

II 資料

五島列島福江島における SO₂, O₃ 及びエアロゾル成分の変化

釜谷 剛・植野 康成・村上正文・村野健太郎*

Variation of SO₂, O₃ and particulate pollutants on Hukuejima

Takeshi KAMAYA , Yasunari UENO , Masahumi MURAKAMI, Kentaro MURANO

Key word; sulfur dioxide, ozon, aerosol

はじめに

長崎県は日本列島の最西端に位置し、アジア大陸に最も近い地理的条件にあるため、東アジア地域の急速な工業化や車社会化の進展に伴う窒素酸化物や硫黄酸化物の排出量が増大するにしたがって、排出された大気汚染物質の長距離輸送による越境大気汚染が懸念されている。東アジア地域からの越境大気汚染に関する研究^{1)~3)}は最近、活発になっており、本県対馬においては特異な気象条件下ではアジア大陸及び朝鮮半島から汚染物質が輸送されることが明らかとなっている¹⁾。

また、長距離二次汚染物質の前駆物質である二酸化硫黄は火山からの排出もあり、特に九州には桜島、阿蘇など二酸化硫黄の排出量が多い火山が集中している⁴⁾。本県も山下ら⁵⁾により桜島火山ガスの影響を受けていることが示唆されている。

そこで、わが国における環境酸性化物質の物質収支解明のためには、国内と上流側となる外国（中国青島、韓国済州島など）での大気汚染物質の通年あるいは短期集中観測が必要であると考えられ、国内における大気汚染物質調査地点の一つとして五島列島の国設五島酸性雨測定所においてオゾン、二酸化硫黄、エアロゾル中の硝酸塩、硫酸塩、アンモニウム塩等の観測を行ったのでその結果を報告する。

調査地点及び調査方法

1. 調査地点 (図1)

国設五島酸性雨測定所は長崎市から西へ約100 km離れた東シナ海の五島列島の中でも最も南に位

置する福江島の西端に位置している。なお、調査地点名等は下記に示したとおりである。

調査地点名：国設五島酸性雨測定所

所在地：長崎県南松浦郡玉之浦町大宝

郷字ヅンナン辻1148番

土地利用区分：玉之浦町大宝郷グラウンドの

駐車場に隣接した草地

経度、緯度：北緯32度36分11秒、東経128度39分32秒、標高約95m

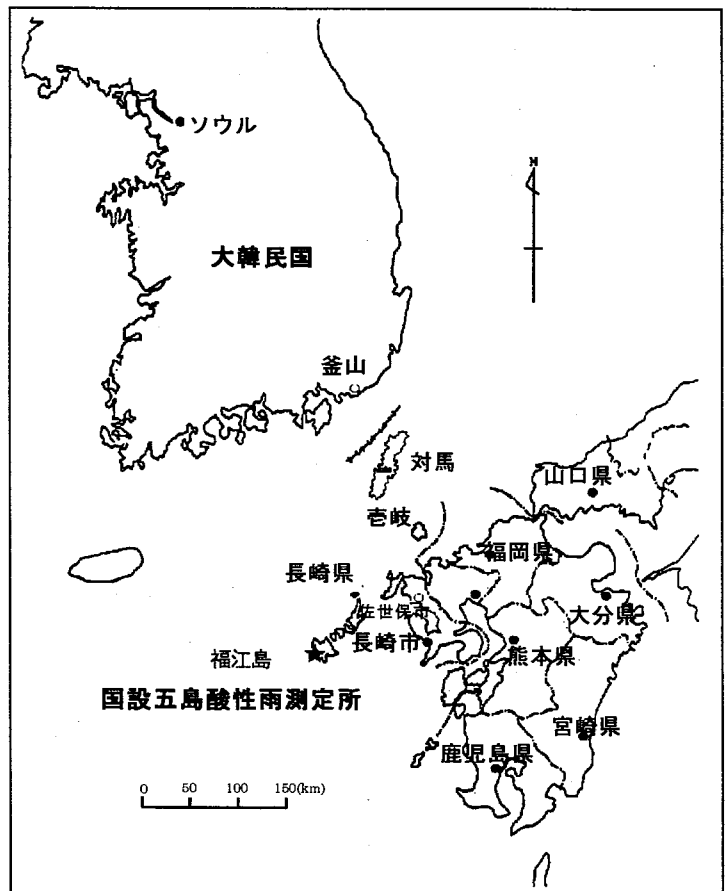


図1 調査地点概略図

*環境庁環境研究所酸性雨研究チーム

調査地点周辺の固定発生源の状況についてみると、福江島内の主なばい煙発生事業所は1998年3月31日現在で23事業所あり、その半数以上が福江市に集中している。

福江島内最大のばい煙発生施設は、調査地点から北東へ約20km離れた福江市内に設置されており、同施設から排出される硫酸化物及び窒素酸化物の排出量はそれぞれ島内の排出量の94%と97%を占めている。その他は小規模ながらボイラー、廃棄物焼却炉、骨材乾燥炉の施設がみられる。調査地点近傍には、北約4km離れた地点に設置されている最大排出ガス量 $2,250\text{m}^3$ のゴミ焼却場及び北約6kmに設置されている最大排出量 $4,704\text{m}^3$ のボイラーが存在するのみである。

次に、移動発生源についてみると、交通量が多い福江市内の国道、県道でも12時間交通量は6,000台程度であるが、福江市を離れるにしたがって交通量は少なくなっており、国設五島酸性雨測定所の近傍の交通量は174台と非常に少ない。また、面的な発生源としては、調査地点の南西約500mに人口386人の漁村集落があるのみであり、調査地点は大規模な発生源の影響を受けにくい地点である。

2. 調査項目及び調査方法

風向風速計は小笠原計器総合気象観測装置OKS AM-2000であり、環境庁が測定しているデータを活用した。観測できる最大風速は20m/sである。

SO_2 は紫外線吸収式の電気化学計器(株)製大気中二酸化硫黄計GFS-32により1時間平均値及び瞬時値を連続して測定した。機器の校正等の点検は概ね年に一度の割合で業者により現地で実施した。

オゾンは紫外線吸収式のダイルック(株)製オゾン濃度計モデル1006AHJにより、1時間平均値及び瞬時値を連続して測定した。校正等の点検については、機器を年に一度の割合で直接メーカーまで送付し校正等を実施するとともに、その間の測定はダイルックモデル1003AHを代替品として使用した。校正されたモデル1006Aと代替品とを二重測定したところ、差はほとんどなく測定には支障がなかった。

大気中のエアロゾルは紀本電子工業(株)製テープ式ハイボリュウムサンプラーMODEL-195Aを用いて、フッ素樹脂製テープフィルター(住友電工AF-07)

上に吸引流量約120~150 l/minで春季、夏季、秋季、冬季の4季節にわたり、昼間として午前6時~午後6時、夜間として午後6時~午前6時の12時間ごとにエアロゾルのサンプリングを行った。

サンプリングしたエアロゾル中のイオン種の分析は以下のように実施した。

テープ式ハイボリュウムサンプラーのフィルタースポットをセラミックはさみで切り取り、共栓付き試験管に入れ、次いで脱イオン水40mlを加えて、約20分間振とう後、さらに約20分間超音波抽出した。

抽出した水溶液をミリポア製MILLEX-HA (0.45 μm) フィルターによりろ過後、イオンクロマトグラフ法で分析した。

分析したイオン種は Cl^- 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 Na^+ 、 NH_4^+ 、 K^+ 、 Ca^{++} 、 Mg^{++} の8種類である。

測定されたエアロゾルの起源等を解析するためにトラジェクトリー解析を用いた。トラジェクトリーの計算は、ヨーロッパ中期予報センター(ECMWF)の全球客観解析データ(12時間毎、2.5度格子)を用い、国設五島酸性雨測定所の上空1500m地点を出発する等温位面に沿ったバックトラジェクトリーをHayasida et al.⁶⁾の方法で求めた。

なお、測定されたエアロゾル中のイオン種については、エアロゾル中 Na^+ がすべて海塩由来である⁷⁾と仮定し、海水中の成分比により海塩性及び非海塩性とに分けて計算した。例えば非海塩性 SO_4^{2-} (以下 nss-- SO_4^{2-} と表記する。)は次式により計算した。

$$\text{海塩性}\text{SO}_4^{2-} = 55.17/459.33 \times \text{Na}^+$$

$$\text{nss--}\text{SO}_4^{2-} = \text{トータル}\text{SO}_4^{2-} - \text{海塩性}\text{SO}_4^{2-}$$

注) 55.17 : 海水 1 kg 中硫酸イオンのmg当量
459.33 : " ナトリウムイオン "

調査結果及び考察

1. 風向及び風速 (図2)

調査地点は1997年度1998年度とも北よりの風が卓越し、NNE、N、NNWの3風向の合計で全風向の61.2%及び51.2%を占めており、平均風速は両年度とも約5m/sであった。東西方向の風速は約2~4m/sであるのに対し、南北方向は約4~7m/sとなっており、東西方向よりも南北方向の風が強い地点である。

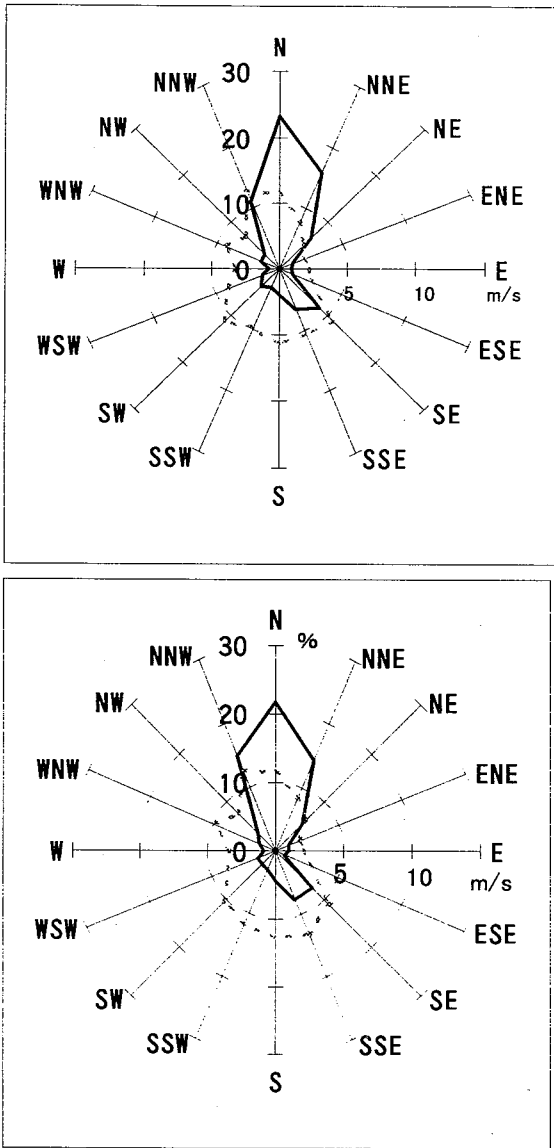


図2 国設五島酸性雨測定所における風配図
 実線：風向頻度(%)、破線：風速(m/s)、
 上段：1997年度、下段：1998年度

2. SO₂濃度 (図3)

月平均値については、春季及び冬季に若干高くなっているが、いずれの月も1～3 ppb と低かった。年平均値も 1996 年度 2.3ppb,1997 年度 1.2ppb,1998 年度 1.3ppb と低く、長崎県内でも汚染が少ない測定所の年平均値は2～3 ppb 程度⁹⁾であるので、国設五島酸性雨測定所における SO₂ のレベルは長崎県のバックグラウンドレベルと考えられる。

1 時間値の最高値は、1996年度13ppb,1997年度20ppb,1998年度 16ppbであり、しばしば、高濃度の気塊が移流してきたものと考えられる濃度上昇が見られた。

次に、SO₂ 1 時間値の 7 ppb 以上を国設五島酸性雨測定所における高濃度値とし、その出現状況を下表に示した。

1996年8月から1998年3月までの高濃度出現日は21日で延べ37時間であった。風向がNNE,N及び

SO₂>7ppb出現状況(1996年8月～1998年3月)

風 向	超過時間	風 向	超過時間
N	13	SSW	0
NNE	5	SW	0
NE	0	WSW	1
ENE	1	W	1
E	0	WNW	1
ESE	0	NW	1
SE	1	NNW	5
SSE	6	Calm	1
S	1	Total	37

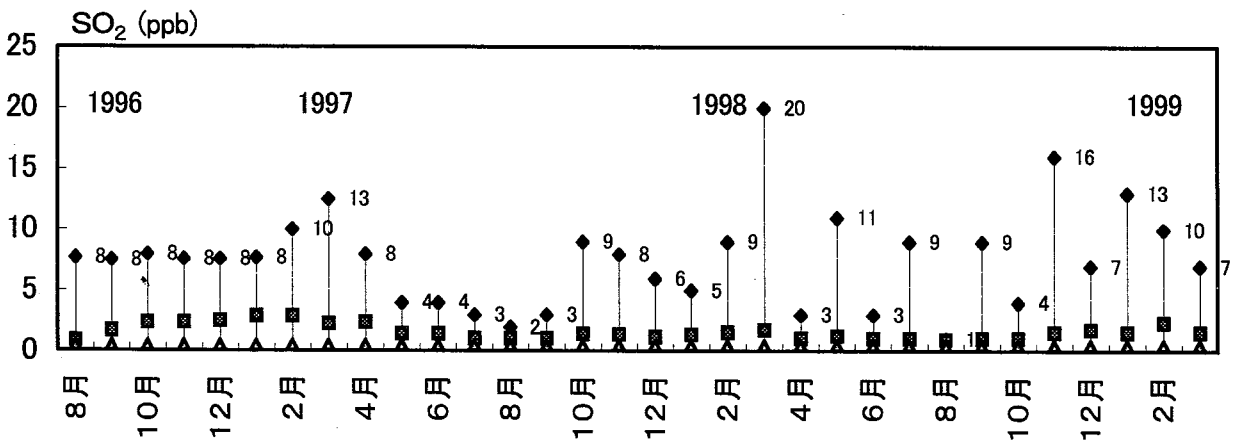


図3 SO₂月変化(最大値、平均値、最小値)

NNWであった場合の高濃度出現時間数は各々5時間,13時間,5時間であり,これら北系の風向時が高濃度出現時間数全体の62%を占めていた。北系以外の風向ではSSEの場合に6時間超過しており調査地点の南方にもSO₂の汚染源があることを示唆している。なお,SO₂が4ppbを越えた継続時間は1~26時間にわたっている。

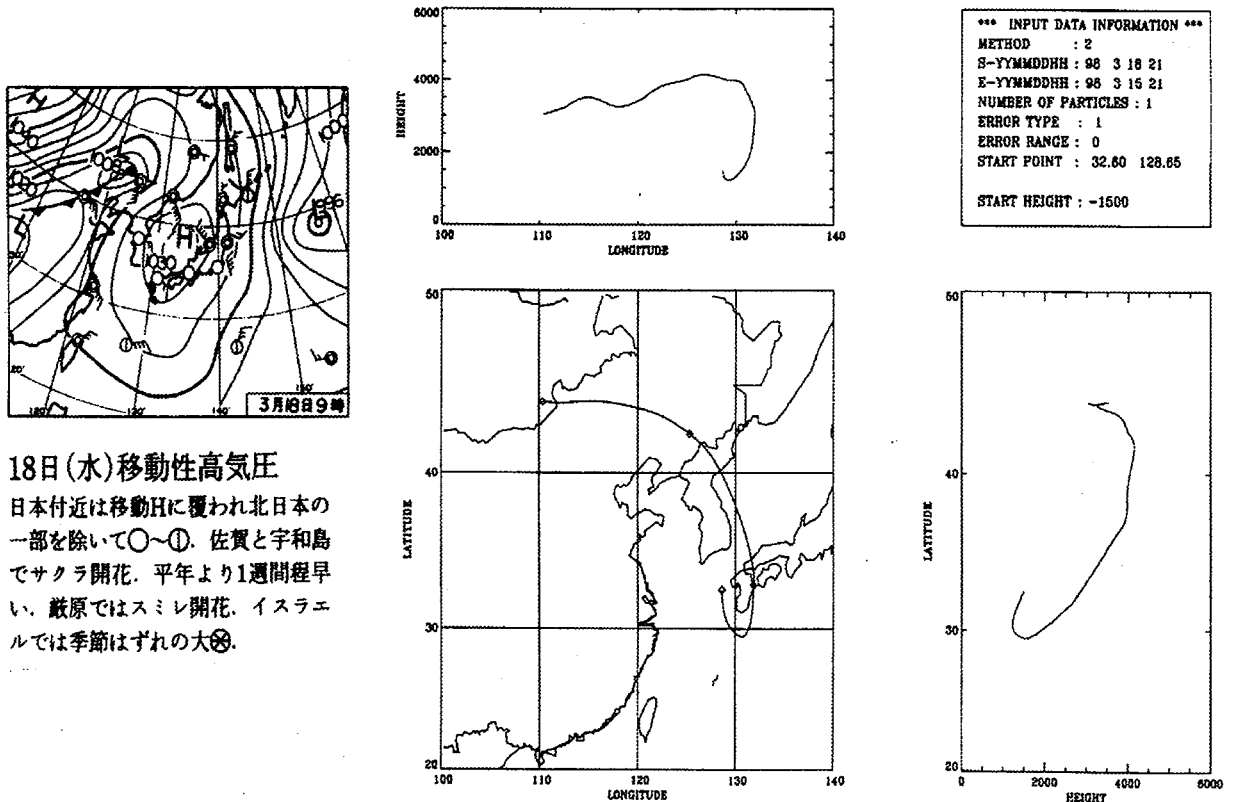
過去の事例として,長崎県における高濃度SO₂汚染の解析⁵⁾によると,県下におけるSO₂の高濃度汚染(この場合の高濃度とは20ppb以上を指す。)は季節によらず発現し,移動性高気圧の後面での沈降性逆転層のために桜島プルームの鉛直拡散が抑制されることや,下降気流による上空から地上付近への火山性ガスの輸送が重要なメカニズムとして作用していることが示唆されるとしている。

SO₂が高かった1998年3月18日16時から18時の事例をみると,SO₂は9ppb~20ppbと高く,風向はSSEであった。図4に示したように3月18日の地上天気図⁸⁾によると調査地点は移動性高気圧の後面に

位置しており,さらにバックトラジェクトリー解析によると,3月18日の3日前にモンゴル上空約3000mにあった気塊は3月17日には九州上空で約1200mまで下降し九州南部を経て調査地点に達している。このことから3月18日の事例は九州南部に位置する火山の影響を受けSO₂濃度が高くなったものと考えられる。

同じく図5に示したように,SO₂が高かった1997年1月28日1時の場合は大陸からの影響を受けたと考えられる一例として挙げられる。1月28日におけるバックトラジェクトリー解析によると,ロシア南部上空高度約3,000mにあった気塊はバイカル湖上空を通過し,中国の山東半島西方で高度が約1,000m下降後,調査地点まで達していた。

このように,調査地点が移動性高気圧の後面に位置し九州南方の火山の影響を受ける場合や大陸の影響を受ける北寄りの風の場合にSO₂濃度は高くなるものと考えられた。



18日(水)移動性高気圧
日本付近は移動Hに覆われ北日本の一部を除いて○~①。佐賀と宇和島でサクラ開花。平年より1週間程早い。萩原ではスマレ開花。イスラエルでは季節はずれの大⊗。

図4 高濃度 SO₂ 事例(1998年3月18日,SO₂最大20ppb)

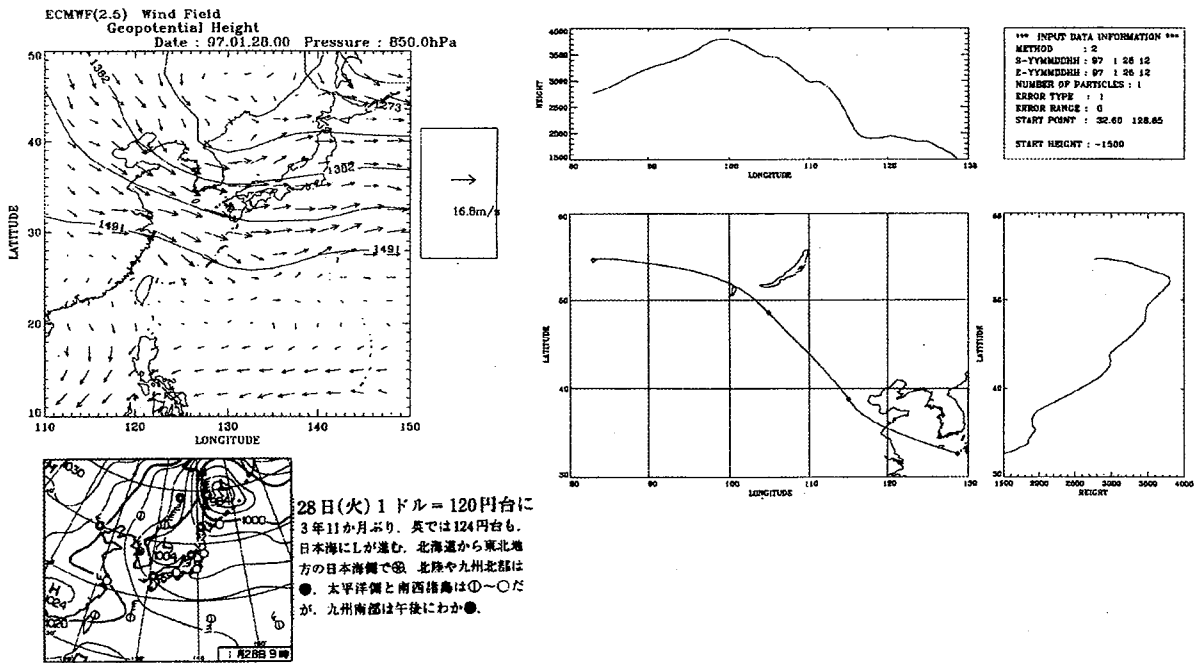


図5 高濃度 SO₂事例(1997年1月28日,SO₂最大8ppb)

3. オゾン濃度

図6に示したように、オゾン濃度の月平均値は春季は高く、海洋性気団の影響を受ける7月及び8月に低くなり、秋には再び上昇する傾向がみえる。春季及び秋季にオゾン濃度が高い理由の一つとしては、次のことが考えられる。

一般に成層圏にあったオゾンはジェット気流の下側で生じた圏界面の折れ込み現象により対流圏上部へ侵入し、高緯度ほど多量に存在し、また、中緯度においては春から初夏に最大、秋から初冬に最低を示すといわれている。この対流圏内に侵入したオゾンがさらに地上まで降下する機構については、

温帯低気圧に伴う寒冷前線後面の下降流によってそのまま直接地表まで達するもの等¹⁰⁾があるとされている。

すなわち、春季及び秋季は移動性高気圧と温帯低気圧が九州付近を交互に通過し、成層圏オゾンが温帯低気圧に伴う寒冷前線後面の下降流によってそのまま直接地表まで達したため、オゾンが高濃度になったものと考えられる。

そこで、オゾン1時間値の95ppb以上を国設五島酸性雨測定所における高濃度値とし、その出現状況を次表に示した。

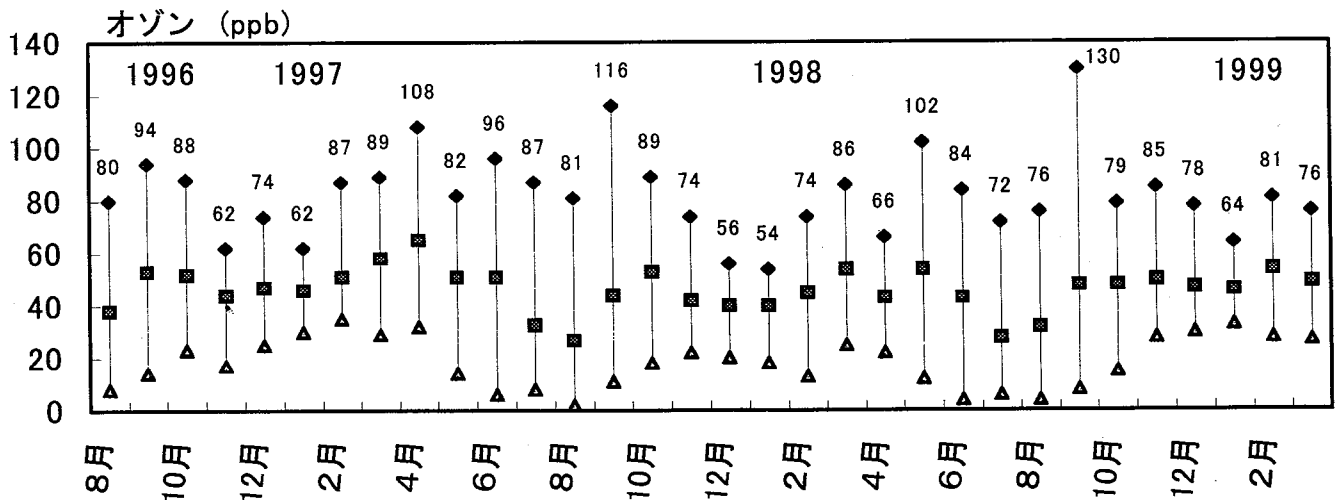


図6 オゾンの経月変化

オゾン>95ppb出現状況(1996.8月~98.3月)

年	月	日時	天候	風向	風速 (m/s)	オゾン (ppb)	SO ₂ (ppb)
1997	4	13 6	晴	W	2.9	97	5
1997	4	13 7	"	W	2.6	97	6
1997	4	13 8	"	W	2.5	96	8
1997	4	13 9	"	WSW	4.6	99	7
1997	4	13 10	"	WSW	3.6	99	6
1997	4	13 11	"	WSW	4.3	100	5
1997	4	13 12	"	W	4.9	100	3
1997	4	13 13	"	WSW	5.3	100	5
1997	4	13 14	"	WSW	5.3	104	5
1997	4	13 15	"	WSW	4.3	108	4
1997	4	13 16	"	WSW	3.9	106	3
1997	4	13 17	"	WSW	3.2	104	2
1997	4	13 18	"	WSW	3	106	1
1997	4	13 19	"	W	1.6	105	2
1997	4	13 20	"	NW	1.5	99	2
1997	4	13 21	"	NNW	0.9	96	4
1997	4	13 22	"	SW	2.9	96	4
1997	6	11 20	晴曇	NW	3.9	96	2
1997	9	10 19	晴	N	5.6	116	2
1997	9	10 20	"	NNE	4.8	101	1
1997	9	10 21	"	NNE	3.7	103	1
1997	9	10 22	"	NNE	2.6	103	1

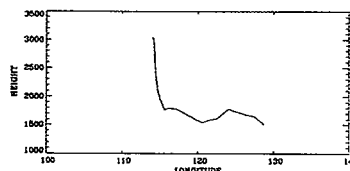
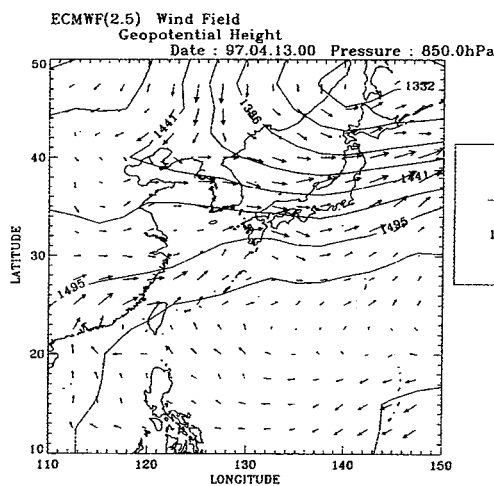
注)天候は福江測候所 調べ

オゾン濃度が高かった1997年4月13日の例では図7のバックトラジェクトリーに示されたとおり、移動性高気圧に伴う下降流が3日前に中国大陸でみられ、この下降流により成層圏オゾンが地表にまで降下したため、オゾン濃度が高くなったものと考えられる。

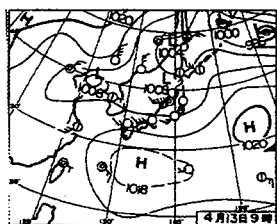
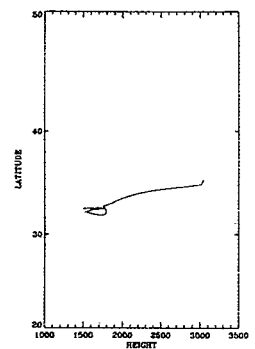
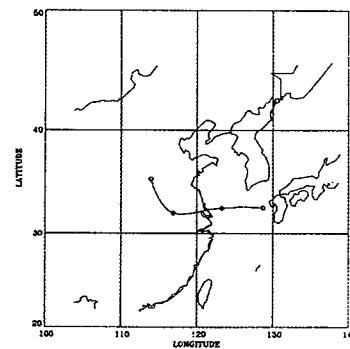
4. エアロゾル中のイオン種濃度

エアロゾル総量で最も高かったのは1997年の夏で548neq/m³であった。1996年夏から1998年春までの平均値は379neq/m³(陰イオン:185neq/m³陽イオン:194neq/m³)であった。陰イオンの中で最も高い濃度を示したイオン種はSO₄²⁻であり、ついでCl⁻、NO₃⁻の順となっている。一方、陽イオンについてみると、NH₄⁺が最も高く、次いでNa⁺、Mg²⁺、Ca²⁺、K⁺の順となっている(図8)。

次にエアロゾル総量のうち、非海塩成分を図示すると図9のようになり、エアロゾル総量に対する非海塩比は59.5%から75.4%を占め、エアロゾル総量の半分以上は非海塩性起源であった。非海塩性成分のうち、SO₄²⁻及びNH₄⁺で65~90%を占めていた。



*** INPUT DATA INFORMATION ***
 METHOD : 2
 S-YMDDHH : 97 4 13 21
 E-YMDDHH : 97 4 10 21
 NUMBER OF PARTICLES : 1
 ERROR TYPE :
 ERROR RANGE : 0
 START POINT : 32.60 128.65
 START HEIGHT : -1500



13日(日)台風第1号 発生
 09時にマシャル諸島の西の海上で今年初の台風。大陸東岸からF伸び、21時アメダス八重山支庁川平52mmの強雨。日雨量郡間133.5mm。九州や北陸で黄砂飛来。「しらせ」帰港。

図7 高濃度オゾン事例 (1997年4月13日,O₃最大 108ppb)

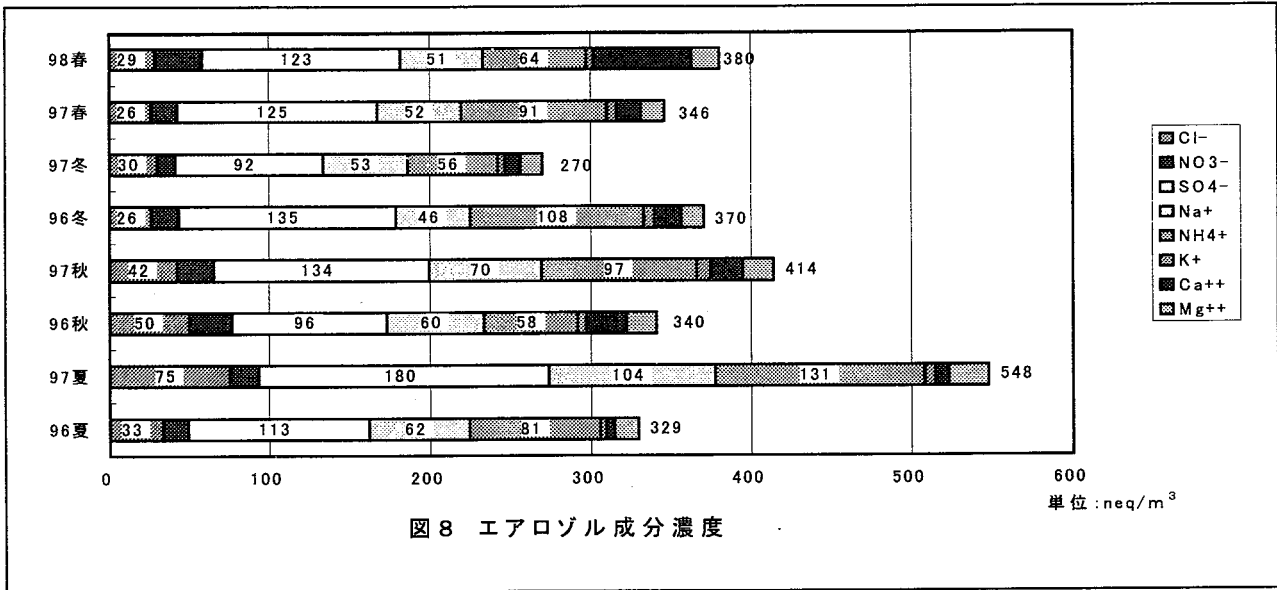


図 8 エアロゾル成分濃度

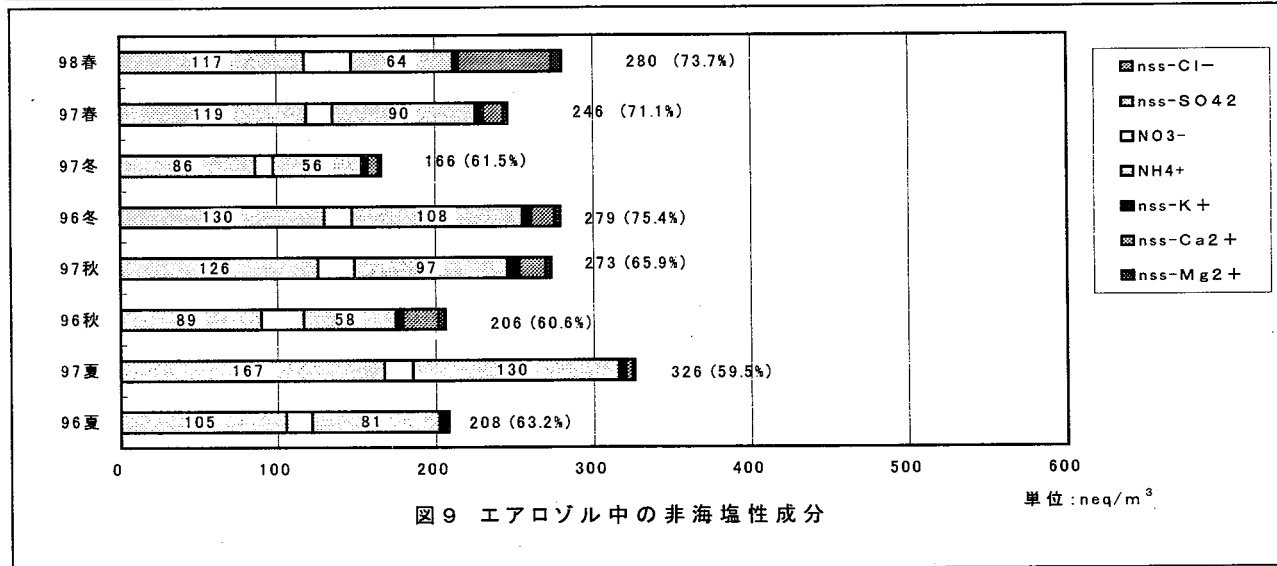


図 9 エアロゾル中の非海塩性成分

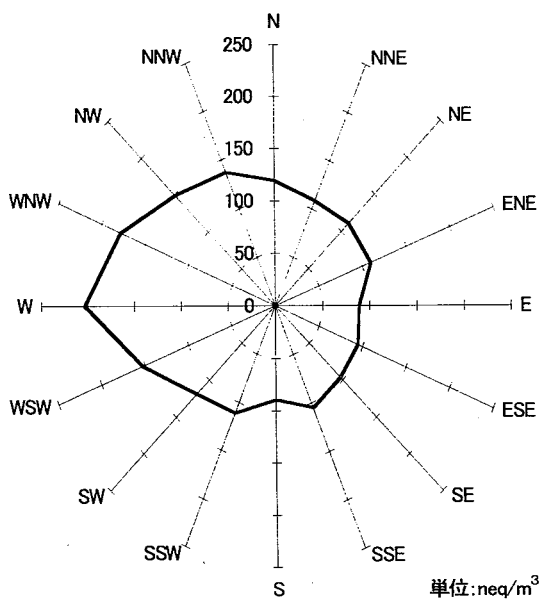


図 10 風向別nss-SO₄²⁻濃度(96夏-98春)

図10に示したように、96年夏季から98年春季までの風向別平均nss-SO₄²⁻濃度はW,WNWの風向の場合に高く、これらの方向の延長上にSO₂あるいはSO₄²⁻の汚染源があることが示唆された。特にSO₄²⁻が高かった1997年1月11日及び7月28日の風の場合及びバックトラジェクトリーをみると、韓国南部及び中国東北部の影響を受けていると考えられる(図11, 12)。

特に図 12 によると、日本の中部を台風9号が通過中であり、台風の中心部に向かって吹く風により韓国西部からの影響と思われるSO₄²⁻濃度の上昇がみられ、季節風の影響が強い冬季だけでなく、特異な気象条件の場合には夏季にもSO₄²⁻濃度が高濃度になることは注目すべき点である。

また、トータルSO₄²⁻に対するnss-SO₄²⁻の割合は94%であり、大部分が非海塩性のSO₄²⁻であった。

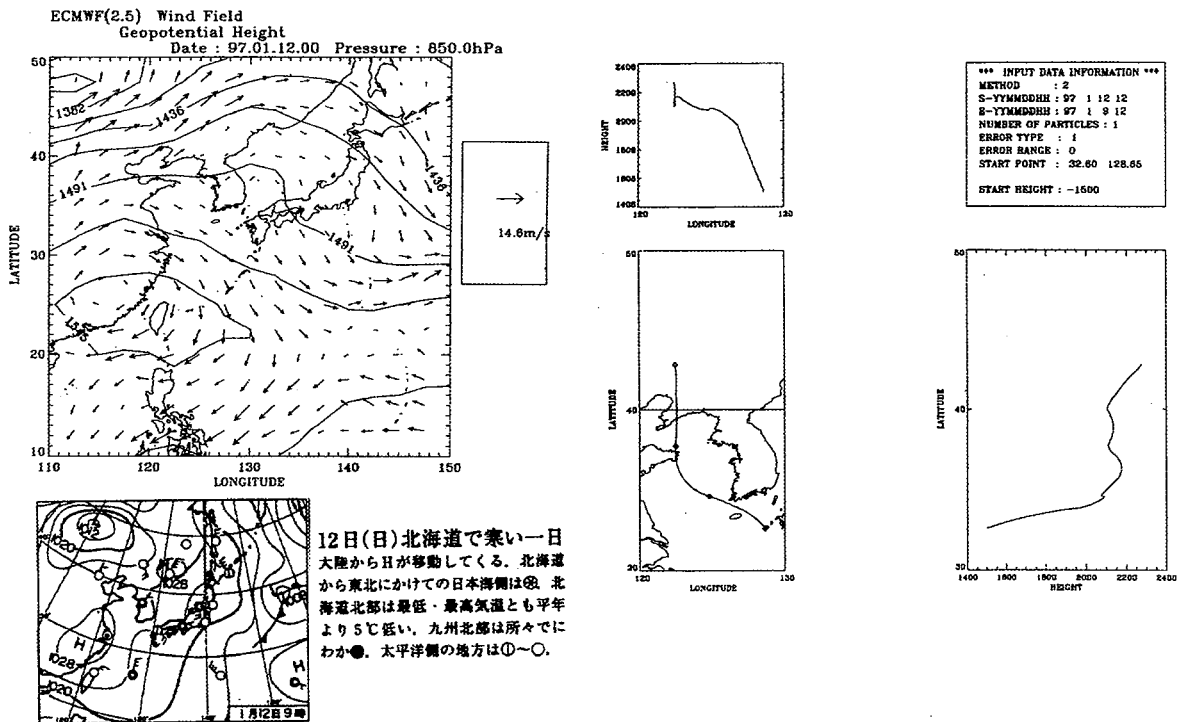


図 11 高濃度 SO_4^{2-} 事例 (1997年1月12日, SO_4^{2-} : 635 neq/m^3)

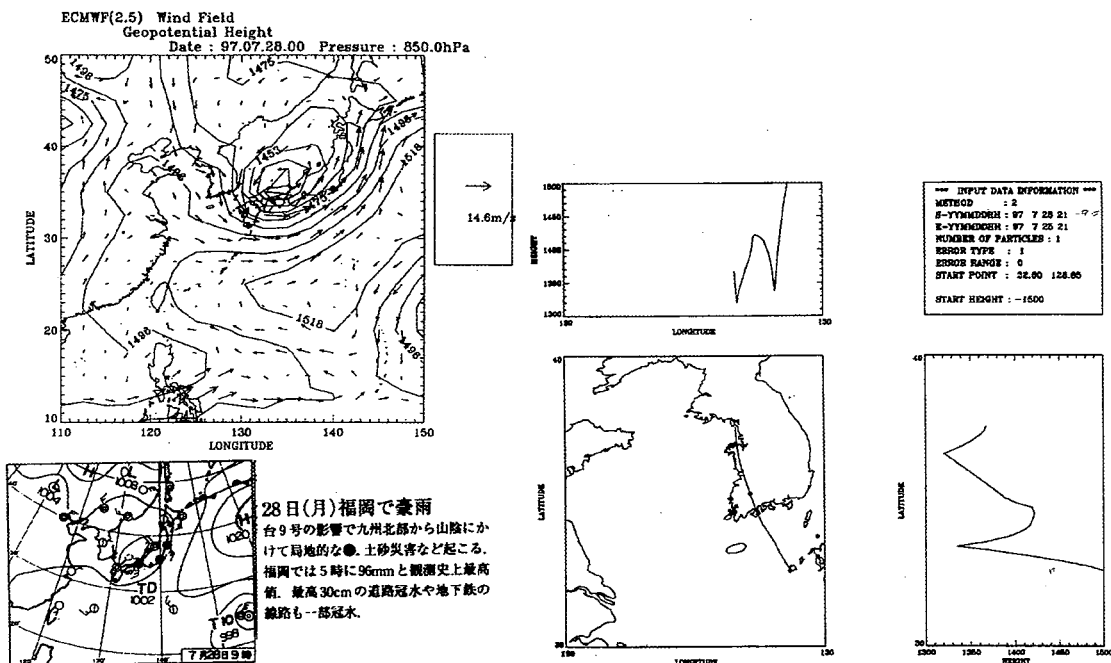


図 12 高濃度 SO_4^{2-} 事例 (1997年7月28日, SO_4^{2-} : 933 neq/m^3)

一方、図13に示したようにテープエアサンプラー採取期間中の風向頻度に風向別nss- SO_4^{2-} 濃度を乗じ、全風向に対する寄与割合を求めると、NNW、N、NNEの3風向で53%を占め、地上風の解析では北系の風による負荷が高かった。

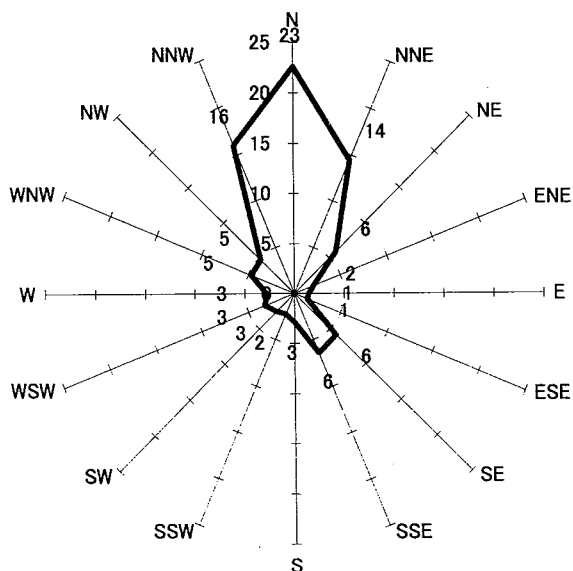


図13 風向別 nss- SO_4^{2-} 寄与割合
(1996年夏季～1998年春季)

まとめ

国設五島酸性雨測定所において O_3 、 SO_2 及びエアロゾル成分を測定した結果の概要は次のとおりである。

(1) SO_2 年平均値は1.2～2.3ppbと低く、長崎県下の汚染が低い測定局に比較し同レベルかそれ以下であるが、しばしば、7ppb以上の比較的高い濃度が観測され、九州南方の火山及び大陸の影響が示唆された。

(2)オゾン オゾンの月平均値は春季及び秋季に高く、成層圏オゾンの降下により地上オゾン濃度が上昇したと考えられた。

(3)エアロゾル エアロゾル中nss- SO_4^{2-} 濃度はW及びWNWの風向の場合に高く、大陸からの影響が示唆され、 SO_4^{2-} のうち90%以上がnss- SO_4^{2-} であった。

(4)エアロゾル中nss- SO_4^{2-} の風向別寄与割合

地上風の解析結果では、エアロゾル中nss- SO_4^{2-} 濃度はW及びWNWの風向の場合に高いが、その風向頻度が低いため、全体に対する寄与割合は低く、風向頻度が高いNNW、N、NNEの3風向で50%以上の寄与割合を示している。

5. 謝辞

この調査研究は環境庁地球環境研究総合推進費により行われた。風向風速のデータの使用を許諾いただいた環境庁大気規制課を始め関係各位に感謝申し上げます。また、調査研究にご協力をいただきました五島保健所の関係職員、生活環境部環境保全課の方々にお礼申し上げます。

6. 文献

- 1)森 淳子,他;九州北部地域におけるエアロゾル濃度の変動と高濃度エピソード解析,大気環境学会誌,32, 73～89 (1997)
- 2)鶴野 伊津志,他;東アジアスケールの長距離物質輸送・変質過程の数値解析,大気環境学会誌,32, 267～285(1997)
- 3)鶴野 伊津志,他;春季の移動性高気圧通過時の二次大気汚染物質の長距離輸送と変質過程の数値解析,大気環境学会誌,33,164～178(1998)
- 4)Wakamatsu,S.; Study of the long range transport of air pollution in Japan, in the Second Japan-Korea Symposium on Environment Technology and Science,Kitakyuushu(1990)
- 5)山下 敬則,他;長崎県における高濃度 SO_2 汚染の解析,大気環境学会誌,26,320～332(1991)
- 6)Hayasida,A.,S.,Sasano,S.,Iikura,U.; Volcanic distribution in the stratospheric aerosol layer over Tsukuba, Japan observed by the National Institute for Environmental Studies lidar from 1982 through 1986, *J.Geophys. Res.*,96,15469～15478(1991)
- 7)角皆 静男; 雨水の分析,講談社,pp67
- 8)日本気象協会: 気象
- 9)長崎県生活環境部: 大気汚染調査結果(1997)
- 10)鶴田 治雄: 日本におけるバックグランドオゾンの挙動(第2報),第26回大気環境学会講演要旨集,(1985)