

2006年春季につくばで観測したダスト事象の解析

—黄砂と近傍からの風塵—

五十嵐 康人*・猪股 弥生**・高橋 宙**・篠田 佳宏***
田中 泰宙**・青山 道夫**・千葉 長**

要 旨

つくば市の気象研究所において、ダスト事象に着目して、2006年の春季に重量濃度、粒径別個数濃度など、エアロゾルの物理的、化学的観測を行った。この期間中に重量濃度（1時間値）が数百 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ に達する二つの顕著なダスト事象が捉えられた。日本各地の目視観測やダスト輸送モデルなどのデータから、二つのダスト事象は、それぞれアジア大陸からの黄砂と近傍からの風塵（以下、風塵と表記）が主体の事象であると判断された。光学式エアロゾル計数装置を用いた解析から、粒径分布（0.3, 0.5, 1.0, 2.0, 5.0 μm 以上の5段階分級）の時間変動に違いがあり、ダスト濃度が増大するにつれ、黄砂では全粒子径で個数濃度が増加したのに対して、風塵では中・大粒径（ $>1.0 \mu\text{m}$ ）粒子で個数濃度増加が顕著だった。また、両事例ともに夜間の静穏時に比べて、小粒径（ $<1.0 \mu\text{m}$ ）粒子の個数濃度が低い傾向が見られた。水溶性イオン成分重量のダスト重量に対する割合に着目すると、 nss-SO_4^{2-} は黄砂で4%、風塵では2%を占めた。 nss-Ca^{2+} は黄砂で1%だったのに対し、風塵では0.6%を占めた。このほか、 NO_3^- 濃度についても、黄砂（ $1.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ）と風塵（ $0.08 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ）では大きな違いが見られた。

1. はじめに

黄砂現象は古くから研究者の関心を惹いてきた（倉嶋 1965；名古屋大学水圏科学研究所編 1991；岩坂 2006；三上 2006；長田 2007）。近年では、2000～2002年の3年間にアジア大陸での黄砂発生が活発化し、社会的にも関心が高まり、地球環境（環境省 2006；三上 2006；Mikami *et al.* 2006；Mori *et al.* 2003；Sugimoto *et al.* 2002）や健康に対する影響についても（Ichinose *et al.* 2005）研究が進められている。しかし、未解明な点も依然残っていて、そのひとつに黄砂沈着量の問題がある。これまでの研究では、主に乾性沈着の評価であったり（西川ほか 1991）、観測地域

に限られたり（Inoue and Naruse 1987；Uematsu *et al.* 2003）、我が国での湿性沈着を含む全沈着量の正確な評価・把握は必ずしも充分とは言えない。また、沈着量観測では、必ず、近傍からの表土ダストの混入があり（Inoue and Naruse 1987）、後述するがその評価が本質的な問題となる。

ダストの発生・風塵現象は、被覆のない乾燥した土壌表面と強風という基本条件がそろえば、大陸の荒涼域でなくともあり得る。2008年2月末に関東地方で比較的大規模な風塵が発生した際（小倉ほか 2008）には、報道でも取り上げられた。にもかかわらず、局所的な風塵現象（以下、風塵と表記）を扱った研究やその発生を記録した文献は極めて少ない。倉嶋（1965）は、「1960年2月21日の日曜の午後、東京をおそった砂あらし」について述べた。さらに、激しい風塵は1910年と1929年の初春～晩冬にも東京で記録されたとしている。根本（1979）は、江戸時代の江戸の土埃について述べた。研究事例として Okada and Ikegami

* 気象研究所, yigarash@mri-jma.go.jp

** 気象研究所.

*** 気象研究所, 現: 神戸海洋気象台海洋課.

—2008年2月12日受領—

—2009年3月10日受理—

(2002) があるが、その後続く研究は、著者らの知る範囲ではない。彼らは、1991年2月につくば近辺で発生した風塵について、粒径分布測定、電子顕微鏡による個別粒子の観測、気象解析など詳細な研究を行った。

ところで、気象研究所では、大気降下物中の人工放射能の長期変動に関する研究を実施している。近年はダストが放射能の輸送を担っており (Igarashi *et al.* 2001; 五十嵐 2002, 2004)、黄砂の沈着により春季に我が国での放射能降下量が増える (Igarashi *et al.* 2005) こともわかっている。しかし、平地で採取した大気降下物は、長距離輸送されたダストと近傍由来のダストとを含むため、人工放射能の由来を知るためにもこの二つを区別できないか検討を続けている (Igarashi *et al.* 2005, 2006; Lee *et al.* 2006)。長距離輸送されたダストと近傍のダストとを区別することは、黄砂などの風送ダストがわが国へ輸送する汚染物質等の影響を評価する上で重要な、基礎的な情報となる。

ところが、黄砂は強風を伴うことがしばしばあり、小規模ながらも近傍で風塵や塵旋風が発生し、混合している場合がある。こうした場合、黄砂と風塵との明瞭な区別は困難になる。というのも、黄砂の判別には目視観測しか用いられていないためである。機器による黄砂の判別や観測は、日射計 (荒生 1987)、サンフォトメーター (鈴木ほか 2001)、光学式エアロゾル計数装置 (荒生ほか 1999)、衛星画像 (岩崎ほか 2002)、ライダー (Iwasaka *et al.* 1988; 杉本ほか 2002) などがこれまで用いられている。最近、的場ほか (2005) は全国に設置されている一般大気環境局で自動観測される浮遊粒子状物質 (SPM) に着目し、西日本の7地点における SPM 濃度の出現頻度分布を描き、広域で一定の濃度を超えた場合を黄砂と判定した。また、近傍からの風塵を黄砂と判定することを避けるため、彼らは、SPM 高濃度だが局地的な事象 (すなわち風塵) を対象から除いている。

黄砂も風塵も砂塵が大気中を漂う現象であることは同じだが、黄砂は飛来するまでに数日間かかるのに対し、近傍からの風塵は巻き上がり直後からごく短時間のうちに観測地点に到達する。的場ほか (2005) が指摘したように、黄砂と風塵とでは発生地域や輸送の時空間スケールが違う。また、長距離輸送によってダストの物理的・化学的性質は変化する (例えば、Mori *et al.* 2003)。そこで、ダスト粒子自体の物理的・化

学的性質の違いに基づき、浮遊するダストの起源の違いを区別することを最終的なねらいとし、2006年の春につくばで観測された黄砂と風塵によるダスト粒子の粒径分布の違いと水溶性イオン成分の違いを併せて調べ、比較・検討を試みた。

2. 観測方法

茨城県つくば市の気象研究所本館6階 (地表から約22 m) の北西側の角付近に、観測機器およびその空気取り入れ口を設け、2006年の春季に観測を行った。

2.1 TEOM[®] によるエアロゾル重量濃度の連続自動観測

大気中のエアロゾル重量濃度を TEOM[®] -1400 a (旧 R&P 社製; 現 Thermo Scientific 社) を用いて測定した。TEOM (Tapered Element Oscillating Microbalance) は、振動素子の先端に取り付けられたフィルターにエアロゾルを捕集し、その重量増加を素子の固有振動数が変化することにより検出し、大気中のエアロゾル重量濃度を連続観測する装置である。時間分解能が高く (30分値)、検出限界は1時間平均値で $0.06 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (Thermo Scientific Product Spec.) とされている。今回用いた装置では、試料空気の入力部分に大粒径粒子を取り除くための PM₁₀ インレット (10 μm 以上の粒子をカットするサイクロン) を備えた。また、湿度による影響を除くために、Nafion[®] 膜を使用した拡散により試料空気の乾燥 (相対湿度 (以下 RH) 30%以下) を行う仕組み (Sample Equilibrium System; SES) を装備した。SES では、外側が大流量のパージ空気にさらされた Nafion[®] 膜円筒管の内部を、測定用空気が検出部へ向かう構造となっている。全流量は16.7 L/min で、このうち2 L/min をエアロゾルの検出に使用し、残りが乾燥用のパージ空気となる。

2.2 エアロゾル粒径分布の連続自動観測

エアロゾルの粒径別個数濃度は、光学式エアロゾル計数装置 (OPC; RION 社製, KC-01 D) を用いて観測した。配管には導電性チューブを用い (長さ約2 m, 外径19 mm, 内径11 mm)、流量0.5 L/min で取り込みを行い、10分間隔で、直径0.3, 0.5, 1.0, 2.0, 5.0 μm 以上の5段階の粒径別に粒子個数の測定を行った。本装置はポリスチレンラテックス粒子 (日方ほか 2007) で校正されており、実際のエアロゾルは屈折率1.6の球形粒子と光学的散乱特性が等価と仮定している。また、試料大気導入の配管による損失

や数え落としの補正は行わなかった。このほか、除湿をしなかったため、高湿度時に粒子は吸湿によって膨らむため、粒径分布は粗大粒子側に偏ったと思われる。しかし、ダスト事象時には湿度は相対的に低いため、本報告の目的での使用には問題がないと判断した。

2.3 化学分析用のエアロゾルのフィルター捕集

ダスト事象時にローボリュームサンプラー（柴田科学社製 SL-30型、TEOMと同様にPM₁₀カット）を用いて、流量15 L/minでオムニポアメンブレン上に1~1.5時間の間隔でエアロゾルを捕集した。フィルターは捕集前後にデシケーター内で乾燥させ（RH10-20%）、電子天秤によりその重量を計測して（RH30%以下）、捕集されたエアロゾルの重量を求めた。その後、フィルターを超音波振動にかけ、イオン成分を5または10 mLの純水に溶出させ、イオンクロマトグラフィーで分析した。

2.4 イオン成分分析

イオンクロマト装置 IC7000（横河アナリティカルシステムズ社製）を用いてイオン成分を測定した。陰イオン分析ではIonPacAS4 A-SCカラム（ダイオネクス社製）を用い、溶離液には1.8ミリモル（mM）Na₂CO₃/1.7 mM NaHCO₃、除去液には15 mM H₂SO₄、サプレッサーはHPS-SA1（横河アナリティカルシステムズ社製）を用いた。陽イオン分析ではIonPacCS12 Aカラム（ダイオネクス社製）を用い、溶離液には20 mM メタンサルホン酸、サプレッサーはCSRS ULTRAI 4 mm（ダイオネクス社製）をリサイクルモードで使用した。陰イオンはCl⁻、NO₃⁻、SO₄²⁻、陽イオンはNa⁺、NH₄⁺、K⁺、Ca²⁺、Mg²⁺を測定した。検量は0.05、0.1、0.5、1及び5 ppmの標準物質で行った。また、フィルターブランクの補正は、未使用のフィルター数枚を純水で抽出操作することで行った。

2.5 気象解析とダスト輸送モデルによる再現計算

気象データは、気象研究所と同一敷地内の高層気象台の観測データを用いた。風塵現象の記録は、各官署の観測原簿より抽出した。後方流線跡解析にはアメリカ海洋大気庁がweb上で公開しているHYSPLITモデル（Draxler and Rolph 2003）を用い、つくば市の上空1000 mを始点として、事象日の日本時間13時より72時間遡る計算を行った。さらに、全国約100箇所の気象官署地点から同様に計算を行い、各事象日に日本全体に到達した大気の流れを把握するとともに（一

種のアンサンブル）、関東地方に到達した気塊の起源を調べた。

これに加えて、気象研究所で開発されたダスト輸送モデルであるModel of Aerosol Species IN the Global Atmosphere (MASINGAR)を用いて、黄砂によるダスト濃度上昇とその地域分布を調べた。MASINGARは大気循環モデルMRI/JMA 98と結合された全球モデルである（Tanaka *et al.* 2003；田中ほか 2005）。黄砂現象の原因となる鉱物ダストの発生は、モデルによって計算される摩擦速度と土壌水分・植生・積雪などの地表面の条件を元に計算される（Tanaka and Chiba 2005）。本報告では水平解像度が約1.125°（約110 km）のモデルを用い、気象庁全球解析データGANALを参照値としてナッジング手法によるデータ同化を行った結果を示した。また、本モデルにおいて日本は緑地帯（草地）と設定されており、わが国でのダストの発生は生じない。

3. 結果および考察

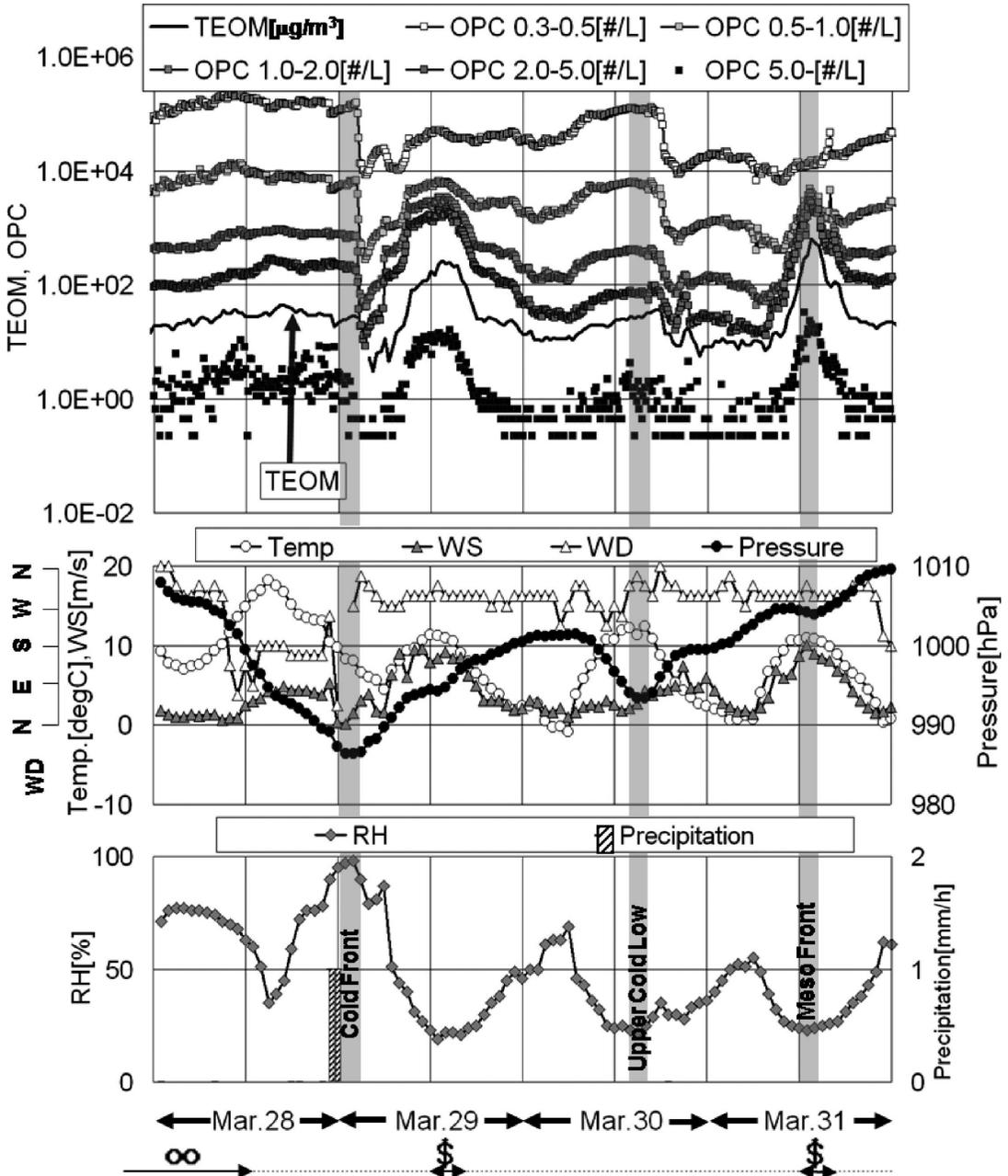
3.1 TEOMによるエアロゾル重量濃度観測の評価

我が国においては、SPM濃度の観測にはβ線吸収法が主に使用されている経緯から、TEOMを使用した研究は数少ない。しかし、諸外国ではエアロゾル重量濃度の環境基準監視機器としての普及が進んでいる（たとえば、Charron *et al.* 2004）。問題としては、我が国は大陸に比し相対的に高湿で、エアロゾルが大気中の水分を取り込んで膨れるために、重量濃度が増加してしまう点が上げられる。そこで、本報告では乾燥器を備えた機種を用いて、湿度の影響を避けるようにした。

まず、TEOMによる観測を従来法のフィルター捕集一秤量と比較して、データが一致することを確認した。今回着目したダスト事象について、TEOMによるエアロゾル重量濃度（TEOM；μg/m³）とローボリュームサンプラーによる重量濃度（LVS；μg/m³）は、TEOM = 1.05 × LVS - 7.18（7試料；R²：0.989）となり、大変良い相関を示した。

3.2 TEOMによるエアロゾル重量濃度の時系列変動

TEOMによるエアロゾル重量濃度は、ダスト事象のない時季では、おおよそ50 μg/m³以下の値を示した。他方、ダスト現象が活発な春季には複数の顕著な事象が見られ、季節的な変動が明瞭に記録された。我が国のSPM（PM₁₀）環境基準は、1日平均値が100



第1図 つくばの気象研究所で2006年3月28日～3月31日の期間に、(上段) TEOM によって得られたエアロゾル重量濃度および OPC による粒径別個数濃度 (空気 1 L あたりの粒子個数) の並行観測結果, (中段) 気温, 気圧, 風向, 風速, および (下段) 湿度, 降水量と大気塵象の有無.

$\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下で, かつ, 1時間値が $200 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下とされている. $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超過するような事象は, 3月16日, 20日, 29日, 31日, 4月3日, 18日などに見られた. 本報告では, これらのうち, TEOM, OPC,

イオン成分のすべてのデータを得た二つのダスト事象について解析を進めた. 着目期間のつくばにおけるエアロゾル重量濃度の変動を, OPC データや気象データの時系列と併せて, 第1図に示す.

第1表 最近の黄砂事象などの大気中ダスト重量。

文献	採取日	場所	重量濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	備考
本研究	2006年3月29日	つくば (日本)	232	黄砂時/PM ₁₀ 最大濃度 1時間値
	2006年3月31日	つくば (日本)	562	風塵時/PM ₁₀ 最大濃度 1時間値
Mori <i>et al.</i> (2003)	2001年3月21日	内モンゴル (中国)	6700	3地点における総浮遊塵濃度の平均値
	2002年3月21日	北京 (中国)	1500	総浮遊塵濃度の平均値
	2001年3月22-23日	宍岐/隠岐 (日本)	230	宍岐と隠岐における総浮遊塵濃度の平均値
	2001年3月22-23日	山口 (日本)	200	総浮遊塵濃度の平均値
Chung <i>et al.</i> (2003)	1997年3月29日	Chongwon-Chongju (韓国)	689/445	最大総浮遊塵濃度/PM ₁₀ 濃度
	1998年3月25-26日		359/254	同上
	1999年1月25日		989/861	同上
	2000年3月23-24日		1396/996	同上
	2000年4月7日		1261/949	同上
Sugimoto <i>et al.</i> (2003)	2002年3月20日	北京 (中国)	11000	黄砂時/総浮遊塵最大濃度
Wang <i>et al.</i> (2004)	2001年春季	北京 (中国)	222	「黄砂頻発年」におけるPM ₁₀ 日平均濃度
	2003年春季		151	「非黄砂頻発年」におけるPM ₁₀ 日平均濃度

3月29日と31日のダスト事象は非常に激しく、気象研究所から北に約20 km 離れた筑波山を望むことはできず、周囲一帯がやや薄暗く茶色になった。29日の事象の活発な時間帯には、気象研究所から北に約5 kmにある三井ビル(19階)がかろうじて見えたが、31日には全く見えず、視程は31日の方が悪かった(ただし、高層気象台の観測原簿では、両日8 km (15時)とされ、視程悪化やその差は何えない)。エアロゾル重量濃度は、ともに午前中に上昇して12~15時に極大を示し、数時間以上に亘って高濃度が継続した。3月29日は時間最高値で232 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、31日は562 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を記録した。

第1表にアジア大陸や我が国でのダスト事象時などのエアロゾル重量濃度の最近の報告値を、今回の事象と比較するためまとめた(Chung *et al.* 2003; Mori *et al.* 2003; Sugimoto *et al.* 2002; Wang *et al.* 2004)。大陸内陸部での濃度は、極大時で数 mg/m^3 に達して、極めて高い。2002年3月の黄砂の場合、北京では11 mg/m^3 を記録している。これに比べて発生地域から風下数千 km 離れた日本(関東地方)では、その濃度は数分の1以下である。

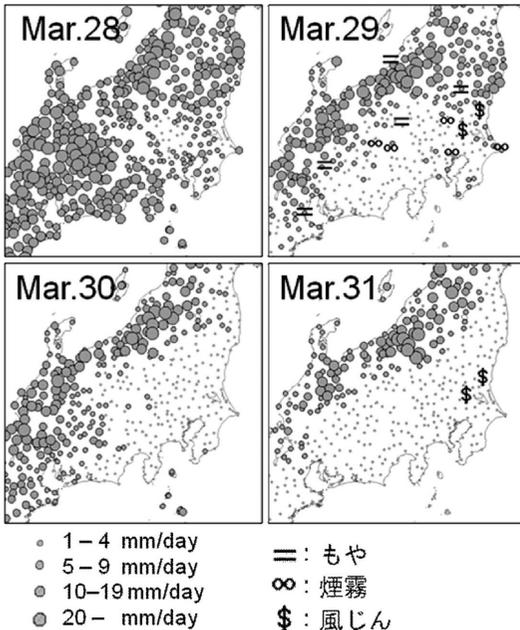
二つの事象は我が国の日平均環境基準値を超えてはいないが、1時間値の基準を超える顕著な事象であった。特に31日の事象は、韓国における黄砂時の濃度水準に近い(第1表)。黄砂の発生源に近い西日本に比べ、相対的に影響が小さいと考えられる関東地方で

も、高濃度のダスト事象が観測された。ただし、31日の事象は、後述のように風塵であり、風塵が黄砂よりも高いダスト重量濃度をもたらす場合があることがわかった。

3.3 気象要素、後方流跡線解析およびダスト輸送モデルによる再現計算結果

第2図に3月28日から31日の日本中央部の降水量の分布、29日および31日の大気塵象の分布を示す。3月29日は、東日本太平洋側から西日本、南西諸島にいたるまでの広い範囲で視程の低下が観測され、空間スケールの大きいダスト事象であったことがうかがえる。他方、31日は、南西諸島で「黄砂」を記録しているものの、東日本では水戸、つくばのみ、「風じん」を記録していた。このように、29日の事象と31日の事象とは現象の空間スケールが異なり、31日の事象は関東地方に限定されて小規模であった。降水に着目すると、28日の深夜から29日早朝にかけて関東を含む広い範囲で降雨が認められ(第2図)、発塵には不利であった。他方、29及び30日は関東では降水がなく、31日の地表面は乾燥して発塵の条件が整っていたと推測された。

気塊の由来を後方流跡線解析により調べると(第3図; 関東地方及びつくばからの流跡線のみ示した)、3月29日には日本列島は、北海道を除き、全国的に北西からの大陸性の気塊に覆われていて、関東地方には中国東北部からの輸送が卓越していたと考えられた。

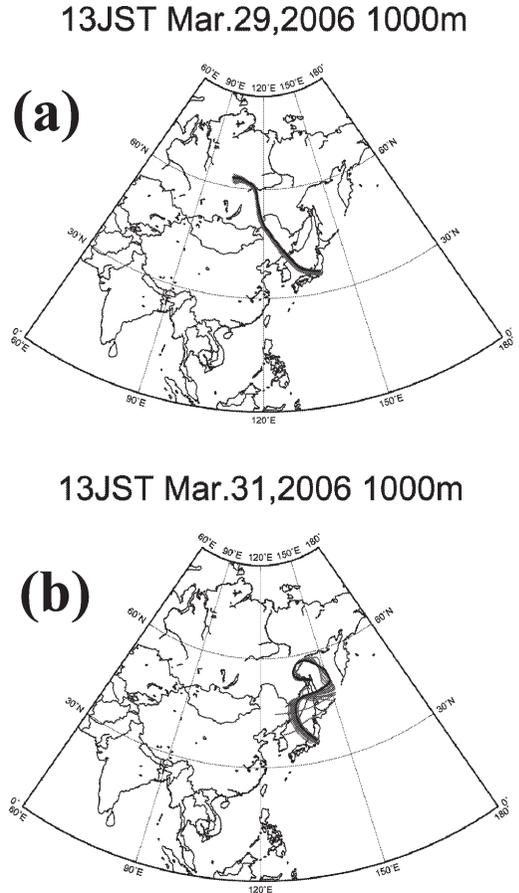


第2図 2006年3月28日～31日の日降水量分布. 大気塵象の分布を29日と31日のみ示した.

2000～2002年の頻発以降, 黄砂の発生地域は, 従来知られていたタクラマカン, ゴビから, 中国東北平原や内モンゴル, モンゴル東部にまで拡大していることが明らかになりつつあり (Kurosaki and Mikami 2003; Lim and Chun 2006), 29日にはこの新しく黄砂の発生域となっている地域 (Igarashi *et al.* 2006) からダストの輸送があったと推定される. ところが, 3月31日には西日本と東日本では気塊の由来が異なっており, 西日本にはアジア大陸からだが, 東日本にはロシア沿海地方, オホーツクや北西太平洋上を漂った気塊が到来して, つくばにはアジア大陸からのダスト粒子の輸送はほとんどなかったと推定できる.

MASINGAR によるアジア規模でのダスト濃度分布再現計算 (第4図) でも, 29日には我が国の広い領域で黄砂によるダスト濃度の上昇が認められるが, 31日については, 国内での濃度上昇域は南西諸島のみであった.

地上天気図 (図示せず) は, 両日とも二つ玉低気圧型の気圧配置で, 北海道東方沖に発達した低気圧が位置していた. 関東および周辺地域での強風域の規模や程度は, 両日類似していた. つくばでは, エアロゾル重量濃度が增大するのとはほぼ同期して, 1分間瞬間最



第3図 関東地方の上空 (高さ1000 m) からの後方流跡線 (トラジェクトリー解析). NOAA HYSPLIT model による. つくばを起点とした結果を黒で, 他の気象官署を起点とした結果を灰色で示す. (a) 2006年3月29日13 JST, (b) 3月31日13 JST.

大風速 (図示せず) が10～20 m/sの強風となった. 先に述べたが, 両日ともエアロゾル濃度は12時～15時に極大となった (第1図上段). 29日はつくばと水戸で「風じん」が記録されていること (第2図) を考慮すると, 29日の事象においても風塵が関与していたと推測されるが, 夜半の降水によって発塵が比較的抑制されて, 31日に比べ, その寄与は小さかったと考えられる.

前線の通過について見ると, 29日は寒冷前線の通過5-6時間後にエアロゾル重量濃度が増大したが, 31日は規模の小さい局所的な前線の通過時に強風となっ

て事象が発生している（第1図中段）。この様子は、MODIS センサーの画像でも確認できた（図示せず）。29日の事象では、ほぼ一定の強風が数時間継続したが、31日の事象では、29日に比べ、より短時間に強風を示した。高エアロゾル重量濃度の継続時間からも、29日の事象は気塊規模の現象と言えるが、31日の事象は一過性の強風が生み出したものという違いがあったと言える。

総合すると、3月29日のダスト事象の主体はアジア大陸に起源を有する黄砂であり、31日の事象はより規模の小さい局所的（関東地方の一部）な風塵現象であったと考えられる。

3.4 エアロゾル粒径分布の時系列変動

第1図上段には限られた期間しか描かれていないが、OPCによるエアロゾルの粒径別個数濃度の春季の時系列全体を見たとき、前線通過後の時間帯（数時間）は小粒径（ $0.3\text{--}0.5\ \mu\text{m}$ ）から大粒径（ $>5\ \mu\text{m}$ ）に至るまで、エアロゾルの個数濃度が低下している場合が多く認められた（29日の事例もあてはまる）。寒冷前線付近では積雲対流を伴う降水によって（観測地点以外の他地域での降水をも含む）エアロゾルが除去され、その結果が時系列に表れているのではないかと推測している。

ところで、西日本での観測で黄砂が飛来する際、高ダスト濃度気塊の到達前に、サルフェート粒子を主体とする中・小粒径粒子個数濃度の高い気塊が観測されることを Uematsu *et al.* (2002) ($0.3\text{--}1.0\ \mu\text{m}$) や Zhang *et al.* (2006) ($0.1\text{--}0.3\ \mu\text{m}$) が報告している。低気圧がアジア大陸近辺にあったとき、温暖前線面に向かっては南西風により大陸中南部から由来する汚染気塊が吹き込むが、寒冷前線面に向かっては大陸西部・北東部から黄砂を含む気塊が吹き込む。第4図のモデル計算結果にあるように（弧状のダスト雲しか示されていないが）、発生源の地理的な分布に依存したダスト雲—汚染気塊の空間的な構造が輸送途上も維持され、関東地方にまでもたらされている可能性もある。

29日の黄砂の場合、第1図上段に描かれたように、事象発生直前の個数濃度減少（前線通過とほぼ同期）に先立って、半日以上の間の中・小粒径粒子（ $<5.0\ \mu\text{m}$ ）の増大時間帯（28日から29日早朝）が認められる。これが、アジア大陸中南部からの汚染気塊に相当するのかもしれない。他方、31日の風塵では、汚染気塊によると推定される顕著な個数濃度の増大は見

られなかった。これは29日の黄砂との違いであり、31日の風塵は相対的に清浄な気塊の中で発生したと考えられる。

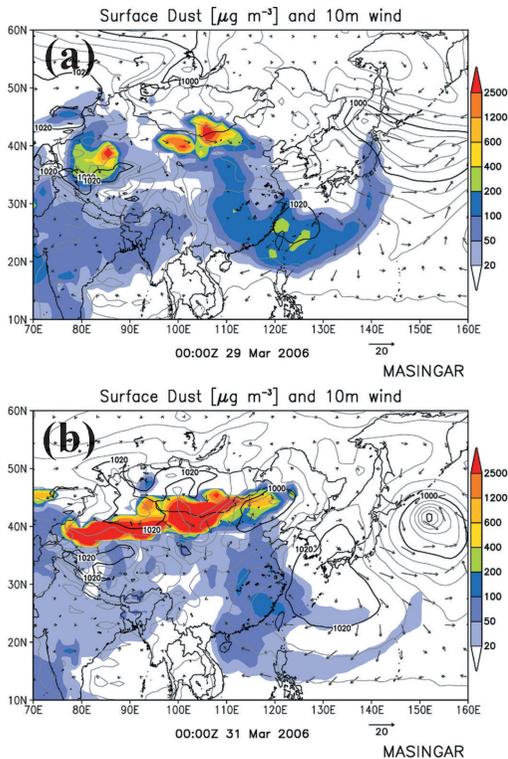
さらに、29日の黄砂と31日の風塵では、重量濃度増加に伴う粒径別個数濃度増加の仕方に違いがあった。29日の黄砂輸送の事例では、ダスト濃度が増大する午前中の期間に小粒径から大粒径に至るまで個数濃度の増加が見られた。他方、31日の風塵ではそれとはやや異なり、中・大粒径（ $>0.5\ \mu\text{m}$ ）粒子の個数濃度が増加したが、小粒径（ $0.3\text{--}0.5\ \mu\text{m}$ ）粒子の個数濃度増大はほとんどなかった。

この違いをより明瞭に示すため、夜間の静穏時（降水のない00–05時）の平均個数粒径分布を求め、ダスト事象の濃度上昇時間帯の粒径分布と比較した（第5図）。黄砂、風塵のいずれの場合でも、静穏時に比べ、中・大粒径（ $>1.0\ \mu\text{m}$ ）粒子の個数濃度は高く、小粒径（ $<1.0\ \mu\text{m}$ ）粒子の個数濃度は低い傾向が見られた。小粒径粒子（ $0.3\text{--}0.5\ \mu\text{m}$ ）はサルフェートや有機物粒子などの2次粒子と推定されるが、この粒径領域の粒子の凝集は生じにくい（Seinfeld and Pandis 1998）、この粒径領域に成長する前段階のエイトケン粒子、ガス成分の段階でダスト粒子表面に沈着して除去された可能性もある。また、風塵の場合、事象開始前の時間帯では、粒子個数は夜間に比べて全ての粒径で数分の1以下と少なく、エアロゾルをあまり含まない空気塊に覆われていた。

黄砂では、長距離輸送される間に、気塊全体が汚染気塊と十分に混合しているだろうが、風塵の場合は、汚染気塊とほとんど混合していない相対的に清浄な気塊内部で、関東地方スケールの小規模な前線によってもたらされたため、中・大粒径（ $>1.0\ \mu\text{m}$ ）粒子の個数増大がより顕著だったと考えられる。Mikami *et al.* (2005) は、アジア大陸の黄砂発生域で砂塵嵐発生前後の粒径分布を比較したが、小粒径（ $0.3\text{--}0.5\ \mu\text{m}$ ）粒子に比べ、中・大粒径（ $>0.5\ \mu\text{m}$ ）粒子での増加が著しいことを示した。現象のスケールや地表面条件は異なるが、共にダストの発生を現場で観測しており、類似した粒径分布を得たと考えられる。

3.5 水溶性イオン成分

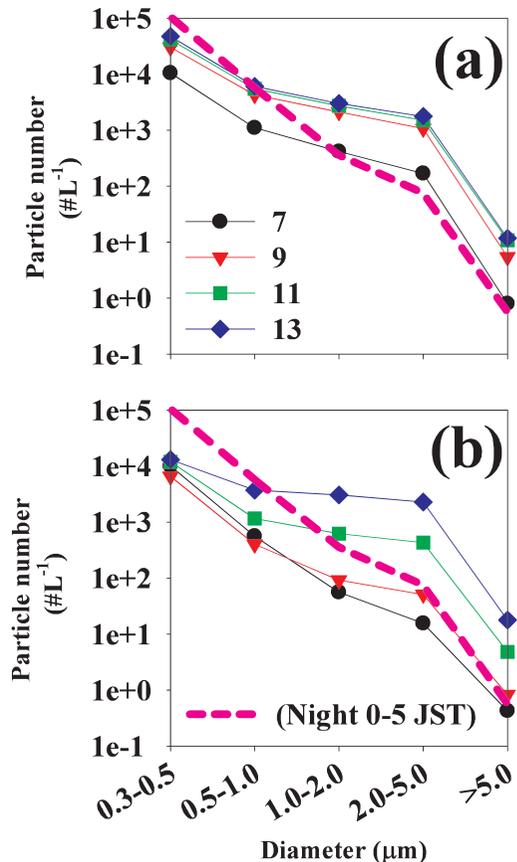
フィルター試料の分析によって得た Ca^{2+} や SO_4^{2-} などの水溶性イオン重量のエアロゾル総重量に対する割合（重量比）を第6図に示す。この比は、ダスト事象時には、ダスト重量に占めるイオンの割合とみなせるであろう。また、第7図に注目するイオン毎の大気



第4図 ダスト輸送モデルMASINGAR (田中ほか 2005) によるアジア地域の地表でのダスト濃度の計算結果. (a) 2006年3月29日09 JST, (b) 3月31日09 JST. 日本は緑地に設定されているため、日本からの発塵はない.

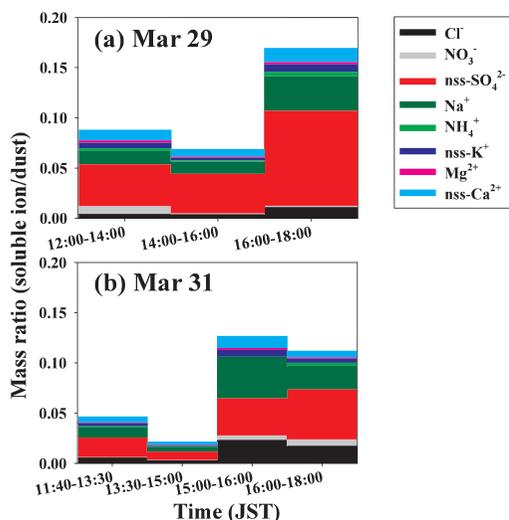
中重量濃度および当量濃度を各試料につき示した。両事象において、水溶性イオン成分全体がダスト重量に占める割合は、サンプリング期間前半に低く後半に高かった。エアロゾル重量濃度が低下した後半では、前半の倍以上に増加した（第6図aでは、16–18時；bでは、15時以降の2試料）。事象の最盛時にはダスト重量濃度が著しく増大し、水溶性イオンが希釈される状況となるため、重量比は一般に低下すると推定できる。これに対し、ダスト事象が終了しつつあるときは、気塊が交代しほとんどダストを含まなくなるため、重量比は上昇したと考えている。

エアロゾル重量濃度が最大となった時間帯前後の水溶性イオンの重量比は（第6図）、29日の黄砂（12–14時）では全体で9%となり、31日の風塵（11時半–13時半）の際の5%の約2倍であった。水溶性イオンのうち nss-SO_4^{2-} は、29日の黄砂で4%、31日の風塵

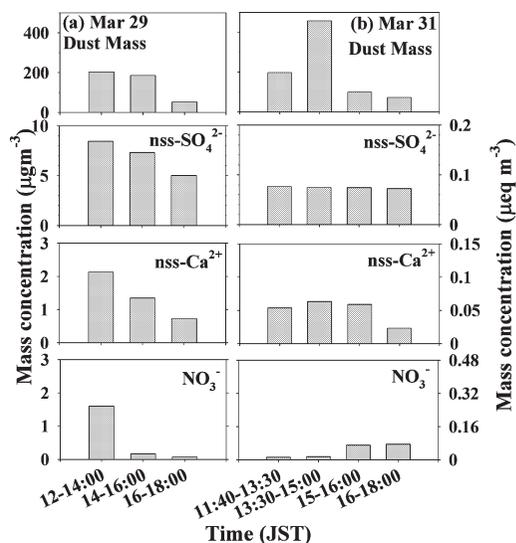


第5図 ダスト事象の際の各時間帯における粒径分布. (a) 黄砂の場合, (b) 風塵の場合. $\#L^{-1}$ は、空気1リットル当たりの粒子個数. 破線は変動の少ない夜間(00–05時)の平均値(静穏時). 黄砂では時間とともに各粒径とも上昇している. 風塵では中・大粒径の粒子の上昇が顕著だった. 小粒径粒子については、黄砂、風塵とも夜間の静穏時に比べて低い傾向だった.

で2%を占めた。 nss-Ca^{2+} は、29日の黄砂で1%だったのに対し、31日の風塵では0.6%だった。 NO_3^- イオンについても、29日の黄砂（12–14時）では、31日の風塵（11時半–13時半）に比べ1桁大きかった（29日：0.8%、31日：0.04%）。次に、水溶性イオン成分の大気中重量濃度で見ると（第7図）、 nss-Ca^{2+} の濃度は、29日（12–14時）は $2.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ と31日（11時半–13時半）の $1.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ に比べ約2倍高く、 nss-SO_4^{2-} 濃度についても、同様の結果だった（29日： $8.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、31日： $3.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ）。 NO_3^- の濃



第6図 水溶性イオン成分重量のエアロゾル重量（事象時にはダスト重量とみなせる）との比。(a) 黄砂の場合、(b) 風塵の場合。



第7図 水溶性イオン成分の大気中濃度の変動。(a) 黄砂の場合、(b) 風塵の場合。左軸：重量濃度；右軸：当量濃度。

度は、29日（12–14時）では $1.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、31日（11時半–13時半）では $0.08 \mu\text{g}/\text{m}^3$ で、黄砂は風塵に比べ1桁以上大きい値を示した。

黄砂には、カルサイト (CaCO_3) やジブサム ($\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$) が多く含まれる（名古屋大学水圏科学研究所 1991；Okada and Kai 2004；Yabuki *et al.* 2005）。しかし、31日に認めた nss-Ca^{2+} の濃度上昇すべてをジブサム由来と仮定しても、当量比から nss-SO_4^{2-} が過剰であることがわかる（第7図右軸の当量濃度による表示を参照）。そのため、黄砂での nss-SO_4^{2-} の濃度増加については、ジブサムの寄与だけでなく、人為起源のサルフェートについても考慮しなければならない。サルフェートには我が国からの発生分も含まれるが、国内の SO_2 発生量はアジア大陸の1/10以下の水準である（Streets *et al.* 2003）。人為起源のサルフェートは、アジア大陸由来気塊に量的により多く含有されているであろう。

29日の黄砂の場合、OPCの観測で小粒径（ $0.3\text{--}0.5 \mu\text{m}$ ）粒子の濃度上昇も認められた（第1図および第5図）。従って、個別粒子の組成を分析していないため議論に限界はあるが、人為起源の2次粒子が黄砂粒子と気塊全体でかなり均一に混合して（外部混合）輸送されていた可能性があり得る。また、ダストがアジア大陸の高汚染地域を通過した際にサルフェー

トを吸着していることを指摘する研究例は多く（Iwasaka *et al.* 1988；Mori *et al.* 2003；Okada *et al.* 1990；Zhou *et al.* 1996）、内部混合の可能性も考えておく必要がある。Mori *et al.* (2003) は、黄砂粒子表面に吸着したサルフェートは、日本国内の輸送途上で蓄積する分が、大陸からの長距離輸送分よりも多いと指摘している。

他方、 NO_3^- の観測結果は、黄砂がナイトレートとも一緒に輸送されている可能性を示唆する。2000年時点でのアジア大陸からの NO_x 発生量は、日本の5倍以上と評価されている（Streets *et al.* 2003）が、Mori *et al.* (2003) は、 NO_3^- は黄砂の粗大粒子表面に存在し、アジア大陸からではなく、日本国内での輸送途上に蓄積すると報告している。 NO_3^- についても、個別粒子の分析を行っていないため、黄砂ダスト粒子と内部混合していることを証明はできない。しかし、観測場所の近傍で発生した風塵が、 NO_3^- を蓄積できるだけの輸送距離・時間を得られず、本報告の結果のように、濃度が低かったと推定することは可能であろう。

このように、29日にはアジア大陸から由来した黄砂粒子を大量に含む気塊が圧倒的で、他方、31日には比較的清浄な気塊中で、近傍から発生した風塵粒子が量的に多いため、エアロゾルの水溶性イオン成分の濃

度・組成に違いが現れたと考えられる。

4. まとめ

茨城県つくば市において2006年春季にエアロゾルの物理・化学観測を実施した。TEOM[®]によるエアロゾル重量濃度の連続自動観測で、数百 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ という濃度水準を記録する二つの顕著なダスト事象を認めた。二つの事象は、気象解析により、それぞれ、黄砂および近傍からの風塵がその主体であると推定された。風塵の際のエアロゾル重量濃度 (PM_{10}) が初めて正確に観測され、今回の風塵は、黄砂に倍するエアロゾル重量濃度を示した。

エアロゾルの粒径別個数濃度と水溶性イオン成分データを解析した。黄砂事象では、重量濃度増大時に全粒径で個数濃度が増加したが、風塵事象では、個数濃度増加は中・大粒径 ($>1.0\mu\text{m}$) 粒子でより顕著だった。また、水溶性イオン成分では、 nss-Ca^{2+} と nss-SO_4^{2-} が、黄砂では風塵の2倍程度、ダスト粒子に含有、または混合していた。 NO_3^- については、黄砂は風塵に比べ1桁を超える高い濃度を示した。

しかし、現時点ではわずかに二つの事例であり、統計的には十分な事象数と言えない。今後、観測事例をさらに積み上げ、ダスト事象発生の判定、黄砂と近傍からの風塵の判別を行うための指標の設定に貢献したい。

謝辞

本報告をまとめるに当たって、作図等で作業を支援した佐野倫子さん、藤原絵里さんに感謝する。後方流跡線解析ではNOAA/ARLのHYSPLITモデルとARLのREADYウェブサイトを使用した。ここに記して謝意を表す。

参考文献

- 荒生公雄, 1987: 日射観測からみた黄砂. 天気, 34, 183-185.
- 荒生公雄, 坂口千恵美, 1999: 光散乱式粒子測定器で測定された長崎の黄砂現象: 1996~1998. 長崎大学総合環境研究, 1, 175-186.
- Charron, A., R. M. Harrison, S. Moorcroft and J. Booker, 2004: Quantitative interpretation of divergence between PM_{10} and $\text{PM}_{2.5}$ mass measurement by TEOM and gravimetric (Partisol) instruments. Atmos. Environ., 38, 415-423.
- Chung, Y. S., H. S. Kim, K. H. Park, J. G. Jhun and S. J. Chen, 2003: Atmospheric loadings, concentrations and visibility associated with sandstorms: Satellite and meteorological analysis. Water, Air, and Soil Pollut.: Focus, 3 (2): 21-40.
- Draxler, R. R. and G. D. Rolph, 2003: HYSPLIT (HYbrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory) Model access via NOAA ARL READY Website. NOAA Air Resources Laboratory. Silver Spring, MD <http://www.arl.noaa.gov/ready/hysplit4.html>
- 日方幹雄, 佐久間 都, 深井芳和, 2007: ポリスチレン系標準粒子の製造とその利用. エアロゾル研究, 22, 282-288.
- Ichinose, T., M. Nishikawa, H. Takano, N. Sera, K. Sadakane, I. Mori, R. Yanagisawa, T. Oda, H. Tamura, K. Hiyoshi, H. Quan, S. Tomura and T. Shibamoto, 2005: Pulmonary toxicity induced by intratracheal instillation of Asian yellow dust (Kosa) in mice. Environ. Toxicol. Pharmacol., 20, 48-56.
- 五十嵐康人, 2002: ^{90}Sr と ^{137}Cs を用いたダスト輸送過程と再飛散. エアロゾル研究, 17, 252-258.
- 五十嵐康人, 2004: 大気中の物質循環研究とフォールアウト. Isotope News, 2004(5), 2-8.
- Igarashi, Y., M. Aoyama, K. Hirose, T. Miyao and S. Yabuki, 2001: Is it possible to use ^{90}Sr and ^{137}Cs as tracers for the aeolian transport?. Water, Air, Soil Pollut., 130, 349-350.
- Igarashi, Y., M. Aoyama, K. Hirose, P. Povinec and S. Yabuki, 2005: What anthropogenic radionuclides (^{90}Sr and ^{137}Cs) in atmospheric deposition, surface soils and aeolian dusts suggest for dust transport over Japan. Water, Air, Soil Pollut. Focus, 5 (3-6), 51-69.
- Igarashi, Y., M. Aoyama, K. Hirose and Y. Shinoda, 2006: Temporal and spatial variation in radioactivity deposition in Japan—Influence of the Asian dust—Kosa. Proceedings of the International Symposium on Environmental Modeling and Radioecology (Eds. S. Hisamatsu, S. Ueda, H. Kakiuchi and N. Akata), Institute of Environmental Sciences, 150-156.
- Inoue, K. and T. Naruse, 1987: Physical, chemical, and mineralogical characteristics of modern eolian dust in Japan and rate of dust deposition. Soil Sci. Plant Nutr., 33, 327-345.
- 岩坂泰信, 2006: 黄砂 その謎を追う. 紀伊国屋書店, 228 pp.
- Iwasaka, Y., M. Yamato, R. Imasu and A. Ono, 1988: Transport of Asian dust (KOSA) particle; Importance of weak KOSA events on the geochemical cycle

- of soil particles. *Tellus*, **40B**, 494-503.
- 岩崎亮治, 木下紀正, 増水紀勝, 飯野直子, 矢野利明, 2002: GMS-5/VISSR と NOAA/AVHRR による2002年春季黄砂の解析. 日本リモートセンシング学会第33回学術講演会論文集, 67-70.
- 環境省地球環境局研究調査室編, 2006: 環境省地球環境総合推進費終了研究成果報告書「中国北東地域で発生する黄砂の三次元的輸送機構と環境負荷に関する研究」.
- 倉嶋 厚, 1965: 空を飛ぶ土. *科学朝日*, **1965**(6), 33-38.
- Kurosaki, Y. and M. Mikami, 2003: Recent frequent dust events and their relation to surface wind in East Asia. *Geophys. Res. Lett.*, **30**, 1736, doi: 10.1029/2003GL017261.
- Lee, H. N., Y. Igarashi, M. Chiba, M. Aoyama, K. Hirose and T. Tanaka, 2006: Global model simulations of the transport of Asian and Sahara dust: Total deposition of dust mass in Japan. *Water, Air, Soil Pollut.*, **169**, 137-166.
- Lim, J.-Y. and Y. Chun, 2006: The characteristics of Asian dust events in Northeast Asia during the springtime from 1993 to 2004. *Global Planet. Change*, **52**, 231-247, doi: 10.1016/j.gloplacha.2006.02.010.
- 的場澄人, 森 育子, 早狩 進, 西川雅高, 2005: SPM を利用した黄砂検出の新たな試み. *エアロゾル研究*, **20**, 225-230.
- 三上正男, 2007: 風送ダストの大気中への供給量評価と気候への影響に関する日中共同研究 (ADEC). *天気*, **54**, 142-150.
- Mikami, M., T. Aoki, M. Ishizuka, S. Yabuki, Y. Yamada, W.-D. Gao and F.-J. Zeng, 2005: Observation of number concentration of desert aerosols in the south of the Taklimakan Desert, China. *J. Meteor. Soc. Japan*, **83A**, 31-43.
- Mikami, M., G. Y. Shi, I. Uno, S. Yabuki, Y. Iwasaka, M. Yasui, T. Aoki, T. Y. Tanaka, Y. Kurosaki, K. Masuda, A. Uchiyama, A. Matsuki, T. Sakai, T. Takemi, M. Nakawo, N. Seino, M. Ishizuka, S. Satake, K. Fujita, Y. Hara, K. Kai, S. Kanayama, M. Hayashi, M. Du, Y. Kanai, Y. Yamada, X. Y. Zhang, Z. Shen, H. Zhou, O. Abe, T. Nagai, Y. Tsutsumi, M. Chiba and J. Suzuki, 2006: Aeolian dust experiment on climate impact: An overview of Japan-China joint project ADEC. *Global Planet. Change*, **52**, 142-172. doi: 10.1016/j.gloplacha.2006.03.001.
- Mori, I., M. Nishikawa, T. Tanimura and H. Quan, 2003: Change in size distribution and chemical composition of kosa (Asian dust) aerosol during long-range transport. *Atmos. Environ.*, **37**, 4253-4263.
- 名古屋大学水圏科学研究所編, 1991: 大気水圏の科学 黄砂. 古今書院, 328 pp.
- 根本順吉, 1979: 江戸の天気. *気象*, **23**, 5568-5574.
- 西川雅高, 溝口次夫, 笹野泰弘, 金森 悟, 金森暢子, 1991: 黄砂エアロゾルの降下量分布—一般環境大気測定局の利用—. *天気*, **38**, 221-228.
- 小倉義光, 隈部良司, 西村修司, 2008: お天気の見方・楽しみ方(15) 砂ほこりを巻き上げた春一番のウェザー・ウォッチング—2008年2月23日. *天気*, **55**, 921-927.
- Okada, K. and M. Ikegami, 2002: A case study of local wind-blown dust observed in Tsukuba, Japan. *Pap. Meteor. Geophys.*, **52**, 9-18.
- Okada, K. and K. Kai, 2004: Atmospheric mineral particles collected at Qira in the Taklamakan Desert, China. *Atmos. Environ.*, **38**, 6927-6935.
- Okada, K., H. Naruse, T. Tanaka, O. Nemoto, Y. Iwasaka, P.-M. Wu, A. Ono, R. A. Duce, M. Uematsu, J. T. Merrill and K. Arao, 1990: X-ray spectrometry of individual Asian dust-storm particles over the Japanese islands and the North Pacific Ocean. *Atmos. Environ.*, **24A**, 1369-1378.
- 長田和雄, 2007: 黄砂. *天気*, **54**, 697-700.
- Seinfeld, J. H. and S. N. Pandis, 1998: *Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change*. John Wiley & Sons, Inc., NY, USA.
- Streets, D. G., T. C. Bond, G. R. Carmichael, S. D. Fernandes, Q. Fu, D. He, Z. Klimont, S. M. Nelson, N. Y. Tsai, M. Q. Wang, J.-H. Woo and K. F. Yarber, 2003: An inventory of gaseous and primary aerosol emissions in Asia in the year 2000. *J. Geophys. Res.*, **108**, 8809, doi: 10.1029/2002JD003093.
- 杉本伸夫, 清水 厚, 松井一郎, 鶴野伊津志, 荒生公雄, 陳 岩, 2002: 連続運転偏光ライダーネットワークによる黄砂の動態把握. *地球環境*, **7**, 197-207.
- Sugimoto, N., I. Uno, M. Nishikawa, A. Shimizu, I. Matsui, X. Dong, Y. Chen and H. Quan, 2003: Record heavy Asian dust in Beijing in 2002: Observations and model analysis of recent events. *Geophys. Res. Lett.*, **30**, 1640, doi: 10.1029/2002GL016349.
- 鈴木健司, 内野 修, 吉田雅司, 本田耕平, 青野正道, 渡部文雄, 大友 猛 2001: サンフォトメーターで観測された1998年4月及び1999年4月の黄砂現象. *天気*, **48**, 317-321.
- Tanaka, T. Y. and M. Chiba, 2005: Global simulation of dust aerosol with a chemical transport model, MASINGAR. *J. Meteor. Soc. Japan.*, **83A**, 255-278.
- Tanaka, T. Y., K. Orito, T. T. Sekiyama, K. Shibata, M. Chiba and H. Tanaka, 2003: MASINGAR, a global tropospheric aerosol chemical transport model cou-

- pled with MRI/JMA98 GCM : Model description. Pap. Meteor. Geophys., **53**, 119-138.
- 田中泰宙, 眞木貴史, 石水尊久, 海老田綾貴, 千葉 長, 2005 : 全球鉱物ダスト輸送モデルの開発と黄砂現象予測への応用. エアロゾル研究, **20**, 297-305.
- Thermo Scientific, TEOM 1400 ab Ambient Particulate Monitor Product Specification (http://www.thermo.com/eThermo/CMA/PDFs/Product/productPDF_2006.pdf).
- Uematsu, M., A. Yoshikawa, H. Muraki, K. Arao and I. Uno, 2002 : Transport of mineral and anthropogenic aerosols during a Kosa event over East Asia. J. Geophys. Res., **107**, 4059, doi : 10.1029/2001JD000333.
- Uematsu, M., Z. Wang and I. Uno, 2003 : Atmospheric input of mineral dust to the western North Pacific region based on direct measurements and a regional chemical transport model. Geophys. Res. Lett., **30**, 1342, doi : 10.1029/2002GL016645.
- Wang, Y. Q., X. Y. Zhang, R. Arimoto, J. J. Cao and Z. X. Shen, 2004 : The transport pathways and sources of PM₁₀ pollution in Beijing during spring 2001, 2002 and 2003. Geophys. Res. Lett., **31**, L14110, doi : 10.1029/2004GL019732.
- Yabuki, S., M. Mikami, Y. Nakamura, S. Kanayama, F. Fu, M. Liu and H. Zhou, 2005 : The characteristics of atmospheric aerosol at Aksu, an Asian dust-source region of north-west China : A summary of observations over the three years from March 2001 to April 2004. J. Meteor. Soc. Japan, **83A**, 45-72.
- Zhang, D., Y. Iwasaka, A. Matsuki, K. Ueno and T. Matsuzaki, 2006 : Coarse and accumulation mode particles associated with Asian dust in southwestern Japan. Atmos. Environ., **40**, 1205-1215.
- Zhou, M., K. Okada, F. Qian, P.-M., Wu, L. Su, B. E. Casareto and T. Shimohara, 1996 : Characteristics of dust-storm particles and their long-range transport from China to Japan—Case studies in April 1993. Atmos. Res., **40**, 19-31.

Physical and Chemical Observations on Dust Events in Tsukuba during 2006 Spring—Difference between Kosa Dust and Local Dust—

Yasuhito IGARASHI*, Yayoi INOMATA*, Hiroshi TAKAHASHI*,
Yoshihiro SHINODA**, Taichu TANAKA*, Michio AOYAMA*
and Masaru CHIBA*

* *Meteorological Research Institute, 1-1 Nagamine, Tsukuba, Ibaraki 305-0052, Japan.*

** *Meteorological Research Institute (Present affiliation : Kobe Marine Observatory, Japan Meteorological Agency).*

(Received 12 February 2008 ; Accepted 10 March 2009)

Abstract

Aiming at deconvolution of the dust event into local and remote elements, physical and chemical aerosol observations were carried out at the Meteorological Research Institute in Tsukuba, Japan in spring of 2006. During the observation there were two remarkable dust events with the maximum aerosol mass concentration attained to a few hundred $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (hourly value), which were selected for close scrutiny. Based on the meteorological observations over the Japanese islands, backward-trajectory analysis and the CTM calculations, it was concluded that they had different origins. One was Asian dust transported from the continent (Kosa) and the other was blowing dust from neighborhood. Therefore, physical and chemical characteristics of these were compared. For the case of the blowing dust event during its

evolution (the dust mass was increasing), number concentrations of larger particles increased remarkably, while those increased concurrently by all particle size bins of the optical particle counter for the Kosa event. In the analysis of the water soluble ions, the Kosa dust showed about twice higher concentrations as well as the ratio of nss-Ca^{2+} and nss-SO_4^{2-} to the total dust mass compared to those of the local blowing dust. NO_3^- also exhibited significantly high concentration for the Kosa dust. Further accumulation of such differences in physical and chemical nature of the dust may bring a potential criterion to distinguish the Kosa and the local blowing dust events over Japan.
