

表 3-1-4 通年及び各季節における pH4 未満の降水の出現頻度

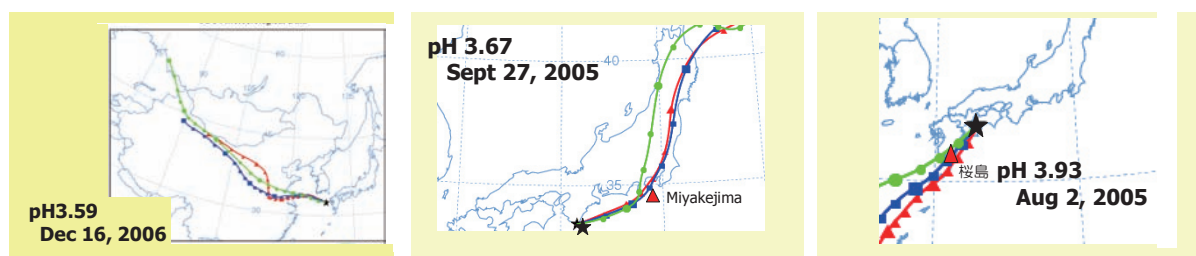
調査地点	通 年			春			夏			秋			冬		
	n	N	n/N(%)	n	N	n/N(%)	n	N	n/N(%)	n	N	n/N(%)	n	N	n/N(%)
利尻	8	670	1.2	2	149	1.3	5	123	4.1	0	178	0.0	1	220	0.5
落石岬	10	472	2.1	4	133	3.0	3	108	2.8	2	148	1.4	1	83	1.2
竜飛岬	22	494	4.5	5	109	4.6	9	132	6.8	3	143	2.1	5	110	4.5
小笠原	3	624	0.5	1	169	0.6	0	125	0.0	0	183	0.0	2	147	1.4
佐渡関岬	16	562	2.8	7	116	6.0	3	162	1.9	4	143	2.8	2	141	1.4
八方尾根	15	879	1.7	6	209	2.9	2	237	0.8	3	226	1.3	4	207	1.9
越前岬	71	872	8.1	15	200	7.5	9	177	5.1	9	182	4.9	38	313	12.1
潮岬	53	679	7.8	10	188	5.3	14	196	7.1	15	172	8.7	14	123	11.4
隠岐	29	669	4.3	8	156	5.1	2	152	1.3	3	148	2.0	16	213	7.5
橈原	67	741	9.0	15	191	7.9	10	218	4.6	12	160	7.5	30	172	17.4
対馬	25	450	5.6	3	115	2.6	8	166	4.8	1	103	1.0	13	66	19.7
五島	28	511	5.5	8	134	6.0	4	152	2.6	3	102	2.9	13	123	10.6
えびの	49	725	6.8	12	203	5.9	8	211	3.8	11	145	7.6	18	166	10.8
辺戸岬	13	674	1.9	2	183	1.1	0	150	0.0	4	171	2.3	7	170	4.1
合 計	409	9022	4.5	98	2255	4.3	77	2309	3.3	70	2204	3.2	164	2254	7.3

n: pH4 未満の降水試料数、N: 全降水試料数、n/N: 通年及び各季節における pH4 未満の降水の出現頻度
 季節分類: 春 3~5 月、夏 6~8 月、秋 9~11 月、冬 12~2 月に分類

③ pH 4 未満の降水が観測されたときの気塊の起源

ある日時にある地点に存在する気塊がどこから来たのかを後方流跡線解析で評価することができる。降水に係る気塊の移動経路から関連する汚染物質の発生源を探る。

pH4 未満の降水に係る気塊の移動経路は図 3-1-17 の 3 パターンに分類することができた。



(a) 大陸からの気塊 (b) 火山を通過した気塊 (1) (c) 火山を通過した気塊 (2)

図 3-1-17 各イベントの気塊の移動経路

(流跡線は高度別に緑; 3500m、青; 2500m、赤; 1500mを示している。)

ひとつはアジア大陸からの気塊で、図 3-1-17(a)に pH3.59 の降水が五島で観測されたときの例を示す (平成 18 年 12 月 16 日)。この時の気塊は大陸中央部から東シナ海を渡って五島に到着している。他のふたつは火山を通過した気塊で、図 3-1-17(b)、図 3-1-17(c)はそれぞれ潮岬 (pH3.67、17 年 9 月 27 日)、橈原 (pH3.93、17 年 8 月 2 日) の降水で三宅島、桜島を通過した例である。これらの事例解析と化学組成などの考察から、これらの低い pH の降水は大陸からの越境輸送や火山からの放出に起因する SO₂ の寄与によるものと推定される。

また、平成 19 年 12 月 16 日には以下の 5 地点で pH4 未満の降水が観測され、いずれの

地点でも大陸からの気塊が関わっていると考えられた (図 3-1-18) : 越前岬 (pH3.86)、五島 (pH3.59)、潮岬 (pH3.92)、隠岐 (pH3.87)、対馬 (pH3.83)。

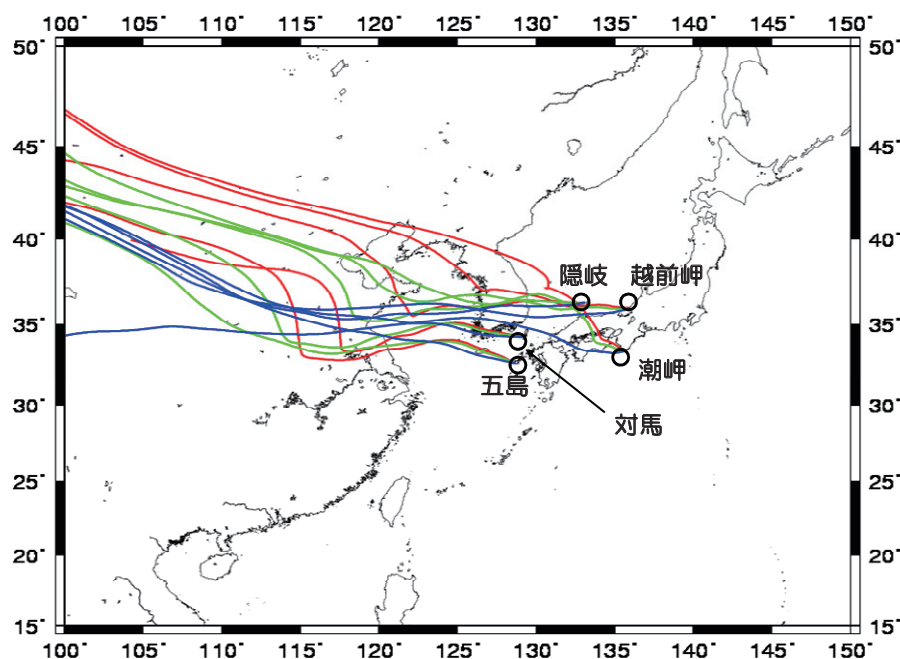


図 3-1-18 全国 5 地点に同じ日に降った pH4 未満の雨と関わる気塊 (流跡線は高度別に緑 ; 3500m、青 ; 2500m、赤 ; 1500mを示している。)

(3) O_3 、 SO_2 等のモニタリング結果を利用した越境汚染の解析

① 粒子状 SO_4^{2-} 濃度と経度との関係

平成 15 年度から 19 年度における粒子状物質中の SO_4^{2-} 濃度 (以下粒子状 SO_4^{2-} 濃度という。) の年平均値の範囲は 15 年度 ($1.60 \mu g m^{-3} \sim 4.78 \mu g m^{-3}$ 、平均 $3.32 \mu g m^{-3}$) (10 地点)、16 年度 ($0.71 \mu g m^{-3} \sim 5.17 \mu g m^{-3}$ 、平均 $3.38 \mu g m^{-3}$) (10 地点)、17 年度 ($1.36 \mu g m^{-3} \sim 6.98 \mu g m^{-3}$ 、平均 $4.73 \mu g m^{-3}$) (10 地点)、18 年度 ($2.38 \mu g m^{-3} \sim 6.60 \mu g m^{-3}$ 、平均 $4.46 \mu g m^{-3}$) (10 地点)、19 年度 ($2.37 \mu g m^{-3} \sim 6.32 \mu g m^{-3}$ 、平均 $4.46 \mu g m^{-3}$) (11 地点) であった (モニタリング地点は遠隔地が主である。)。この濃度レベルは、日本の都市域等における粒子状 SO_4^{2-} 濃度とほぼ同レベル ($2.26 \mu g m^{-3} \sim 6.54 \mu g m^{-3}$ 、平均 $4.45 \mu g m^{-3}$) (32 地点) (15~17 年度の 3 年間平均) であり³⁾、日本における粒子状 SO_4^{2-} 濃度は、地域における汚染に加え、より広い範囲での汚染を反映していることを示唆するものであった。

図 3-1-19 に観測地点の経度と各地点における 5 年間平均及び年平均の最高・最低粒子状 SO_4^{2-} 濃度との関係を示す。粒子状 SO_4^{2-} 濃度と経度との間には一定の関係が観測され、アジア大陸に近い観測地点ほど粒子状 SO_4^{2-} 濃度は高濃度となることがわかる。主に都市域に位置する観測地点 (32 地点) においても、図 3-1-19 と同様の粒子状 SO_4^{2-} 濃度と経度との関係があることが報告³⁾されている (図 3-1-20)。さらに、図 3-1-19 にも示したように、日本

における粒子状 SO_4^{2-} の濃度レベルは韓国の EANET モニタリング地点における粒子状 SO_4^{2-} の濃度レベルよりも概ね低いことを示している。

これらのことから、日本における粒子状 SO_4^{2-} 濃度の決定には、地域における汚染に加え、日本全域を含む、さらにはより広い範囲での粒子状 SO_4^{2-} の生成、移流・拡散、沈着を含めた大気現象が深く関与していることが強く示唆された。

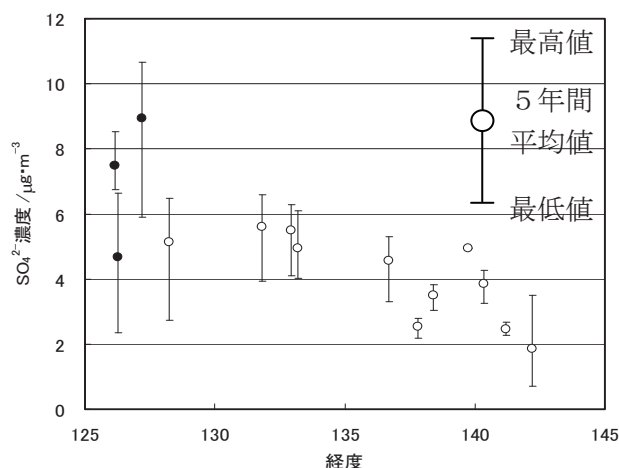


図 3-1-19 主に遠隔地域における観測地点の経度と粒子状 SO_4^{2-} 濃度（平成 15～19 年度）との関係（黒丸は韓国の EANET モニタリング地点を表す。）

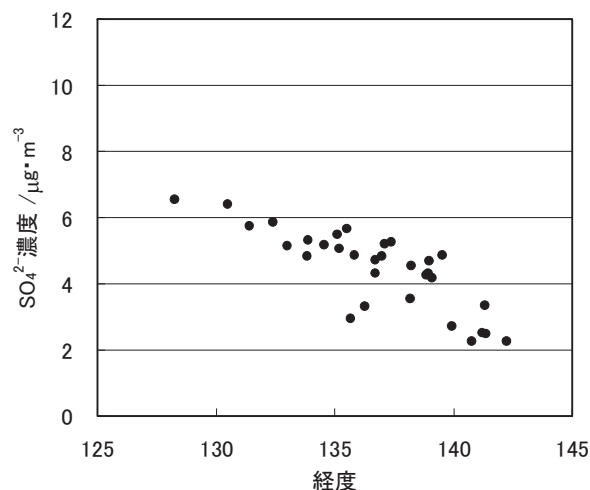


図 3-1-20 主に都市域に位置する観測地点における経度と粒子状 SO_4^{2-} 濃度（平成 15～17 年度の 3 年間平均値）との関係³⁾

② 沖縄辺戸岬における湿性沈着中及び粒子状物質中の nss-SO_4^{2-} の挙動について

沖縄県の辺戸岬は、東シナ海上のバックグラウンド地点として位置づけられ、越境大気汚染の影響を把握するのに適した地点である。国設辺戸岬酸性雨測定所及び隣接する国立環境研究所の辺戸岬大気・エアロゾル観測ステーションにおける観測結果から越境大気汚染について解析した。

冬季（12～2月）及び夏季（6～8月）において日単位で捕集された Wet-only 試料（5mm day⁻¹ 以上）について、流跡線解析プログラム（NIES-CGER METEX）を用いた後方流跡線の解析結果から、輸送経路を冬季は大陸側・その他、夏季は東南アジア側・太平洋側に分類し、各輸送経路の nss-SO₄²⁻沈着量を求めた（図 3-1-21）。なお、夏季は台風の影響を受けた試料を除いて集計した。

冬季では、後述の北日本地域のトレンドと同様に、大陸側からの nss-SO₄²⁻沈着量が平成 15 年度頃から増加傾向にあった。一方、夏季では、東南アジア側からの nss-SO₄²⁻沈着量が増加傾向にあり、nss-SO₄²⁻濃度は低いが降水量が多いため、沈着量は比較的多く、冬季の沈着量に匹敵する年もあった。以上のことから、日本本土に比較して低緯度で東南アジア地域に近い沖縄では、中国大陸のみならず、東南アジアからの越境大気汚染の影響も受けている可能性が示唆された⁴⁾。

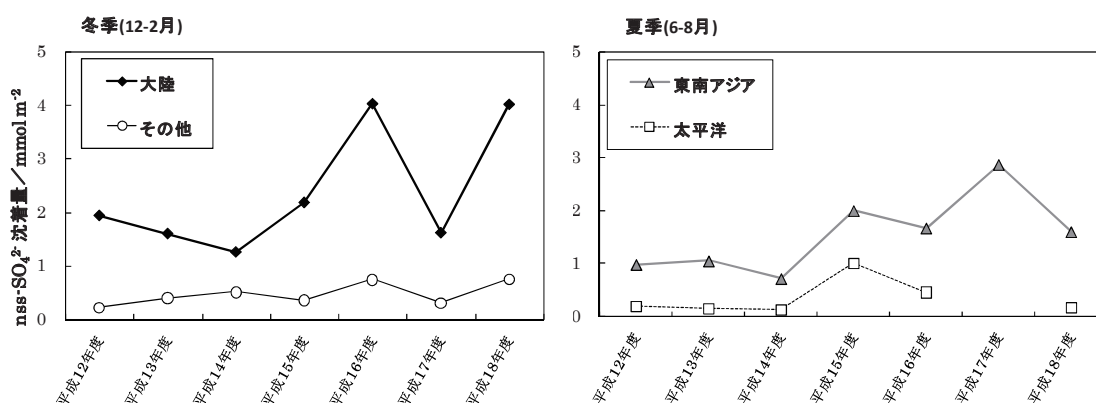


図 3-1-21 後方流跡線を用いて分類した移流別の nss-SO₄²⁻沈着量の季節別経年変動

また、辺戸岬大気・エアロゾル観測ステーションでは、近年中国などで排出量が増加している SO₂ 及びエアロゾル中の nss-SO₄²⁻（以下 nss-SO₄²⁻(p) という。）に注目し、濃度を 1 時間ごとに測定している。

図 3-1-22 に、平成 17 年 3 月 12 日から 23 日における SO₂、O₃ 及び nss-SO₄²⁻(p) の経時変化を示す。3 月 17 日の夜から 3 月 18 日にかけて、辺戸岬酸性雨測定所の自動測定機では SO₂ と O₃ 濃度が増加した。SO₂ は、他の期間では 1ppbv 以下と非常に低いが、3 月 17 日から 18 日にかけては約 5ppbv 程度まで上昇した。また、O₃ も前日は 40ppbv 程度だったのが、3 月 18 日には 80ppbv 近くまで上昇した。さらに、これと連動して nss-SO₄²⁻(p) 濃度が急激に上昇して 20µg m⁻³ を超えた。天気図をみると、3 月 18 日午前 9 時の段階で、前線が沖縄付近を通過して太平洋に移動しており、そのあと、高気圧が北京の南方に移っている。このとき等圧線が南北に走っており、気塊が大陸方面から移流しやすい状況になっている。さらに、NOAA HYSPLIT4 を使って後方流跡線を計算すると、前線通過後の沖縄地方には上海から山東半島にかけての中国の東海岸沿岸地域から気塊が移流されてきていることがわかる。これらのことより、3 月 18 日に観測された SO₂、O₃ 及び nss-SO₄²⁻(p) の濃度上昇は中国起源の気塊によってもたらされたと推測される⁵⁾。同様の現象がこのほかにも数回みられ、いずれも中国の上海から山東半島にかけての沿岸部から気塊が到達したときに nss-SO₄²⁻(p) 濃度が高くなっていた。

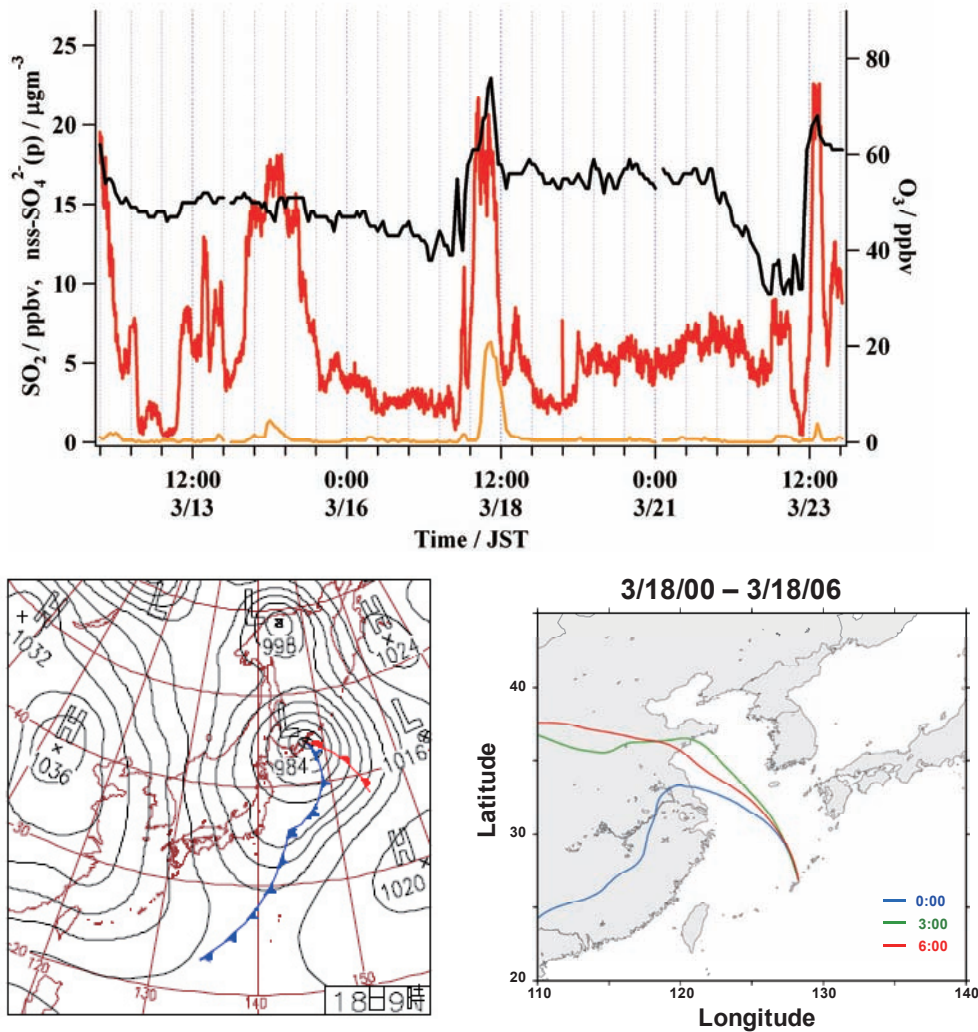


図 3-1-22 上段：辺戸岬酸性雨測定所及び大気・エアロゾル観測ステーションで測定した、SO₂ (黄土色)、O₃ (黒色) 及び nss-SO₄²⁻(p) (赤色) の濃度変動。下段左：3月18日午前9時の天気図。下段右：後方流跡線解析計算結果 (3月18日午前0時、3時、6時を起点とした計算結果。)

③ 北日本における湿性沈着成分の挙動について

北海道など北日本地域は、他の地域と比較して降水成分濃度が低めであり、降水量も少ないことから湿性沈着量はあまり多くはない⁶⁾が、その沈着量に対する中国の発生源の寄与率は全国でも大きいこと、また特に冬季はその影響が顕著となることが報告されている^{7,8)}ことから、越境汚染の影響をみるため、北日本の湿性沈着成分の挙動について検討を行った。

主な解析対象は、越境大気汚染の影響を受けやすい日本海側の利尻及び札幌局のデータであり、平成12年の三宅島雄山の噴火の影響を避けるため、13年度以降について検討を行った。降水量、nss-SO₄²⁻、NO₃⁻濃度及びpHの経年変動を図3-1-23に示す。13、14、15年度はいずれもpHはやや上昇傾向にあったが、17年度以降にpHが大きく低下し、同時にnss-SO₄²⁻及びNO₃⁻濃度は増加傾向を示し、nss-SO₄²⁻、NO₃⁻及びH⁺沈着量も同様に増加した(これは前述の

辺戸岬局における冬季の $\text{nss}\text{-SO}_4^{2-}$ 沈着量の経年変動と同様)。これらの湿性沈着の近年の動向は、降水起源を特定できた低 pH (4.2 以下) 試料について後方流跡線解析を行った結果、その起源が大陸に遡る事例が多くみられた⁹⁾ ことなどから、越境大気汚染の影響による可能性が示唆された。

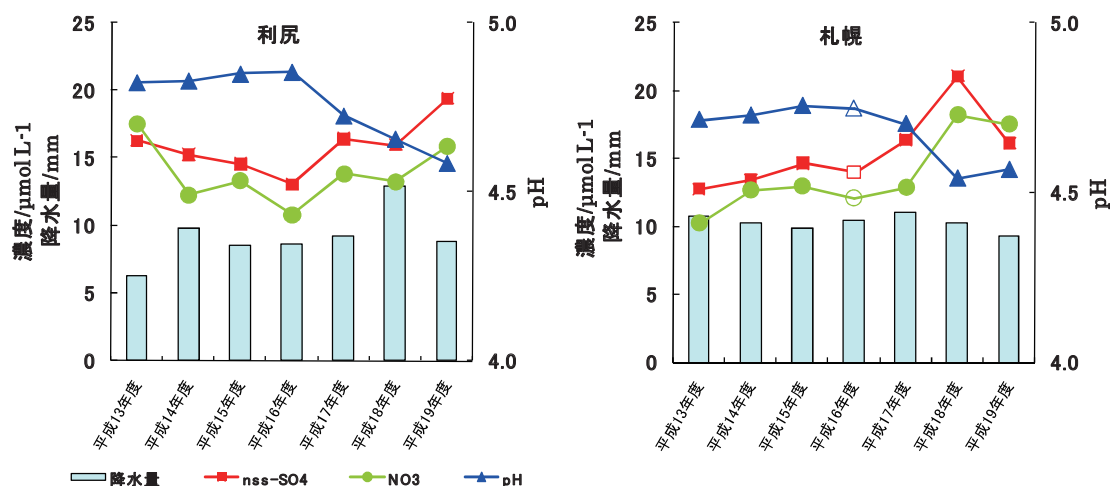


図 3-1-23 北海道における降水量、 $\text{nss}\text{-SO}_4^{2-}$ 、 NO_3 濃度及び pH の経年変動
白抜きは年間値の有効判定基準を満たしていないため、参考値である。

④ 黄砂及び O_3 の越境大気汚染状況

平成 19 年 5 月 26 日及び 27 日には東北から沖縄にかけて 50 以上の気象官署で黄砂が観測され、27 日には西日本の 7 県で光化学オキシダント注意報が発令されており、この期間の大気汚染状況について解析した。解析の対象は竜飛岬、佐渡関岬、伊自良湖、隠岐、橈原及び小笠原である。

5 月 25 日から 30 日にかけての PM_{10} 、 O_3 及び SO_2 濃度の推移を図 3-1-24 に示す。

隠岐、橈原、伊自良湖及び佐渡関岬では、26 日から 28 日にかけて PM_{10} 、 O_3 及び SO_2 がほぼ連動した時間変化をし、橈原及び伊自良湖では PM_{10} 及び SO_2 が二山型の濃度変動を示した。4 地点ともに期間中の PM_{10} 最高濃度が約 $300\mu\text{g m}^{-3}$ であり、遠隔地の隠岐及び橈原では期間中の O_3 最高濃度が 100ppb 以上であった。隠岐・橈原、伊自良湖、佐渡関岬の順に西から PM_{10} が最高濃度になっており、26 日から 27 日にかけて地上で卓越していた西寄りの風の影響を受けているものと考えられる。竜飛岬では 26 日に PM_{10} と O_3 の連動した上昇が観測され、 PM_{10} の最高濃度は約 $70\mu\text{g m}^{-3}$ であった。小笠原では 28 日から 30 日にかけて PM_{10} 及び SO_2 がほぼ連動した時間変化を示しており、期間中の PM_{10} 最高濃度は $200\mu\text{g m}^{-3}$ を超え、橈原や伊自良湖で観測された二山型が 2 日程度遅れて観測されている。 O_3 については、 SO_2 が検出され始めて PM_{10} が高濃度になっている間、濃度が上昇し 50ppb を横ばいで推移した。