

光化学オキシダント等の越境汚染に関する調査研究 (第3報) —水平および垂直分布について—

谷口佳文、福島綾子、川下博之、泉 宏導

Research on the Cross-border Pollution of Photochemical Oxidants(3)
— For horizontal and vertical distribution—

Yoshifumi TANIGUCHI ,Ayako FUKUSHIMA ,Hiroyuki KAWASHITA ,Hiromichi IZUMI

福井県への光化学オキシダント等の越境汚染の影響を探るため、県西部の海沿いの高地、県東部の内陸の高地、県西部の海沿いの中間高度での調査を行い、平野部の測定局との比較を行った。その結果、標高が高くなるほど移流の影響を受けやすく、海沿いと内陸の比較では海沿いが移流の影響を受けやすいことが示唆された。また、オキシダントが高濃度となる場合は、上空および平野部のオキシダントの蓄積が影響することが示唆された。

1. はじめに

本県における光化学オキシダント等の越境汚染の影響を探るため、県西部の海沿いに位置する標高 600m 付近（以下「海沿いの高地」という）での調査を平成 21 年度から行っている。

これまでの調査で、各調査地点における汚染物質濃度は、県内の常時監視測定局（以下「測定局」という。）に比べ概ね低いもしくは同程度の濃度であったが、オキシダント(Ox)のみ高めに推移しており、特に夜間に測定局との濃度差が大きくなる傾向にあった。また、移流等により夜間上空に蓄積された Ox が、日中の平野部の Ox 濃度を上昇させることを示唆する解析結果が得られた¹⁾。

本報では、Ox の水平および垂直分布から越境汚染の影響等について解析したので、その結果について報告する。

2. 調査方法

Ox の水平および垂直分布を把握するため、従来から実施している大気環境測定車「みどり号」（以下「みどり号」という。）による海沿いの高地（国見岳）での調査に加え、内陸の高地として県東部の六呂師高原に位置し、国見岳と同程度の高度にある福井県自然保護センター（以下、「六呂師」という。）に Ox 計を設置し調査を実施した。

また、水平および垂直分布の評価にあたっては、国見岳および六呂師の測定結果に加えて、県西部の海沿いの中間高度に位置する国設越前岬酸性雨測定所^(注)（以下「越前岬」という。）および調査地点に近い平野部の測定局である福井局、大野局（以下「評価対象測定局」という。）の測定値を用いた。

（注）酸性雨モニタリング調査事業により設置され Ox 計の測定値を使用。測定値は環境省に帰属する。

○調査地点

- ・国見岳（県西部の海沿いの高地）
福井市国見元町 標高 640m
- ・六呂師（県東部の内陸の高地）
大野市南六呂師 標高 550m
- ・越前岬（県西部の海沿いの中間高度）
丹生郡越前町血ヶ平 標高 220m

○評価対象測定局

- ・福井局（平野部）
福井市豊島 2 丁目 標高 7m
- ・大野局（平野部）
大野市水落町 標高 170m

○測定項目

- ・二酸化硫黄(SO₂)
- ・窒素酸化物(NO_x(NO+NO₂))
- ・炭化水素(NMHC、CH₄)
- ・浮遊粒子状物質(SPM)
- ・オキシダント(Ox)

※六呂師および越前岬は Ox のみ

○調査期間

平成 25 年度 6 月 5 日～7 月 29 日
平成 26 年度 5 月 1 日～6 月 30 日



図1 調査地点

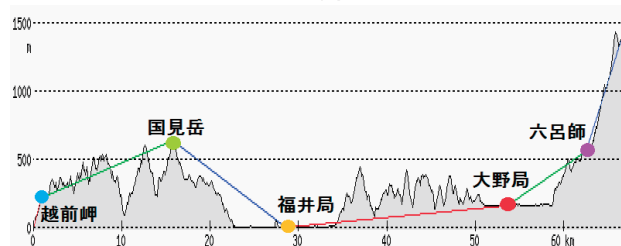


図2 地形断面図

(<http://www.heywhatsthat.com/profiler.html> を使用)

3. 結果および考察

3. 1 予備調査

六呂師における大気環境を把握するため、平成 25 年 4 月 24 日～5 月 31 日にみどり号による予備調査を行った。調査結果を図 3～14 に示す。

六呂師における大気環境は、県内の測定局に比べ SO_2 、

NO_x 、NMHC、 CH_4 、SPM の日平均値、日最高値とも低いまは同程度で推移した。 O_x は、日平均値は高めに推移し大きな差がでる日もみられたが、日最高値は概ね同程度であった。

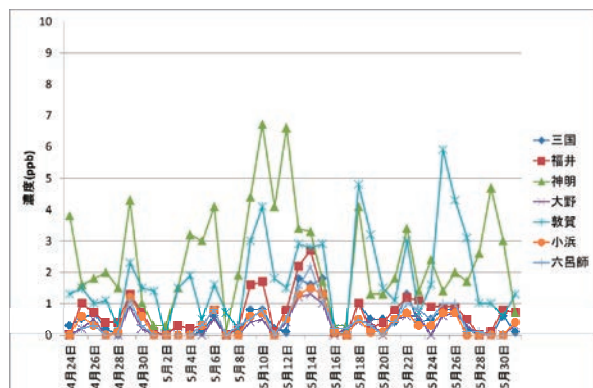


図 3 SO_2 日平均値

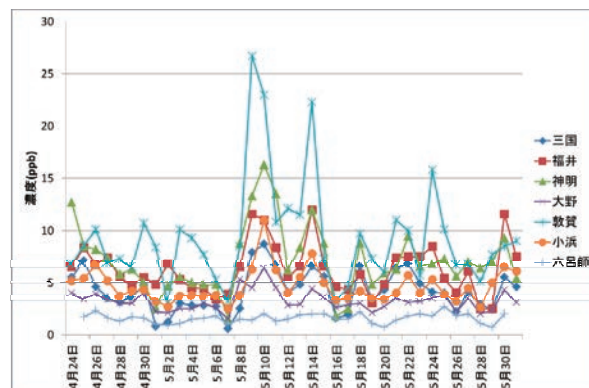


図 4 NO_x 日平均値

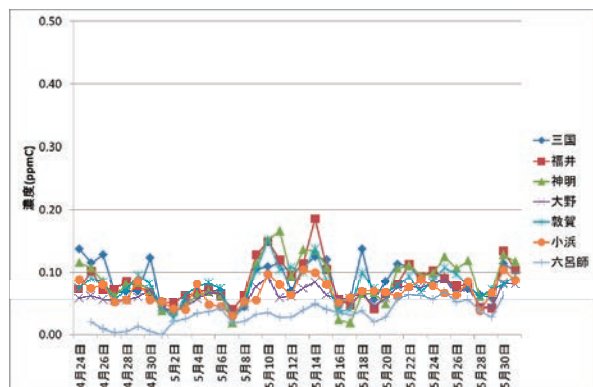


図 5 NMHC 日平均値

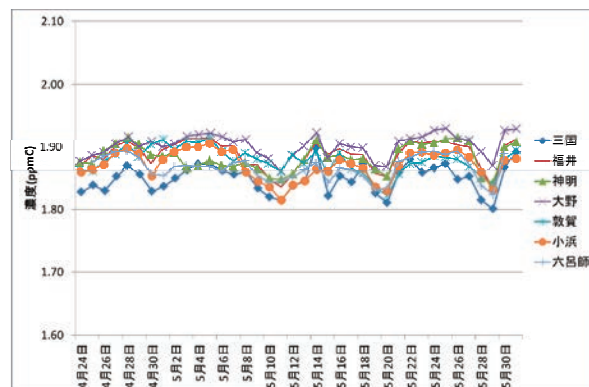


図 6 CH_4 日平均値

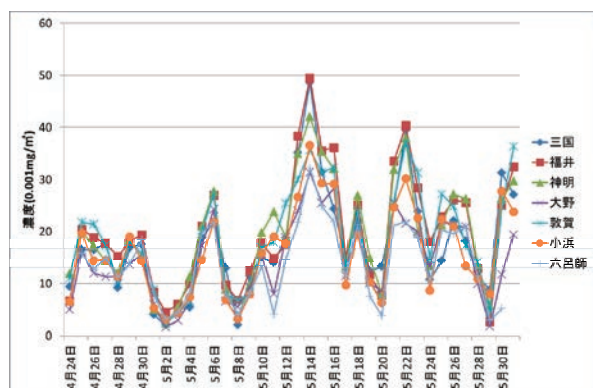


図 7 SPM 日平均値

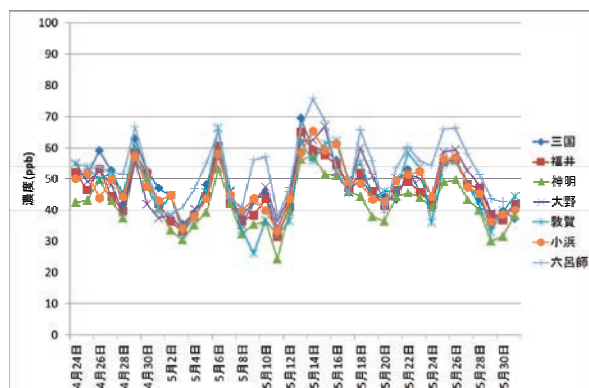


図 8 O_3 日平均値

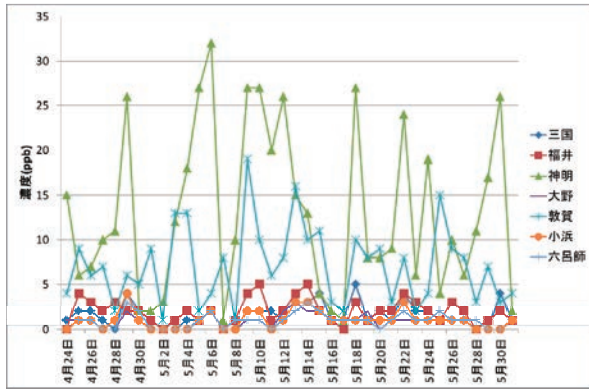


図9 SO₂ 日最高値

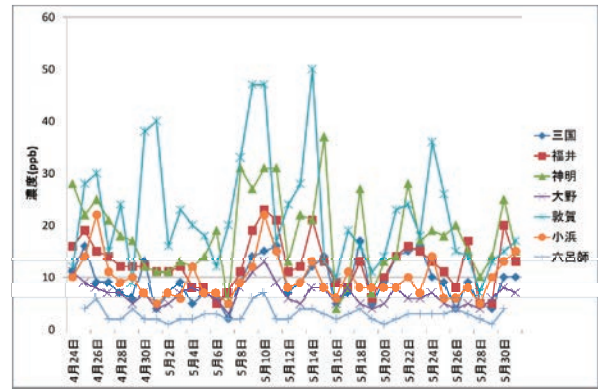


図10 NO_x 日最高値

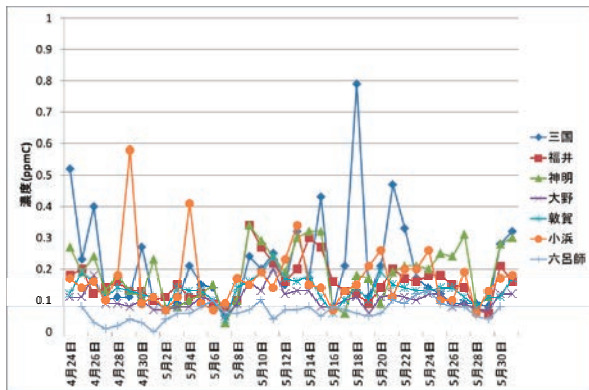


図11 NMHC 日最高値

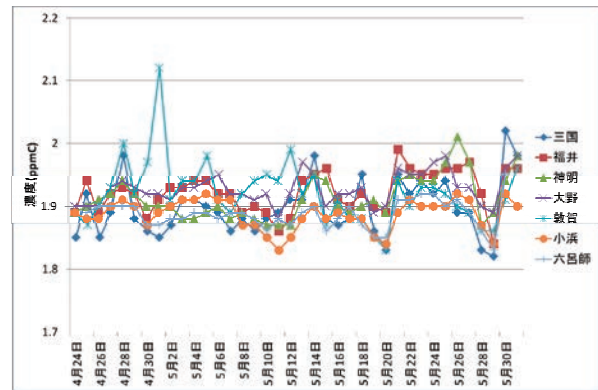


図12 CH₄ 日最高値

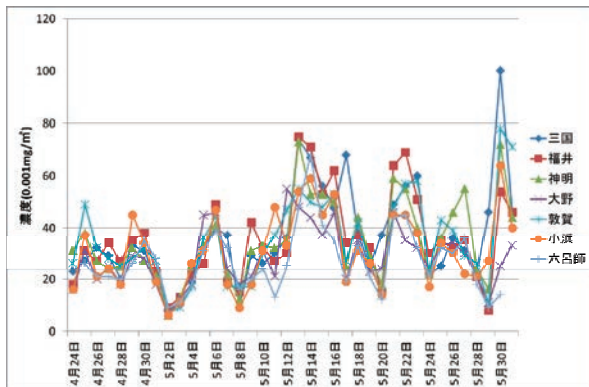


図13 SPM 日最高値

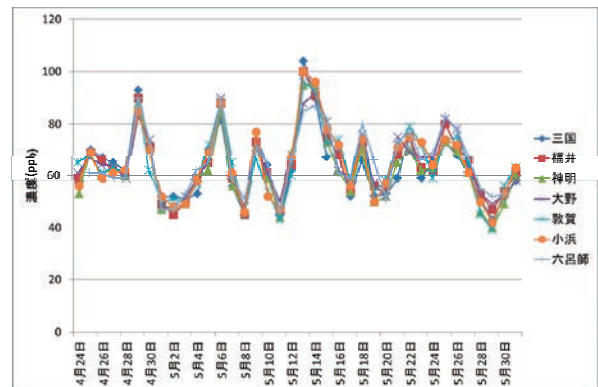


図14 O₃ 日最高値

3. 2 O_x 計での評価に関する検討

O_x 濃度の評価については、NO タイトレーションの影響を避けるため、PO を用いて評価を行うのが一般的であるが、越前岬および六呂師については O_x 計のみの調査となるため、O_x 値で PO の代用が可能か否かの検討を行った。

その際、六呂師については予備調査の結果を、越前岬については以下のみどり号による測定値を用いた。

- 調査地点 (みどり号による調査)
福井市菜崎町 (越前岬より東北東 8km)
- 調査期間
平成 24 年 8 月 31 日～10 月 1 日

図 15、図 16 に六呂師での、図 17、図 18 に福井市菜崎町での PO と O_x の 1 時間値および時刻別平均濃度を示す。

1 時間値および時刻別平均濃度とも、調査地点における PO と O_x の濃度推移は同様の傾向であり、濃度差も数 ppb 以内に収まっていた。

このことから、六呂師、越前岬ともに、O_x 値を用いて評価を行うことは可能と考えられた。

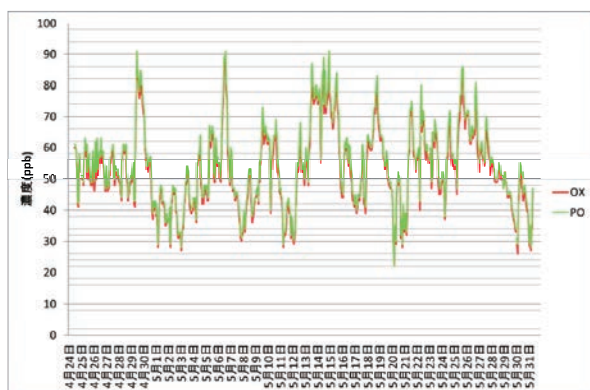


図 15 1 時間値推移 (六呂師)

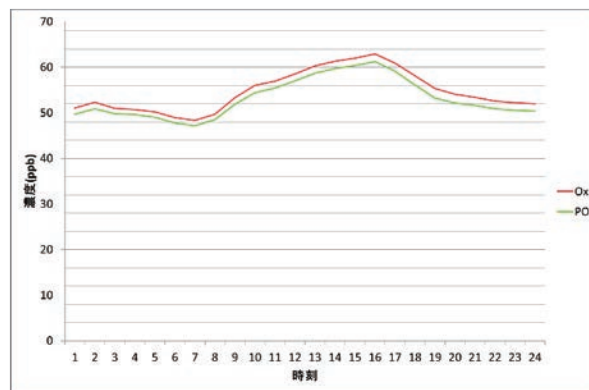


図 16 時刻別平均値 (六呂師)

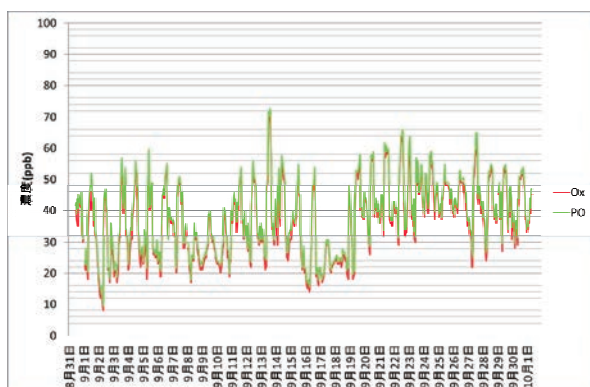


図 17 1 時間値推移 (福井市菜崎町)

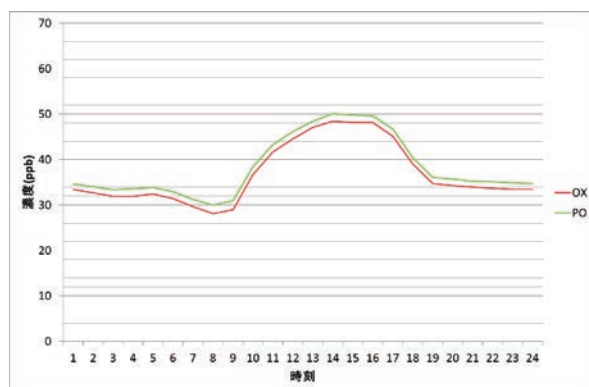


図 18 時刻別平均値 (福井市菜崎町)

3. 3 調査結果

図 19～24 に各調査期間における PO(Ox)の 1 時間値、日平均値および日最高値の濃度推移を示す。また、表 1 に日平均値および日最高値の期間平均値を示す。

平成 26 年度の PO(Ox)の濃度は、各調査地点、評価対象測定局とも平成 25 年度に比べ日平均値、日最高値ともに高めに推移した。

1 時間値では、各調査地点は評価対象測定局に比べ夜間に濃度が下がりにくい傾向にあり、調査地点と調査地点に近い評価対象測定局 (越前岬および国見岳=福井局、六呂師=大野局) との 24 時の濃度差が 15ppb 以上となる頻度は、平成 25 年度、26 年度ともに国見岳>越前岬>六呂師の順であった。(表 2)

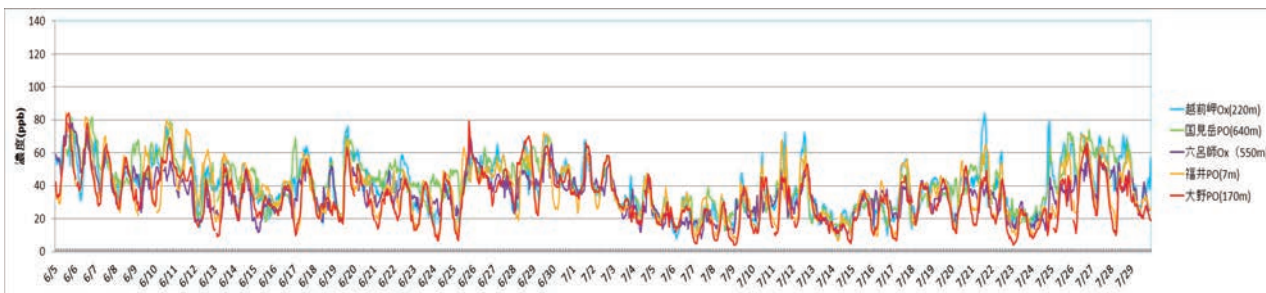


図 19 1 時間値推移 (H25)

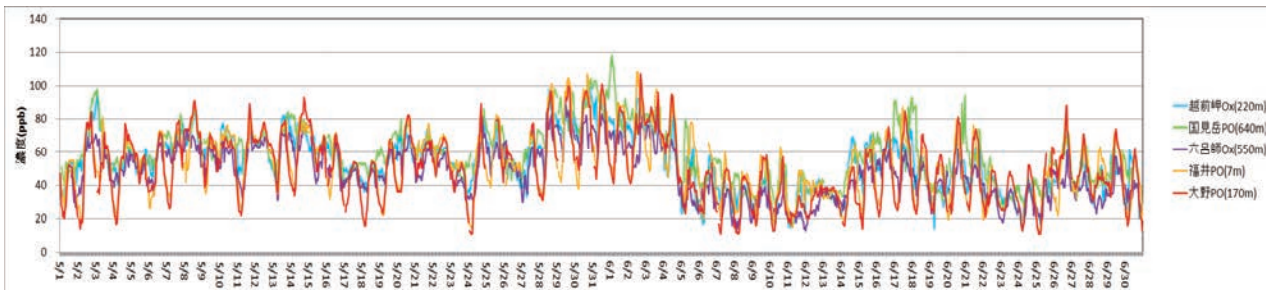


図 20 1 時間値推移 (H26)

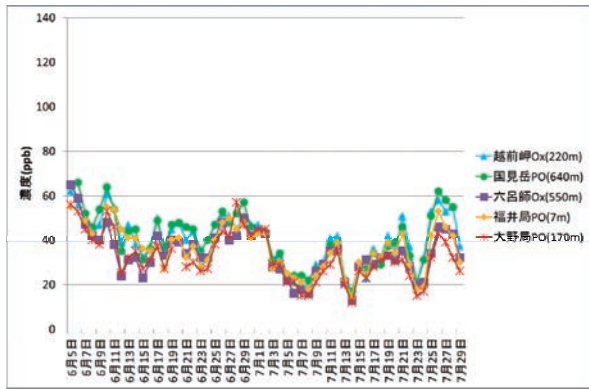


図 21 日平均値推移 (H25)

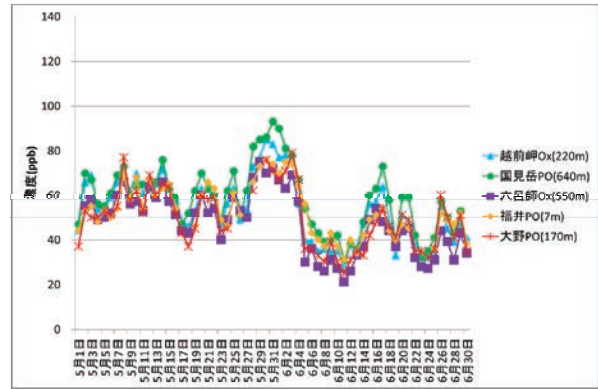


図 22 日平均値推移 (H26)

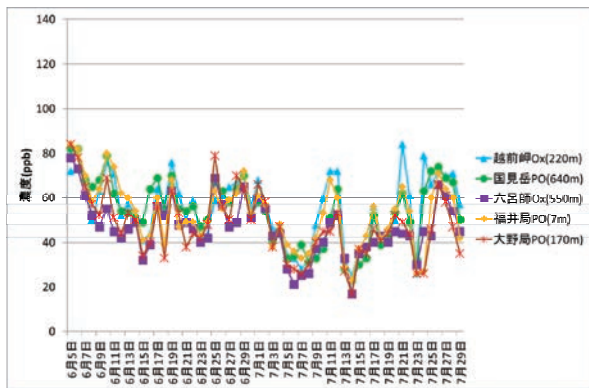


図 23 日最高値推移 (H25)

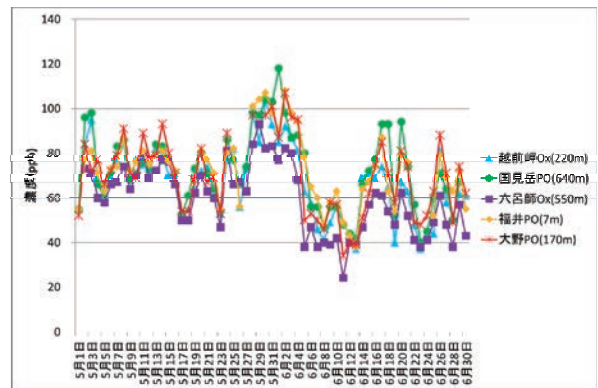


図 24 日最高値推移 (H26)

表 1 日平均値および日最高値の期間平均 (ppb)

		越前岬	国見岳	六呂師	福井局	大野局
日平均値	平成25年度	40	40	34	36	32
	平成26年度	54	59	48	54	50
日最高値	平成25年度	56	54	46	53	48
	平成26年度	67	72	60	74	70

表 2 24 時の濃度差が 15ppb 以上の頻度 (回)

	国見岳-福井局	越前岬-福井局	六呂師-大野局
平成25年度	19	11	6
平成26年度	31	19	13

3. 4 夜間濃度差に関する考察

県内いずれかの測定局で 80ppb 以上の Ox 濃度が観測された日を抽出し、前日 24 時の国見岳に対する各調査地点もしくは評価対象測定局との濃度差について、後方流跡線による分類をおこなった。結果を図 25 に示す。

なお、分類は気塊の源流やその経路別に図 26 のとおりとし、地表に接地した場合は不明とした。

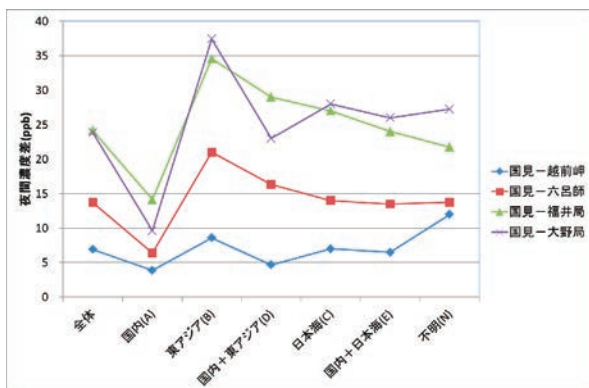


図 25 後方流跡線分類一夜間 (24 時) 濃度差

国見岳との濃度差は、特に福井局、大野局において、国内(A)由来の場合に小さく、東アジア(B)由来の場合に大きくなる傾向であった。

標高が高くなるほど風速が速くなる傾向であることや、夜間は混合層高度の低下により平野部からの Ox の供給も弱まることから、Ox の発生源がより遠方となる東アジア(B)由来の場合に夜間の濃度差が大きくなると考えられる。

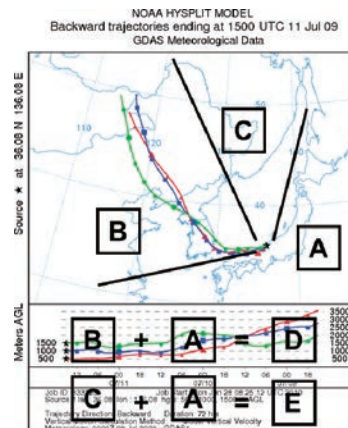


図 26 後方流跡線による分類

3. 5 標高および距離による考察

図 27～33 に各調査期間における PO(Ox)の標高別および海岸からの距離別の日平均値および日最高値の期間平均を示す。

標高別では、日平均値、日最高値ともに明確な傾向は見られず、相関についてもほとんどない～弱いであったが、同程度の標高では海沿い（西寄り）の地点が高くなる傾向であった。

距離別では、内陸（東寄り）に入るに従って日平均値お

よび日最高値がともに下がる傾向が見られ、平成 26 年度の日最高値を除き距離との強い相関が得られた。

海沿い（西寄り）の調査地点（越前岬、国見岳）は、付近に排出源が無いにも関わらず PO(Ox)濃度が高い傾向にあることから、海沿いは移流の影響を受けやすく、内陸に入るに従って影響を受けにくくなることが示唆された。

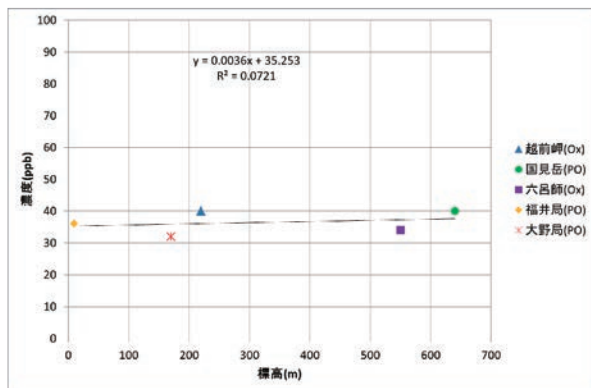


図 27 標高別日平均値 (H25)

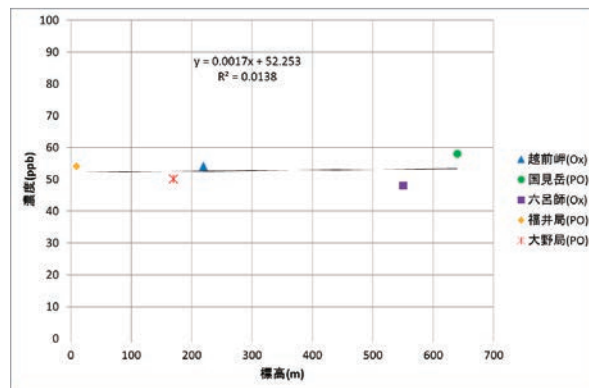


図 28 標高別日平均値 (H26)

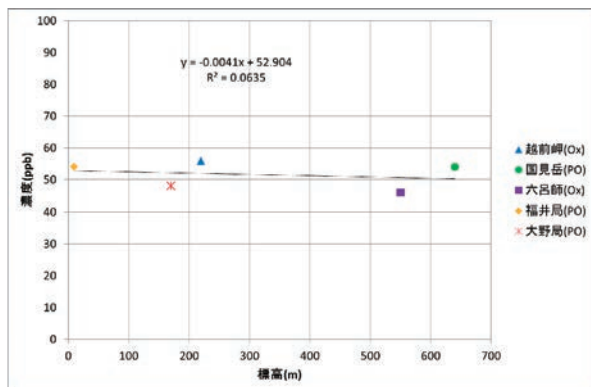


図 29 標高別日最高値 (H25)

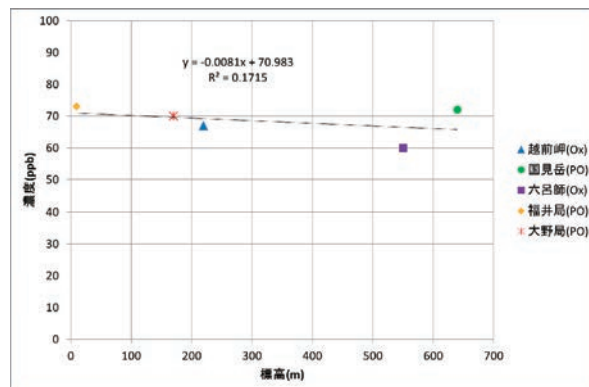


図 30 標高別日最高値 (H26)

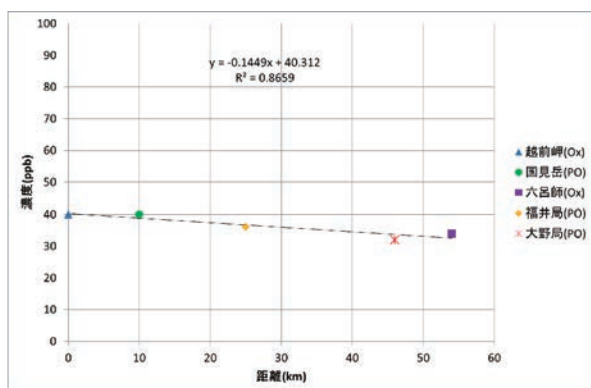


図 31 距離別日平均値 (H25)

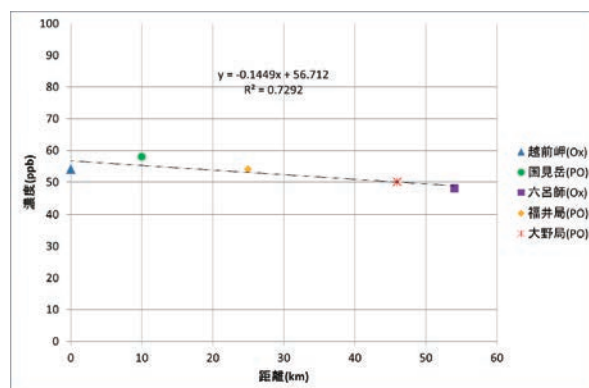


図 32 距離別日平均値 (H26)

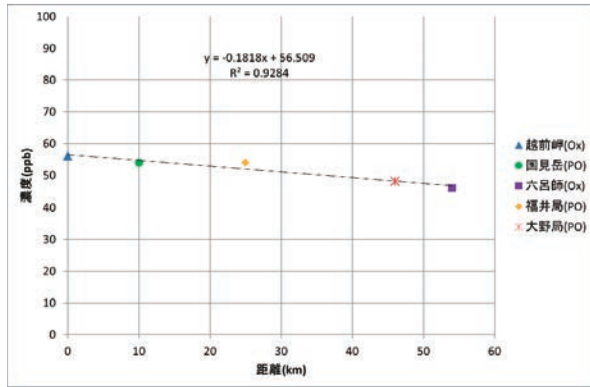


図 33 距離別日最高値 (H25)

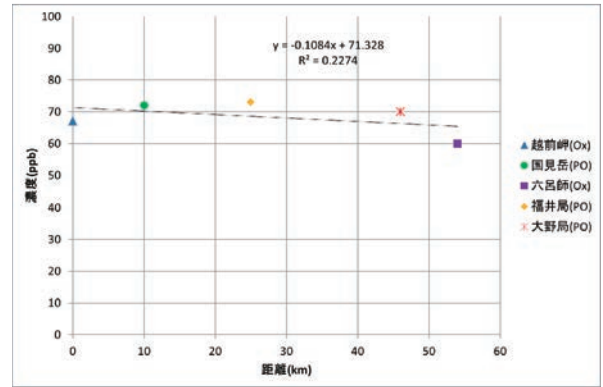


図 34 距離別日最高値 (H26)

3. 6 時刻別濃度推移による考察

図 35～46 に PO(Ox)の時刻別濃度および福井局の日最高 PO 濃度区分毎の時刻別濃度を示す。なお、降雨による影響を排除するため、福井地方気象台で降雨が観測された日は除外した。

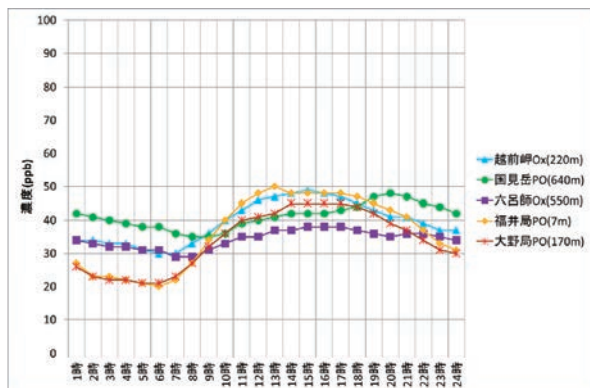
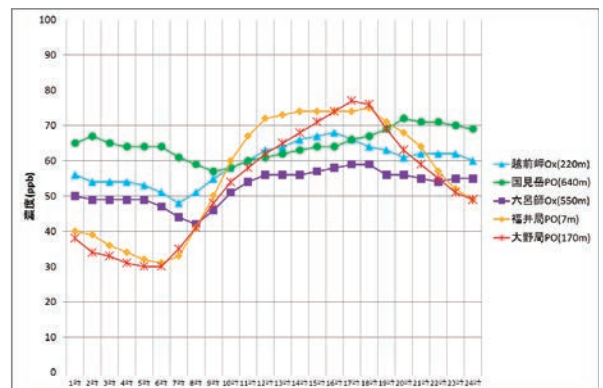
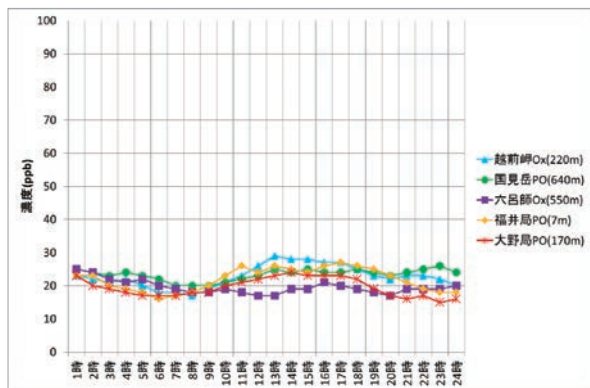
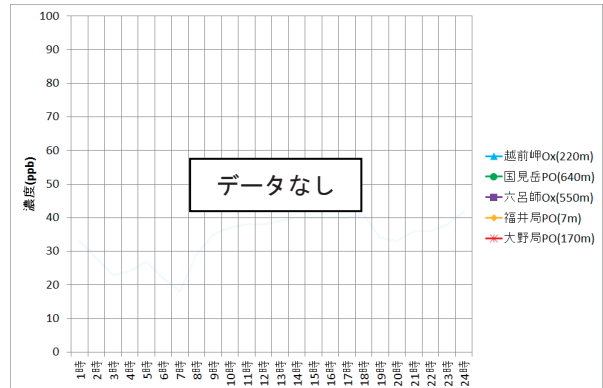
平成 25 年度、平成 26 年度ともに、各調査地点の濃度推移は評価対象測定局に比べて緩やかで、標高が低くなるに従い、評価対象測定局の濃度推移に近づく挙動がみられた。この要因として、日中に混合層高度が高くなり、夜間に低下することから、標高が低くなるほど一日を通して対流の影響を受けやすくなることが考えられる。

また、国見岳のみ日没後の PO 濃度の上昇がみられた。この要因として、国見岳よりも標高の低い地点では夜間の濃度上昇が見られないことや、夜間は混合層高度の低下に

より平野部からの Ox の供給も弱まることから、近傍発生源よりも遠方からの移流の影響が大きいと考えられる。

PO 濃度区分別では、濃度区分が高くなるにつれ、各調査地点の夜間の PO(Ox)濃度が上昇していた。また、評価対象測定局の日の出前後の日最低 PO 濃度は、濃度区分が 90ppb 未満では概ね 20～30ppb の範囲にあることから、調査地点のある地域（県北部）における春から初夏にかけての PO のバックグラウンド濃度は 20～30ppb 程度と推察される。

濃度区分が 90ppb 以上では、評価対象測定局の日の出前後の日最低 PO 濃度が 50ppb 付近まで上昇しており、数日間かけて徐々に濃度が上昇する傾向にあることから(図 20)、上空に加え平野部においても Ox(PO)が蓄積されることで高濃度になると考えられる。


図 35 時刻別濃度推移 (H25)
(濃度区分なし)

図 36 時刻別濃度推移 (H26)
(濃度区分なし)

図 37 時刻別濃度推移 (H25)
(40ppb 未満)

図 38 時刻別濃度推移 (H26)
(40ppb 未満)

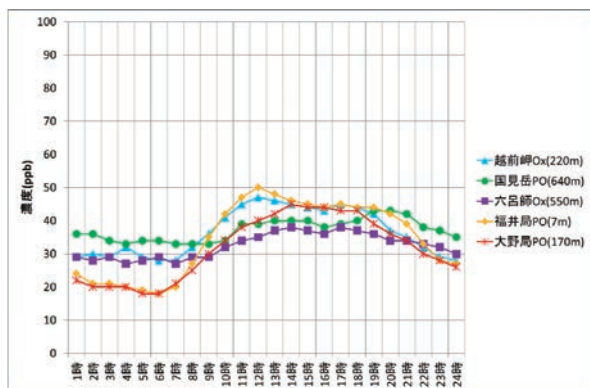


図 39 時刻別濃度推移 (H25)
(40~59ppb)

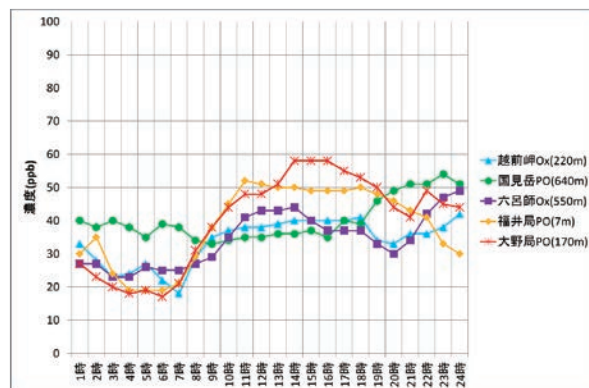


図 40 時刻別濃度推移 (H26)
(40~59ppb)

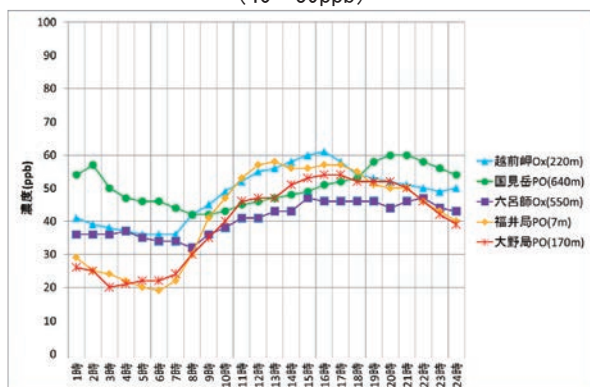


図 41 時刻別濃度推移 (H25)
(60~74ppb)

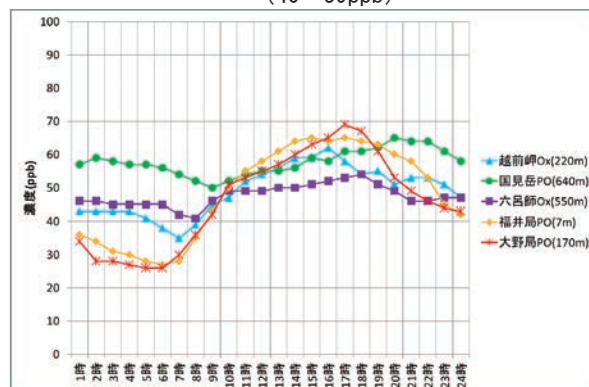


図 42 時刻別濃度推移 (H26)
(60~74ppb)

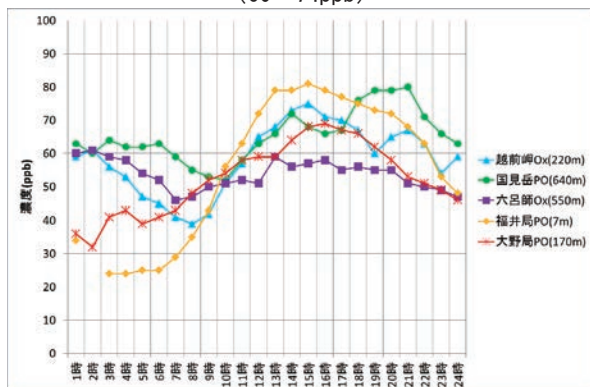


図 43 時刻別濃度推移 (H25)
(75~89ppb)

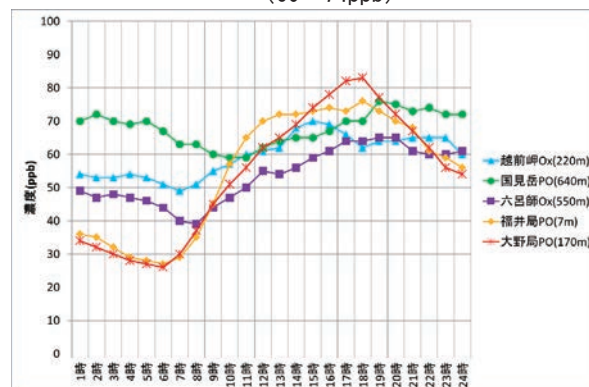


図 44 時刻別濃度推移 (H26)
(75~89ppb)

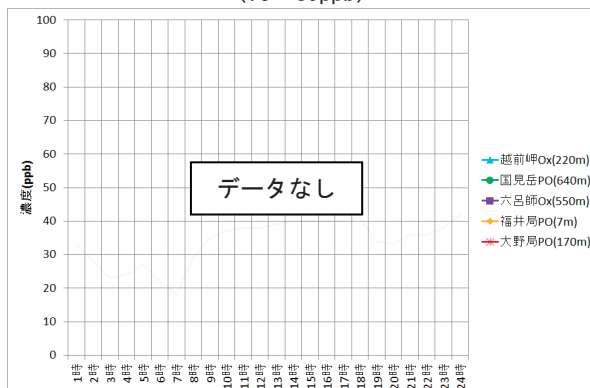


図 45 時刻別濃度推移 (H25)
(90ppb 以上)

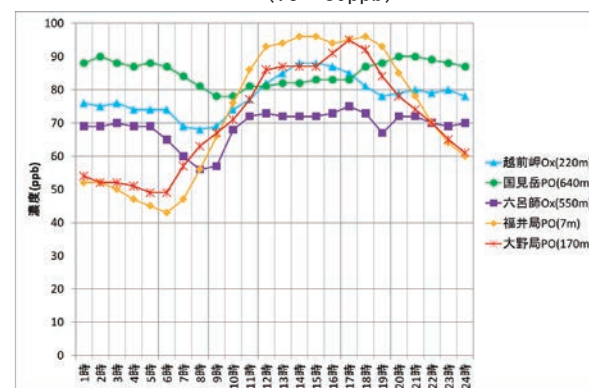


図 46 時刻別濃度推移 (H26)
(90ppb 以上)

3. 7 SPM 計ろ紙の成分分析

越境汚染の指標となる物質を探るため、国見岳でのSPM計のろ紙(ガラス繊維)を用い、Ox濃度が特に高く、後方流跡線により源流が国内(A)と考えられる日と東アジア(B)と考えられる日(平成25年度は6月10日と7月26日、平成26年度は5月31日と6月3日)について、8時間分(1-8時、9-16時、17-24時)のスポットを1検体として、時間帯毎にイオン成分の分析を行った。

表3に分析結果の日平均値、県内測定局の日最高Ox濃度、後方流跡線分類および国内由来の日とアジア由来の日の濃度比(B/A)を示す。

なお、SPM計ろ紙は、1ヶ月単位の回収であることから、捕集された成分の揮発や、ろ紙の裏写り等の影響が考えられるため、分析値については参考値とする。

平成25年度は、硫酸イオン(SO_4^{2-})、アンモニウムイオン(NH_4^+)、カルシウムイオン(Ca^{2+})、マグネシウムイオン(Mg^{2+})が2倍以上の濃度比であったが、平成26年度に2倍以上の濃度比となったのは Ca^{2+} 、 Mg^{2+} のみで、 SO_4^{2-} 、 NH_4^+ の濃度比はそれほど高くなかった。

平成26年度の5月末から6月上旬にかけては、Ox濃度が高い状態を維持しており、この間、後方流跡線から東アジア(B)を源流とする気塊が国内(A)に数日間滞留したとみられることから、6月3日は国内と東アジアの複合汚染の影響を受けて SO_4^{2-} 、 NH_4^+ の濃度が高い状態を維持し、このことにより濃度比がそれほど高くならなかったと考えられる。このため、今後データを蓄積することで、越境汚染の指標となる物質が明らかになると考えられる。

4. まとめ

後方流跡線分類による地点間の夜間のPO濃度差の評価において、福井局、大野局で国内(A)のときに国見岳との濃度差が少なく、東アジア(B)の時に大きくなる傾向にあった。標高が高くなるほど風速が速くなることから、Oxの発生源が遠方となる東アジア由来の場合に国見岳にいち早くOxが到達することで、測定局との濃度差が大きくなると考えられた。

標高別および海岸からの距離別によるPO濃度は、標高による明確な傾向は見られなかったが、同程度の標高では海沿い(西寄り)の濃度が高い傾向にあり、距離別では海沿いが高く、内陸(東寄り)に入るに従い濃度が低下する傾向にあった。

時刻別濃度推移では、国見岳のみ夜間の濃度上昇がみられた。また、各調査地点の濃度推移は緩やかで、調査地点の標高が低くなるに従い、評価対象測定局の濃度推移に近づく挙動がみられたことから、国見岳は対流の影響を受けにくく、移流の影響を受け易いと考えられた。また、県北部における春～初夏にかけてのPOのバックグラウンド濃度は20~30ppb程度であることや、オキシダントが高濃度となる場合は、上空および平野部のオキシダントの蓄積が影響することが示唆された。

参考文献

- 1) 谷口佳文他：光化学オキシダント等の越境汚染に関する調査研究(第2報),福井県衛生環境研究センター年報,8,79-84(2012)

表3 成分分析結果

	SO_4^{2-}	NO_3^-	NH_4^+	K^+	Ca^{2+}	Mg^{2+}	$\mu\text{mol/l}$ ※Oxはppb	流跡線分類
平成25年6月10日	28.4	6.7	34.9	4.2	0.9	0.3	91	国内(A)
7月26日	65.7	6.4	92.6	6.5	1.9	0.7	80	東アジア(B)
濃度比(B/A)	2.3	1.0	2.7	1.5	2.0	2.0	-	-
平成26年5月31日	77.8	15.2	64.5	11.8	5.9	2.1	99	東アジア(B)
6月3日	55.2	10.5	55.4	9.1	2.5	0.9	96	国内(A)
濃度比(B/A)	1.4	1.4	1.2	1.3	2.4	2.4	-	-