

I 報 文

長崎に飛来した黄砂の実態 —最近のトピックスと成分組成—

森 淳子・横瀬 健・石崎修造・香月 幸一郎・八並 誠・白井 玄爾

Recent Dust Event and Atmospheric Quality in Nagasaki Prefecture

Atsuko MORI, Takeshi YOKOSE, Shuzo ISHIZAKI,
Koichiro KATSUKI Makoto YATSUNAMI and Genji SHIRAI

We brought the excess of environmental standards of SPM in the past three years based on the result of Nagasaki Prefectural Air Pollution Monitoring System. The following were clarified by the supplementation data by an original investigation.

1. The SPM concentration of most monitoring station in the prefecture exceeded the environmental standards value at the large-scale Asian Dust phenomenon in the spring of 2002.
2. When the Asian Dust in autumn was observed in November, 2002, the rise of Ox concentration was observed before the rise of SPM concentration.
3. There was no large-scale Asian Dust phenomenon in 2004 2003, and the haze phenomenon was confirmed on the day when SPM exceeded environmental standards.
4. We found the case when the sulfate particles were a principal ingredient as a composition of SPM besides the case when the soil particles were a principal ingredient, by the componential analysis on a particulate material in April, 2005.

Key words: Asian Dust Suspended Particle Material

キーワード: 黄砂、浮遊粒子状物質

はじめに

長崎県における大気環境調査は、大気汚染防止法に基づき1971年度に開始されており、2004年度の概要については本所報資料編に掲載している。観測開始以来の長期変動について解析を行った¹⁾ところ、固定発生源関連の汚染物質については長期的に減少傾向が認められたが、移動発生源に関連して、都市部の二酸化窒素や非メタン炭化水素濃度が増加傾向にあった。また、光化学オキシダント濃度が特に1990年代以降増加傾向にあり、2002年度以来注意報発令基準以上の値が観測されている。更に、大規模な黄砂飛来時に浮遊粒子状物質の環境基準超過が認められている。

荒生ら²⁾は長崎海洋気象台が観測した1914年から2001年までの黄砂現象の経年変化を取りまとめている。2000年及び2001年は年間の黄砂日数が15～16日と最近20年では最高を示している。また3、4月は黄砂の観測日数が増加しているのに対し、5月は減少傾向にあり、地球温暖化との関連を示唆している。

このようなことから、環境省は平成14年度から黄砂実

態解明調査事業を開始している。本県は、北海道ほか全国6自治体とともにこの事業を受託しており、黄砂期に6回の試料採取を行っている。

ここでは、大気環境常時監視システムによって得られたデータと、独自に実施した観測から最近長崎に飛来した黄砂の実態を明らかにする。

方法

1 大気環境常時監視データ

観測体制の概要は本所報資料編のほか、行政による報告書³⁾にまとめられている。黄砂と関連が深い浮遊粒子状物質(SPM)は長崎県下(本土)49地点で1時間毎にデータを得ている。

2 粒子状物質

2-1 二段ろ紙法

2005年3月25日から5月30日までの間、長崎県衛生公害研究所屋上(北緯32度48分26秒、東経129度50分59秒)にて10ライングローバルサンプラー(東京ダイレック製GS-10DP)で粒子状物質の連続採取を行った。

NILU製ろ紙ホルダーの一段目に2.5 μmインパクト

一と47×20mm φ の石英ろ紙(Pallflex 25000QAT-UP)、二段目に47mm φ の石英ろ紙(Pallflex 25000QAT-UP)をセットし、2.5 μ mを超える粒径の粒子と2.5 μ m以下の粒子を分粒して採取した。サンプラーは約10L/minの流速で吸引し、毎日16:00にホルダーを切り替えた。

回収したろ紙は純水で抽出し、イオンクロマトグラフにてSO₄²⁻, NO₃⁻, Cl⁻, NH₄⁺, Ca²⁺, Mg²⁺, K⁺, Na⁺を分析し液中濃度を求めた後、吸引流量から大気中濃度を求めた。

2-2 アンダーセンサンプリング

2005年4月15日15:00～16日15:00と2005年4月21日15:00～22日15:00、同地点にて、柴田科学株式会社製ローボリウム・エアサンプラー アンダーセンタイプA N-200型を用いて採取を行った。市販の食品フィルムを80mm φ に切り取ったものを9枚セットし0.43 μ m以下から11.0 μ m以上まで粒径別に採取した。回収したろ紙は1枚ごとに秤量し、専用アプリケーション・ソフトにて粒径分布を計算した。また走査型電子顕微鏡(JEOL J SM-5310)によって、形状を観察した。

3 湿性沈着物

長崎市向町 式見ダム管理棟横(北緯32度47分26秒, 東経129度48分10秒)にて雨水自動サンプリング装置(株旺計社ORS-100)を用いて1降雨毎に自動採取を行っている。採取された試料の分析項目などは表1のとおり。

表1 湿性沈着物分析項目と方法

分析項目	分析方法	定量(検出) 下限値
pH	ガラス電極法	0.01
EC	導電率計を用いる方法	0.01 μ S/cm
SO ₄ ²⁻	イオンクロマトグラフ	0.05mg/L
NO ₃ ⁻	"	0.034mg/L
Cl ⁻	"	0.008mg/L
NH ₄ ⁺	"	0.05mg/L
Ca ²⁺	"	0.08mg/L
Mg ²⁺	"	0.005mg/L
K ⁺	"	0.02mg/L
Na ⁺	"	0.03mg/L

結果と考察

1 大気環境常時監視データにおける環境基準超過状況

表2に、過去10年のSPM環境基準超過状況を示した。2002年3月から2002年4月にかけて出現した大規模な黄砂現象によって、環境基準達成率が一桁以下まで低下したが2003, 2004年度の長期的評価における環境基準達成率はほぼ100%に近い値まで回復している。このように、年によって黄砂の規模が異なる要因について原ら⁴⁾は、2001年、2002年のゴビ砂漠付近の積雪被覆率が極めて低かったこと、700hPa高度におけるジオポテンシャル高度の平年値との偏差の解析から、2001年、2002年は発生源付近で低気圧活動が活発であるために強風発生頻度が高まり、ダストの発生量が増加することをあげている。

表2 過去10年間のSPM環境基準超過状況

年度	有効測定		短期的評価		長期的評価		
	局数	達成局数	非達成局数	達成率 (%)	達成局数	非達成局数	
1994	48	3	45	7	48	0	100
1995	48	22	26	45.8	44	3	93.6
1996	45	18	27	40	44	0	100
1997	45	9	36	20	42	3	93.3
1998	45	5	40	11.1	26	19	57.8
1999	46	7	39	18.4	46	0	100
2000	47	5	42	11.1	32	15	68
2001	48	2	46	4.4	2	46	4.1
2002	49	0	49	0	1	49	2
2003	49	12	37	24.4	46	3	93.9
2004	49	36	13	73.5	48	1	98

2 SPM環境基準超過と黄砂現象

表2～4に2002～2004年度のSPM環境基準超過と黄砂現象等の出現日を示した。

2002年度(表3)は、大規模な黄砂現象が前年度の3月から引き続き4月にも13日観測された。そのうち8～10日にかけては、SPM濃度も最高517 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ に達し、ほとんどの局で日平均値の環境基準値を超過した。

11月には6年ぶりと言われた秋の黄砂が観測された。年度途中で環境省委託業務の受託を開始したが、第一回の採取として2003年3月25日～翌4月1日まで黄砂の採取を行った。長崎ではこのときの大気現象は「煙霧」であるとされた。

霧」であるとされた。

2004年3～4月に数回気象官署によって「黄砂」現象が確認された。この間環境省調査として5回黄砂の採取を行った。しかしSPM濃度が環境基準を超過することはなく、比較的小規模であった。

なお、2002年6月3～6日に「煙霧」が観測された際、複数の局で日平均値が100 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を上回った。2003年9月15～17日及び2004年5月7日に日平均値が100 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を上回った日にも、「煙霧」が観測されていた。この内、2004年5月7～8日には環境省調査として黄砂の採取を行った。

表3 2002年度の黄砂関連大気現象とSPM基準超過状況

			環境省指示による黄砂採取 (ハイボリ試料濃度 mg/m^3)	長崎海洋気象台による大気現象	SPM1時間値の最高濃度 (mg/m^3)	日平均値が 0.10 mg/m^3 を超えた局数
2002年	4月	1日		黄砂	0.159	1
		2日		黄砂	0.126	0
		3日		黄砂	0.144	0
		7日		黄砂	0.182	0
		8日		黄砂	0.517	47
		9日		黄砂	0.269	49
		10日		黄砂	0.324	42
		11日		黄砂	0.172	0
		12日		黄砂	0.133	0
		13日		黄砂	0.154	3
		14日		黄砂	0.190	0
		17日		黄砂	0.379	6
		5月	23日		黄砂	0.110
	6月	3日		もや、煙霧	0.215	15
		4日		もや、煙霧	0.155	2
		5日		もや、煙霧	0.165	4
		6日		もや、煙霧	0.164	3
8月		27日			0.164	1
11日		12日		黄砂	0.297	26
	13日		黄砂	0.146	0	
2003年	2月	19日		煙霧	0.194	8
	3月	25日	0.070		0.159	0
		26日		もや、煙霧	0.134	1
		30日	0.068		0.137	0
	31日	0.063		0.225	0	

3 大規模黄砂現象

2002年4月8～10日の黄砂現象によって、8日にはSPM1時間値が最大517 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ に達し、ほとんどの局で1時間値の環境基準値(200 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)を大きく上回った。9日には県内全局で日平均値が環境基準値の100 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を上回るなど、大規模な現象であった。図1に4月8～10日の長崎県管理15局のSPM1時間値の変化を示した。4月8日は、島原半島をのぞく県下の広範囲が一斉にSPM濃度が上昇している。9日は島原半島を含め県

下の広範囲でSPM濃度がなだらかに上昇している。10日は県の北部から南部にかけて順次濃度が上昇している。地上天気図をみると、8日9時対馬海峡にあった寒冷前線が9日9時には九州南部まで南下している。替わって大陸東岸付近から東進した高気圧が10日9時には黄海に達している。今回の事例では、寒冷前線に伴う移送はすばやく、高気圧に伴う移送は比較的ゆっくり黄砂をもたらしたと考えられる。

表4 2003年度の黄砂関連大気現象とSPM基準超過状況

			環境省指示による黄砂採取 (ハイポリ試料濃度 mg/m ³)	長崎海洋気象 台による大気 現象	SPM1時間値 の最高濃度 (mg/m ³)	日平均値が 0.10mg/m ³ を超 えた局数
2003年	4月	1日			0.094	0
		13日		黄砂	0.107	0
	9月	15日		もや、煙霧	0.165	4
		16日		もや、煙霧	0.170	4
		17日		もや、煙霧	0.154	2
2004年	3月	10日	0.043		0.143	0
		11日	0.098	黄砂	0.139	0
		12日		黄砂	0.108	0
		15日		黄砂	0.114	0
		16日		黄砂	0.098	0
		30日	0.062	黄砂	0.081	0
		31日		黄砂	0.077	0

表5 2004年度の黄砂関連大気現象とSPM基準超過状況

			環境省指示による黄砂採取 (ハイポリ試料濃度 mg/m ³)	長崎海洋気象 台による大気 現象	SPM1時間値 の最高濃度 (mg/m ³)	日平均値が 0.10mg/m ³ を超 えた局数	
2004年	4月	2日		黄砂	0.079	0	
		3日		黄砂	0.144	0	
		21日		黄砂	0.109	0	
		22日		黄砂	0.102	0	
		23日	0.123	黄砂	0.120	0	
		24日	0.066		0.082	0	
		25日			0.062	0	
	5月	7日	0.074	もや、煙霧	0.149	2	
		8日		もや、煙霧	0.153	0	
		6月	23日		もや、煙霧	0.173	3
2005年	3月	18日	0.067		0.158	0	
		19日			0.158	0	
			29日	0.063		0.077	0
			30日	0.060		0.084	0
			31日			0.107	0

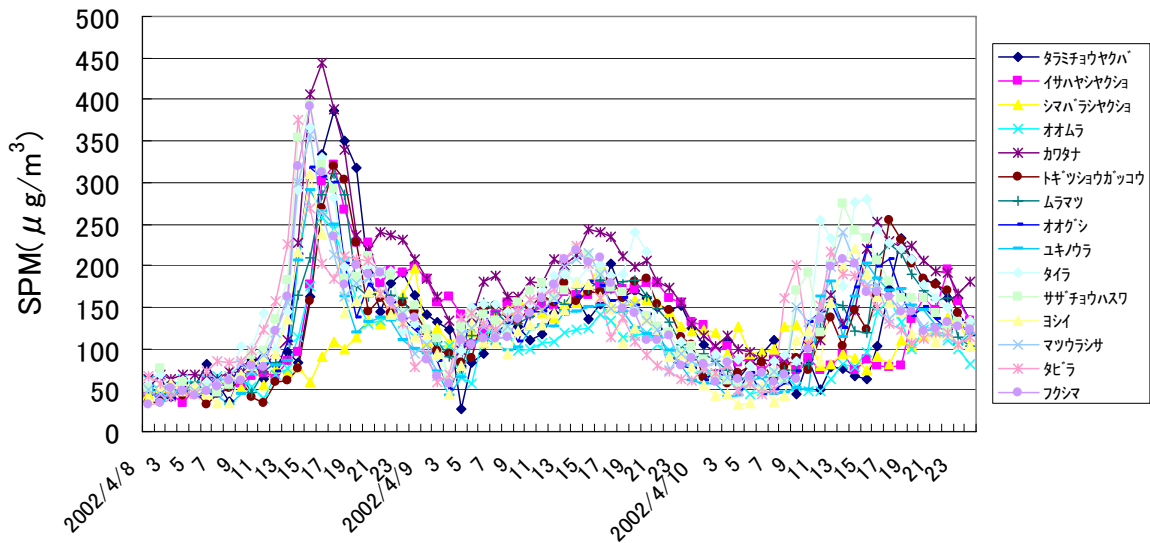


図1 2002年4月8～10日における長崎県内15局におけるSPM濃度の時間変化



図2 2002年4月8～10日における地上天気図⁵⁾

4 秋の黄砂

2002年11月に「秋の黄砂」が観測された。日韓海峡沿岸県市道環境技術交流会議が実施した共同研究⁶⁾によると、2002年11月12日前後において、宇部市、福岡市、佐賀市、長崎市、全羅南道木甫市、済州道西甫市で黄砂現象が確認されている。又11月12日には韓国側の二市に加え釜山市においてPM₁₀の環境基準を超過している。11月12日に観測された県内大気常時観測局におけるSPMとOx濃度の経時変化を図3に示した。SPMの最大値は午前6時に現れた。これに先立つようにOx濃度の最大値が午前4時に出現している。同様にSPMに先立ちOxが高濃度となる現象は福岡市、佐賀市でも確認されている。しかし山口市、韓国側都市では明瞭ではなかったことから、九州北西部に現れた現象であったと考えられる。

5 黄砂と煙霧現象

環境省委託による第一回採取は2003年3月25日～翌

4月1日に行われた。長崎ではこのときの大気現象は「煙霧」とであるとされた。3月25～26日には、北部九州および山口県で実施された調査によって、高濃度の硫酸エアロゾルが観測されている⁷⁾⁸⁾。その後3月27日に黄砂採取地点と同じ地点で採取された湿性沈着物は硫酸イオン濃度が7.43 ml/Lと比較的高い濃度を示した。

2に記述したように2003, 2004年度は、煙霧現象の際にSPMの環境基準超過が認められている。大気環境保全の観点からSPMの成分を明らかにするために、2005年春季に2段ろ紙法による粒子状物質の連続採取を行った。

図4に2005年4月の粒子状物質成分濃度の日変化を示した。この月長崎海洋気象台によると、13～16日、20～22日に黄砂が確認されている。図中に示す県管理14局のSPM濃度平均値も同時期に極大値を示している。

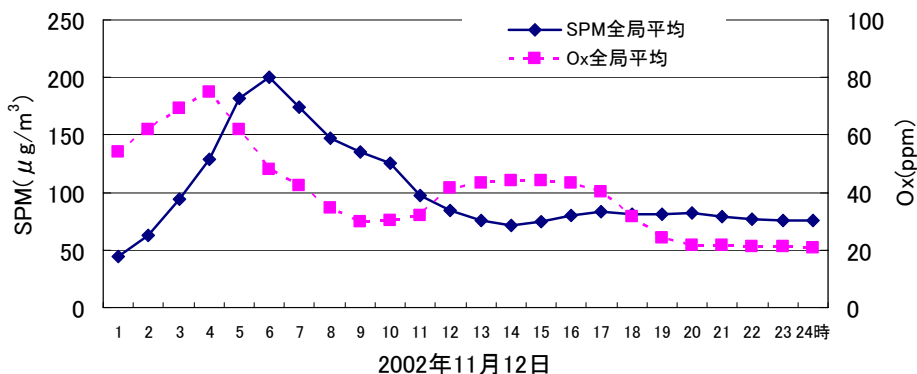


図3 2002年11月12日のSPMとOxの時間変化

図4において成分をより詳細にみると、15～16日および20～21日には粗大粒子側のCa²⁺濃度が高く、黄砂によって土壌粒子が運ばれたことを反映していると考えられる。しかし13～15日は微小粒子濃度が極大を示している。一般に粒径2.5 μm以下の微小粒子は二

次生成粒子などから成るが、今回の観測でも微小粒子の主成分はSO₄²⁻とNH₄⁺であった。また、4月1～2日、8～9日においてSPM濃度がピークを示しているが、成分的には粗大粒子ではなく、微小粒子が同日にピークを示している。

4月15～16日にアンダーセンサンプラーで採取された試料と21～22日に採取された試料の粒径分布図と走査型電子顕微鏡による画像を図5, 6に示した。21～22日に採取された試料は粒径分布において $2.1\mu\text{m}$ 以上にピークを示した(図5)。また走査型電子顕微鏡による観察によると、 $7.0\sim 11.0\mu\text{m}$ のステージに不定形の土壌粒子が観測された(図6(c))。これに対し、15～16日に採取された試料は $0.65\sim 1.1\mu\text{m}$ に最大値を示す粒径分布を示した(図5)。さらに同じステージを走査型電子顕微鏡によって観察した結果、球形の物質が確認され(図6(c))、 $4.7\sim 7.0\mu\text{m}$ の粗大粒子のステージには海塩成分が観測された(図6(a))。成分分析の結果と併せ、15～16日に観測された“黄砂”には相当量の硫酸塩が含まれ

ていたことが明らかとなった。

Unoら⁹⁾は化学天気予報(数値シミュレーション)を用いて2001年4月の東アジア域における黄砂ダストと硫酸塩の濃度コンターを時系列で示し、利尻、八丈島で得られた観測値とよく一致することからその妥当性を示した。Kamayaら¹⁰⁾は2001年3月に観測された粒子状物質の観測結果から、気塊の起源によって硫酸塩優位の組成を示す場合と土壌粒子優位の組成を示す場合があることを示した。さらにSugimotoら¹¹⁾はライダーを用いた観測で、2004年4月、北京において非球形の黄砂ダストと球形の大気汚染物質の鉛直分布を時系列で解析し、それらが化学天気予報とよく一致することを示し

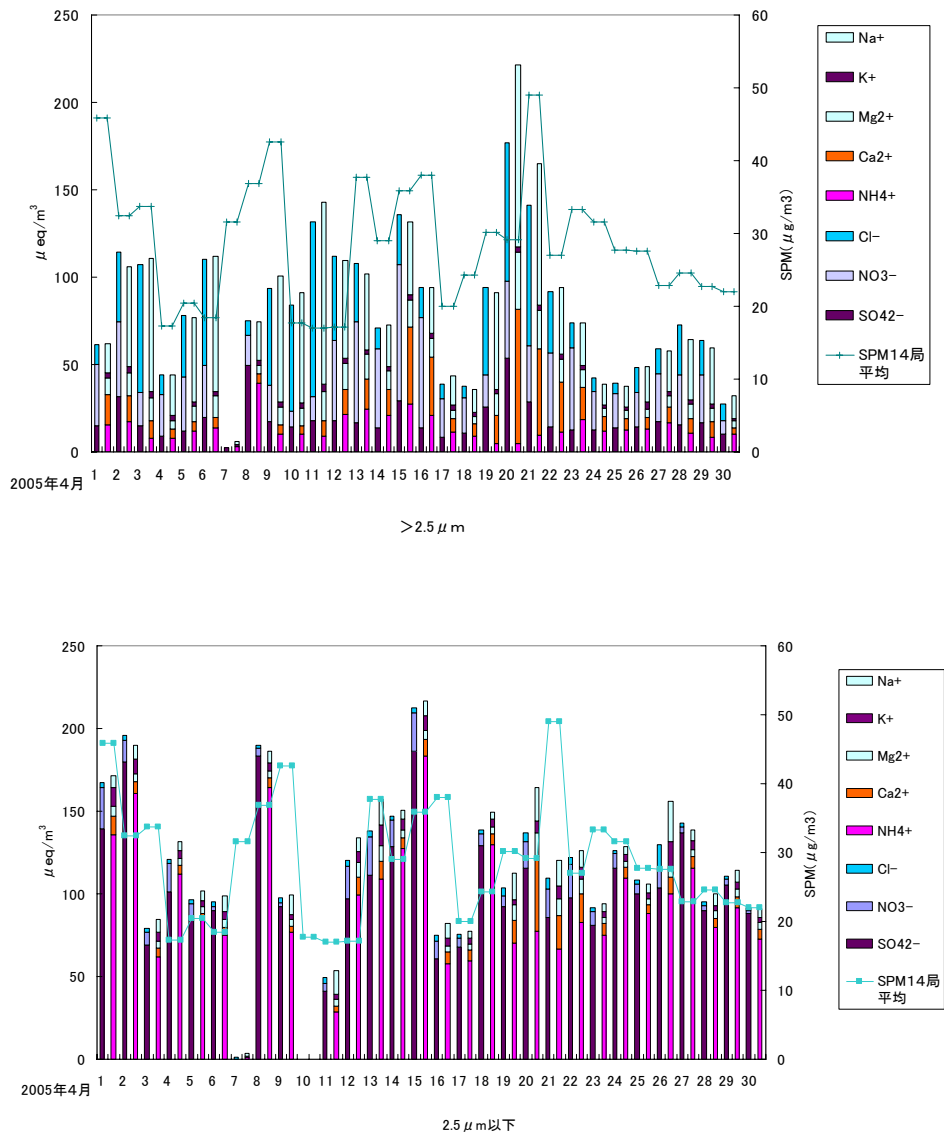
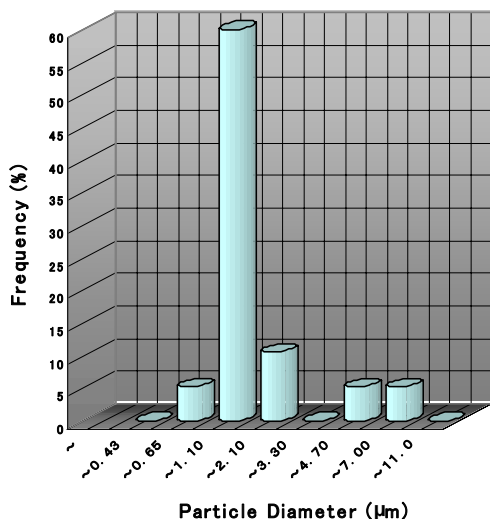
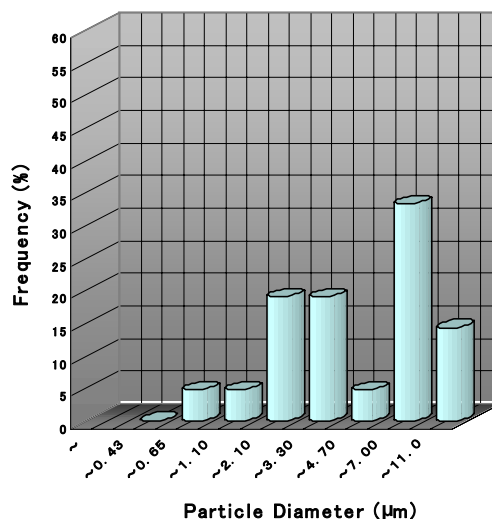


図4 粒子状物質成分濃度の日変化(上段粒径 $2.5\mu\text{m}$ 超、下段 $2.5\mu\text{m}$ 以下)

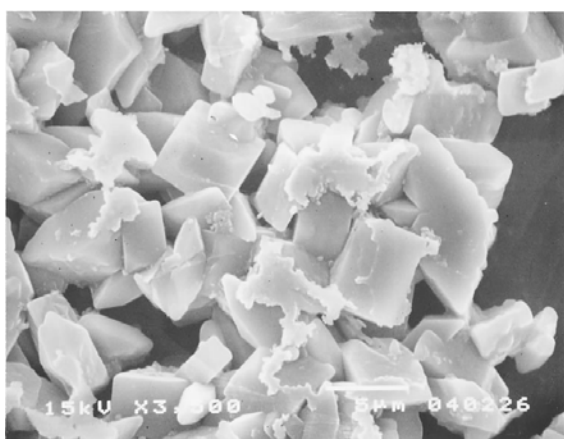


(a)2005年4月15～16日採取試料

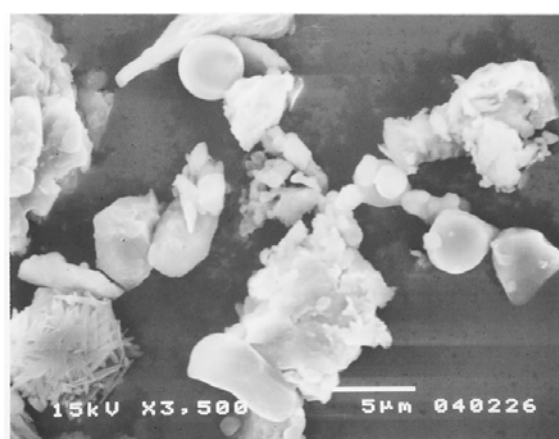


(b)2005年4月21～22日採取試料

図5 アンダーセンサンプラーで採取された試料の粒径分布

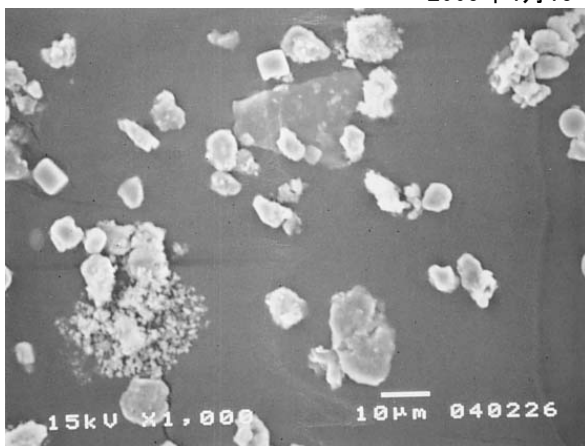


(a)2段目 [4.70--7.00 μm]

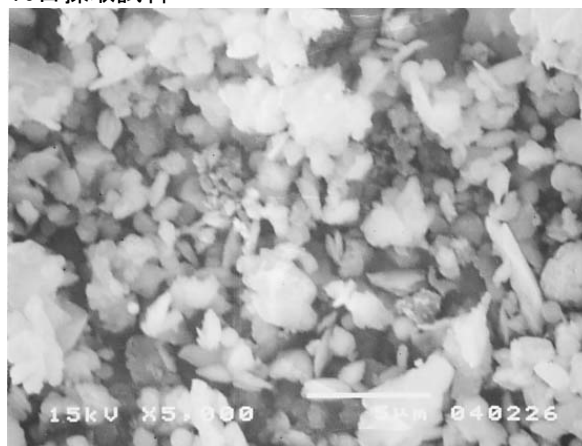


(b)6段目 [0.65--1.10 μm]

2005年4月15～16日採取試料



(c)1段目 [7.00--11.0 μm]



(d)5段目 [1.10--2.10 μm]

2005年4月21～22日採取試料

図6 アンダーセンサンプラーで採取された試料の走査型電子顕微鏡画像

た。このように、黄砂ダストと硫酸塩が同時にまたは交互に移流する実態が次第に明らかになっている。大気汚染物質としての硫酸塩は硫黄酸化物が大気中で酸化を受けることによって二次的に生成する。東アジア域で観測される硫酸塩の起源は主に石炭燃焼由来の硫黄酸化物であると推定されている¹²⁾。硫酸塩に代表される微小粒子は、呼吸器への影響が大きいと言われている。わが国では現在SPM(粒径10 μ m以下の粒子)の環境基準が設定されている。米国は粒径2 μ m以下の浮遊粒子状物質の影響で死亡率が増えているという報告に基づき、1997年PM2.5(粒径2.5 μ m以下の粒子)について環境基準が設定された。技術的にはPM2.5の連続自動測定は可能であり、わが国でも環境省によって暫定マニュアルが示されている。SPMの成分をろ紙から抽出して逐一分析する方法は、労力と時間を要するが、PM2.5の環境基準が設定された上で連続自動測定が導入されれば、即座に住民と情報を共有することができる。黄砂とともに、健康に影響が大きいといわれている微小粒子が飛来している事実が次第に明らかになりつつあることから、早急な取組が望まれる。

まとめ

長崎県大気汚染常時監視システムの観測結果を基に過去3年間のSPMの環境基準超過状況をまとめた。独自調査による補完データによって、下記が明らかになった。

1. 2002年春の大規模黄砂現象で、県下のほとんどの観測局でSPMの環境基準値を超過した。2002年4月8、9日、寒冷前線によって黄砂がもたらされた際には、県下全域が一斉に濃度が上昇する傾向があったが、2002年4月10日高気圧に伴って黄砂がもたらされる場合は、県北部から南部にかけてなだらかに濃度が上昇した。
2. 2002年11月に観測された秋の黄砂では、SPMの上昇に先立って、O_xの上昇が観測された。この時期実施されていた日韓共同研究によると、O_xの上昇は九州北西海岸にわたって確認された。
3. 過去3カ年、黄砂であるのか煙霧であるのか紛らわしい現象が何度か観測された。2003年、2004年は大規模な黄砂現象はなく、SPMが環境基準を超過した日には、煙霧現象が確認されていた。
4. 2005年4月の粒子状物質の成分分析によって、SPMの組成として、土壌粒子優位の場合と、硫酸塩優位の場合があることが判明した。硫酸塩粒子は粒径が小さく健康への影響が大きいことから今後もより詳細な実態把握が望まれる。

謝辞

電子顕微鏡による黄砂調査方法に関してご助言いただいた福岡県保健環境研究所下原孝章博士に感謝します。

粒子状物質の分析業務に尽力いただいた嘱託職員、松本健吾さん、データ整理にご協力いただいた委託職員、大村公子さんに感謝します。

参考文献

- 1) 森 淳子、竹野大志、香月幸一郎、白井玄爾：長崎県における大気環境の特徴－平成14年度大気汚染常時監視結果の解析と長期変動解析－，長崎県衛生公害研究所報，**48**，1-17(2002)
- 2) 荒生公雄、伊藤和博、古謝 愛：長崎地方における1914年から2001年までの黄砂現象の経年変化，長崎大学総合環境研究，**5**(1)，1-10(2003)
- 3) 長崎県県民生活環境部環境政策課：平成15年度大気環境調査結果(2003)
- 4) 原 由香里、佐竹晋輔、鶴野伊津志、竹村俊彦：領域ダスト輸送モデルを用いた黄砂現象の年々変動シミュレーション，天気，**51**，10.719-728(2004)
- 5) (株)ウェザーマップ社『気象人』ホームページ E-mail info@weathermap.co.jp
- 6) 日韓海峡沿岸環境技術交流協議会 福岡県・佐賀県・長崎県・山口県：九州北部三県及び山口県における浮遊粒子状物質成分調査報告書2004年12月(2004)
- 7) 大石興弘、森 淳子：九州北部三県及び山口県における浮遊粒子状物質成分調査結果について－粒子状物質成分の性状及び硫酸イオンの高濃度事例－，第46回大気環境学会年会講演要旨集，**569**(2005)
- 8) 日韓海峡沿岸県市道環境技術交流会議 日本国(福岡県 佐賀県 長崎県 山口県) 大韓民国(釜山広域市 全羅南道 慶尚南道 済州道)：2002年～2003年 日韓海峡沿岸県市道環境技術交流事業「日韓都市間大気汚染度比較評価」報告書2004年11月(2004)
- 9) I.Uno,G.R.Carmichael,D.G.Streets,Y.Tang,J.J.Yienger,S.Satake,Z.Wang,Jung-Hun Woo,S.Guttinkunda,M.Uematsu,K.Matsumoto,H.Tanimoto,K.Yoshioka and T.Iida : Regional chemical weather forecasting system CFORS:Model descriptions and analysis of surface observations at Japanese island stations during the ACE-Asia experiment,JGeophys. Res., 108(D23),8636,doi :

10.1029/2002JD00325(2003)

- 10) T.Kamaya, A.Mori, K.Arao, T.Ohara, N.Sugimoto, H.Mukai and K.Murano : Continuous Monitoring of Gas and Aerosol in the Vicinity of Nagasaki City –Gaseous and Ionic Composition at Yellow Sand Event-, Proceedings of Fourth ADEC workshop (26-28 January 2005, Nagasaki, Japan)(2005)
- 11) N.Sugimoto, A.Shimizu, I.Matsui, X.Dong, S.Xhao, J.Zhou, C-H, Lee and I.Uno : Network Observations of Asian Dust and Air Pollution Aerosols Using Polarization Lidars, Proceedings of Fourth ADEC Workshop(26-28 January 2005, Nagasaki, Japan) (2005)
- 12) S.K.Guttikunda, T.M.Johnson, F.Liu, J.J.Shah : Sulfur pollution control programs in China, Abstracts of Acid Rain 2005 7th International Conference on Acid Deposition, Prague, Czech Republic June 12-17, 2005, 713, (2005)