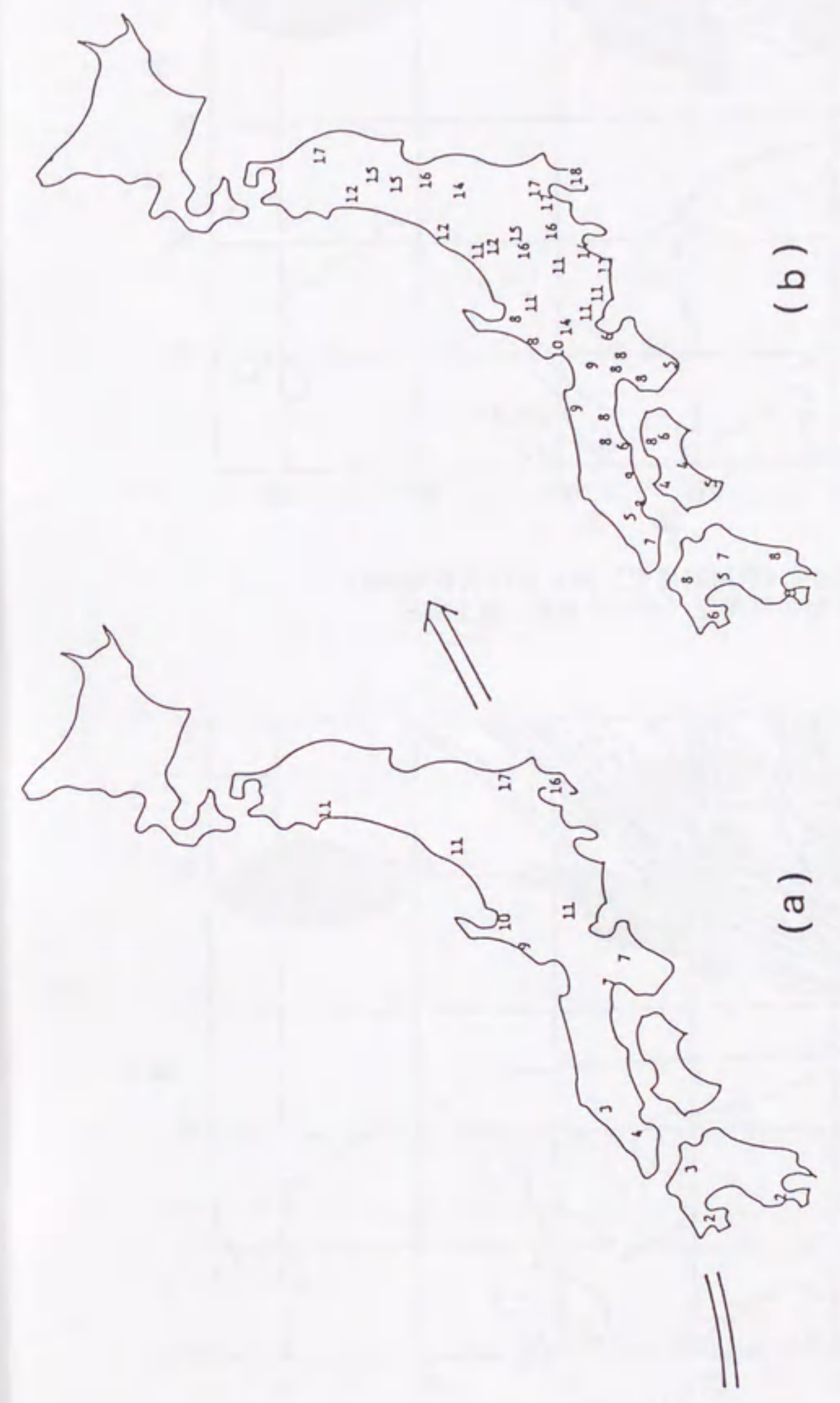


図8 (a)β線吸収法によるエアロゾル観測結果から判断した黄砂現象の発現時刻
 (注; 矢印は、黄砂エアロゾルを運ぶ空気の推定移動方向を示す)
 (b)気象官署からの報告による黄砂現象の発現時刻

に通過した黄砂エアロゾル量と定義する。

$$T_w = 3 \{ (K_c - B) \times 10^{-3} \} \times (H_t \times L) \times (P \times V_s)$$

ここで、

T_w ; 通過量 (ton)、

K_c ; 黄砂エアロゾルの平均濃度 (kg/km^3)、

B ; 大気エアロゾルのバックグラウンド濃度 (kg/km^3)

H_t ; 黄砂エアロゾルの空気塊の厚み

(IWASAKAら(1983)の値、笹野、林田(1989)のレーザーレーダーの観測結果を参考に
にして2 kmとした)

L ; 黄砂エアロゾルの移動方向に対する単位幅で、1 kmと規定した

P ; 黄砂現象の出現期間 (hr)、

V_s ; 空気塊の平均移動速度 (km/hr) とした。

黄砂エアロゾルの実際の空間濃度分布や移動速度を正確に把握することは困難であり、現状ではいくつかの仮定をしなければならない。そこで、黄砂エアロゾルを運ぶ空気塊は、

(1) 地上から2 kmまで上下方向に均一に分布していてそのまま水平に移動する

(2) 黄砂現象の現れた地域の気圧850 mbと700 mbにおける平均風速で空気塊が移動する

という仮定をした。図7の黄砂現象の時、850 mbと700 mbの各地の平均風速は、4月14日21時の天気図からそれぞれ約40と63 km/hrであり、平均移動速度を52 km/hrと仮定した。したがって、これらの仮定のもとに図7、表4中の長崎での黄砂エアロゾルのおおよその通過量を推定すると、 $K_c : 128 \text{ kg}/\text{km}^3$ 、 $B : 2$

9 kg/km³、P : 9 hr、Vs : 52 km/hr より、Tw : 278 ton となる。同様の計算を行うと、各地の通過量 (ton) は、秋田 (118)、新潟 (168)、千葉 (147)、富山 (170)、石川 (170)、岐阜 (117)、大阪 (326)、島根 (407)、山口 (271)、鹿児島 (494) となった。

個々の黄砂現象時における黄砂エアロゾルの通過量を合算して年間通過量 (1988年) を求め、その結果を図10に示した。年間通過量は、九州地域が最も多く緯度が高くなるにつれて徐々に少なくなった。つまり、黄砂エアロゾルの中心塊は九州地域に近い方を通過することが多く、南北方向の広がりには北海道まで届くことが少ないことが明かである。黄砂エアロゾルの移動方向における通過量は、輸送距離に応じて徐々に少なくなることがわかった。田中、北田ら (1990、1991) によれば、春期の東アジアにおけるエアロゾルの長距離輸送を考える場合、日本の太平洋側に生じた低気圧に大きく左右され、この低気圧の南縁に沿う強い西風によって一気に日本上空に飛来すること、また、南北方向の広がりも低気圧の移動に左右されることを示した。しかし、このような場合の粒子の挙動に関する3次元シュミレーションと2次元シュミレーション結果に大きな違いがみられないことから、輸送過程での南北方向の水平な広がり、東西方向や鉛直方向ほどには大きくないこと、そして鉛直方向の拡散が最も大きく寄与することを指摘した。また、序論の中で記述したように、村山 (1991) の行った図11で示す地上気象観測データ (SYNO P) の解析から、1988年4月10-23日の間にあった典型的な3回の黄砂エアロゾルについて、いずれも広がりを中心に近い部分は日本列島を九州域から関東方向に移動した可能性が高いことを指摘した。図10に示す年間通過量は、いくつかの黄砂エアロゾルの通過によるものである。今、年間通過量に寄与した黄砂エアロゾルの仮定の中心塊が、長崎-山口-大阪-岐阜-千葉方向に動いたとすると、その流跡線上の濃度差からおおよその黄砂エアロゾルの降下量が推定できる。実際、各地における年間通過量の5割以上を占める4月14日から24日までの黄砂エアロゾルを運ぶ空気塊の流れは、図9に代表されるように等温

黄砂エアロゾルの年間通過量 (ton) の比較

日本各地における黄砂エアロゾルの年間通過量 (ton) の比較

長崎 (5200)

山口 (4700)

島根 (4500)

大阪 (4000)

岐阜 (3200)

千葉 (2300)

石川 (2100)

富山 (1800)

新潟 (1600)

秋田 (800)

北海道 (300)

鹿児島 (5300)

130°E

140°E

図10 日本各地における黄砂エアロゾルの年間通過量 (ton) の比較

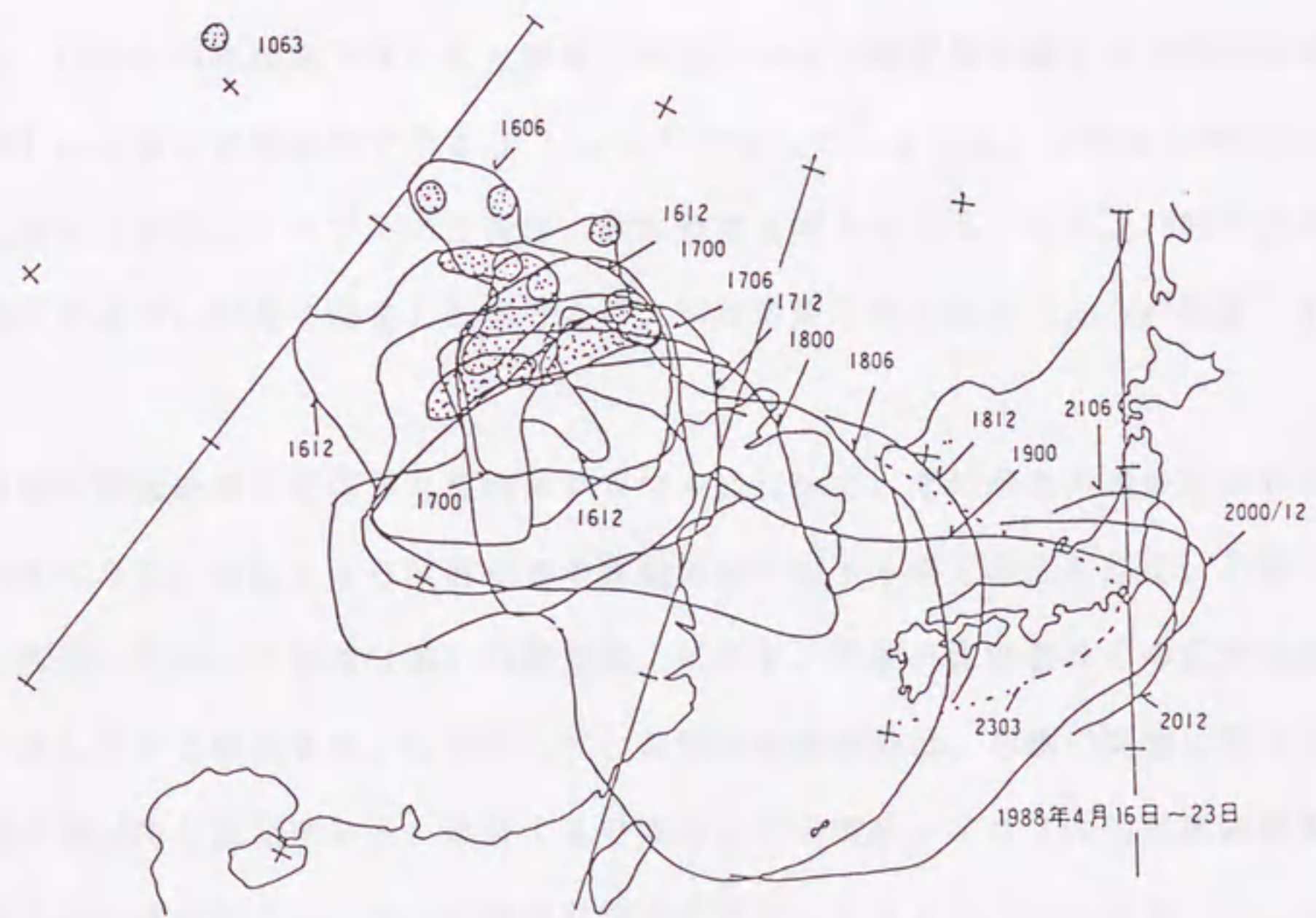
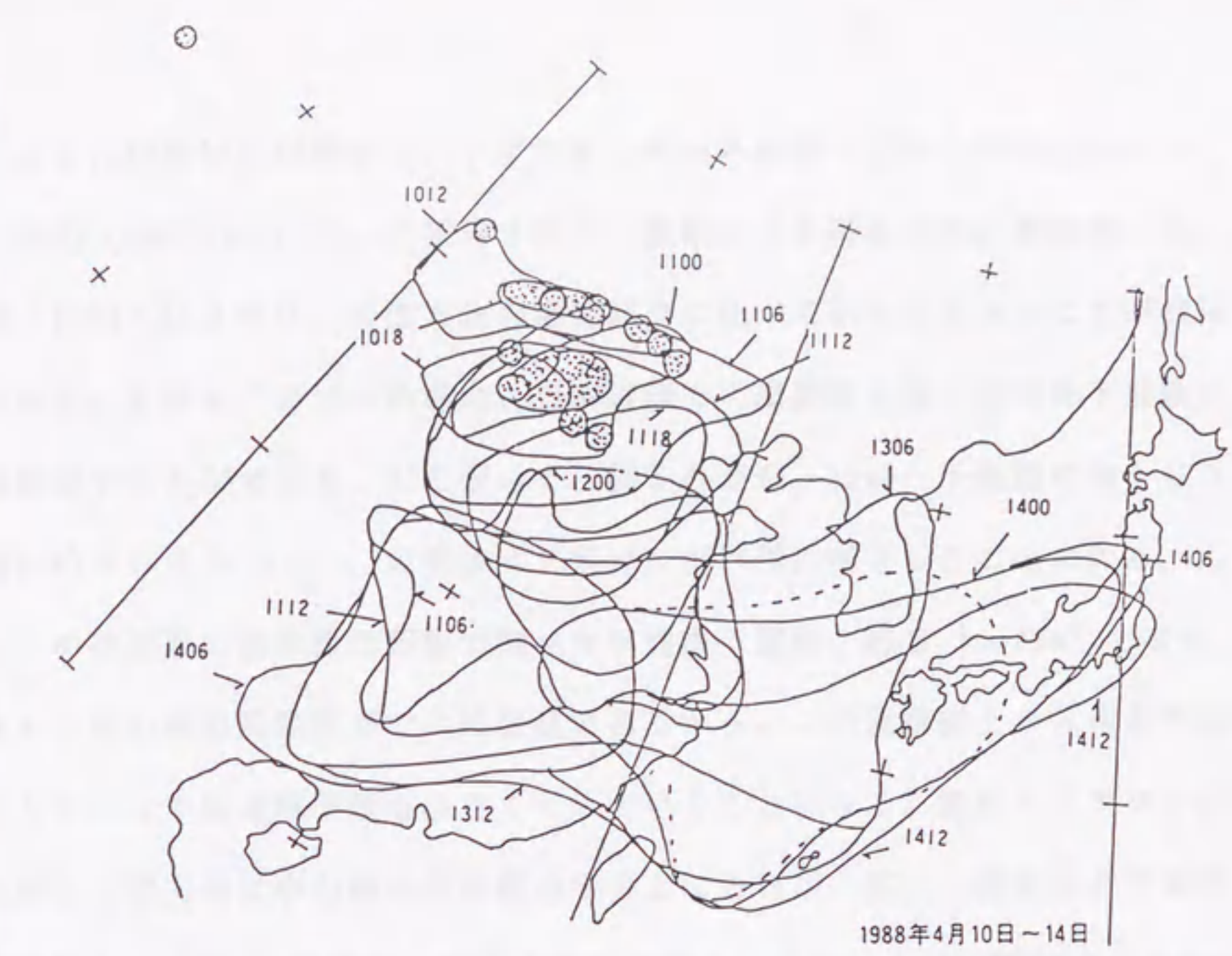


図11 日本で観測された黄砂現象に対して発生地からの黄砂ダスト雲の時系列
ひろがり—SYNOP地上観測データより— (村山、1991)

位面による流跡線解析結果から、いずれも九州から関東へ抜けた可能性が高いことが笹野、林田（1989）らによって報告された。拡散による南北方向の濃度減少は、前述の北田（1991）によれば、鉛直方向の濃度減少に比べてかなり小さいことが指摘されたことから、黄砂エアロゾルの場合、日本近傍での濃度減少は、主に降下現象によると大略見なすことができる。したがって、図10から、長崎-千葉間の約1000kmの間に約3000 ton の黄砂エアロゾルが年間に降下したことになる。したがって、この通過量の差を輸送距離で割った平均降下量は、約3 ton/km² となる。これは仮定した中心塊の通過地点での推定値であるから、この流跡線上から南北方向に離れるにしたがって推定降下量も小さくなっていくことになる。黄砂エアロゾルの移動方向に対して横方向に中心塊の通過量の半分となる石川、富山、新潟などでは降下量も半分の約1 ton/km² 程度に、秋田あたりでは1/3から1/4程度になるものと思われる。1988年の年間降下ばいじん量は、環境庁の大气測定局に関する測定結果報告（1989）によると全国平均で約40 ton/km² であったことから、この年の降下ばいじん量に占める黄砂エアロゾルの負荷は、数%程度と考えられる。なお、1988年は大きな黄砂エアロゾルが多く飛来した年であり、平年の降下量は約2 ton/km²程度と思われる。

前述の年間通過量に寄与した黄砂エアロゾルについて、その南北方向の広がりについて考えてみた。東経140度あたりの移動方向に対する南北の広がりを、千葉（中心）-新潟-秋田-北海道（端）の延長線上にあり、千葉-北海道はその広がり幅の半分を表している仮定する。したがって、左側の破線部分は、右側の実測に基づく実線部分の線対称と仮定すると、東経140度付近での黄砂エアロゾルの年間通過量分布は図12のようになる。その面積を計算すると 2.6×10^6 ton となった。この値は、東経140度付近で見積った場合の日本に飛来した黄砂エアロゾルの年間輸送量に相当する。当然、九州地域を横断する東経130度付近で見積った場合の年間輸送量は、東経130度と140度との間の年間降下量がこの値に加わるのでさらに多

図12は、東経140度付近での黄砂エアロゾルの年間通過量分布を示している。縦軸は通過量(ton)を示し、横軸は距離(km)を示している。千葉から北海道までの距離は、千葉(0km)、新潟(250km)、秋田(400km)、北海道(450km)と示されている。通過量は、千葉で約2000ton、新潟で約1500ton、秋田で約1000ton、北海道で約500tonと減少している。

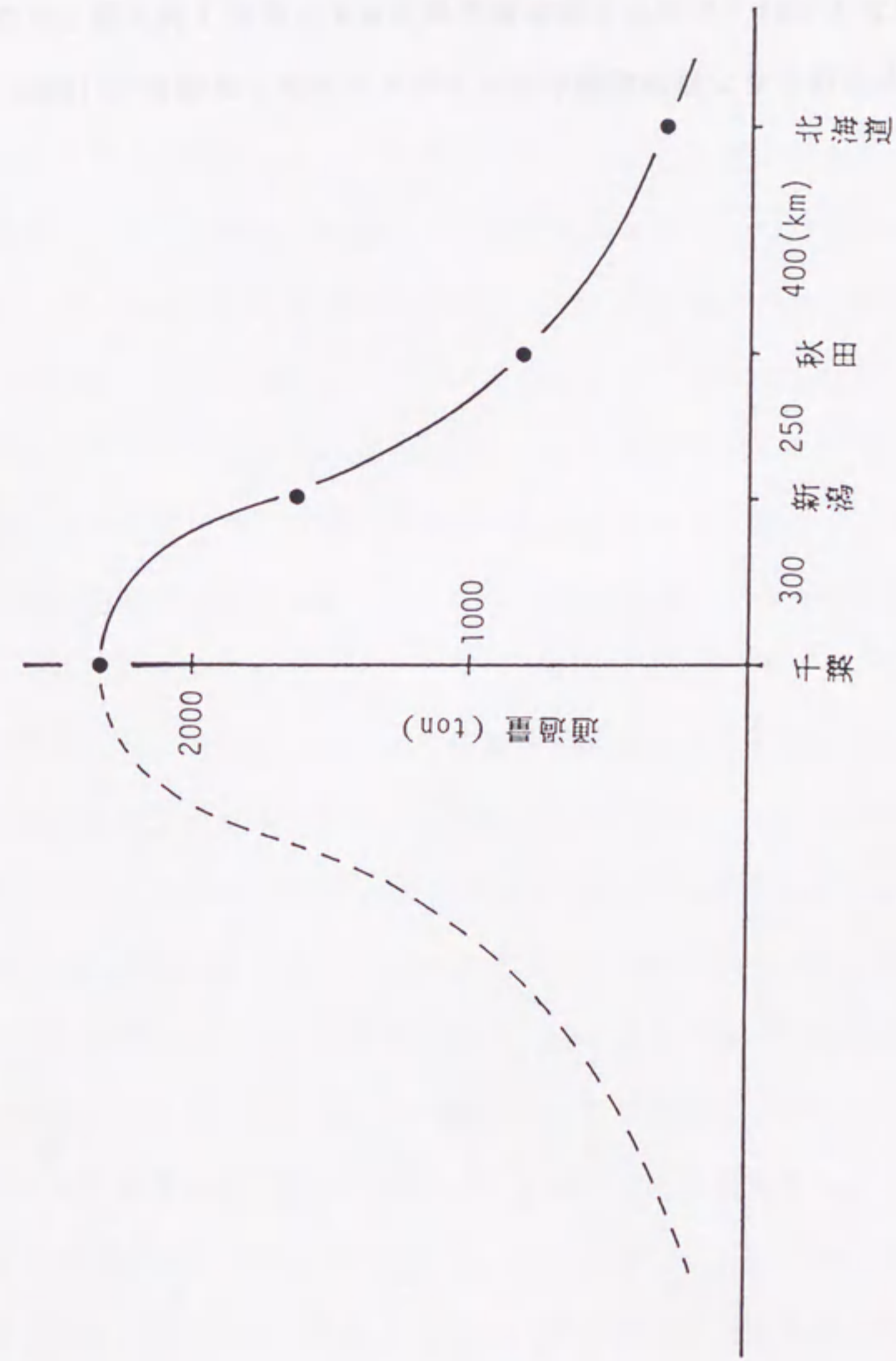
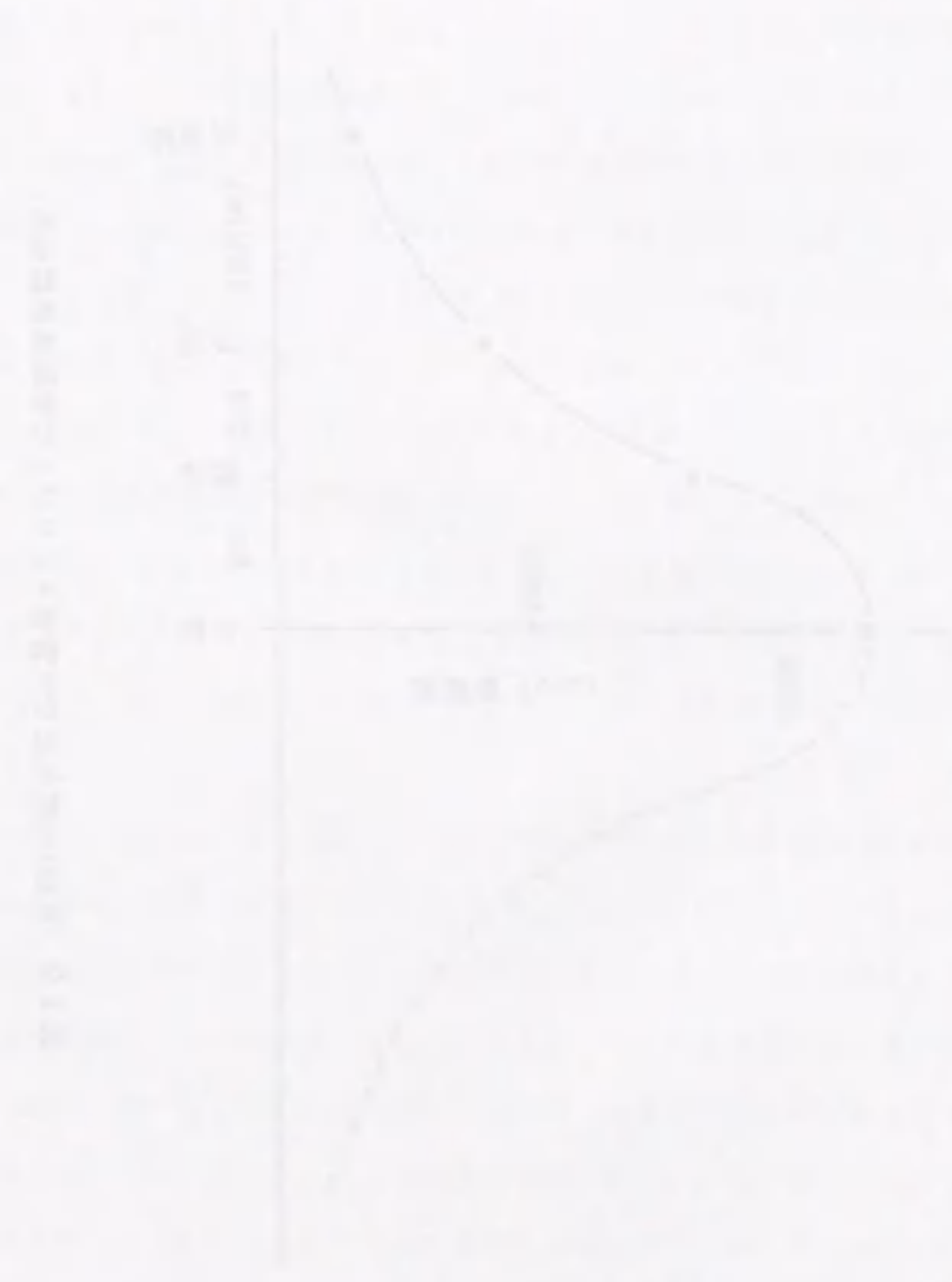


図12 東経140度付近での黄砂エアロゾルの年間通過量分布



くなる。Tsunogai et al. (1985) は、黄砂現象にもとづく大気中の土壌粒子濃度は大陸からの距離の関数となり、500-600 kmごとに濃度が半減すると指摘した。今、黄砂エアロゾルの中国大陸での発源地からの距離を約2000 kmと仮定すると、発源地での発生量は、最大で見積って、先の東経140度付近での値の 2^3 から 2^4 倍となる。仮に約10倍とすると発生量は約 3×10^7 ton となり、これは、D'Almeida (1986) が見積もったサハラダストの年間発生量より1桁小さい量に相当する。