

図 7 から同じ黄砂飛来日であっても、調査地点ごとに SPM 濃度に大きなバラツキが見られる場合（例：2006 年 4 月 18 日～19 日、2007 年 4 月 1 日～2 日）もある一方で、比較的濃度差レベルの近い場合もある（例：2006 年 4 月 18 日～19 日、2007 年 5 月 8 日～9 日）。なお、札幌は、SPM 濃度の時間変動が小さく、対象期間中には顕著な黄砂飛来がなかったと考えられる。また、SPM 濃度だけが高濃度になる場合と SPM と SO<sub>2</sub> がほぼ同期して変動する場合も見られる。また、大陸からの距離が離れるほど SO<sub>2</sub> 値偏差が小さいように見受けられ、一因として SO<sub>2</sub> から硫酸塩等への二次粒子生成が考えられる。これについては、4 章および 5 章で検討する。

ここで図 7 に示した結果を解析するため、便宜的に表 4 の通り黄砂飛来状況分類区分を設定した。

表 4 黄砂飛来状況分類区分

黄砂飛来状況分類	分類基準
黄砂飛来による単独型	SPM が 95%値を超過する正偏差、SO <sub>2</sub> はほぼ正偏差なし
黄砂飛来と汚染された気体の混在型	SPM が 95%値を超過する正偏差、SO <sub>2</sub> も正偏差
非黄砂	SPM は正偏差だが、75%値～95% 値程度の範囲（国内の人為起源汚染物質でも観測しうる範囲）
その他	正偏差の絶対値が小さいため、SPM からは黄砂飛来の可能性を肯定も否定も出来ない。

上記の分類に基づき、図 7 に示した結果を解析し、調査地点ごとの分類結果を表 5 に整理した。

表 5 黄砂飛来状況分類結果

調査日	平年からの偏差による黄砂飛来状況分類結果
2006 年 4 月 8 日から 9 日	黄砂飛来による単独型（松江、富山、犬山、金沢） 黄砂飛来と汚染された気体の混在型（長崎） 非黄砂（太宰府）
2006 年 4 月 18 日から 19 日	黄砂飛来による単独型（新潟） 黄砂飛来と汚染された気体の混在型（松江、富山、犬山） 非黄砂（金沢）
2007 年 4 月 1 日から 2 日*	黄砂飛来による単独型（長崎、太宰府、松江、金沢、富山、犬山、つくば）
2007 年 5 月 8 日から 9 日	非黄砂（長崎、松江、富山、新潟、金沢、犬山、つくば） 黄砂飛来と汚染された気体の混在型（太宰府）
2007 年 5 月 26 日から 27 日	黄砂飛来と汚染された気体の混在型（長崎、太宰府、松江、金沢） 黄砂飛来による単独型（富山、新潟、犬山）

\* 新潟の SPM は欠測

この分類結果については、気象学的要因、ライダー観測結果、化学成分分析結果などを併せて 4 章で詳しく議論する。

### 3.2. 黄砂の物理的性質

#### 3.2.1. 粒径分布

八段型ローボリウムアンダーセンサンプラーにて捕集したエアロゾル試料のピーク粒径を表6に示す。多くの調査地点で4段目（粒径3.3~4.7 $\mu\text{m}$ ）がピークとなる頻度が高い。ただし、長崎では2004年3月30日に2段目（7.0~11 $\mu\text{m}$ ）がピークとなったことから、黄砂発生源に近い西日本においては飛来黄砂の粒径が大きめとなるケースもあった。TSP濃度が高いことなどから、比較的規模の大きい黄砂が飛来したと考えられる2004年3月11日に捕集した試料について、粒径分布を計算した結果を図8に示す。長崎を除いた地点で4 $\mu\text{m}$ 付近にピークをもつ分布であった。また、図の横軸は対数目盛りとなっており、分布の形態は対数正規分布に近い分布、あるいは粒径の小さい位置にピークのある2山分布であった。過去の文献等のデータとも併せて考察すると、日本に飛来する黄砂のピーク粒径は約4 $\mu\text{m}$ 付近と考えられる。

表6 捕集試料のピーク粒径の範囲

調査日	長崎	太宰府	松江	金沢	立山	巻	犬山	つくば	札幌
2003.3.25	4	4	ND		ND	4	ND	ND	ND
2003.3.30	4	4	ND		ND	3	ND	ND	ND
2003.3.31	4	4	ND		ND	ND	ND	4	ND
2004.3.10	3	4	4		ND	4	ND	NA	3
2004.3.11	3	4	4		4	4	4	4	4
2004.3.30	2	ND	4		ND	ND	ND	ND	ND
2004.3.31	NA	ND	NA		ND	NA	4	NA	ND
2004.4.23	3	ND	4		ND*	ND	ND	ND	ND
2004.4.24	ND	4	4		ND*	ND	ND	ND	ND
2004.5.07	ND	ND	4		ND	4	4	ND	ND
2005.3.18	ND	3	4	NA	NA	ND	ND	ND	ND
2005.3.29	ND	3	4	NA	3	ND	ND	ND	ND
2005.3.30	ND	4	4	NA	4	ND	ND	ND	ND

1 : 11-100 $\mu\text{m}$ 、2 : 7.0-11 $\mu\text{m}$ 、3 : 4.7-7.0 $\mu\text{m}$ 、4 : 3.3-4.7 $\mu\text{m}$ 、5 : 2.1-3.3 $\mu\text{m}$ 、6 : 1.1-2.1 $\mu\text{m}$ 、7 : 0.65-1.1 $\mu\text{m}$ 、8 : 0.43-0.65 $\mu\text{m}$ 、BF : 0.03-0.43 $\mu\text{m}$

ND : ピークステージのろ紙の捕集前後の重量差が1 mg 未満 (Not detected)

NA : 欠測 (Not available)

\* : 48時間捕集

11 - 12 March 2004

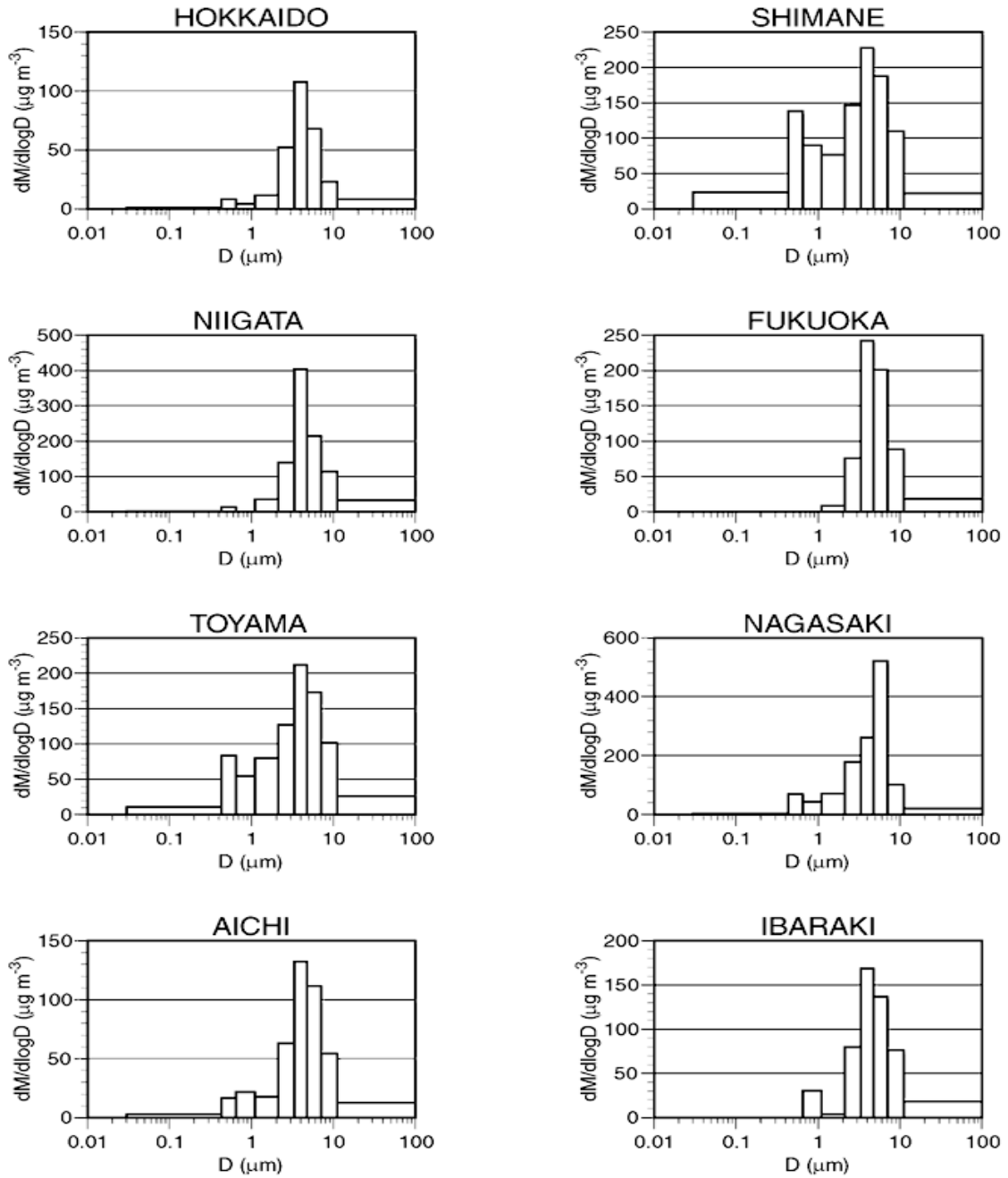


図8 黄砂の粒径分布 (2004年3月11~12日捕集試料)

### 3.3. 黄砂の化学分析結果

#### 3.3.1. 金属とイオン

##### (1) HVIによる捕集

調査日ごとの主な金属・イオン成分平均濃度を図9-1及び図9-2に示した。金属成分濃度は、浮遊粉じん濃度が高く、比較的規模の大きな黄砂が飛来したと考えられる2004年3月11日、2006年4月8日及び2006年4月18日において高かった。一方、イオン成分濃度については、 $\text{Ca}^{2+}$ は黄砂が飛来したと考えられる上記3日、2007年4月1日及び2007年5月26日において濃度が高かった。 $\text{SO}_4^{2-}$ は2006年4月18日及び2007年5月26日だけでなく、2004年5月7日及び2007年5月8日も高かった。 $\text{NO}_3^-$ は、2006年4月18日、2007年4月1日及び2007年5月26日だけでなく、2003年3月25日、2004年2月25日及び2007年5月8日も高かった。

2006年4月8日は、鉱物由来と考えられるAl、Ca及びFeの濃度が高い一方で、人為起源に由来すると思われる $\text{SO}_4^{2-}$ 及び $\text{NO}_3^-$ の濃度は他の調査日と同程度である。一方、2006年4月18日は、Al、Ca及びFeだけでなく、 $\text{SO}_4^{2-}$ 及び $\text{NO}_3^-$ の濃度も高くなっている。このことから、2006年4月18日には $\text{SO}_4^{2-}$ 及び $\text{NO}_3^-$ が黄砂とともに飛来した、または飛来過程で黄砂に付着等の相互作用を及ぼした可能性がある。また、2007年5月26日は $\text{Ca}^{2+}$ 及び $\text{NO}_3^-$ が調査期間中で最も高いことから、 $\text{NO}_3^-$ は黄砂とともに飛来した、または飛来過程で黄砂に付着等の相互作用を及ぼした可能性がある。

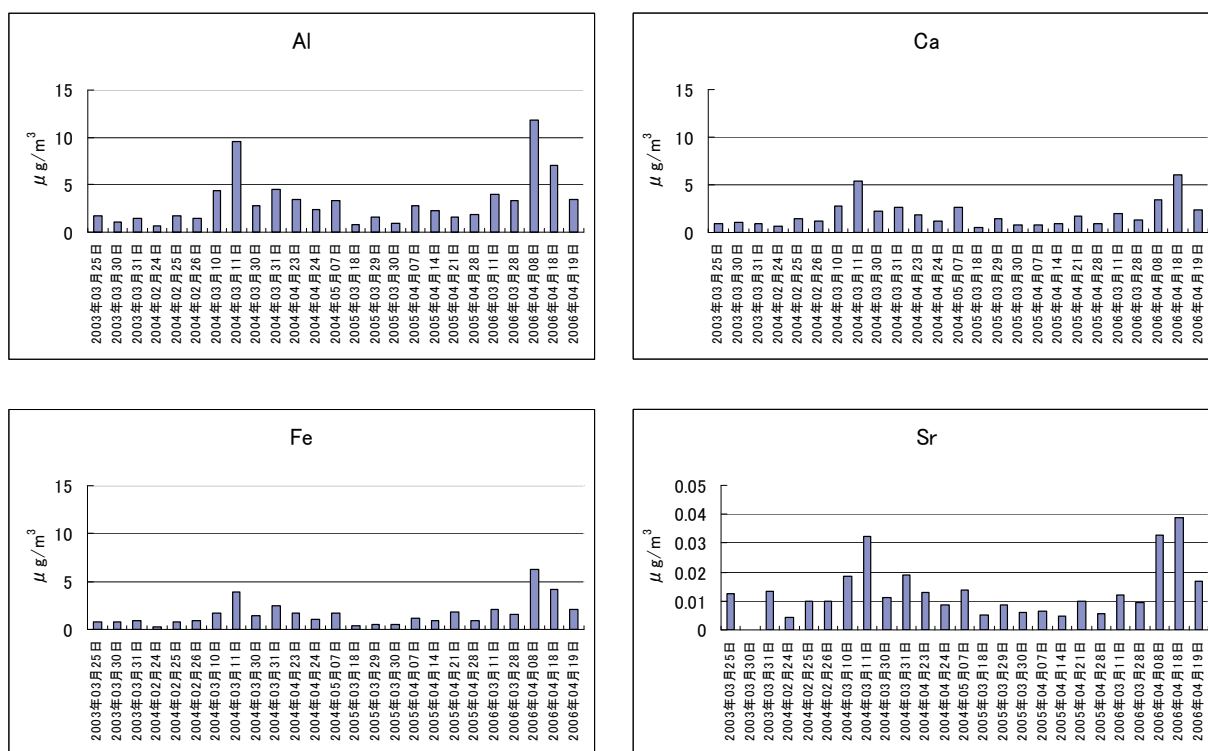


図 9-1 エアロゾル中の金属成分及びTSP濃度（黄砂飛来日別）

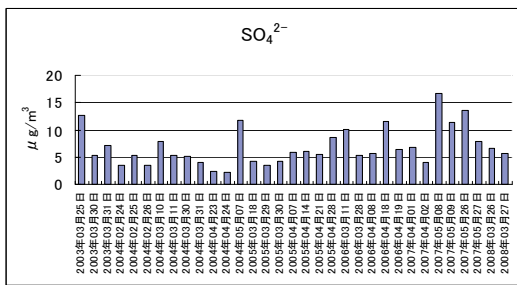
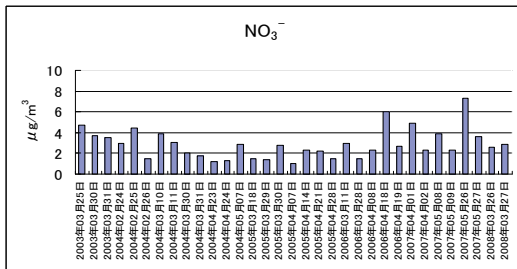
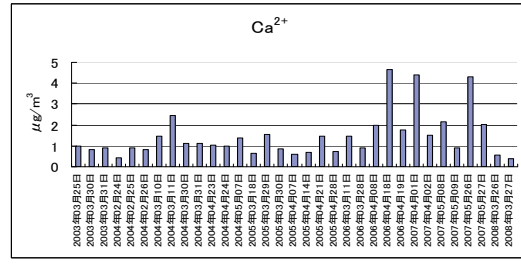
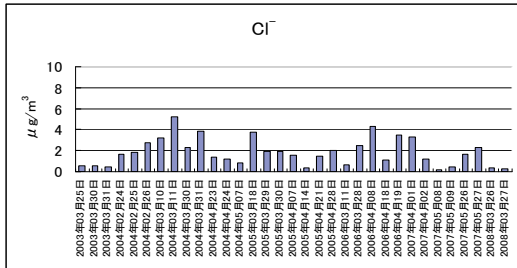
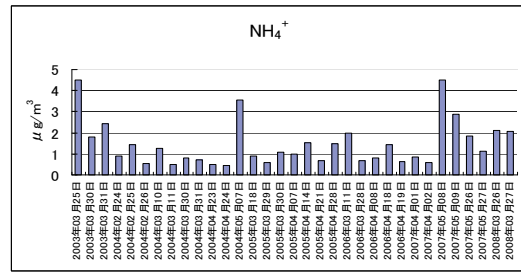
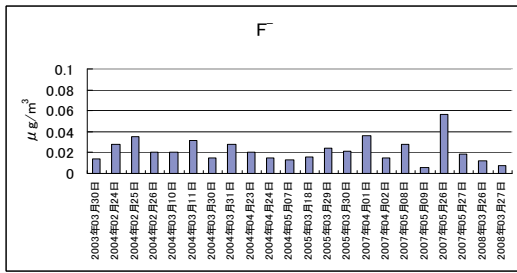


図 9-2 エアロゾル中のイオン成分濃度

## (2) 二段型LVによる捕集

一般的に黄砂は人為起源の大気汚染物質より粒径が大きいことが知られており、また、3-2において、我が国に飛来する黄砂のピーク粒径が $4\mu\text{m}$ 程度であることがわかった。そこで、より詳細に黄砂の化学成分の特徴を把握するため、粒径 $2.5\mu\text{m}$ で分級したエアロゾルの化学成分分析を行った。

二段型LVにより捕集した黄砂試料について、調査日ごとの $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 及びF<sup>-</sup>の平均濃度を粗大粒子側及び微小粒子に分けて図10に示した。なお、粗大粒子側の成分濃度はHVで捕集したエアロゾル中の成分濃度から二段LVにより捕集したエアロゾル中の微小粒子側成分濃度を減じて算出したものである。

$\text{Ca}^{2+}$ は全調査日において粗大粒子の方が微小粒子よりも濃度が高い。また、粗大粒子及び微小粒子ともに黄砂日の2006年4月18日、2007年4月1日及び5月26日に濃度が高く、黄砂の影響が見受けられる。

$\text{SO}_4^{2-}$ は全調査日において微小粒子の方が粗大粒子よりも濃度が高い。粗大粒子側の $\text{SO}_4^{2-}$ 濃度は、黄砂日の2006年4月18日及び2007年5月26日、並びに2007年5月8日に高い。一方、微小粒子側では、2007年5月8日、5月9日及び5月26日に高く、人為起源汚染物質の影響が見受けられる。

$\text{NO}_3^-$ は2007年5月9日及び2008年3月26日を除き、粗大粒子の方が微小粒子よりも濃度が高い。粗大粒子側では、黄砂日の2006年4月18日及び2007年5月26日の濃度が特に高い。

F<sup>-</sup>は2008年3月26日を除き、粗大粒子の方が微小粒子よりも濃度が高い。粗小粒子側では2007年5月8日及び5月26日の濃度が特に高い。

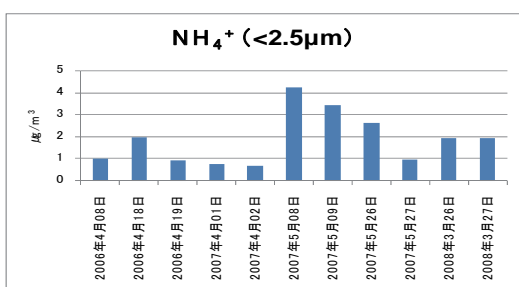
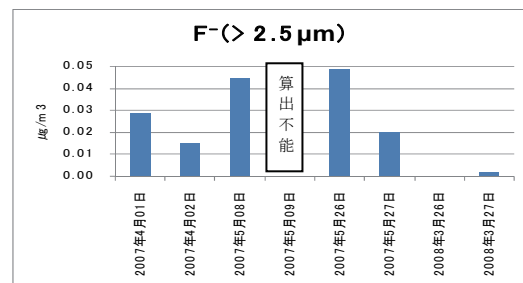
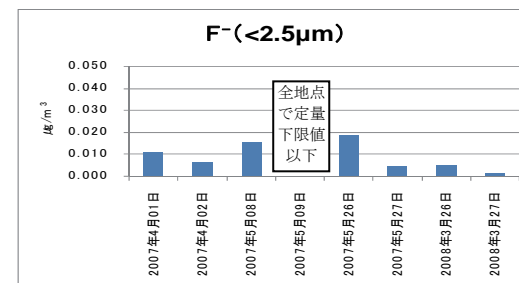
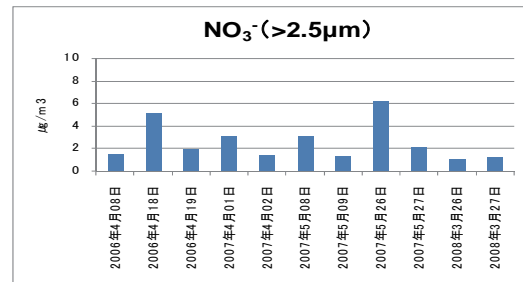
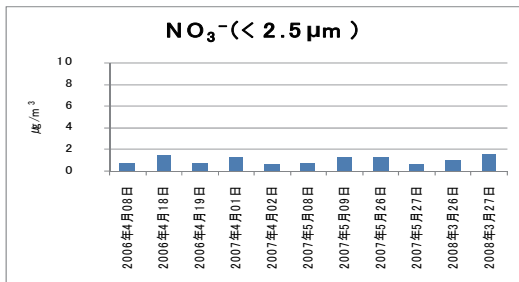
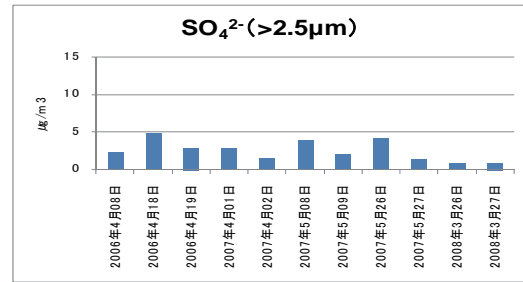
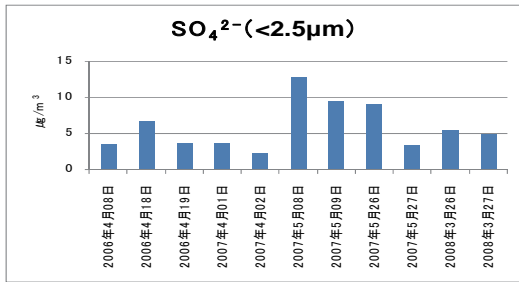
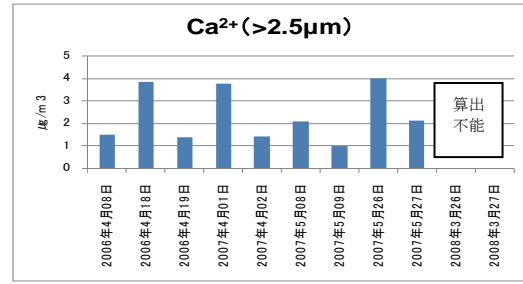
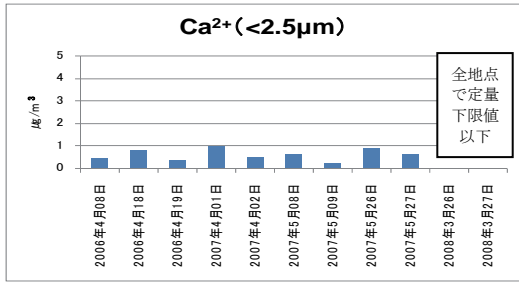


図 10 LV 黄砂成分(イオン)濃度

注 1 HV と LV の両方の成分分析を行った日を対象としている。

注 2 LV の微小粒子側の分析結果が全地点で定量下限値以下の場合、粗大粒子側の濃度を算出してない。

### (3) 黄砂観測日の化学成分 (HV による捕集)

調査地点近傍のライダーで、地上と上空で黄砂を観測した場合（黄砂時）、上空で黄砂を観測した場合（上空通過）、黄砂を観測しなかった場合（非黄砂）に分けてHVで捕集したエアロゾルの化学成分を比較し、結果を図11に取りまとめた。

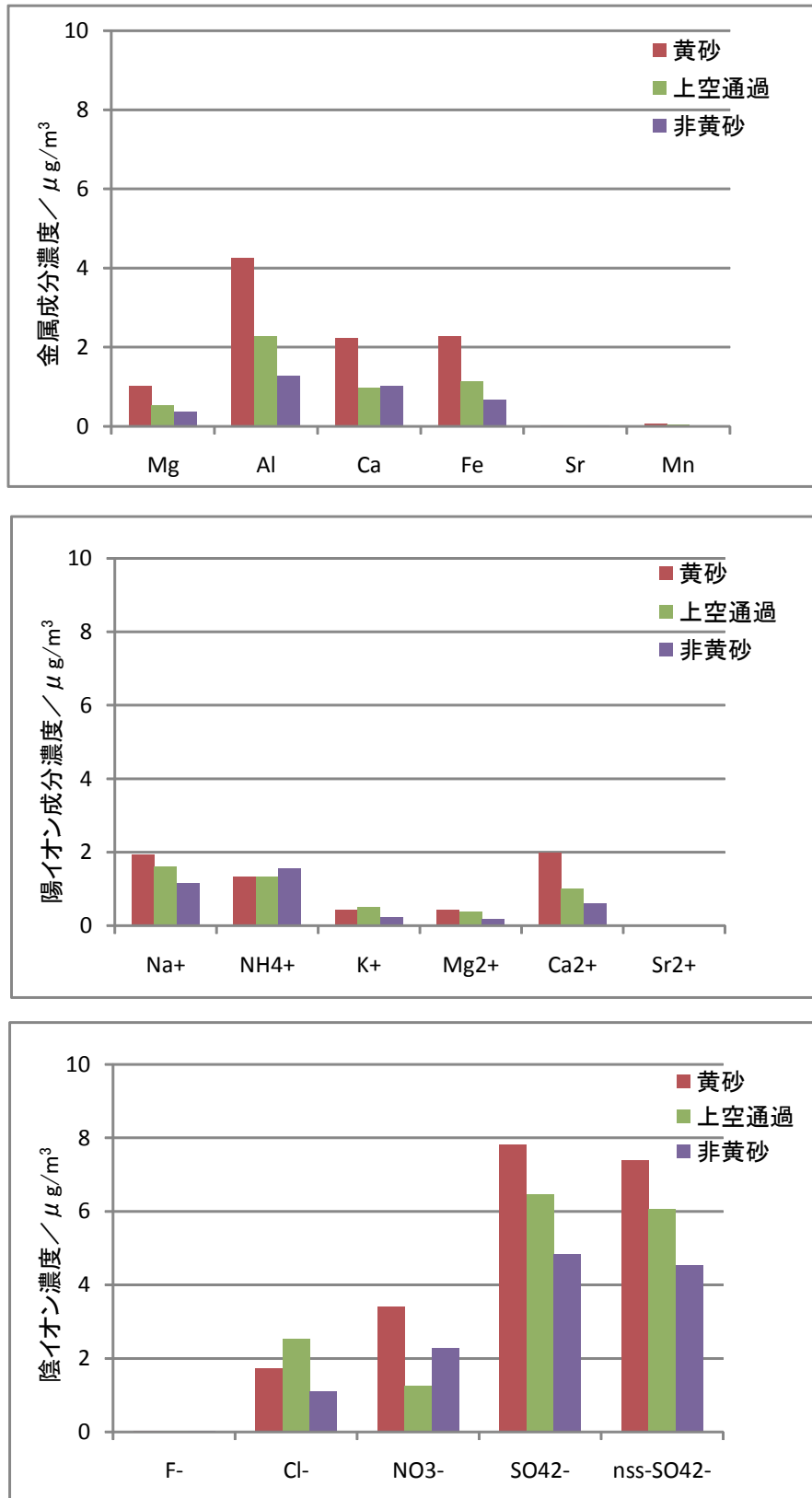


図 11 黄砂状況による化学成分の平均濃度

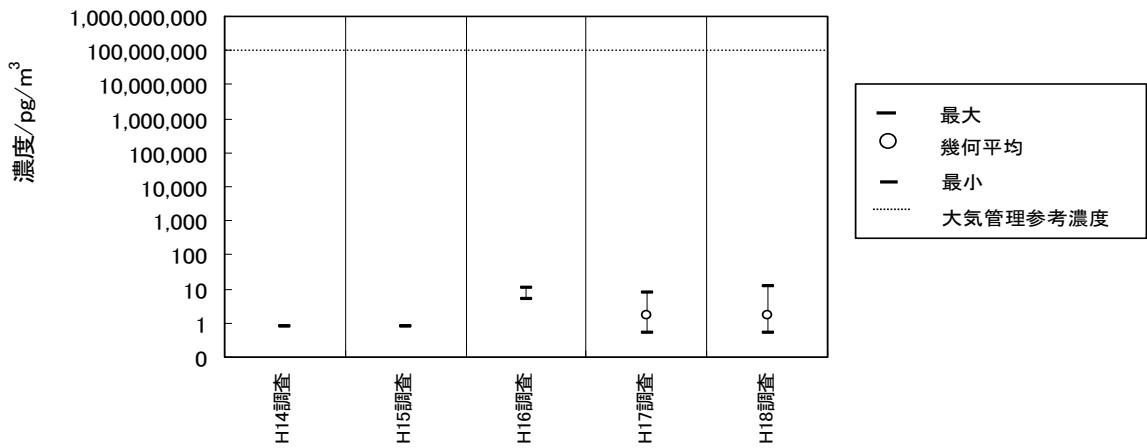


黄砂時には、土壌の主成分である Al、Ca、Fe、Mg 等金属成分濃度が高かった（図 11）。イオン成分では、人為起源と考えられる非海塩性  $\text{SO}_4^{2-}$  及び  $\text{NO}_3^-$  の濃度が黄砂時に高く、非黄砂時には低かった。一方、 $\text{NH}_4^+$  濃度は黄砂時及び非黄砂時ともに同程度の濃度であった。

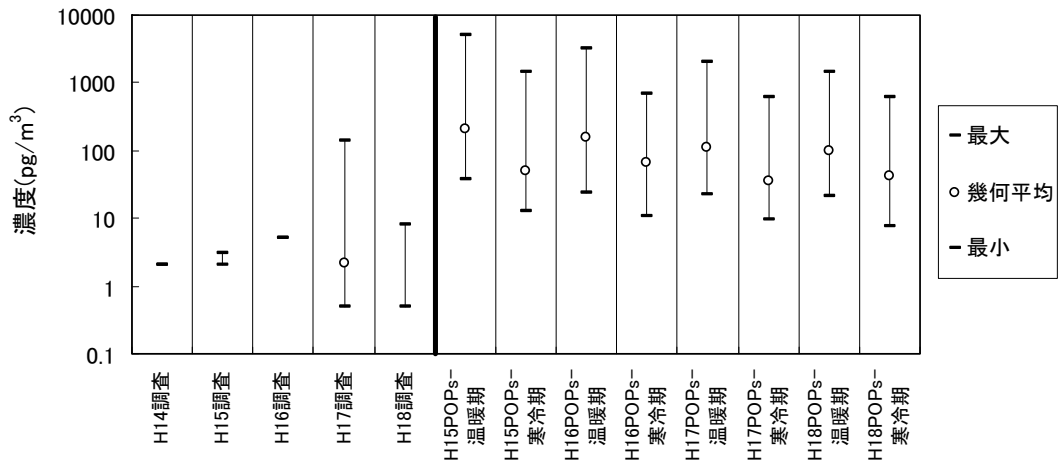
### 3.3.2. 農薬成分分析結果

平成 14 年度から 18 年度に HV で捕集したエアロゾル試料に吸着していたと推測される農薬成分の分析結果を図 12 に示した。今回調査を行った大部分の農薬成分は、非常に低濃度もしくは検出下限値以下であり、また、環境省の POPs モニタリング調査結果（平成 14 年度から平成 18 年度まで）と比較しても、同程度もしくはその値よりも低濃度であった。また、分析した農薬のうち、検出された農薬は、何れも日本で使用されている農薬である。また、DDT 等の残留性有機汚染物質（POPs）は、日本では既に農薬としての使用が中止されているが、POPs の残留性から、まだ日本の土壌中にも含まれているものと考えられる。従って、検出された農薬が、直ちに大陸から飛来したものと断定することは出来なかった。

ジクロルホス



$\alpha$ -ヘキサクロロシクロヘキサン



$\beta$ -ヘキサクロロシクロヘキサン

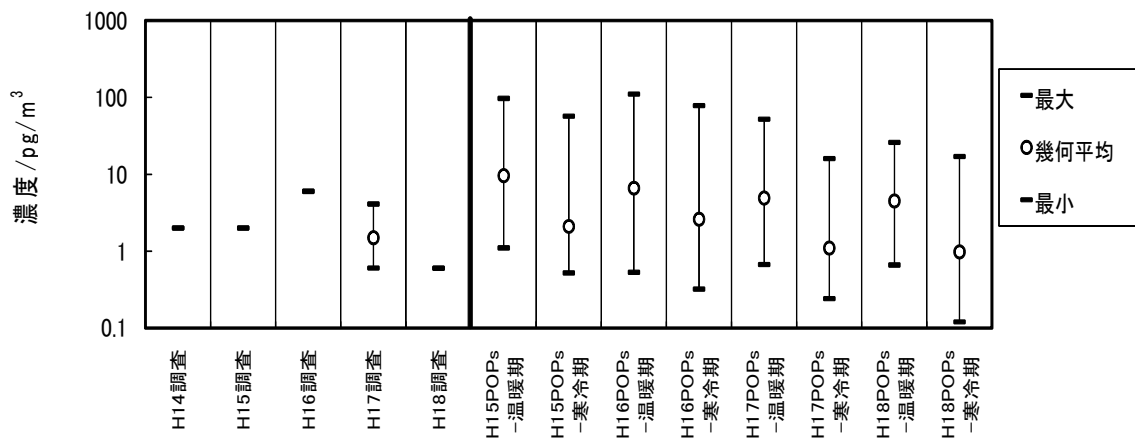


図 12 農薬成分分析結果(1)

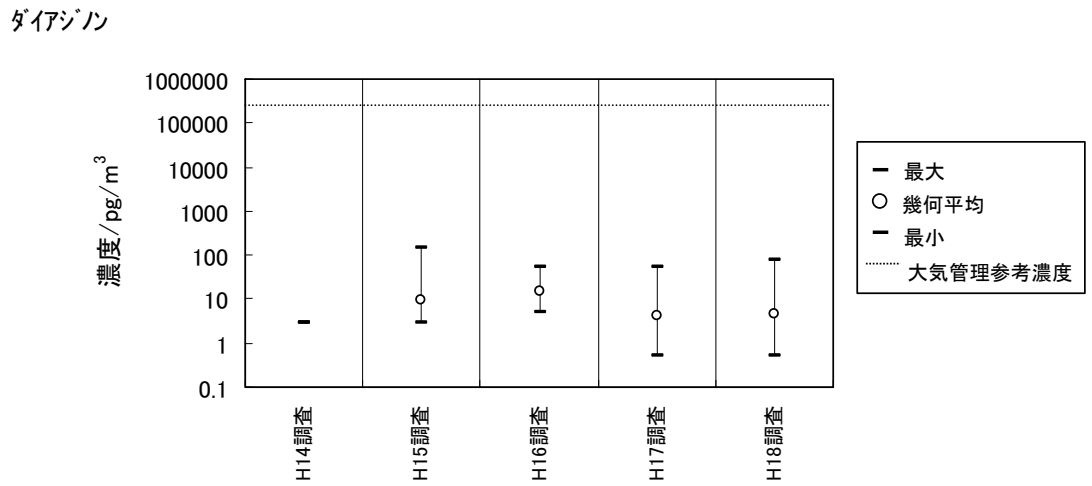
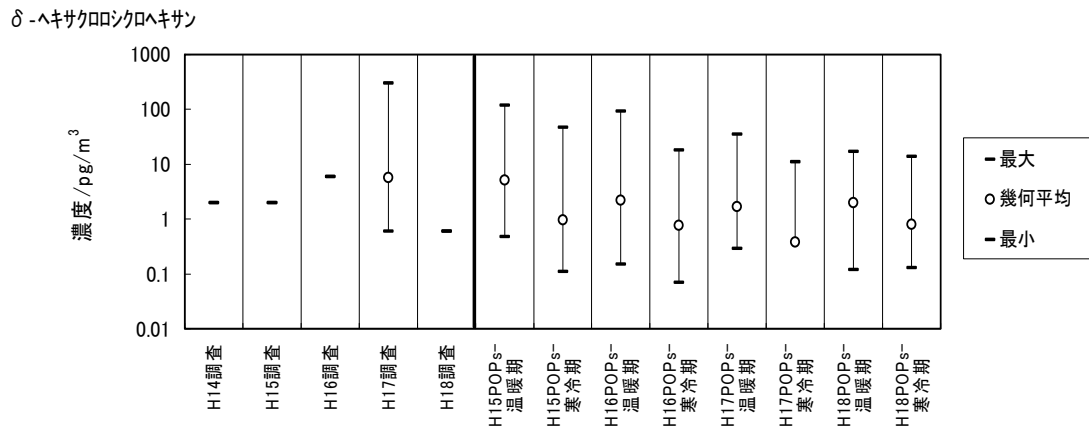
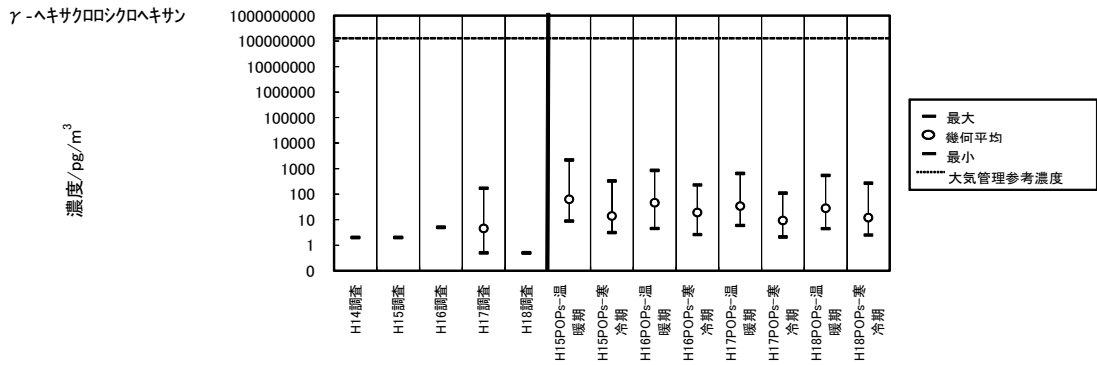
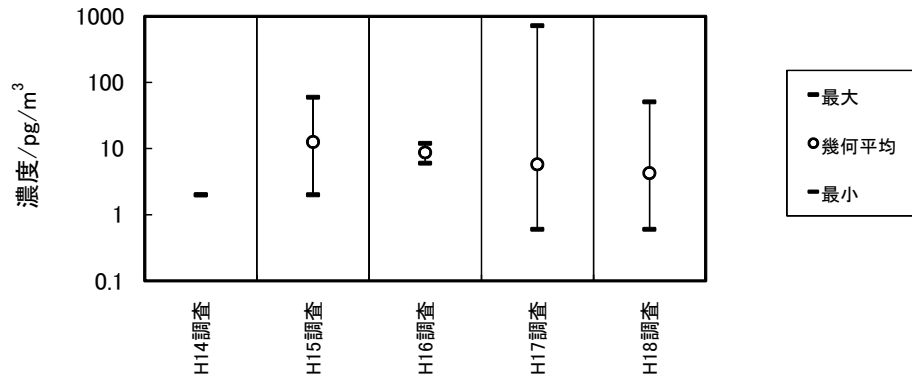
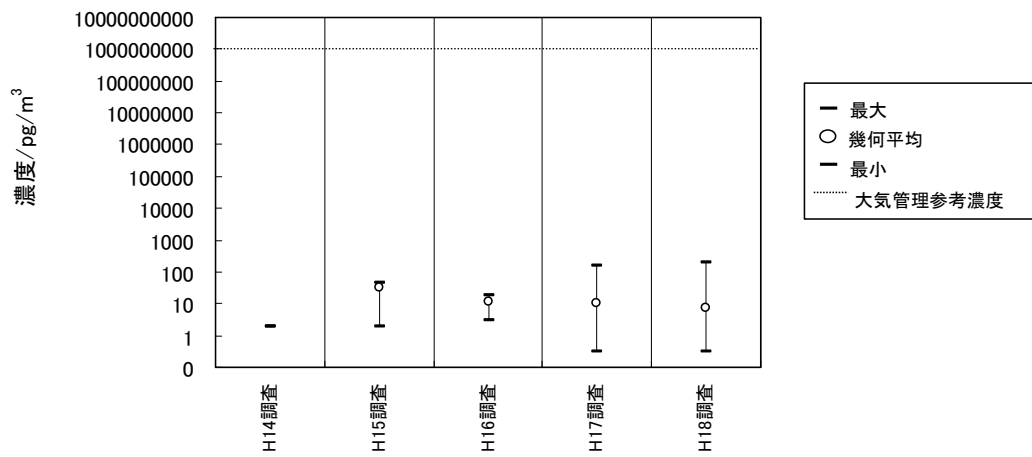


図 12 農薬成分分析結果 (2)

クロタロニル



フェニトロチオン



クロヒピホス

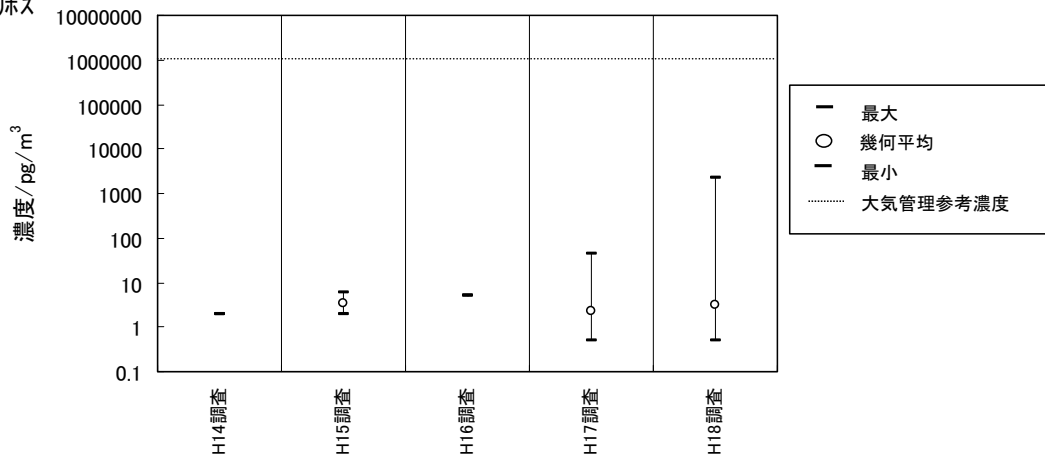
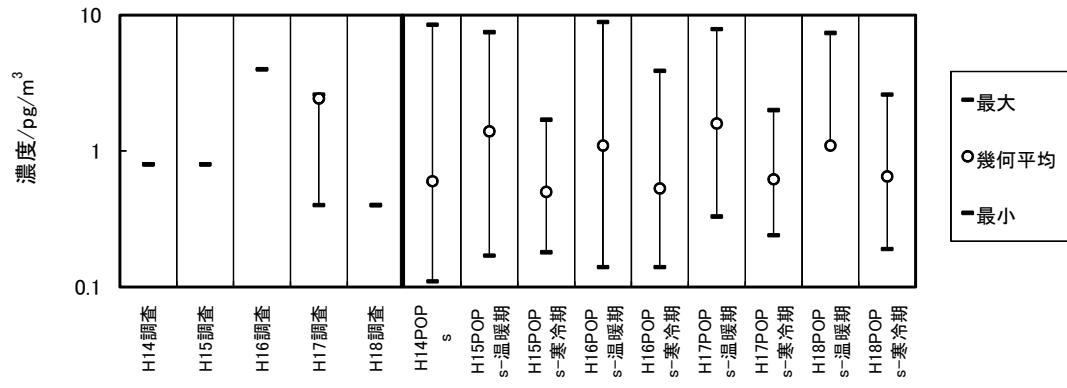
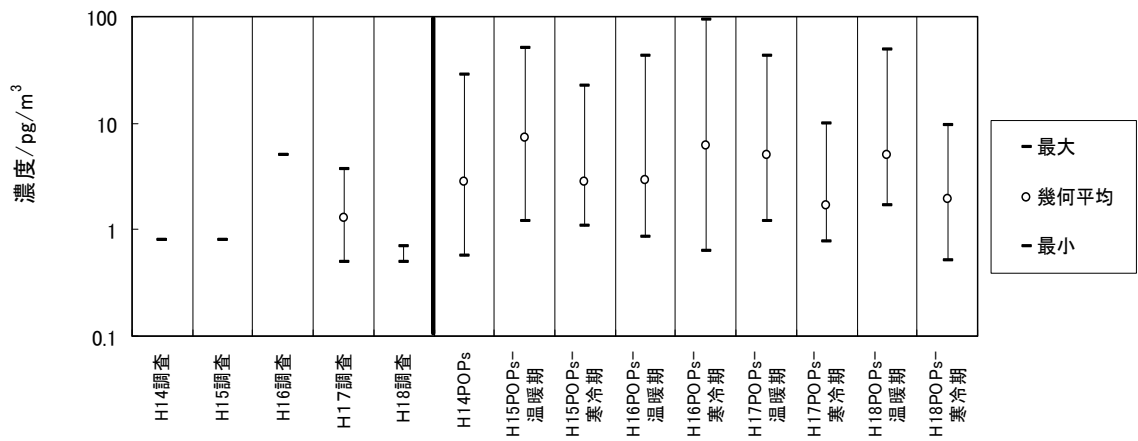


図 12 農薬成分分析結果 (3)

o,p'-DDE



p,p'-DDE



フロンホス

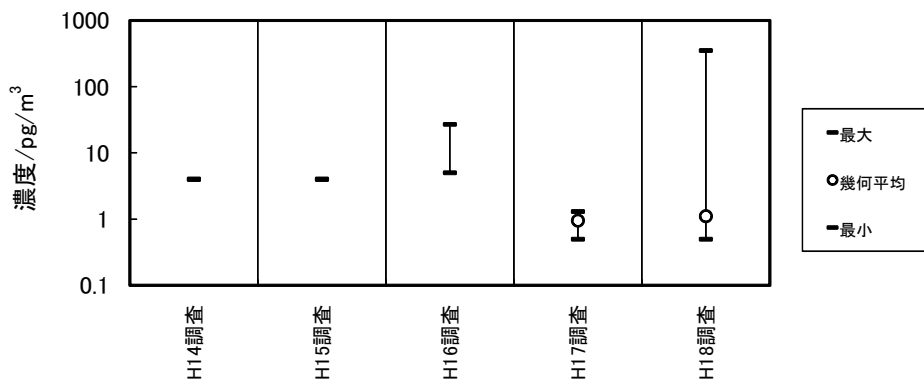
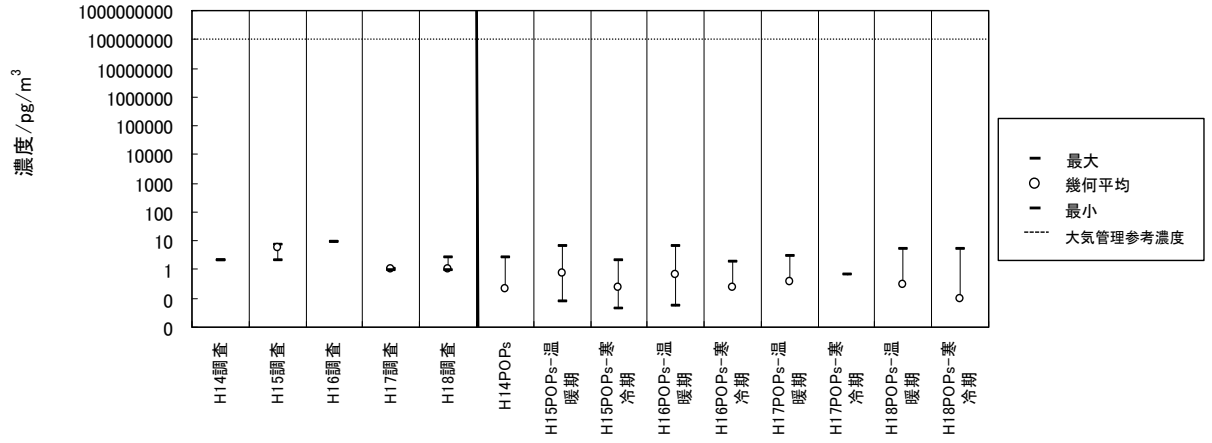
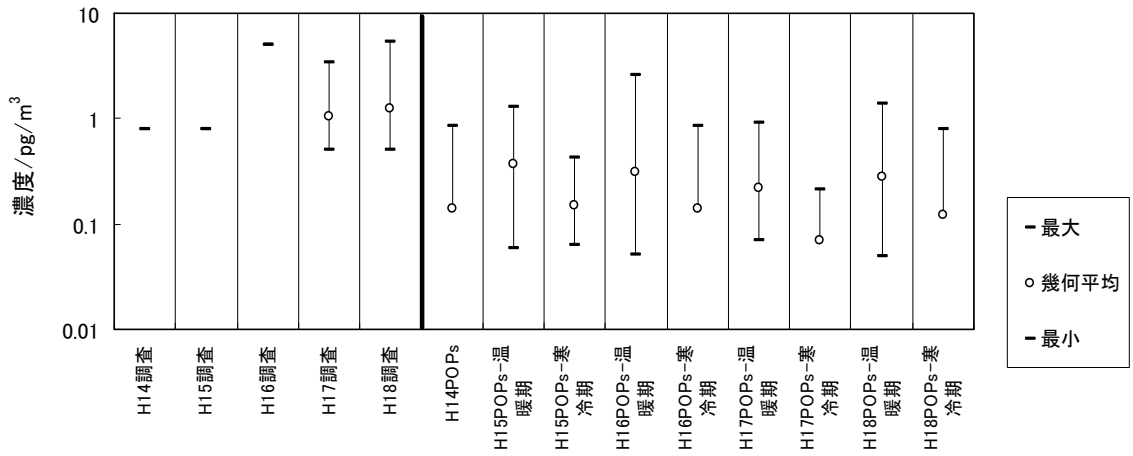


図 12 農薬成分分析結果 (4)

エンドリン



o,p'-DDD



p,p'-DDD

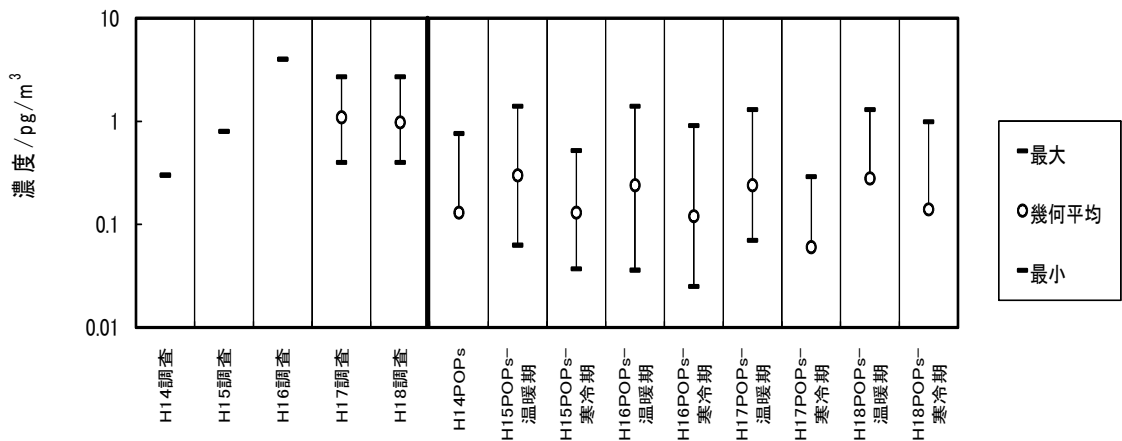
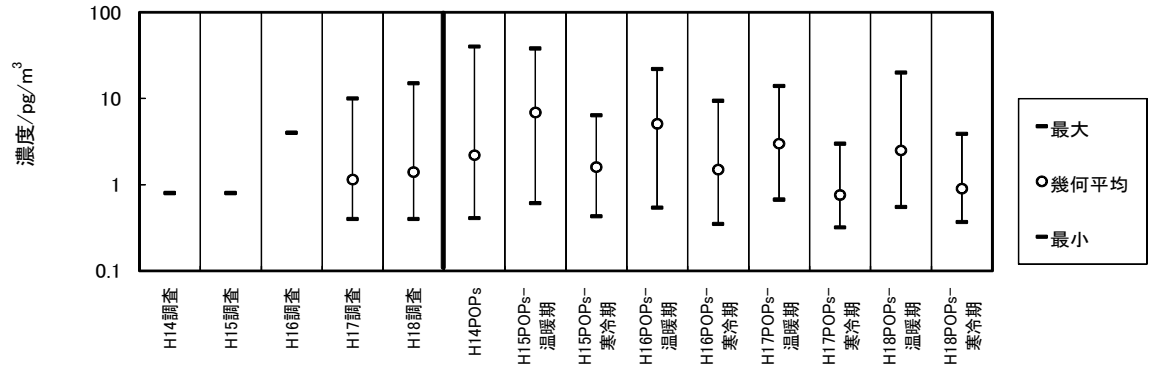


図 12 農薬成分分析結果 (5)

o,p'-DDT



p,p'-DDT

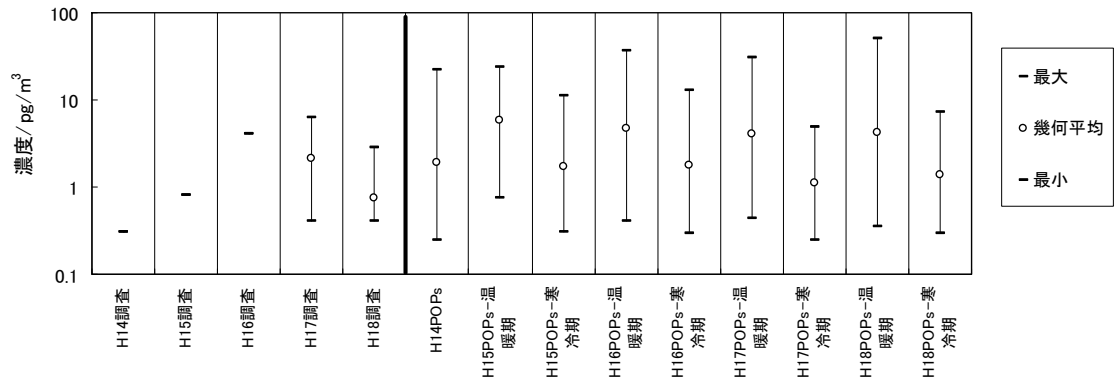


図 12 農薬成分分析結果 (6)

### 3.3.3 水銀成分分析結果

2007年4月から5月にかけてHVで捕集した試料については、黄砂に付着している水銀成分を調査したが、全調査地点において、大部分の試料の水銀成分濃度が、定量下限値以下（ $0.1\text{ng}/\text{m}^3$ ）であることから、黄砂粒子への水銀の付着等の相互作用はほとんどないと考えられる。



#### 4. 黄砂飛来事例ごとの調査結果の考察

2006年及び2007年の気象庁による黄砂観測日数（国内の気象官署のいずれかで黄砂現象を観測した日数）は、それぞれ41日及び34日となっている。また、黄砂観測のべ日数（国内の気象官署で黄砂現象を観測した日数の合計）は、475日及び434日であった。なお、4月の黄砂観測日数は21日及び11日であり、4月の月別黄砂観測日数平年値7.6日を大きく上回っている。1967年からこれまでに黄砂観測のべ日数が最も多かったのは、2002年の857日、黄砂観測日数が最も多かったのも2002年であり、49日となっている。黄砂観測のべ日数は、2000年以降、ほぼ毎年300日を越しており、また、黄砂観測日数も、2000年以降ほぼ毎年30日を越していることから、わが国における黄砂飛来が比較的多くなっていると考えられるが、黄砂は年毎の変動も大きいため、長期的な傾向は明瞭ではない。

本調査期間中で黄砂飛来日数が比較的多く、ライダーモニタリングネットワークが全国的に構築された2006年から2007年において浮遊粉じん濃度等が高かった以下5つの飛来事例を用いて詳細に実態解明を行った。

- 2006年4月8日から9日まで
- 2006年4月18日から19日まで
- 2007年4月1日から2日まで
- 2007年5月8日から9日まで
- 2007年5月26日から27日まで

早崎ら（2006）は、2006年4月8日の黄砂飛来日の状況を、地球観測衛星Aqua搭載の中分解能撮像分光放射計（MODIS）による可視画像と地上の一般環境大気測定局のSPM濃度と併せて解析し、日本上空に見られる帯状黄砂領域と地上のSPM高濃度地域が対応していることを示唆した。また、杉本ら（2005）は、地上に降下せずに上空を通過する黄砂飛来をライダー観測で捉えたことを報告している。

そこで、本調査においては、黄砂飛来事例の解析にあたり、一般に入手が可能な公開データを用いて簡便に解析することに主眼をおき、気象概況を運輸多目的衛星ひまわりのデータ、地上実況気象通報式、気象庁地域気象観測システムのデータにより検討し、汚染物質の動態については、3.1.3 SPM・SO<sub>2</sub>濃度による黄砂飛来分類で試行したSPM・SO<sub>2</sub>濃度の平均と偏差による解析手法を取り入れ、これに、CFORSを参照したライダー観測によるデータを考慮し、化学成分から解析した特徴を加えて、総合的に検討することによりそれぞれの事例解析を行った。

## 4.1. 使用データ

### 4.1.1. 気象データ

広域の雲分布などを見るために、運輸多目的衛星ひまわり 6 号の赤外 1 チャンネル（観測波長帯 10.3 - 11.3  $\mu\text{m}$ ）の等価黒体温度データを用いた（公開元：千葉大学環境リモートセンシング研究センター）。地上における黄砂観測データとして、世界各国の気象機関から全球気象通信システム (GTS) 回線を通じて地上実況気象通報式 (SYNOP) により報じられている現在天気 (6 時間間隔) を用いた。また、日本国内の地上気象観測データには、気象庁地域気象観測システム Automated Meteorological Data Acquisition System (AMeDAS) の 1 時間値を用いた。

### 4.1.2. ライダーデータ解析手法

各地点のライダーは、532nm および 1064nm の 2 波長で後方散乱強度鉛直プロファイルの観測を行い、このうち 532nm では散乱光の偏光状態についても観測している。データ取得時の鉛直分解能は 6m であるが、解析の時点では 5 点を足し込んで 30m 分解能としてある。観測開始時刻は毎時 0・15・30・45 分、平均時間は 1 観測あたり 5 分間である。

まず、各チャンネルの後方散乱強度は前回解析時に推定した装置定数を用いて減衰補正なし後方散乱係数に変換される。次いで 1064nm の鉛直プロファイル形状から雲底・雲頂高度を検出する。また 2 波長比から降水の有無と高度範囲を決定する。高度 6km まで晴天の場合、Fernald 法によって 532nm について減衰補正と粒子・分子成分の分離を行う。この時ライダー比 (消散・後方散乱比) は黄砂を念頭に置き 50sr とする。曇天時は雲底高度以下で減衰を無視し、分子成分を単純にマイナスして粒子の後方散乱を得る。これらの結果に基づき、532nm の粒子偏光解消度を求め、これが 35% の時に全ての粒子は黄砂、0% の時全ての粒子が人為汚染 (球形) 粒子になるよう外部混合状態を推定する。黄砂・球形の両成分について後方散乱係数を消散係数に変換したのち、黄砂については  $1\text{mg}/\text{m}^3 \cdot \text{km}$  を乗じて質量濃度を推定する。これら計算結果を用いて新たな装置定数を推定・保存してデータ処理を終了する。

### 4.1.3. CFORS (Chemical weather FORecasting System)

九州大学応用力学研究所の鶴野伊津志教授らによって開発された化学物質輸送領域数値モデル。本報告書内の図は、国立環境研究所で定常運用を行っているバージョン (RIAM/NIES-CFORS) による黄砂イベント当時の予報計算結果を示す。モデル計算領域は東アジアの東西 8000kmx 南北 7200km で、水平グリッド間隔は 80km、鉛直には高度 20km までに 23 層。CFORS の気象部分 RAMS (Regional Atmospheric Modeling System) は、境界条件として気象庁全球スペクトルモデルの解析値・予報値を利用しモデル内の風速・温度等はこれらにナッジングされる。ユーラシア大陸内部の地表面では、予め与えられた地表面状態 (植生・積雪・土壌水分等) と地上風速とが条件を満たすと黄砂の飛散がモデル内で生じ、移流・拡散・重力落下・湿性/乾性沈着のプロセスが計算され黄砂の 3 次元分布を予測する。なお黄砂の粒径分布は 12 ビンで、解図では地上高度 0~1km で平均した黄砂の全粒径範囲の重

量濃度が示されている<sup>5</sup>。

#### 4.1.1. 化学成分

HV によって捕集されたエアロゾル中の水溶性成分の分析値を解析に使用した。ただし、降水によりエアロゾルの化学組成が変化することが懸念されるため、捕集期間中に 0.5 mm 以上の降水が記録された試料の分析値は解析に用いなかった。本報告書では以下の 2 つの比の値を用いて、個々の事例の化学的特徴を明らかにすることを試みた。

$$(\text{NO}_3^- + \text{nssSO}_4^{2-}) / \text{TSP} \text{ [g/g]} \quad (\text{式 1})$$

$$\text{exAnion} / \text{TSP} \text{ [eq/g]} \quad (\text{式 2})$$

式 1 は、その起源が主に人為的と考えられている硝酸イオンと非海塩性硫酸イオンの積算値の捕集粉塵量に対する比である。この比が大きければ、エアロゾル中の人為的汚染物質の割合が高いと解釈できる。式 2 の、exAnion (excess anion) は式 3 で表すことができる。

$$\text{exAnion} = \text{nssSO}_4^{2-} + \text{NO}_3^- - \text{NH}_4^+ - \text{exNa}^+ \text{ [}\mu\text{eq/m}^3\text{]} \quad (\text{式 3})$$

$$\text{exNa}^+ = \text{Na}^+ - 10773/19344 \text{ Cl}^- \text{ [}\mu\text{g/m}^3\text{]} \quad (\text{式 4})$$

式 3 は、硫酸アンモニウムや硝酸アンモニウム、海塩エアロゾル以外の形で存在している硝酸イオンと硫酸イオンの積算値を表す式である。黄砂エアロゾルに付着している可能性がある硝酸イオンと硫酸イオンの積算値とみなすこともできる。したがって、式 2 は黄砂エアロゾルに付着する可能性がある硝酸イオンと硫酸イオンの積算値の捕集粉塵量に対する比とみなすことができる。

---

<sup>5</sup> Uno, I., et al. (2003), Regional chemical weather forecasting system CFORS: Model descriptions and analysis of surface observations at Japanese island stations during the ACE-Asia experiment, *J. Geophys. Res.*, 108(D23), 8668, doi:10.1029/2002JD002845.

## 4.2. 主な黄砂イベントの解析

### 4.2.1. 2006年4月8-9日

#### (1) 気象概況

2006年4月7日から9日にかけての天気図を図13に示した。図から、2006年4月8日には、寒冷前線を伴う低気圧が東進し、日本海から東北地方を通過していることが分かる。この寒冷前線通過時に、東日本及び東北では雷雨となっている。また、前線通過後は、寒冷前線の寒気側で黄砂が観測され、その観測範囲は西日本～東日本にかけて、及び東北の一部に及んでいる。低気圧・寒冷前線が日本の東海上に抜けた後は、関東から近畿にかけては晴れとなり、その他の地域では曇りとなっている。

図14に、当該期間における運輸多目的衛星MTSAT-1Rの赤外1チャンネル等価黒体温度(equivalent black-body temperature: 陰影部)及びSYNOP報による地上気象観測点における現在天気で、砂塵嵐及び浮遊塵を観測した地点を示す。日本に飛来する2日前(4月6日)では、モンゴル東部から内蒙古自治区にかけての地域で砂塵嵐を観測している。翌7日には内蒙古および朝鮮半島北部などの数地点で浮遊塵を観測し、8日は朝鮮半島南部や近畿地方及び中国地方において寒冷前線の寒気側で、浮遊塵を観測している。また、2006年4月9日にかけて西日本地方の一部には、浮遊塵の観測地点がみられる。

図14は、気象庁地域気象観測システム(通称:AMeDAS)による気温、風向風速、降水地点(1mm/hour以上のみ)を示している。図14と図15を比較すると、2006年4月8日15JSTにおける浮遊塵の観測範囲は、東日本から東北にかけての降雨域よりも西側で北西の風が強い10°Cから15°Cの温度域にある地域に集中している。一方、2006年4月9日では、図13の天気図にあるとおり、日本列島は南北2つの高気圧に挟まれるように覆われ、前日に比べて地上での風も弱い。その両高気圧に挟まれた地域では、東よりの風となっており浮遊塵の観測地域と対応している。

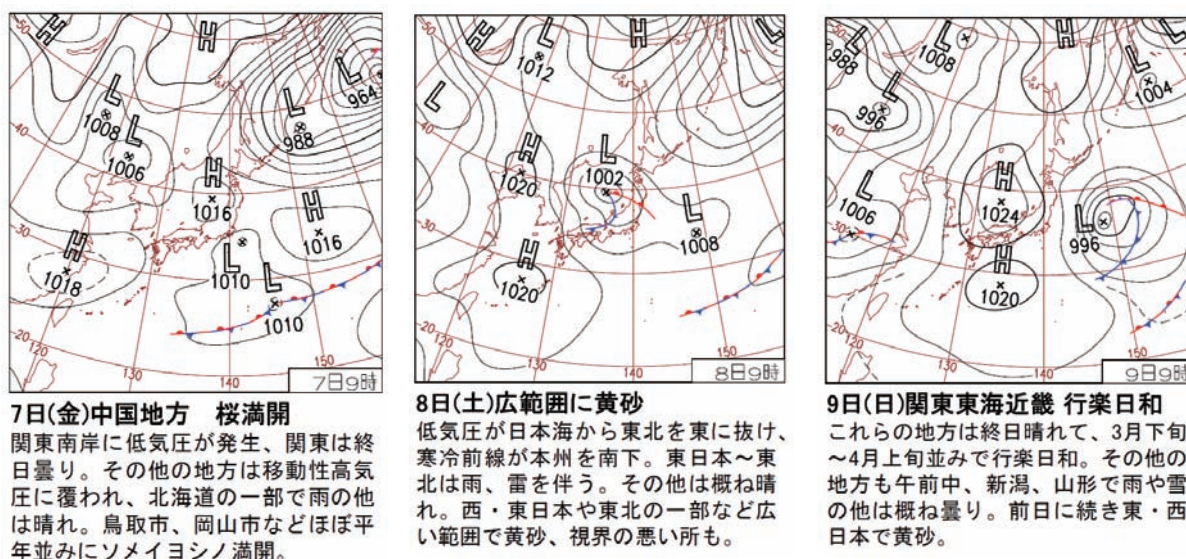
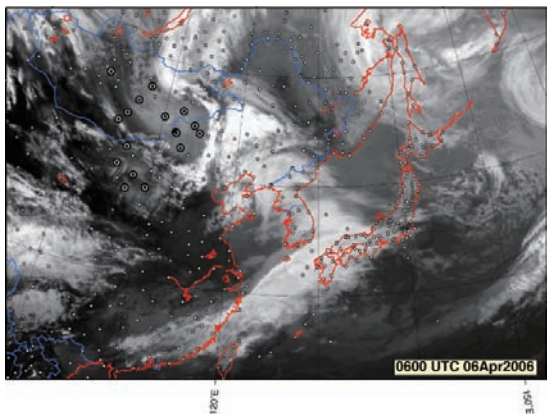
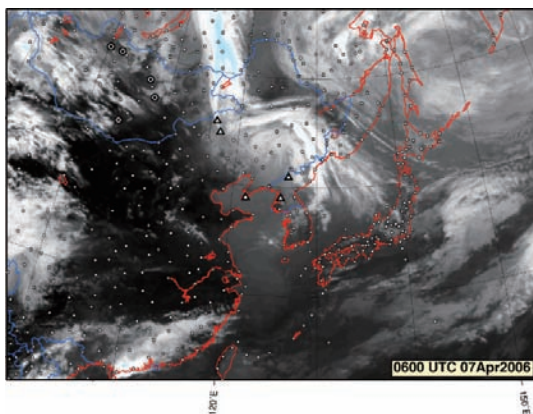


図13 黄砂飛来期間前後の地上天気図(気象庁)(2006年4月7日～4月9日09JST(00UTC))

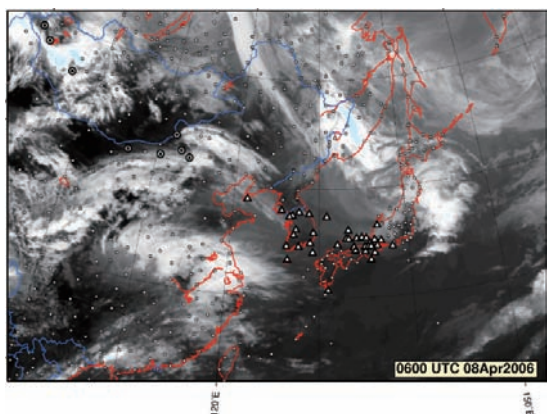
Day -2



Day -1



Day 0



Day +1

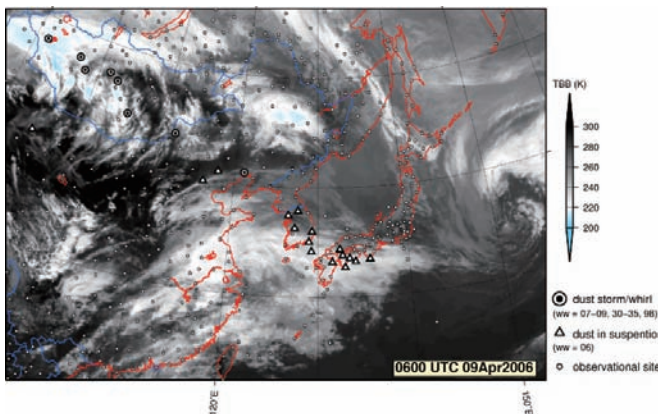


図 14 黄砂飛来期間前後の運輸多目的衛星 MTSAT-1R の赤外 1 チャンネル等価黒体温度 (equivalent black-body temperature; 陰影部) および地上気象観測点における現在天気で, 砂塵嵐 (二重丸)・浮遊塵 (三角) を観測した地点 (2006 年 4 月 8 日~4 月 9 日 15 JST (06 UTC))