

清浄地域におけるエアロゾル中の水溶性成分

－長距離輸送の影響評価－

秋山 雅行 大塚 英幸 加藤 拓紀

要 約

北海道内の清浄地域においてエアロゾルを採取し、硫酸イオンを中心とした水溶性成分の実態と長距離輸送の影響について検討した。その結果、非海塩由来の硫酸イオン (nss-SO_4^{2-}) は全道的に春季に濃度が高くなる傾向を示した。流跡線解析を利用して、気塊の流入方向を領域別に分類し、濃度の出現状況を比較した結果、中国・韓国・日本(本州)からの気塊の流入時に最も高く、オホーツク方面から気塊が流入するケースと比較して4～5倍の濃度を示した。近年注目されている粒径 $2.5\mu\text{m}$ 以下の粒子 ($\text{PM}_{2.5}$) も同様に春の濃度上昇が認められたほか、森林火災の影響と考えられる濃度の上昇も認められた。採取地点の2点付近を通過する後方流跡線を選択し、そのときの濃度出現状況から清浄地域における nss-SO_4^{2-} の北海道内外の寄与を推定した結果、65%以上は道外からの寄与で、大陸から気塊が流入し、濃度が上昇する際には87%を上回る寄与があるものと推定され、北海道内の清浄地域では、 nss-SO_4^{2-} 濃度の変動は長距離輸送の影響が大きいことが確認された。

Key words: 清浄地域 水溶性成分 長距離輸送 硫酸イオン

1. はじめに

1990年以降、東アジア地域の化石燃料の消費量及び汚染物質排出量は増加傾向を示し、中でも中国はアジア最大の石炭消費国で、二酸化硫黄の排出量は日本の20倍以上に達する。^{1) 2)} こうした大陸起源の汚染物質が日本へと長距離輸送されるケースを示す報告例も多い。例えば森らは九州北部地域における離島などにおける調査から、冬季に限らず、梅雨期においても大陸起源の長距離輸送が生じていること示した。³⁾ また、日置らは京都府において、Pbと SO_4^{2-} を同時観測することで、大気汚染物質の長距離輸送現象がより明確に示されることを報告する⁴⁾ など西日本を中心に報告例が多いが、北海道における大気汚染物質の長距離輸送の状況を示した報告例は少ない。

一方、アジア域での二酸化硫黄の排出量の長期的な変化に目を向けると、中国における石炭の消費量は1990年代に入り急増し、1996年をピークに減少の傾向を示していたが、2001年には再び前年度の実績を上回っており¹⁾、さらには近年の高度成長もあって二酸化硫黄の排出量は増加の傾向にある。こうした状況から大陸起源の汚染物質が北海道に与える影響について長期的な視点で把握していくことは非常に重要なことである。また、大陸での砂漠化の進行が伝えられる中、近年北海道においても大陸起源である黄砂の

観測回数が上昇傾向を示している。特に2002年3月の黄砂は過去に例のないほどの大規模なものであり、道東で初観測となった事例である。黄砂によるSPM濃度の環境基準超過の現象も1998年以降数多く見られ、こうした動向も注目すべき点である。

本研究は、清浄な地域における大気の長期モニタリングから、粒子状物質、特に人体への影響が懸念されている $\text{PM}_{2.5}$ の濃度レベルや季節的、長期的な濃度変動傾向の特徴を把握し、北海道をとりまく大気環境の微小変化をいち早く捉えること、粒子状物質濃度レベルと発源地域(発生源)との関連性や気塊の流入方向の違いによる濃度状況を把握し、長距離輸送による影響について評価すること、また、都市域における汚染物質濃度の評価基準とすることを目的として行っている。本報では2002～2003年度の調査結果を中心に、エアロゾルの季節別濃度出現状況や長距離輸送の影響について報告する。

2. 調査概要

2.1 調査地点

エアロゾル試料の採取は清浄地域4地点で行った。利尻町仙法志にある国設利尻酸性雨離島局(以下利尻という: $141^{\circ} 07' \text{ E}$, $45^{\circ} 12' \text{ N}$ 、海拔約40m)、根室市落石

岬にある落石岬地球環境モニタリングステーション（以下落石という：145° 30′ E、43° 09′ N、海拔約50m）、静内町春別ダム（以下春別という：142° 50′ E、42° 50′ N、海拔約300m）、江差町にある檜山支庁舎屋上（以下江差という：140° 08′ E、41° 52′ N、海拔約40m）の4地点である。図1に試料採取地点を示す。

利尻島は北海道本島の北端稚内の西側約50kmに位置し、中央に標高1,721mの利尻山を有する周囲約63kmの円形状の島である。島の面積は182.1km²、人口は8千人ほどで、漁業を基幹産業としている。観測点の国設利尻酸性雨離島局は利尻島南部の海岸線沿いに集落を形成する仙法志の、海岸線から700mほど中心部に入り込んだ場所に位置し、周辺500mには人為汚染発生源はない。気候は寒冷で冬季の季節風は厳しく、また、30℃を超える真夏日は1989年以降記録されておらず、最暖期の平均気温は20℃前後とあまり高くはない。なお、年平均気温は約7℃である。中央にそびえる利尻山が島内の天候を左右し、北側で雨の天候でも南側では快晴といった正反対の天気も出現することもある。風系は春から夏にかけてはWまたはE方向の風向頻度が増え、秋から冬にかけてはW～Nが主体となるが、利尻山の影響で島内での風向の違いが見られることがあり、特に弱風時にその傾向が強くなる。冬季においては日本海から直接吹き付ける季節風の影響で風が強く10m/sec以上の風速になることも多い。

根室市は北海道の最東端に位置し、太平洋に突き出た根室半島中央に市街地を有する人口3万人ほどの漁業を中心とした街である。根室市落石は根室市街から南南西約21km、根室半島の付け根にあり、落石港を起点とした漁業中心の集落を形成している。観測点の落石岬地球環境モニタリングステーションは落石の集落の南に位置する落石岬の先端にあり、集落からは約2km離れている。落石岬は全体が北方湿原となっており、台地状の平坦な地形を形成し、天然記念物のサカイツツジが湿原内に自生している。周囲には目立った人為汚染発生源はなく、比較的大きな都市としては西方約100kmに釧路市がある。気候は冷涼で、夏季においても30℃を超える日はほとんどなく1995年以降真夏日を記録した日は1999年の8月、2004年の7月にそれぞれ1日のみであり、年平均気温は約6℃と低い。また、春から夏にかけては海霧に覆われやすく、霧日数は年間100日前後にも及ぶ。風系は春から夏にかけてはS～Wが多くなるのに対し、秋から冬にかけては季節風の影響でW～Nが主体となるが、冬季の降雪量は少ない。また、風が強いことも特徴で、風速20m/secを超える強風もたびたび出現する。

静内町春別ダムは、太平洋に面した静内町市街地からNE方向にあり、日高山脈に沿って内陸部に進んだ場所に位置する。海岸線からは25km離れており、周囲を山々に囲まれている。

周辺に気象観測所がないため、気象データは得られていないが、標高がやや高いことから気温はあまり上がらない。また、山間部ではあるが太平洋側に位置するため冬季の降雪量は少ない。なお、周囲に人為汚染発生源はない。

江差町は北海道の南西地方に位置する渡島半島の西側南部にあり、日本海に面している。総面積109.57km²、東西10km、南北17kmと縦長で、東部は山岳が多く、山麓は丘陵になって海岸に迫っている。人口は約1万人で、かつては漁業を中心とした1次産業が盛んであったが、現在では1次産業に従事する人口が減少し、サービス業等の3次産業が中心となっている。市街地は日本海に面した海岸部の中央に位置するが、丘陵が海岸部に迫っているため東西方向の幅は狭い。そのほぼ中央部に檜山支庁舎が立地しており、海岸線までは約300mと近いが丘陵地となっているため標高は約40mと、海岸部としては比較的高い。

気候は北上する対馬海流の影響を受けて比較的温暖で、年平均気温は10.0℃と道内でも気温の高い地域である。また、海岸部は冬期間における季節風が強く、11月～3月にかけての月平均風速は5.0m/s以上と道内でも有数の強風地帯である。積雪量は沿岸部では少なく、山間部では比較的多い。

2.2 試料採取及び分析方法

エアロゾルの採取はハイボリュウムサンプラー（HV）、10ライングローバルサンプラー（GS-10）を用いた。それぞれの試料採取期間はHVが2002年4月～2003年3月、GS-10が2003年4月～2004年7月までである。HVについては、利尻、落石、春別の3地点で、GS-10については落石、江差の2地点で行った。

HV試料は石英繊維製ろ紙（Palflex 2500QAT）上に、吸引流量1.3m³/分で毎週月曜0時～火曜0時、火曜0時～



図1 試料採取地点図

水曜0時までの2日間連続の24時間採取を2週間毎に行なった。また、GS-10については石英繊維製ろ紙（Palflex 2500QAT）上に、吸引流量25l/分で24時間採取を各月の任意の10日間連続で行った。なお、GS-10については、インバクターを用いて粒径2.5 μm 以上の粒子をカットし、それ以下の粒径の粒子（PM_{2.5}）を採取した。

試料採取後のろ紙は恒温（20℃）、恒湿（50%）室に48時間放置後秤量した後、HVろ紙の1/16、GS-10ろ紙の全部を用いて水溶性成分（SO₄²⁻、NO₃⁻、Cl⁻、NH₄⁺、Na⁺、K⁺、Ca²⁺、Mg²⁺）の分析に使用した。分析に際しては、これを細断して純水20mlを加え、30分間超音波抽出を行い、抽出液をポアサイズ0.2 μm のメンブレンフィルターでろ過後、陰陽両イオンともイオンクロマト法によって定量した。

3. 結果及び考察

3.1 HV採取試料

各地点におけるHV採取試料の浮遊粉じん、水溶性成分の測定結果を表1に、浮遊粉じん、Na⁺、nss-Ca²⁺、Cl⁻、NO₃⁻、nss-SO₄²⁻濃度の変動を図2に示す。

浮遊粉じん濃度の年平均値は利尻が27.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ （5.5～183.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）、落石が30.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ （7.4～113.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）、春別が14.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ （3.7～113.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）で、海岸部に位置する落石の濃度が最も高く、やや内陸に位置した春別が最も低かった。

各地点における浮遊粉じん濃度は、試料によりかなりの差がみられ、特に落石、利尻ではNa⁺、Cl⁻等の海塩成分が浮遊粉じん濃度の変動に大きく影響していることが伺えた。季節変動の比較から、海域に近い落石、利尻では春及び秋に海塩の影響を受け、浮遊粉じん濃度が上昇するのに対し、春別は海岸から25kmほど内陸に入った場所にあることから、海塩の影響をほとんど受けず、その結果、落石、利尻と比較して浮遊粉じん濃度が低くなったことがわかる。

nss-SO₄²⁻では、各地点ともに春及び秋に濃度の上昇が

みられた。この原因としては、局地的な影響と長距離輸送による広域的な汚染気塊の流入によるものが考えられるが、比較的距離の離れた3地点ともに濃度が上昇している点を考慮すると、汚染物質の長距離輸送による影響が大きいと予想される。これは、春や秋は移動性高気圧が大陸から日本を通過するケースが多く、大陸から汚染気塊が流入しやすい状況下にあるため、高濃度の試料が多くなったと考えられる。これらの結果は、鶴野らの報告でも示されているように、春季の移動性高気圧の通過時にSO₄²⁻濃度の上昇が見られる点と一致している。⁷⁾ また、このときnss-Ca²⁺濃度の上昇もみられ、汚染物質と共に土壌成分が大陸方面から移流してきたことが伺えた。特に4/15、4/16、11/12にはnss-Ca²⁺濃度に顕著な上昇が見られている。2000年以降は北海道での黄砂の飛来が増加傾向にあり、2002年の3月に北海道で大規模な黄砂現象が観測されたのははじめ、4月にも数回、11/12には道東では初観測となる秋の黄砂が道内15地点で観測された。こうしたことから、広域的な移流による成分濃度の上昇が春、秋を中心に生じていることがわかる。

大気の流れ経路と成分濃度との関係について検討するため、後方流跡線解析を行い各HV試料の分析結果との対応状況について調べた。後方流跡線解析は、独立行政法人国立環境研究所地球環境研究センターの「対流圏モニタリングデータ評価のための支援システムCGER-GMET」を利用した。計算に際しては、ヨーロッパ中期予報センター（ECMWF）のデータを利用し、Hayasida et al. の方法⁶⁾で利尻、春別、落石の上空1,500m（海拔）から9:00、21:00（JST）をstart timeとして72時間等温位面に沿ってさかのぼって計算した。

流入経路の区分については、4つの領域（Ⅰ：ロシア側、Ⅱ：中国・朝鮮半島、日本（主に本州）、Ⅲ：太平洋側、Ⅳ：カムチャッカ半島側）を設定した。落石における領域区分図の例を図3に示す。1試料につき2本の後方流跡線（試料採取日の9:00、21:00をstart timeとして計算した流跡線）を解析の対象とし、各流跡線の1日前、2日前、3日前の気塊の存在領域をそれぞれ調べ、出現頻度が5割以

表1 浮遊粉じん及び水溶性成分の結果（HV試料、2002.4～2003.3）

		Dust	NH ₄ ⁺	Na ⁺	K ⁺	Mg ²⁺	Ca ²⁺	nss-Ca ²⁺	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	nss-SO ₄ ²⁻
		($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	($\mu\text{g}/\text{m}^3$)
利尻 (n=44)	Ave.	27.6	0.36	2.83	0.17	0.33	0.22	0.11	4.13	0.55	2.66	1.96
	Max.	183.7	1.74	12.8	0.58	1.39	1.06	0.83	22.4	1.95	7.63	5.92
	Min.	5.5	0.02	0.25	0.02	0.03	0.02	0.00	0.04	0.04	0.23	0.15
落石 (n=54)	Ave.	30.8	0.48	4.03	0.20	0.44	0.23	0.08	6.05	0.82	2.70	1.69
	Max.	113.1	1.46	15.6	0.62	1.65	1.17	0.79	20.2	3.40	8.03	7.12
	Min.	7.4	0.07	0.24	0.04	0.04	0.03	0.00	0.13	0.07	0.41	0.03
春別 (n=54)	Ave.	14.7	0.42	0.27	0.09	0.04	0.13	0.12	0.18	0.25	1.74	1.67
	Max.	113.2	1.40	1.81	0.38	0.27	1.63	1.57	2.28	1.86	8.34	8.06
	Min.	3.7	0.02	0.01	0.02	0.00	0.01	0.01	0.02	0.02	0.07	0.05

上の領域をその試料の代表領域とした。なお、すべての領域で出現頻度が5割未満の場合および5割の領域が2つ存在する場合は区分不能とした。領域区分された試料数は落石、春別が54試料中43試料、利尻は機器の故障があったため少なく、44試料中34試料であった。各試料について代表領域を求めた後、同一領域での浮遊粉じん、水溶性成分の大気中濃度の平均値を算出し、領域による大気質の違いについて検討を行った。

各地点の領域別浮遊粉じん、水溶性成分の大気中濃度を表2に、 $nss-SO_4^{2-}$ の領域別大気中濃度を図4に示す。領域の出現頻度の特徴として、領域Ⅲ～領域Ⅳに分類された試料よりも大陸側の領域Ⅰ、領域Ⅱに分類された試料数が多かった。特に利尻では領域Ⅰ、領域Ⅱに分類された試料数の合計が区分された試料全体の8割を占め、大陸からの影響を受けやすいことが示された。試料採取日以外の分類を行っていないため、年間の詳しい傾向を捉えてはいないが、大陸性気塊の流入頻度の増減が、北海道の環境に与え

る影響にも変化をもたらす可能性があることから、こうした傾向が今後継続するかどうか、長期的かつ広域的な気流の変動について注目していくことが重要と考えられる。

領域毎の濃度を比較すると、全成分が領域Ⅱで最高濃度を示し、中国・韓国方面や日本国内からの気塊の流入が道内の濃度変動に大きく影響していることが伺えた。前述したように春と秋に各成分とも高濃度を示すことが多かったが、黄砂の出現がこの時期に見られることからわかるように、この高濃度時の流跡線はほとんどが中国方面からの気塊の流入を示していた。また、春と秋以外の高濃度時の流跡線においても領域Ⅱにあたる中国方面からの気塊の流入を示しており、大陸からの汚染物質の流入の可能性が示された。

領域Ⅰにおける $nss-SO_4^{2-}$ 濃度は領域Ⅱと比較して低く、人為汚染発生源の影響は領域Ⅱよりも少なかった。領域Ⅰに分類される試料は、冬型の気圧配置が優勢となる秋から冬に集中し、この時期は北海道、特に日本海側において降水を伴う気象条件となりやすい。この降水により、大気中から汚染物質等の成分が除去され、濃度の減少が生じたものと考えられる。領域Ⅱからの気塊の流入の際にも道内山間部を通過する場合があるが、領域Ⅰの場合と違い、領域Ⅱは比較的春に出現頻度が高い。春季は、冬型の気圧配置時のように寒気が入り込み雪雲が生じやすい気象条件下とは違い、大陸方面から暖かく乾燥した空気が北海道へ流れ込むため、山間部を気塊が通過しても雨雲は殆ど発生せず、高濃度の状態を維持したまま道内全域に到達するものと考えられる。

領域Ⅲ～領域Ⅳは領域Ⅰ、領域Ⅱと比較して各成分とも濃度が低く、 $nss-SO_4^{2-}$ 濃度では最も低い領域Ⅳの濃度が最も高い領域Ⅱの1/5～1/4程度であった。領域Ⅲ、領域Ⅳともに人為汚染発生源がほとんど存在せず、発生源の

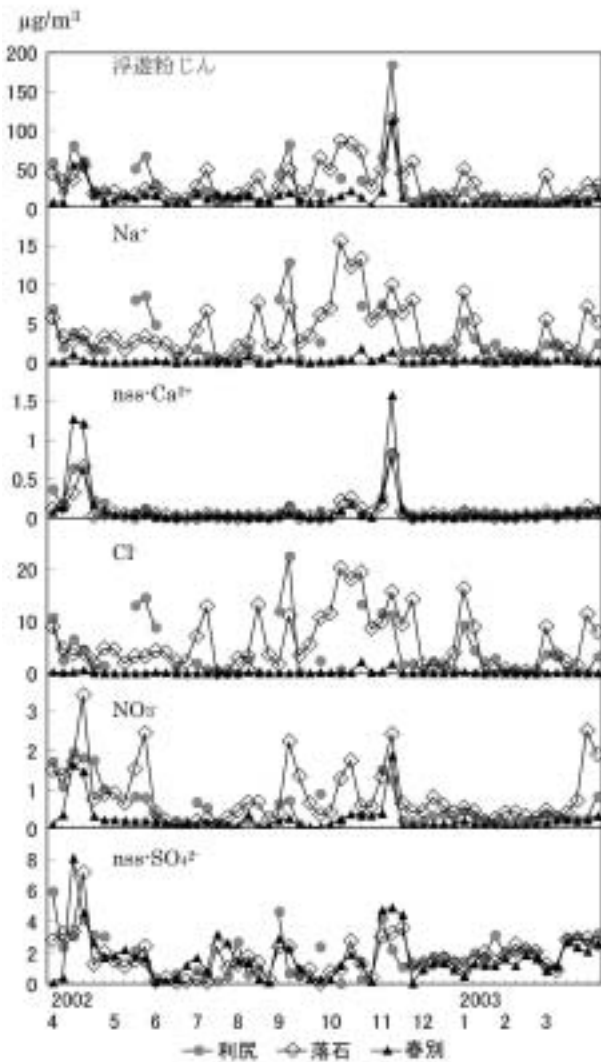


図2 各地点における浮遊粉じん、 Na^+ 、 $nss-Ca^{2+}$ 、 Cl^- 、 NO_3^- 、 $nss-SO_4^{2-}$ 濃度の変動 (HV試料、2002.4～2003.3)



図3 流跡線解析のための領域区分図 (落石)

存在状況を反映した結果が得られた。

nss-SO₄²⁻濃度の地点間比較では、領域Ⅱの濃度が大陸に近い利尻において最も高く、落石では最も低い値であった。これは、大陸から運ばれてきたnss-SO₄²⁻が北海道内を通過する際に、地表面への沈着等により濃度の距離減衰が生じ、3地点の中で最も大陸から離れている落石におけ

表2 浮遊粉じん及び各水溶性成分の領域別大気中濃度

	成分	単位	大気中濃度			
			領域Ⅰ	領域Ⅱ	領域Ⅲ	領域Ⅳ
利尻	頻度		18	9	2	5
	浮遊粉じん	μg/m ³	23.4	60.3	8.7	17.6
	NH ₄ ⁺	μg/m ³	0.38	0.72	0.07	0.10
	Na ⁺	μg/m ³	3.2	4.2	0.92	2.1
	K ⁺	μg/m ³	0.17	0.30	0.06	0.09
	Mg ²⁺	μg/m ³	0.37	0.48	0.11	0.24
	nss-Ca ²⁺	μg/m ³	0.06	0.32	0.02	0.03
	Cl ⁻	μg/m ³	4.8	6.5	0.94	3.2
	NO ₃ ⁻	μg/m ³	0.42	1.0	0.09	0.41
	nss-SO ₄ ²⁻	μg/m ³	2.0	3.1	1.1	0.67
落石	頻度		13	14	8	8
	浮遊粉じん	μg/m ³	19.0	45.7	36.4	21.9
	NH ₄ ⁺	μg/m ³	0.68	0.70	0.32	0.19
	Na ⁺	μg/m ³	2.9	5.4	4.7	3.1
	K ⁺	μg/m ³	0.17	0.30	0.20	0.15
	Mg ²⁺	μg/m ³	0.30	0.61	0.50	0.34
	nss-Ca ²⁺	μg/m ³	0.04	0.19	0.02	0.03
	Cl ⁻	μg/m ³	4.1	8.0	7.8	5.3
	NO ₃ ⁻	μg/m ³	1.1	1.3	0.47	0.34
	nss-SO ₄ ²⁻	μg/m ³	2.0	2.6	1.0	0.45
春別	頻度		13	14	8	8
	浮遊粉じん	μg/m ³	8.0	29.0	10.8	9.2
	NH ₄ ⁺	μg/m ³	0.49	0.62	0.24	0.20
	Na ⁺	μg/m ³	0.21	0.61	0.11	0.19
	K ⁺	μg/m ³	0.05	0.17	0.07	0.05
	Mg ²⁺	μg/m ³	0.03	0.09	0.02	0.02
	nss-Ca ²⁺	μg/m ³	0.04	0.32	0.02	0.02
	Cl ⁻	μg/m ³	0.06	0.47	0.09	0.10
	NO ₃ ⁻	μg/m ³	0.15	0.48	0.10	0.18
	nss-SO ₄ ²⁻	μg/m ³	1.7	3.0	0.80	0.73

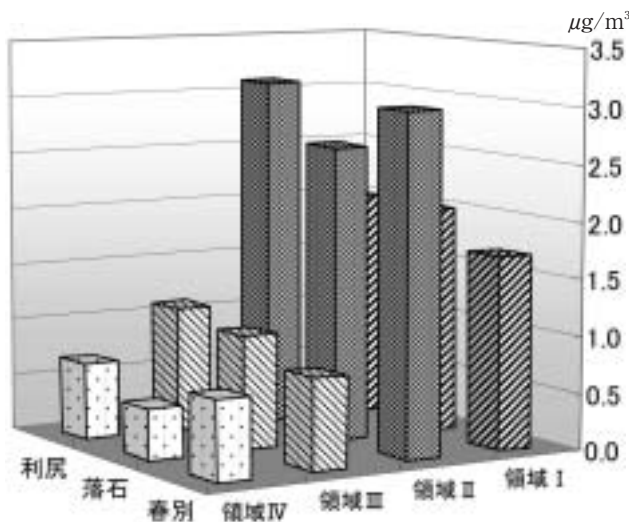


図4 各地点における領域別nss-SO₄²⁻濃度の比較 (HV試料、2002.4~2003.3)

る濃度が低くなったと推測される。

3.2 GS-10採取試料 (PM_{2.5})

GS-10によるPM_{2.5}とnss-SO₄²⁻濃度及び非海塩由来のK⁺ (nss-K⁺)の結果を図5に示す。同日採取の試料を比較すると、4月~6月にかけて両地点ともPM_{2.5}濃度の上昇が見られ、その傾向は江差で顕著であった。両地点ともに年間を通して10 μg/m³以下の濃度を示す試料が多かったが、4月~6月には30 μg/m³を超える高濃度が観測された。先にも述べたように、春に大陸から汚染物質が移流しやすくなるのに加え、気象庁のレポートでも報告されているように2003年春のロシア極東地域における森林火災⁷⁾の影響が大きかったことが原因と予想される。このことは、4~6月にかけてnss-K⁺濃度が上昇している点からも、森林火災の影響が示唆される。この期間の江差と落石の濃度差を見ると、明らかに江差の濃度が高く、両地点の大陸との距離の差が影響したと考えられる。

4~6月以外では、2004年2月に濃度上昇が見られたが、その他の試料については両地点で明らかな濃度差は見られず低濃度で推移しており、人為汚染発生源の少ない領域から流入する気塊の濃度レベルを反映しているものと考えられる。

nss-SO₄²⁻についてもPM_{2.5}と同様の濃度変動を示し、両地点で春に高い値が見られていた。また、江差では2004年7月に20 μg/m³を超える高濃度も観測され、大都市圏以外でもかなりの高濃度現象が出現することが確認された。

3.3 nss-SO₄²⁻の道外からの影響の見積り

HV試料における後方流跡線解析の結果から、大気の流れ方向が同じでも、nss-SO₄²⁻平均濃度に地点間差が生じることが確認された。角皆らは、黄砂時における観測結果から、大陸からの距離と共に土壌粒子や粒径の小さいPbにおいても濃度の減少が認められるとし、その状況をそれぞれ最小二乗法により曲線近似式で表している。⁸⁾ このときの半減距離は土壌粒子で約500~700km、微小粒径であるPbにおいても約700kmと両者に大きな違いがないこと示している。このことから、約470km離れた江差、落石間を気塊が移動する際に、粒径が小さいnss-SO₄²⁻においても距離による濃度の減少が生じ、地点間差が生じたと推測できる。

この研究では、北海道内といった限られた範囲の測定点のため、濃度の減少の状況を近似式で示すことは難しいが、GS-10試料では北海道の気塊の流入、流出口として選定可能な江差、落石での日単位連続採取を行っていることから、これらのデータを用いて、道内通過時におけるnss-SO₄²⁻の濃度減少割合や道内発生源の寄与について見積りを試みた。

江差、落石両地点で同時期採取を行った日の後方流跡線を引き、江差、落石上空を通過するケースを確認したところ、図6に示すような2つのCase (Case1: 2003年5月2日、Case2: 6月27日) が得られたことから、これらの日を代表Caseとして試算に用いることとした。ただし、Case1では江差から落石まで気塊の到達に半日ほどの時間を要していることから、解析に用いる江差のデータは5月1日と2日の平均値を採用することとした。また、6月27日のCaseでは落石から江差への気塊の到達に24時間程度の差が見られていることから、落石のデータとして1日前の6月26日における濃度を採用した。それぞれのCaseで採用したnss-SO₄²⁻の濃度は次のとおりである。

Case1: 江差 3.6 μg/m³、落石 2.3 μg/m³

Case2: 江差 0.9 μg/m³、落石 1.1 μg/m³

これらの濃度は、HV試料での領域別評価において中国・韓国・日本(本州)領域(領域II)からの気塊流入時のnss-SO₄²⁻濃度が2.6~3.1 μg/m³、太平洋・オホーツク領域(領域III、IV)からの流入時に0.45~1.1 μg/m³であることを考慮すると、ほぼ近い値を示しており、各領域から流入する気塊の平均的な濃度を十分に反映していると考えられ、評価に利用する濃度としては適当であると考えられる。

いずれのケースも気塊の流入口の濃度が流出口よりも高く、距離と共に濃度が減衰している状況を示していると思われるが、流出口の濃度は北海道内発生源由来の寄与も含まれていることを考慮する必要がある。道内からの発生量は、季節、気象条件等で変化すると考えられるが、両Case時に季節的に大きな差がないことから、ここでは北海道内発生源の寄与濃度(C_H)は同じであると仮定する。また、北海道外から流入したnss-SO₄²⁻の江差-落石間で

の減少率(R)は地表面の状況などで変化するが、ここでは一定と仮定して計算することとする。なお、流入口の濃度はすべて道外からの寄与として試算する。これらを式で表現すると以下ようになる。

$$\text{流出口濃度} = \text{流入口濃度} \times R + C_H$$

上式とCase1, 2の濃度からC_H及びRを算出すると、C_Hはおよそ0.3 μg/m³、Rは0.56と見積もられる。曲線近似を行っていないため、この結果から半減距離の算出はできないが、仮に直線的に減少するものと想定するとおよそ530kmと推計される。実際には直線的な減少よりも緩やかであることから、nss-SO₄²⁻濃度の半減距離は先に示したPbの半減距離700kmと比較して大差はなく、求められた推計値はほぼ妥当な結果であると考えられる。

実測濃度と見積もられたCHから、nss-SO₄²⁻の道外からの寄与を試算すると、太平洋・オホーツク海方面から流入する低濃度時で65%程度、大陸から高濃度の気塊が流入する際には87%程度と、清浄地域における道外からの影響が大きいことが示された。ただ、季節による発生量の変化や、通過経路の違いなど試算結果に与える影響が大きいことから、今後は様々なケースで試算を行い、この結果の妥当性について検討することが必要である。

4. まとめ

本研究により次の成果が得られた。

- ・ 道内清浄地域におけるnss-SO₄²⁻濃度は、都市域に比べかなり低いですが、春季には都市域レベルの濃度が出現することが確認された。
- ・ PM_{2.5}は、道内各地点ともに春季において濃度の上昇傾向がみられ、特に2003年春にはロシア極東域森林火

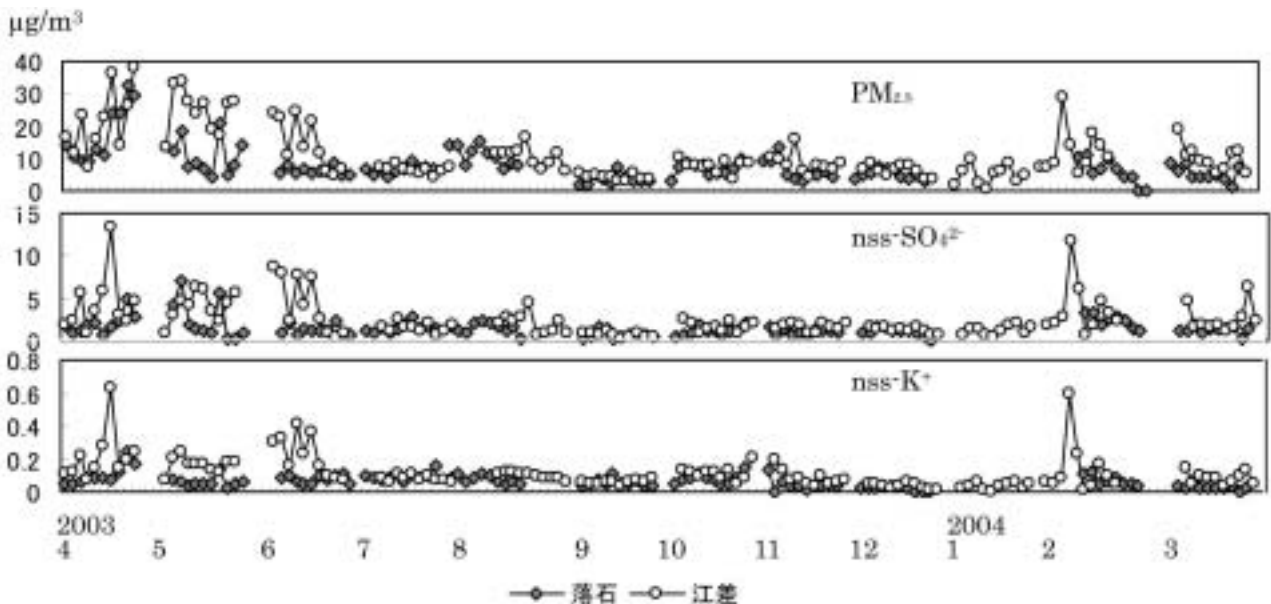


図5 江差、落石におけるPM_{2.5}、nss-SO₄²⁻、nss-K⁺濃度の比較 (GS-10試料、2003.4~2004.7)

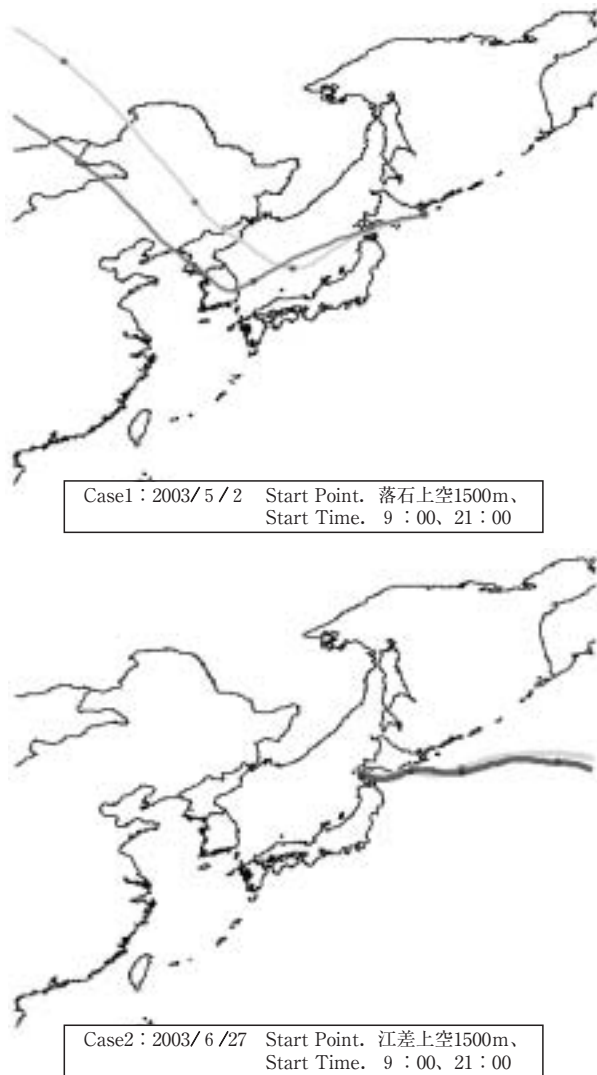


図6 江差、落石付近を通過する流跡線の例

災の影響と思われる高濃度の状況が確認された。

- ・ 後方流跡線解析の結果、大陸側からの気塊の流入時に、汚染物質濃度が高くなる傾向が示された。
- ・ 多地点同時採取データを用いて道外からの寄与を試算した結果、周囲に発生源のない清浄地域における SO_4^{2-} の道外からの寄与は65%以上を占め、濃度が上昇する春には87%を上回ると推定され、長距離輸送による影響が大きいことが示された。

5. 謝辞

この研究の一部は、独立行政法人国立環境研究所の委託調査として行った。また、後方流跡線解析は、独立行政法人国立環境研究所地球環境研究センターの「対流圏モニタリングデータ評価のための支援システム (CGER-GMET)」を利用した。ご指導くださいました地球環境研究センターの皆様には深く感謝いたします。また、試料採取に際しまして、

ご協力いただいた皆様に深く感謝いたします。

- 1) 中華人民共和国国家統計局 編、中国統計年鑑2002
- 2) 平成18年版 環境白書、環境省
- 3) 森淳子、宇都宮彬、鵜野伊津志、若松伸司、大原利眞：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の解析、大気環境学会誌、32、73～88、1997
- 4) 日置正、中西貞博、向井人史、村野健太郎：日本海沿岸で粒経別連続採取したエアロゾル中の水可溶性イオン種および微量金属成分による長距離輸送現象の解析—2002年春の黄砂イベントを中心に—、エアロゾル研究、21、160～175、2006
- 5) 鵜野伊津志、村野健太郎、若松伸司：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
- 6) Hayasida, A.S., Sasano, Y. And Iikura, Y.: Volcanic disturbances 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) 気候変動監視レポート2003、気象庁
- 8) 名古屋大学水圏科学研究所 編、大気水圏の科学—黄砂、p85～108、1991

Measurements of atmospheric aerosol soluble components at the background region in Hokkaido and influence of long-range transportation

Masayuki Akiyama, Hideyuki Otsuka
Takunori Kato

Abstract

Monitoring of soluble components in the atmospheric aerosols collected at the background area in Hokkaido were carried out, and influence of the long-range transportation was discussed. Concentration of sulfate from the non-sea salt origin showed the tendency which becomes high in the spring. Using the backward trajectory analysis, it classified the direction of the inflow of air mass into four sectors and it compared each concentration. As a result, concentration of sulfate was the highest when the air mass from China, Korea, Japan (main land) flows in, showed 4 - 5 times of concentration than the case from the Okhotsk area with the lowest concentration.

Concentration of $\text{PM}_{2.5}$ also was highest in spring, and

influence of forest fire in eastern Russia was confirmed. Contribution from the outside of Hokkaido of sulfate in the background area was estimated. As a result, as for equal to or more than 65 %, with the contribution from the Hokkaido outside, air mass flowed in from the continent and when having a high concentration, there was estimated to be contribution which exceeds 87 %. In the background area in Hokkaido, as for the variation of the sulfate concentration, that the influence of the long-range transportation dominated was confirmed.