# 山岳を観測タワーとした大気中水銀の長距離越境輸送係わる計測・動態・制御に関する研究

B―1008　研究課題代表者

永淵　修

滋賀県立大学環境科学部

環境省研究総合推進費　研究成果報告会

2013年3月15日　@砂防会館

1

## 研　究　背　景

- 2001年　UNEP　水銀を残留性有害物質に追加
- 2002年　UNEP　Mercury Global Assessmentを公表
  使用削減、代替促進、環境中濃度把握、排出インベントリーについて情報提供を要請
- 2005年　UNEP　水銀に関するDecision 23/9IVを採択
  各国政府機関、NGO等関連組織に対して環境への水銀放出量と健康リスクの削減を求めた。
- 2006年　Global Partnership（日本を含む6ヶ国が参加）
  水銀の大気輸送に関する研究の促進
- 2007年　UNEP世界の水銀使用量を75%削減するという国際条約作りに着手
- 2009年2月　UNEP水銀の排出を国際協力で削減する条約の制定を2013年までに目指す（2013年秋　水俣条約制定予定）

水銀の環境中への拡散を抑制する施策が早急に求められている。

2

## 研 究 目 的

・東アジア圏における水銀の動態・影響評価及び制御
詳細な観測データの取得
・自由対流圏と大気境界層における水銀輸送及び起源解析
・水銀沈着量の把握
・水銀の拡散・移流・沈着モデルの開発

## 研究実施計画

1. 自由対流圏及び大気境界層における水銀及び有害金属（Pb, Cd 等）の長距離越境輸送の解明
2. 水銀用パッシブサンプラーの開発と立山連峰における水銀及び同期した物質の標高別沈着量評価及び排出量インベントリーに関する情報収集
3. 大気から湖沼流域への水銀輸送と沈着に関する機構解明と沈着量算定
4. 水銀のマルチメディアモデルの開発及び国設局の水銀等有害金属類データの解析

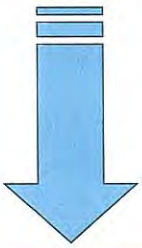
3

## 研 究 の 緊 急 性

東アジア　石炭燃焼による水銀排出量→全世界の30%

地球上を移流する水銀→50%はアジア起源

日本における水銀モニタリング体制の整備は立ち遅れており、早急な動態解析、影響評価を実施する必要がある。



水銀及び同期する大気汚染物質

水銀等の発生量

移流及び沈着量の観測

水銀拡散・抑制に関する政策に貢献

4

# 山岳における観測技術開発

アクティブサンプラー


電源部

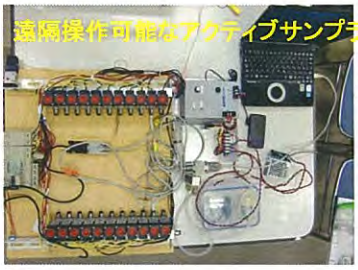
パッシブサンプラー

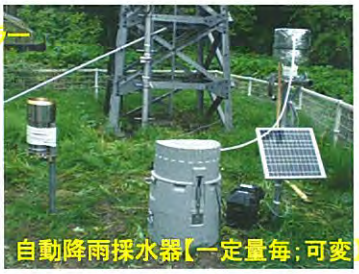
一般ガスパッシブサンプラー

カスケードインパクター

簡易型温湿度計

四段フィルター

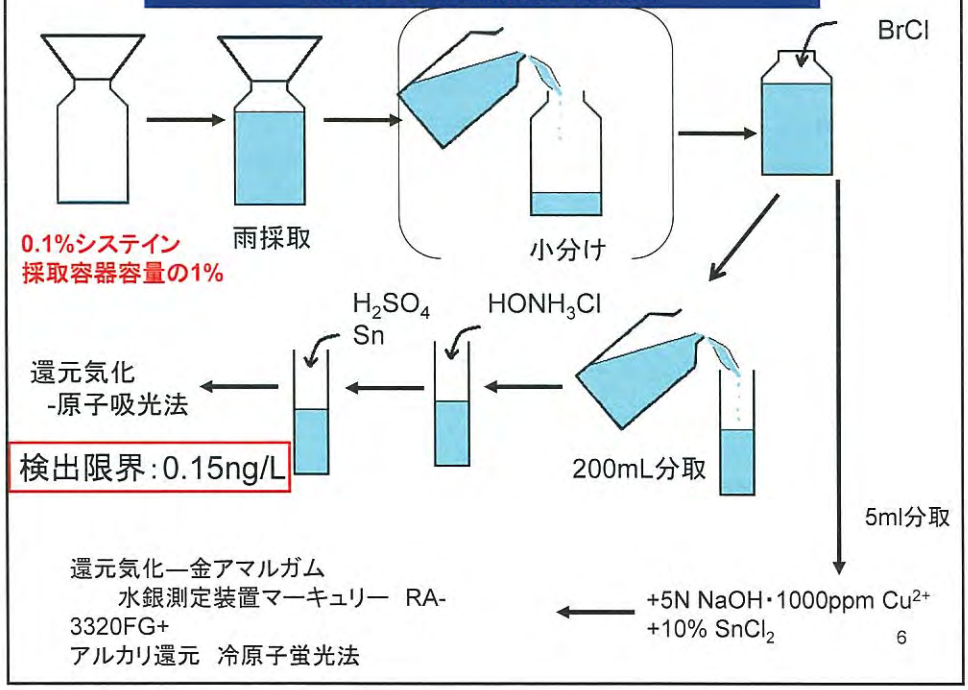

遠隔操作可能なアクティブサンプラー


自動降雨採水器【一定量毎；可変】

データ通信可能な気象計

5

# 山岳における測定技術開発




6

# 調 査 地 点

アクティブサンプラー、パッシブサンプラーを用いた標高別水銀濃度観測

富士山

3776m アクティブサンプラー

大陸からの影響？

富士吉田 下山道

3200m アクティブサンプラー

2900m

Hg(0) の起源は？

富士吉田 登山道

2390m アクティブサンプラー

スバルライン終点

2230m

2055m

1440m アクティブサンプラー

855m 浅間大社

地上発生源の影響？

I-0 260m アクティブサンプラー

I-1 434m

I-2 606m

I-3 747m アクティブサンプラー

I-4 836m I-5 894m

I-6 1029m

I-7 1160m

I-8 1260m

I-9 1348m アクティブサンプラー

伊吹山

立山

室堂平 (2450m) アクティブサンプラー

天狗平(2310m)

天狗の鼻(2115m)

弥陀ヶ原 (1930m)

松尾峠(1846m)

弘法(1614m)

上ノ子平(1440m)

滝見台 (1275m)

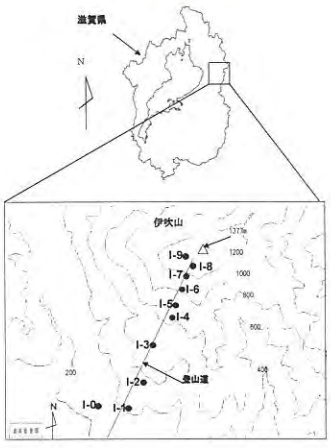
美女平 (977m) アクティブサンプラー

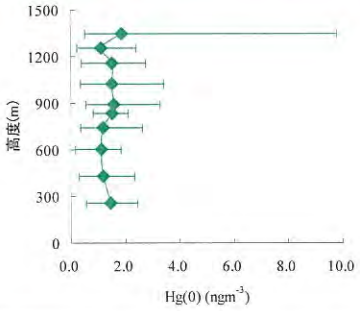
山岳部
- 乗鞍
- ルーリン
- 屋久島

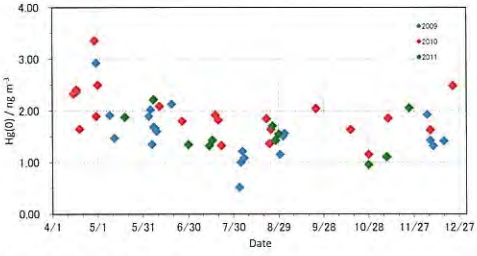
島嶼部
- 対馬
- 屋久島
- 沖縄

湖沼
- 阿寒湖沼
- 摩周湖
- 琵琶湖
- 伊自良湖

# 山岳における大気中水銀の観測 伊吹山

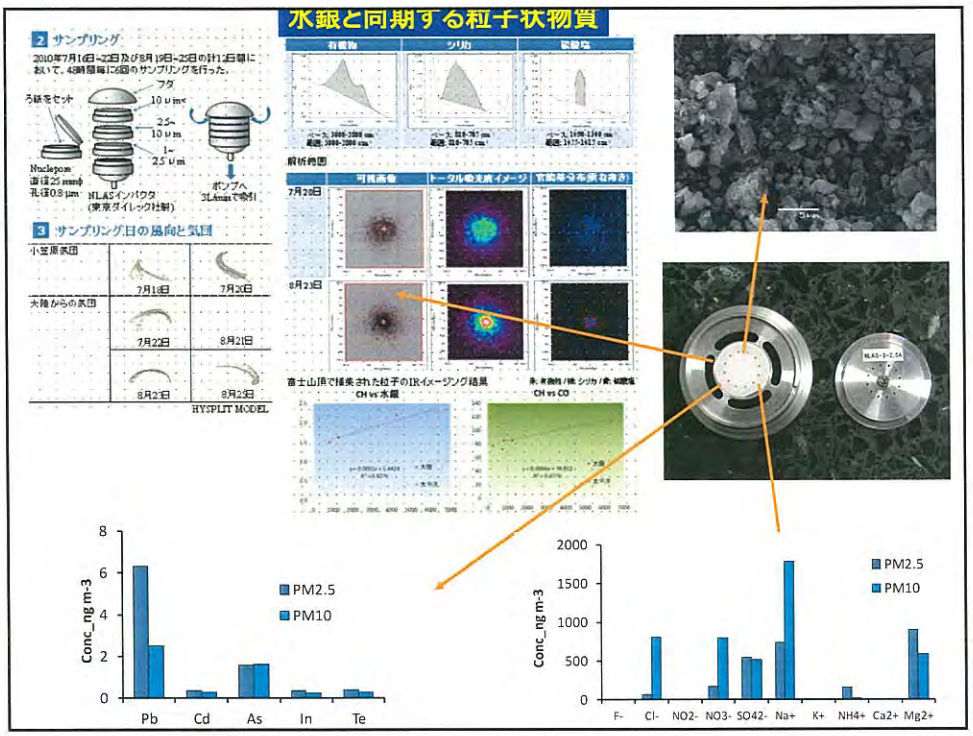


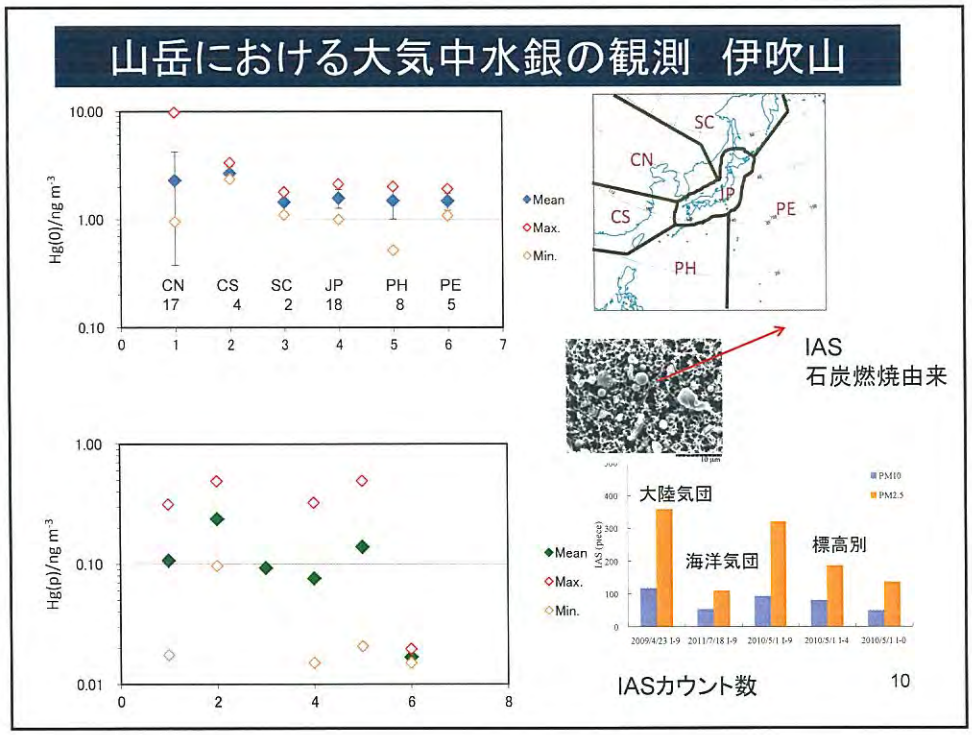



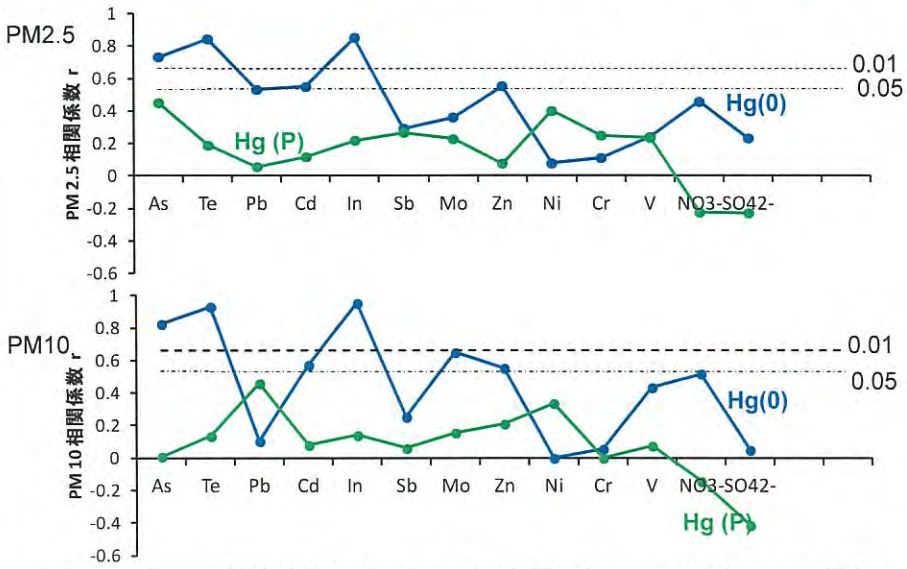

水銀の長距離輸送を理解する上で重要な観測結果

8


水銀と同期する粒子状物質
2 サンプリング
3 サンプリング日の風向と気団
小笠原気団
大陸からの気団
HYSPLIT MODEL
7月20日
8月2日
Conc_ng m-3
PM2.5
PM10
Pb
Cd
As
In
Te
F-
Cl-
NO2-
NO3-
SO42-
Na+
K+
NH4+
Ca2+
Mg2+


山岳における大気中水銀の観測 伊吹山
Hg(0)/ng m-3
Hg(p)/ng m-3
CN 17
CS 4
SC 2
JP 18
PH 8
PE 5
Mean
Max.
Min.
SC
CN
CS
JP
PE
PH
IAS
石炭燃焼由来
大陸気団
海洋気団
標高別
IASカウント数
10

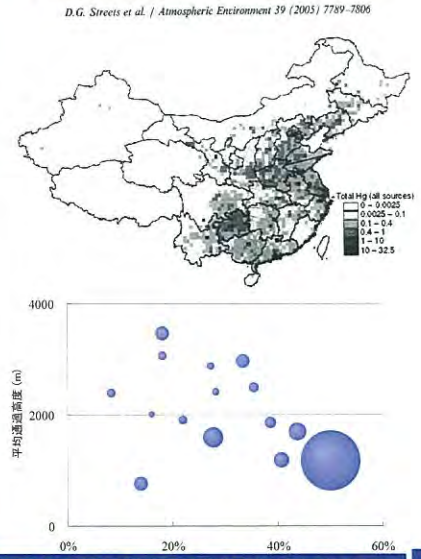
## 山岳における大気中水銀と同期する元素　伊吹山




Hg(0)とAs,Te,Inの相関が強い、Pb,Cd,Zn間の相関、強い→Hg(0)とPb,Cd,Zn起源異なる

11

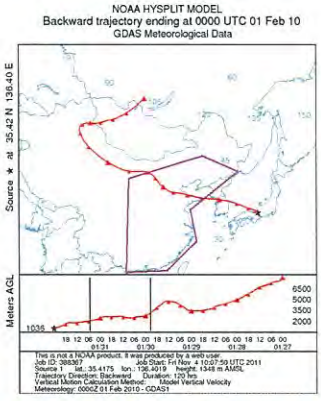
## 山岳における大気中水銀の観測　伊吹山




総滞留時間に対する水銀高排出域での滞留時間の割合

水銀高排出域の設定

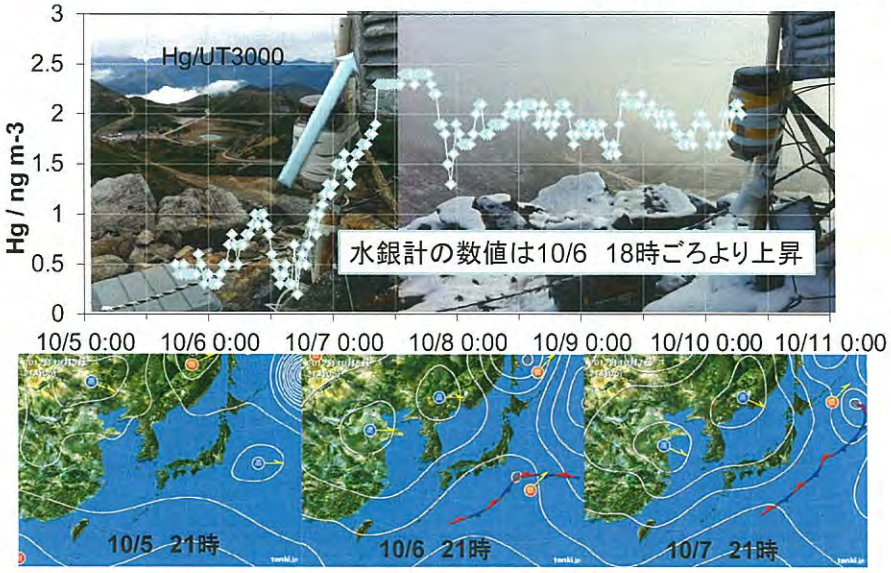
水銀高排出域における通過高度および滞留時間を算出




水銀の長距離輸送を理解する上で重要な観測結果

自由大気中での水銀濃度の急上昇を初めて観測

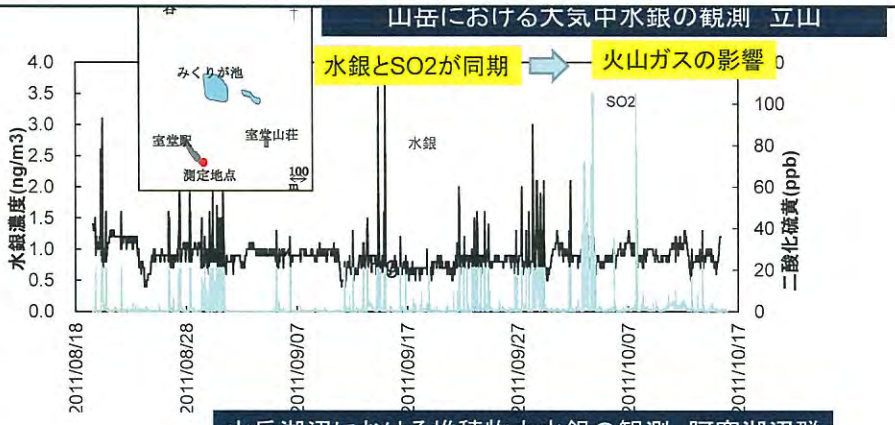
Mt. Norikura 2012




10/6 夕方ごろ寒気到来 乗鞍初雪

13

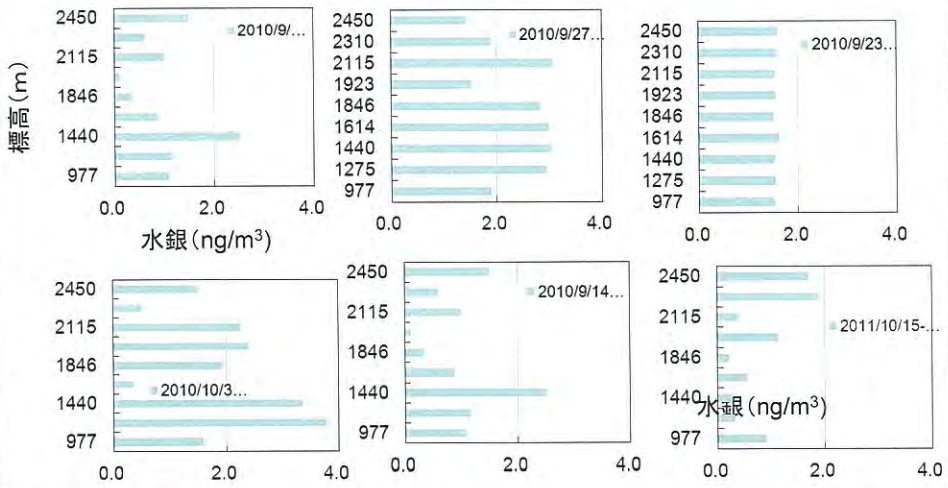
山岳における大気中水銀の観測 立山




山岳湖沼における堆積物中水銀の観測 阿寒湖沼群

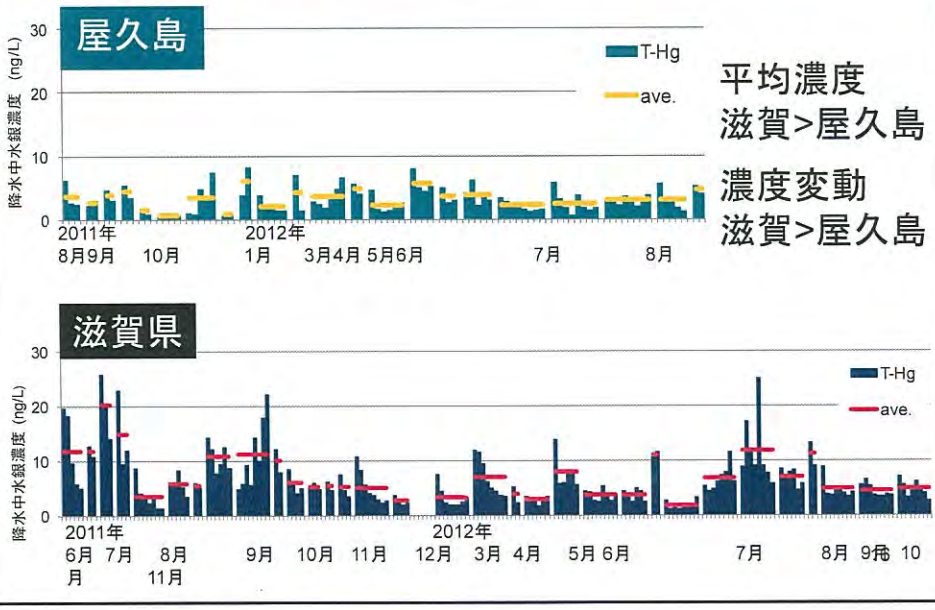
14

## 1.水銀パッシブサンプラーの開発　～立山における水銀観測～

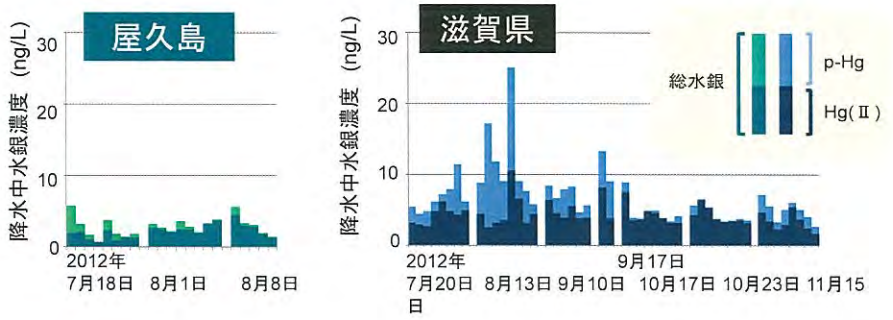



標高別水銀濃度観測が可能になり、山岳部での大気中水銀の動態が容易に明らかになる。この手法で、インドネシア、モンゴルの小規模金採掘現場の大気中水銀濃度も明らかにしている。これは2010年UNEPの水銀インベントリーに小規模金鉱山の重要性が述べられていることからも、この手法の開発は意義がある。

## 水銀沈着量評価　総水銀濃度変動



# 形態別水銀の測定結果



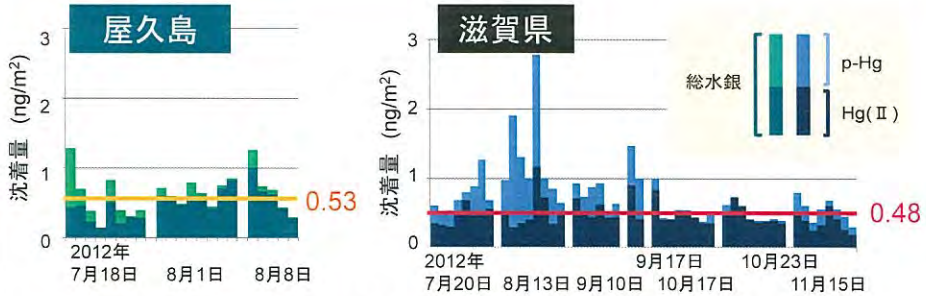

降水中水銀濃度の大部分はHg(Ⅱ)

急激な濃度上昇は、p-Hgによりもたらされる

濃度変動への影響　p-Hg > Hg(Ⅱ)

17

# 形態別水銀沈着量




平均Hg(Ⅱ)沈着量に大きな違いはない

⇩

常にある程度の量のHg(Ⅱ)が降水に含まれる

夏場の高濃度

(バックグラウンド)

地域的な汚染、降雨ごとの特徴によって濃度が変動

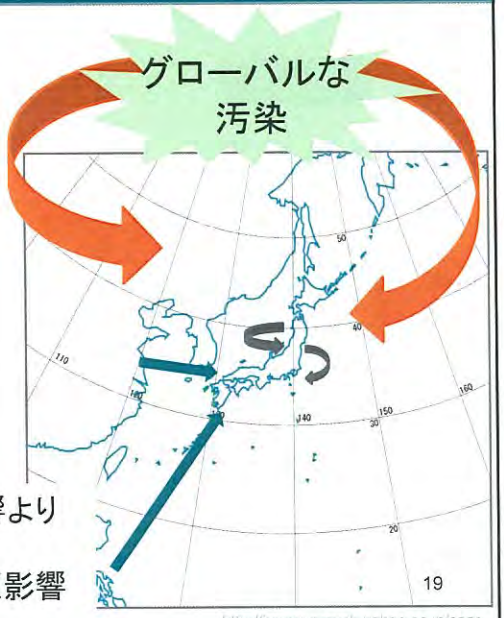
18

# 降水に対する汚染の影響

＜平均降水中水銀濃度＞
26.6 ng/L in 神戸
(小林、渡辺, 1984)
16.6 ng/L in 狛江(丸本,2010)
4.10 ng/L in 松江市 (電中研)
9.80～20.0ng/L in アメリカ
(Mason et al. ,1997)

3.55 ng/L in 屋久島
6.92 ng/L in 滋賀県
9.82ng/L in 富山市
6.86ng/L in 伊自良湖

水銀排出域からの直接的な影響よりも、
大気に1度放出されたものが強く影響している可能性




http://image.search.yahoo.co.jp/sear

19

## 4.1.「有害大気汚染物質モニタリング調査」による全国の大気中水銀測定データの解析

サブテーマ4

- 測定地点が偏在→**客観解析法**により均一に配置した格子点の濃度を推定
- **中国大陸からの越境輸送**の影響←黄砂観測時の測定データから解析

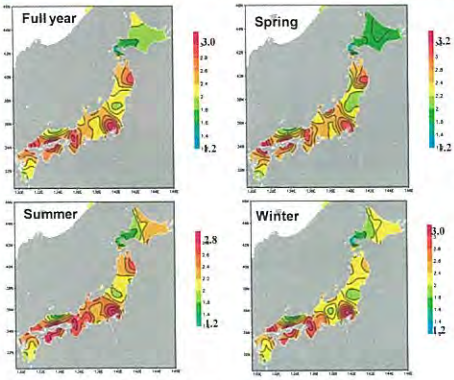



**図1.** 客観解析による大気中水銀濃度の全国分布(2001年度~2009年度平均値)

➢ 首都圏、近畿圏、瀬戸内・九州北部で高濃度。

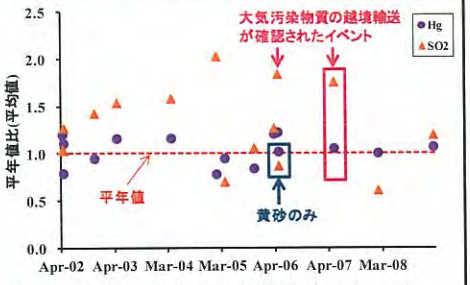



**図2.** 国内で観測された大規模黄砂イベント時に測定された大気中水銀濃度及び二酸化硫黄($SO_2$)濃度の平年値に対する比率(2002 ~ 2008年度)

➢ 水銀の越境輸送が示唆されるケースも見られたが、一定の傾向は認められなかった。

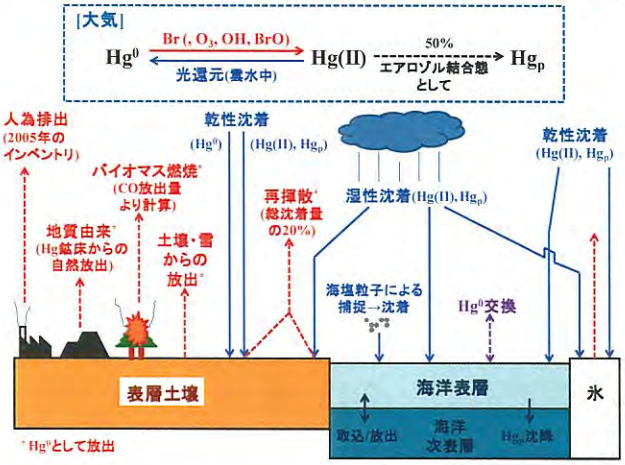
20

## 4.2. 水銀のマルチメディアモデルの開発(1/4)

サブテーマ4

全球大気化学輸送モデルGEOS-Chemの大気‐海洋‐陸域結合型水銀モデル(**GEOS-Chem-Hg**)を利用。
- モデル推計精度向上のための、**素過程のパラメタリゼーションの検討**
- 人為排出量の予測シナリオに基づく**将来予測**

＜GEOS-Chem-Hg (v9-01-02)で扱う水銀の輸送過程及び大気化学反応＞




＊モデルの水平解像度: 2°（緯度方向)×2.5°（経度方向)

＊2006～2009年の気象データを用いてモデルシミュレーション実行→ 2007～2009年の計算結果を解析に使用。(以降の結果は、特に指定のない限りこの3年間の平均値。)

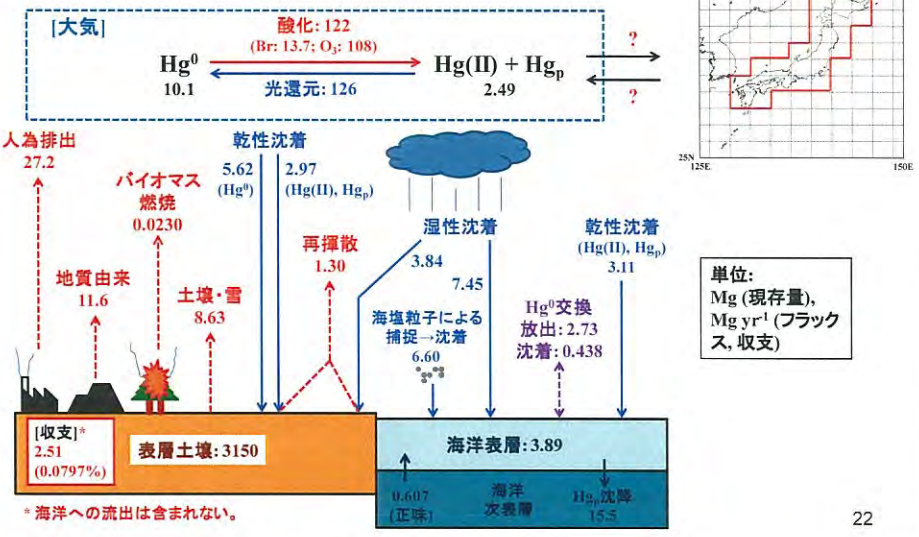
21

## 4.2. 水銀のマルチメディアモデルの開発(2/4)

サブテーマ4

**モデルによる、日本*における水銀収支の推定**

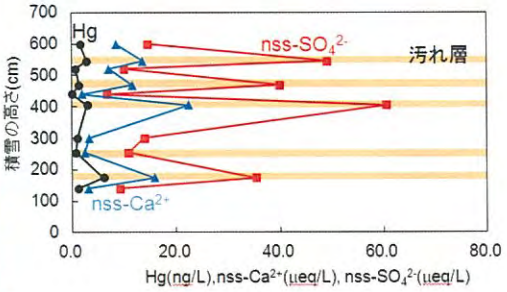
(* 右上図の赤線で囲まれた領域)




単位:
Mg (現存量),
Mg yr$^{-1}$ (フラックス, 収支)

22

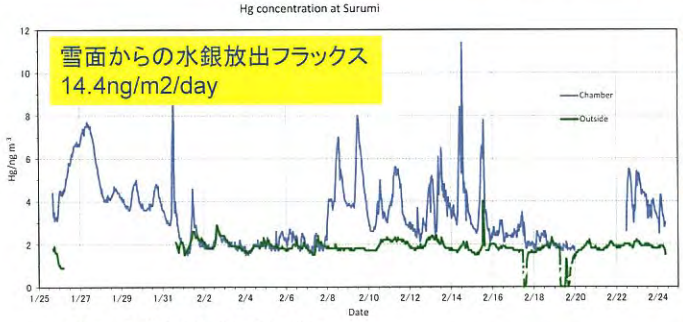
## 2011/4/16-18に室堂の積雪断面観測を実施



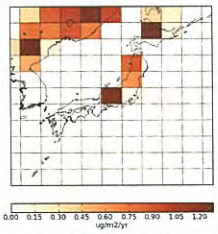

・水銀濃度
・イオン成分

23

## モデルへの組み込み－1




雪からの水銀放出フラックス



24

日本周辺における、雪からの水銀の年間総放出フラックスのモデル推計値(2007～2009年平

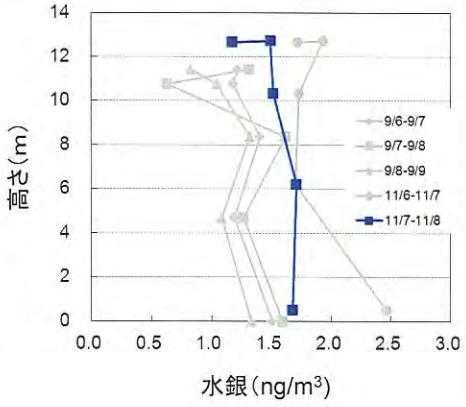
## 6.屋久島タワーでの水銀測定

11/7-11/8の濃度勾配
0.042ng/m$^3$/m

乱流拡散係数を
0.09cm$^2$/secとすると

⇩

地面から放出する
Hgフラックス
0.03ng/m$^2$/day



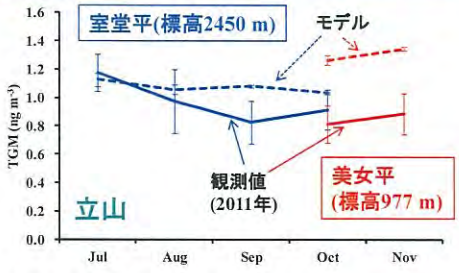

水銀の森林への吸着、放出はほぼ同じ程度だった。樹冠上部の大気中水銀濃度に大きく変化を与えるものではないことが分かった。

25

## 4.2. 水銀のマルチメディアモデルの開発(3/4)

サブテーマ4

**本研究で得られた観測値とモデル計算値との比較**



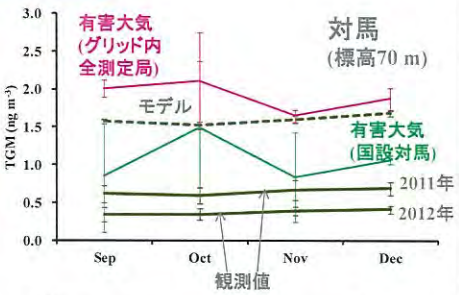
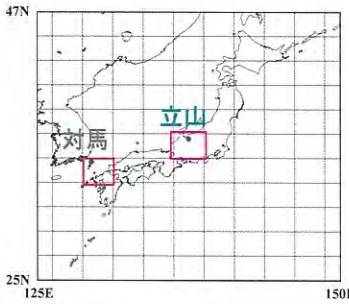




**図3.** 立山(室堂平, 美女平)及び対馬における、大気中全ガス状水銀(TGM)濃度の観測値(実線)とモデル計算値(点線)の各月平均値。

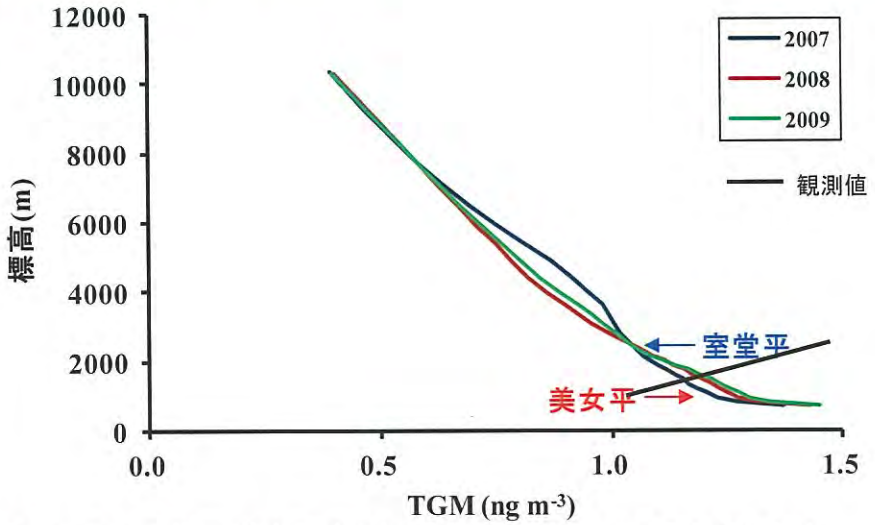



- モデル計算値の推計精度は、対象地点の標高が低いほど、当該グリッド内に存在する、対象地点から遠く離れた発生源等の影響をより強く受けるため低下する。
  ⇒モデルの空間分解能を上げる必要がある。

26

## 大気中水銀濃度の鉛直分布

サブテーマ4




図A1. 立山(室堂平, 美女平)を含むグリッドにおける、10月の大気中全ガス状水銀(TGM)濃度のモデル計算値の鉛直分布(2007 ~ 2009年)

27

## 4.2. 水銀のマルチメディアモデルの開発(4/4)

サブテーマ4

将来予測

**<水銀人為排出量の予測シナリオ>** (AMAP/UNEP (2008)の予測シナリオをもとに作成)
2005年をベース年、2050年をターゲット年とする。

- **SQ**: 2050年まで、水銀の人為排出が現在の伸び率(全球平均で、(2005年の排出量の1.4%)/年)を維持したまま続けられる。
- **EXEC**: 2010年まで**SQ**と同じ→ 2050年までに、現在ヨーロッパや北アメリカで一般的に用いられている水銀排出抑制技術が世界全体に普及((2010年の-1.2%)/年の速度(一定)で排出量減少)。

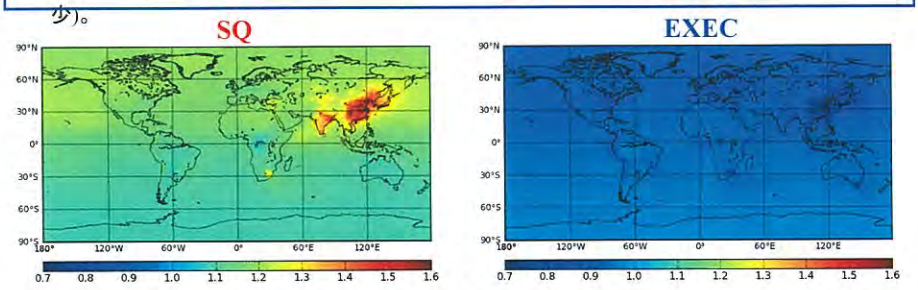



図4. 2050年における水銀の年間総沈着量のモデル予測値の、2005年現在のモデル計算値に対する比率

➢ **東アジア**(現在排出量が最大)で、排出量の増減の影響が最も強く表れる。

28

## 成果の概要

- 水銀パッシブサンプラーによる大気中水銀の空間分布が観測可能、これにより小規模金鉱山等水銀汚染の激しい発展途上国への技術移転可能
- 山岳での大気中水銀の観測結果から越境汚染による水銀は石炭燃焼の可能性が示唆、さらに、わが国のような火山国では近傍に火山があると大気中水銀濃度に影響
- 降水中の水銀はII価の水銀がベース、濃度変動は粒子状水銀が寄与
- 大気中水銀は冬季、春季に高く、降雨中水銀は夏季に高い

29

## 成果の概要

- 使用したマルチメディアモデルの観測データとの整合性は高標高は精度が高いが、低標高はローカルな汚染の影響で高くなる。水平分解能の向上、素過程を観測結果から
- 環境中水銀濃度の制御のため二つのシナリオで将来予測を行った。
- 複雑なシナリオにも対応可能、精度向上が期待

30

# 研究業績(査読付論文)


- 木下弾, 永淵修, 川上智規:伊吹山における大気中水銀及び同期するガス状成分の鉛直分布とその評価, 環境工学研究論文集, 47巻, 553-560, 2010.
- Watanabe, K., Honoki, H., Naruse, I., Endo, F., Murakami, T., Yoshida, Y.: Measurements of aerosol number concentrations, sulfate aerosols and rain water chemistry at Bijodaira, western slope of Mt. Tateyama, Japan, Journal of Ecotechnology Research, Vol.15, No.2, p.49-52, 2010.
- 渡辺幸一, 江田奈希紗, 青木美貴子:ヘリコプターを利用した富山県上空の微量気体成分の観測, 天気, 57巻2号, 77-82, 2010.
- Watanabe, K., Honoki, H., Iwai, A., Tomatsu, A., Noritake, K., Miyashita, N., Yamada, K., Yamada, H., Kawamura, H., Aoki, K.: Chemical characteristics of fog water at Mt. Tateyama, near the coast of the Japan Sea in central Japan, Water, Air, and Soil Pollution, Vol.211, No.1-4, 379-393, doi: 10.1007/s11270-009-0307-2, 2010.
- 久米 篤, 渡辺幸一, 永淵 修, 朴木英治:広域大気汚染の現状と森林生態系への影響—屋久島と立山の事例—, 日本生態学会誌, 61巻, 97-106, 2011.(謝辞入)
- Watanabe, K., Honoki, H., Endo, F., Murakami, T., Yoshida, Y., Iida, H., Uehara, Y., Kume, A.: Number concentration and size distribution of ultrafine particles on the roadside of the Tateyama-Kurobe Alpine Route, Japan, Journal of Environmental Science and Health, Part A, Vol. 46, No. 9, 921-930, 2011.(謝辞入)
- Watanabe, K., Saito, Y., Tamura, S., Sakai, Y., Eda, N., Aoki, M., Kawabuchi, M., Yamada, H., Iwai, A., Kawada, K.: Chemical characteristics of the snow pits at Murododaira, Mt. Tateyama, Japan, Annals of Glaciology, Vol. 52, No.58, 102-110, 2011.
- 岩間真治, 渡辺幸一, 上原佳敏, 西元大樹, 小森 静, 齋藤由紀子, 江田奈希紗, 善光英希, 島田 亙, 青木一真, 川田邦夫:立山・室堂平の積雪中のイオン成分, ホルムアルデヒドおよび過酸化水素濃度, 雪氷, 73巻5号, 295-305, 2011.(謝辞入)
- Watanabe, K., Honoki, H., Iwama, S., Iwatake, K., Mori, S., Nishimoto, D., Komori, S., Saito, Y., Yamada, H., Uehara, Y.: Chemical composition of fog water at Mt. Tateyama near the coast of the Japan Sea in central Japan, ERDKUNDE, Vol. 65, No.3, 233-245, 2011.(謝辞入)
- 土井崇史, 永淵修, 横田久里子, 吉村和久, 阿久根卓, 山中寿朗, 宮部俊輔:硫酸イオンの現場捕集濃縮法を用いた屋久島の渓流河川における硫黄同位体比の測定, 陸水学雑誌, 72巻, 135-144, 2011.(謝辞入)


# 研究業績(査読付論文)


- 芹川裕加, 川上智規, Basir-Cyio, M., Nur, I., Rosana, E., 井上隆信:インドネシア中央スラウェシ州Palu市における金精錬所からの大気への水銀の放出と拡散, 環境科学会誌, 24巻4号, 269-274,2011.(謝辞入)
- 芹川裕加, 川上 智規, 渡辺 幸一:山岳地における降水中水銀の測定法と水銀と同期するカルシウムや硫酸の長距離輸送, 土木学会論文集G(環境), 67巻7号, Ⅲ735-Ⅲ740, 2011.(謝辞入)
- Basir-Cyio, M., Hasanah, U., Nur, I., Serikawa Y.: Gold Mining Activities and Its Impacts on Land Degradation in Central Sulawesi Indonesia, Journal of Ecotechnology Research, 16巻3-4号, 79-83, 2012.(謝辞入)
- 伊勢崎幸洋, 永淵修, 阿久根卓, 横田久里子, 吉村和久:低アルカリ度測定法の検討—屋久島の低レベルアルカリ度渓流河川への適用—, Journal of Ecotechnology Research, 16巻3-4号, 109-112, 2012.(謝辞入)
- Watanabe, K., Nishimoto, D., Ishita, S., Eda, N., Uehara, Y., Takahashi, G., Kunori, N., Kawakami, T., Shimada, W., Aoki, K., Kawada, K.: Formaldehyde and hydrogen peroxide concentrations in the snow cover at Murododaira, Mt. Tateyama, Japan, Bulletin of Glaciological Research, Vol.30, 33-40, 2012.(謝辞入)
- 三宅隆之, 永淵修, 手塚賢至, 横田久里子, 金谷整一:屋久島における地表オゾン濃度とその変動要因, 大気環境学会誌, 47巻6号, 252-260, 2012.(謝辞入)
- 三宅隆之, 永淵修, 金谷整一, 横田久里子, 手塚賢至, 橋本尚己, 木下弾, 伊勢崎幸洋:屋久島および霧島における無機イオン成分の針葉への乾性沈着, 大気環境学会誌, 48巻2号, 92-100, 2013.(謝辞入)
- Kawakami, T., Serikawa, Y. , Inoue, T., Nagafuchi, O., Rosana, E., Hasanah, U., Nur, I., Basir-Cyio, M.: Spatial Distribution of Gaseous Mercury in the Atmosphere around Artisanal Small-Scale Gold Mining in Indonesia, Journal of Ecotechnology Research, (印刷中).(謝辞入)
- Serikawa, Y., Rosana, E., Kawakami, T., Kunori, N., Noto, Y., Inoue, T., Nagafuchi, O., Miyake, T., Syamsidik: Mercury contamination in the atmosphere of Aceh Province, Indonesia, Journal of Ecotechnology Research, (印刷中).(謝辞入)
- 芹川裕加, 渡辺幸一, 川上智規, 三宅隆之:立山における大気中ガス状水銀の長距離輸送の観測, Journal of Ecotechnology Research, (印刷中).(謝辞入)
- Kikuchi, T., Ikemoto, H., Takahashi, K., Hasome, H., Ueda, H.: Parameterizing soil emission and atmospheric oxidation-reduction in a model of the global biogeochemical cycle of mercury, Environ. Sci. Technol., 投稿中.


32