

福岡市における乾性沈着成分と黄砂，煙霧との関係（Ⅱ）

宮地夏海・木下誠

福岡市保健環境研究所環境科学課

Relation of Dry Deposition with Yellow Sand and Smoke Fog in Fukuoka City (Ⅱ)

Natsumi MIYACHI, Makoto KINOSHITA

Environmental Science Division, Fukuoka City Institute for Hygiene and the Environment

要約

福岡市における 2007～2010 年度の黄砂・煙霧，乾性沈着調査データを解析し，乾性沈着のエアロゾル・ガス成分高濃度と黄砂・煙霧との関係について検討を行った。前報¹⁾と同様，エアロゾル総イオン濃度の高濃度現象と煙霧との関連性が高かったが，ガス総イオン濃度は変動が小さく，突出した高濃度現象が少なかった。エアロゾルのイオン成分濃度は，黄砂時に $nss-Ca^{2+}$ ，煙霧時に $nss-SO_4^{2-}$ および NH_4^+ が高かった。また，総イオン濃度で区分したエアロゾルおよびガスのイオン成分比率を解析したところ，黄砂時にエアロゾル成分の $nss-Ca^{2+}$ ， NO_3^- および Mg^{2+} ，ガス成分の NH_3 ，煙霧時にガス成分の SO_2 比率が高い傾向がみられた。また，エアロゾル成分高濃度時の後方流跡線解析および硫酸エアロゾル分布図により，大陸方面からの影響が示唆された。

Key Words : 酸性雨 acid rain, 乾性沈着成分 dry deposition, 黄砂 yellow sand, 煙霧 smoke fog, エアロゾル aerosol

1 はじめに

大気中の汚染物質が地表に達する大気沈着の主な過程には，雨・雪などの降水に伴い地表に沈着する「湿性沈着」と，非降水時に，ガス・微粒子の状態就直接地表に沈着する「乾性沈着」がある。湿性沈着と乾性沈着はともに土壌，湖沼などを酸性化する原因となり，このふたつの過程で地表に達した汚染物質をまとめて酸性沈着とよんでいる。

福岡市では酸性雨調査の一環として，大気中の乾性沈着成分を継続的に調査している。前報¹⁾では，乾性沈着の高濃度現象と黄砂，煙霧との間に関連があることを報告した。そこで，本報告では 2007～2010 年度の乾性沈着調査データを用いて黄砂・煙霧との関連についてさらなる解析を行った。

2 調査方法

2.1 調査地点

調査地点である福岡市早良区曲渕は，福岡市の中心部

から南西に約 13km，室見川上流の谷間標高約 170m 地点に位置している（図 1）。南側約 300m に国道 263 号が通っているが，林に遮られて直接の影響は見られない。



図 1 乾性沈着調査地点

2.2 調査方法

調査方法は，全国環境研協議会で定められている乾性沈着成分の調査方法により，4 段ろ紙法によるエアロゾル・ガス成分の調査法（フィルターパック法）で行った。原則 1 週間単位で連続採取し，F0 段のろ紙で捕集したイオン濃度の合計をエアロゾルとし，F1～F3 段のろ紙で捕集したイオン濃度の合計をガスとした。濃度は採気量で基準化し

大気 1m³あたりの濃度 (μeq/m³) で表した。解析には、2007年4月から2011年3月までの調査データを使用した。黄砂・煙霧は福岡管区気象台で観測された日を気象月報 (<http://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/index.php>) から抽出した。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センターのMETEX (<http://db.cger.nies.go.jp/metex/index.jp.html>) を使用し、算出した。硫酸エアロゾルの濃度分布は九州大学/国立環境研究所の化学天気予報システム (CFORS) (<http://www-cfors.nies.go.jp/~cfors/index-j.html>) を利用した。

3 結果および考察

3.1 黄砂・煙霧の観測日数の経年変化

調査期間以前のデータも含めた、2001～2010年の黄砂、煙霧の観測日数の経年変化を図2に示す。この期間の平均日数は黄砂13日/年、煙霧48日/年であった。前報¹⁾では、1980年～2006年において黄砂、煙霧ともに観測日数は上昇傾向であったが、今回の調査期間における観測日数は、黄砂はおおむね横ばい傾向、煙霧は減少傾向であった。

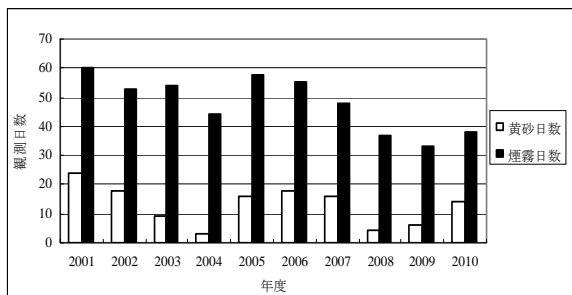


図2 黄砂・煙霧の観測日数の経年変化

3.2 乾性沈着成分と黄砂・煙霧の関係

3.2.1 総イオン濃度の変動

調査期間以前のデータも含めた、2001～2010年のエアロゾルおよびガスにおける総イオン濃度の4分位グラフを図3に示す。エアロゾルは年によって変動があり、突出した高濃度現象がみられたが、ガスでは変動が小さかった。

エアロゾルおよびガスの総イオン濃度を0.1μeq/m³の濃度毎の階級に分け、階級毎の週の回数と黄砂、煙霧が観測された週の回数を表1に示す。なお()内の数字は階級毎の黄砂、煙霧が観測された週の割合を示している。エアロゾルは、総イオン濃度が0.3μeq/m³以上で黄砂、煙霧の観測された週の割合が高く、特に煙霧の観測された割合が高かった。一方で、黄砂が観測された割合は最大25%で煙霧ほど高くなかった。ガスでは、総イオ

ン濃度が0.3μeq/m³以上の週が少なく、調査期間中では5週しかなかった。そのうち3週で煙霧が観測され、1週で黄砂が観測された。

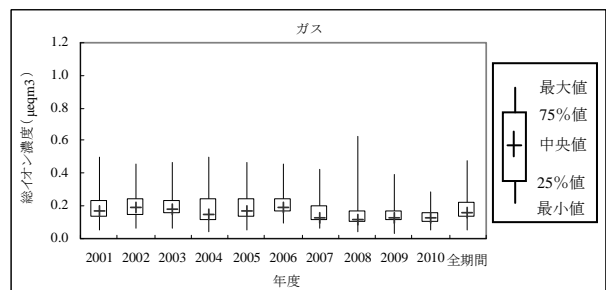
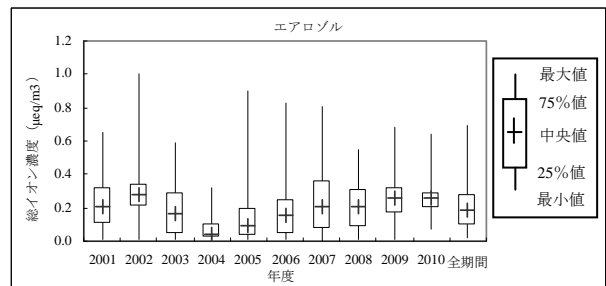


図3 総イオン濃度の四分位グラフ

表1 階級別総イオン濃度と黄砂・煙霧の観測回数 (エアロゾル)

総イオン濃度 μeq/m ³	週の 回数	観測された日を含む週の回数	
		煙霧	黄砂
0.1未満	37	15 (41%)	4 (11%)
0.1～0.2	45	8 (18%)	3 (7%)
0.2～0.3	56	22 (39%)	5 (9%)
0.3～0.4	37	27 (73%)	3 (8%)
0.4～0.5	9	6 (67%)	2 (22%)
0.5～0.6	8	6 (75%)	2 (25%)
0.6以上	6	6 (100%)	1 (17%)

(ガス)

総イオン濃度 μeq/m ³	週の 回数	観測された日を含む週の回数	
		煙霧	黄砂
0.1未満	54	14 (26%)	3 (6%)
0.1～0.2	116	58 (50%)	11 (9%)
0.2～0.3	21	15 (15%)	5 (24%)
0.3～0.4	3	1 (33%)	1 (33%)
0.4以上	2	2 (100%)	0 (0%)

黄砂・煙霧の有無によって分類したエアロゾルおよびガスの総イオン濃度の分布を図4に示す。1週間毎の採取データを、黄砂・煙霧が観測されなかった時と1日以上観測された時を区別してプロットした。図中の数字は最高値および中央値である。エアロゾルでは、煙霧のみが観測された時に突出した高濃度を示しており、最高値は0.80μeq/m³であった。黄砂と煙霧がともに観測された時の最高値は0.65μeq/m³であり、煙霧のみほど高濃度にはならなかった。黄砂のみの最高値は0.52μeq/m³であり、黄砂・煙霧が観測されなかった時の最高値0.53μeq/

m^3 と同程度であった。中央値は黄砂・煙霧が観測されなかった時と比べて、黄砂や煙霧が観測された時が高かった。ガスでは、煙霧のみの時で最高値 $0.63\mu eq/m^3$ だった。しかし、調査期間中のガスの総イオン濃度はほとんどが $0.3\mu eq/m^3$ 以下であり、ガスはエアロゾルに比べ、高濃度現象が起こることが少ないと考えられた。

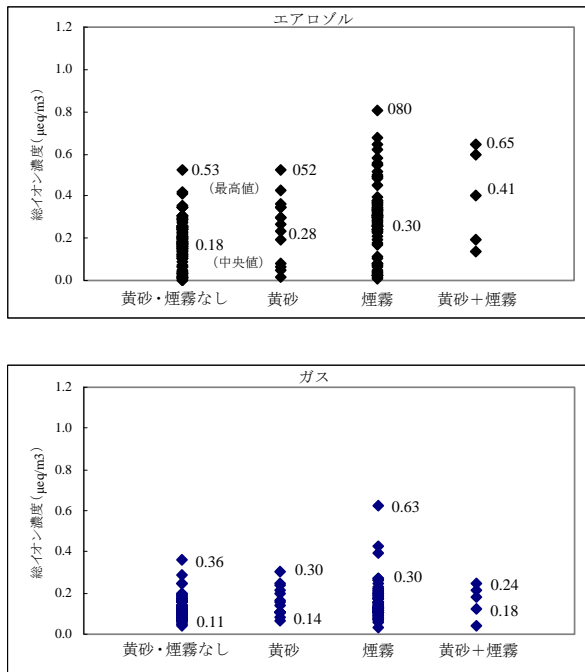


図4 黄砂・煙霧の有無で分類した総イオン濃度分布

3.2.2 イオン成分濃度の変動

1) エアロゾル

次に、黄砂・煙霧の有無によって分類したエアロゾルの各イオン成分濃度分布を図5-1、5-2に示す。図4と同様に1週間毎の採取データを、黄砂・煙霧が観測されなかった時と1日以上観測された時を区別してプロットした。図中の数字は最高値および中央値である。

非海塩性カルシウムイオン ($nss-Ca^{2+}$) は黄砂および黄砂と煙霧が観測された時に最高値および中央値が高かった。また、低濃度ではあるが、 Mg^{2+} も黄砂および黄砂と煙霧が観測された時に最高値および中央値が高かった。これらのイオン成分は土壌由来と考えられた。 $nss-SO_4^{2-}$ および NH_4^+ は、煙霧が観測された時に最高値および中央値が高かった。このことから、山崎の報告²⁾ のように煙霧と硫酸アンモニウムのエアロゾルには密接な関係があると考えられた。また、 NO_3^- は低濃度ではあるが、煙霧、黄砂および黄砂と煙霧が観測された時に最高値、中央値が高かったことから、煙霧や黄砂と硝酸イオンとの間にも関連があると考えられた。 K^+ は煙霧が観測された時に最高値が高かった。その他のイオン成分については、黄砂・煙霧の有無による傾向はあまりみられ

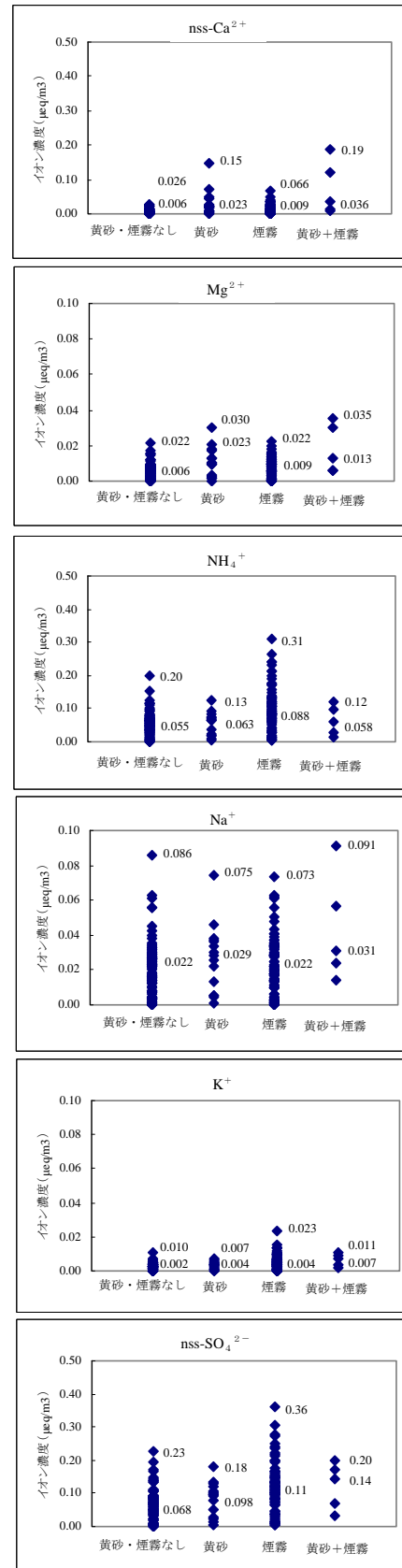


図5-1 煙霧・黄砂の有無で分類したエアロゾルの各イオン成分濃度分布

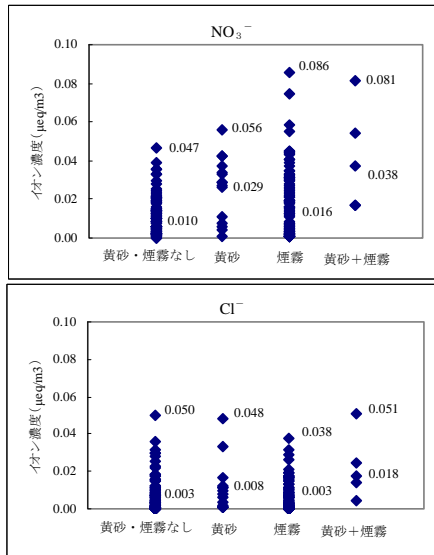


図 5-2 黄砂・煙霧の有無で分類したエアロゾルの各イオン成分濃度分布

なかった。

黄砂・煙霧が観測された時の総イオン濃度を $0.4\mu\text{eq}/\text{m}^3$ 以上で区分し、各イオン成分の中央値を算出した。その値を用いた区分毎のイオン成分比率を図 6 に示す。nss- SO_4^{2-} の割合は黄砂・煙霧が観測されなかった時と比べて、煙霧時でやや割合が高かった。nss- Ca^{2+} の割合は黄砂および黄砂・煙霧が観測された時に高く、総イオン濃度が $0.4\mu\text{eq}/\text{m}^3$ 以上の高濃度時により高かった。 NO_3^- 、 Mg^{2+} は黄砂および黄砂・煙霧が観測された時に割合が高かった。

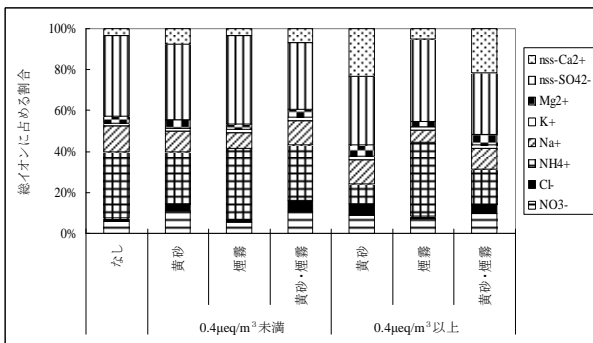


図 6 黄砂・煙霧の有無で分類したエアロゾルのイオン成分比率（中央値）

2) ガス

ガスは 3.2.1 で述べたように、突出した高濃度現象があまりみられない。そこで、ガスの成分比率と黄砂、煙霧との関係について検討した。ガスの総イオン濃度を $0.1\mu\text{eq}/\text{m}^3$ 毎の階級に分け、各成分の中央値を算出した。その値を用いた階級毎の成分比率を図 7 に示す。総イオ

ン濃度が比較的高濃度である $0.2\mu\text{eq}/\text{m}^3$ 以上では、 SO_2 の比率が高くなる傾向がみられた。

黄砂、煙霧が観測された時の総イオン濃度を $0.2\mu\text{eq}/\text{m}^3$ で区分し、各成分の中央値を算出した。その値を用いた階級毎の成分比率を図 8 に示す。総イオン濃度が $0.2\mu\text{eq}/\text{m}^3$ 以上では、煙霧が観測された時に SO_2 の比率が高かった。3.2.2) (1) で述べたように、煙霧時には硫酸アンモニウムエアロゾルが高濃度であるが、これは SO_2 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。大規模な煙霧の時には、二次生成粒子の前駆物質である SO_2 が十分に酸化されずに到達する可能性があると考えられた。また、総イオン濃度が $0.2\mu\text{eq}/\text{m}^3$ 以上では、黄砂および黄砂・煙霧が観測された時に NH_3 の比率が高かった。大気中を浮遊する間に、土壌由来の炭酸カルシウムと周辺の大気中に含まれる硫酸アンモニウムとが反応した可能性があると考えられた。

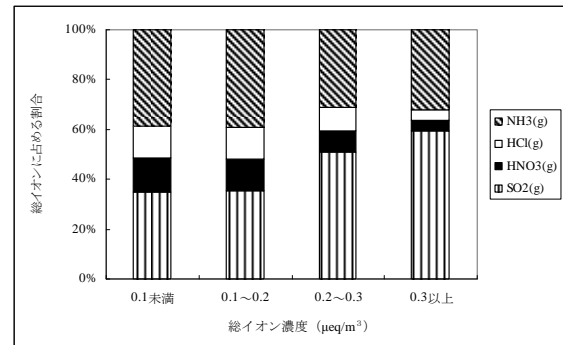


図 7 階級別総イオン濃度とガスの成分比率（中央値）

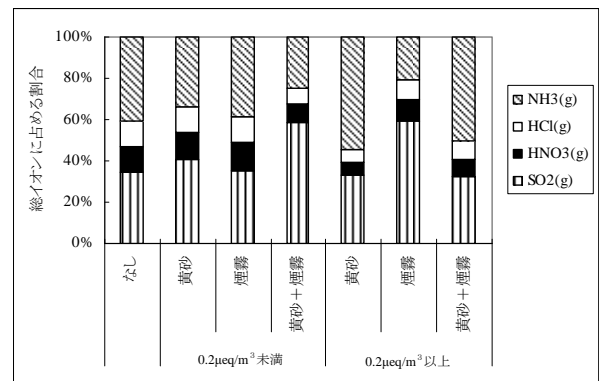


図 8 煙霧・黄砂の有無で分類した階級毎の各成分比率（中央値）

3.3 高濃度事例解析

3.3.1 エアロゾルおよびガスの成分

煙霧と高濃度現象の関係があると考えられるエアロゾル成分の総イオン濃度が高い上位 5% (11 週) を抽出した。抽出した 11 週のエアロゾルおよびガスの総イオン濃度、黄砂・煙霧観測の有無を表 2 に示す。また、黄砂・

煙霧が観測されなかった週の総イオン濃度の中央値も示す。11週全てで煙霧が観測され、そのうち2週については黄砂も観測された。また、11週のガス総イオン濃度は $0.13\sim 0.42\mu\text{eq}/\text{m}^3$ で、黄砂・煙霧が観測されなかった週と比べ高濃度であった。

表2 エアロゾル成分総イオン濃度上位5% (11週) のガス成分総イオン濃度と黄砂・煙霧

年度_月_週	総イオン濃度 ($\mu\text{eq}/\text{m}^3$)		黄砂・煙霧 観測有無
	エアロゾル	ガス	
07 04 01	0.60	0.21	黄砂・煙霧
07 04 05	0.65	0.20	煙霧
07 05 01	0.80	0.25	煙霧
07 01 01	0.56	0.42	煙霧
07 02 03	0.54	0.27	煙霧
07 03 02	0.62	0.21	煙霧
08 11 01	0.55	0.15	煙霧
09 04 02	0.68	0.40	煙霧
09 06 03	0.58	0.13	煙霧
10 11 03	0.65	0.24	黄砂・煙霧
10 02 01	0.62	0.17	煙霧
煙霧・黄砂なし	0.18	0.13	—

3.3.2 流跡線解析および硫酸エアロゾル分布図

METEXを用いて、抽出した11週中で黄砂・煙霧が観測された日の調査地点上空1000mを起点とした5日間の後方流跡線解析を行った。最もエアロゾル濃度が高かった2007年5月1週目の解析結果を図9に示す。また、化学天気予報システム(CFORs)による硫酸エアロゾルの予報分布のうち代表的なものを図10に示す。後方流跡線解析により、エアロゾル高濃度現象時に観測された煙霧の日の気塊は、数日かけてゆっくりと大陸上空を通過していることがわかった。また、期間中の硫酸エアロゾルの分布は高濃度であった。

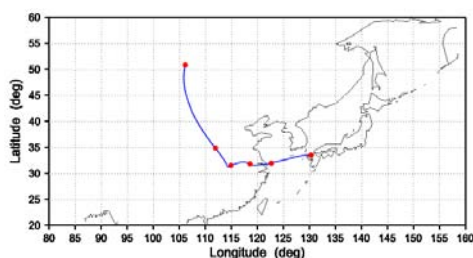


図9 曲淵における120時間の後方流跡線解析 (2007年5月2日9時)

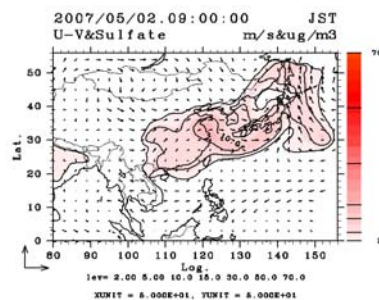


図10 数値モデル(CFORs)による硫酸塩エアロゾル予報図 (2007年5月2日9時)

4. まとめ

今回の調査期間においても前報¹⁾と同様に、エアロゾル総イオン濃度の高濃度現象と煙霧が特に関係があり、ガス総イオン濃度では突出した高濃度現象が少ないことがわかった。エアロゾルのイオン成分濃度は、黄砂時に非海塩性(nss-) Ca^{2+} 、煙霧時に nss-SO_4^{2-} および NH_4^+ が高かった。また、総イオン濃度で区分したエアロゾルおよびガスの成分比率を解析したところ、黄砂時にエアロゾル成分の nss-Ca^{2+} 、 NO_3^- および Mg^{2+} 、ガス成分の NH_3 、煙霧時にガス成分の SO_2 比率が高い傾向がみられ、エアロゾル・ガスともに黄砂・煙霧の有無によりイオン成分比率に変動があった。また、後方流跡線と硫酸エアロゾル分布図を用いてエアロゾル高濃度時の解析を行った結果、大陸方面からの影響が示唆された。

参考文献

- 1) 志水友梨他：福岡市における乾性沈着成分と黄砂、煙霧との関係、福岡市保健環境研究所報, 32, 51~54, 2007
- 2) 山崎誠：アジア大陸から移流した硫酸塩エアロゾルの煙霧による高SPM事例の解析、福岡市保健環境研究所報, 29, 101~104, 2004