

沖縄県大里村におけるエアロゾル中のイオン成分, Be-7とオゾン

与儀和夫, 岩崎綾, 嘉手納恒, 泉水仁, 當間志乃, 友寄喜貴

Seasonal Variation of Aerosol Ionic Component, Be-7 and Ozone in Ozato, OKINAWA

Kazuo YOGI, Aya IWASAKI, Hisashi KADENA, Jin IZUMI,
Shino TOMA, Nobutaka TOMOYOSE

Abstract : Ion components, Be-7 in the aerosol were investigated from May 2003 to May 2004 in Ozato, Okinawa. Aerosol and ozone concentrations showed fluctuations caused by alternation of the atmosphere from the Continent and the ocean, in spring, the rainy season and autumn. These showed small fluctuations in December and January, and its atmosphere was from the Continent, mainly from Bo Hai coastal area. On the other hand, aerosol was often influenced by typhoons. The concentrations of sea salt became large as typhoons approached, then the influence of non-sea salt aerosol transported by the west wind from the Continent increased after typhoons passage.

The ozone concentrations were consist of the base part and the additions caused by air pollution in China. The base concentration of the Continent showed the seasonal change as follows : about 50 ppb (Oct-Nov), 45 ppb (Dec-Feb) and 35 ppb (Mar-Apr). Those of ocean were 7 - 20 ppb. The mole ratio of the ozone additions to non-sea salt aerosol of the former were 0.53 - 1.6, of the latter were 3 - 6. The concentrations of Be-7 in atmosphere from the Continent showed over 4 mBq/m³, from ocean showed under 4 mBq/m³. It showed fluctuation caused by alternation of the atmosphere as similar as other pollutants, and increases in ozone and Be-7 concentrations directly caused by transporting from stratosphere, were not found.

Key words : aerosol, ozone, Be-7, typhoon

はじめに

沖縄は汚染物質を伴った大陸由来の大気と清浄な海洋性の大気が気象の変化に応じて交互に影響する環境にある。また台風, 季節風によって発生する海塩性のエアロゾルの影響も大きい。降水の酸性化の度合いは全国でも最も小さいといえるが, 本県においても降水の酸性度, オゾン濃度の増加傾向がみられ, また大陸由来のエアロゾル成分による視程の低下, 煙霧の発生等もしばしばみられる。特に経済成長の著しい中国沿岸部から排出される大気汚染物質は年々増加の傾向にあり, 日本, 東南アジア各国等, 風下にあたる地域の大気環境に与える影響は大きい。また西日本においては環境基準を超えるオゾンの発生が問題となっており, 原因として大陸からの汚染大気の移流, 都市地域における揮発性炭化水素の増加, 成層圏からの大気降下等が原因ではないかとか考えられている。

沖縄本島は汚染物質の大規模な発生源がなく, 大陸起源の汚染物質を把握しやすい地点といえる。本島南部に位置する大里村において平成15年5月から原則1日毎に



図1 エアロゾル調査地点 (大里村)

エアロゾルを採取し, イオン成分およびBe-7の測定を開始した。Be-7は成層圏中での濃度が高く, 大気上層から下降した空気の指標として用いられ, オゾン濃度の上昇との関連も指摘される。沖縄で観測された非海塩性, 海塩性エアロゾル成分, Be-7およびオゾンの関連について報告する。

方 法

エアロゾルの採取は大里村の研究所屋上に設置したハイボリウムサンプラーにより, シリカろ紙を用い, 原則10時から翌日10時までの24時間, 約1 m³/minの流量

で実施した。ろ紙の粉じん採取部分を短冊状に切断し、全量を円筒状容器にロール状に納め、ゲルマニウム半導体線検出器によりベリリウム-7 (Be-7) を測定した。ついでろ紙の一部を分取しイオンクロマトグラフによりイオン成分について分析した。オゾンは平成16年1月までは本島北端に位置する国頭村辺戸の国立環境研究所が設置した観測小屋で測定した。オゾン計は同研究所の貸与による。平成16年2月～5月は本島中部沖縄市内の一般環境常時測定局(沖縄局)のO₃+NO₂の結果で代用した。後方流跡線解析により、流入大気が大陸性であるか、海洋性であるかを推定し、測定データを分類解析した。また沖縄の大気がどの地域を經由して移流してきたか、平成15年1月1日～12月31日の1年間について、毎日9:00の後方流跡線解析結果から集計した。

結 果

1 エアロゾルおよびオゾンの年間変動と気象条件

エアロゾル成分を非海塩イオン成分、海塩イオン成分、その他の成分に区分した。その他の成分はエアロゾル濃度から非海塩、海塩のイオン成分を差し引いたもので、イオン成分以外の無機物、有機物またすすなどの炭素成分等に該当するといえる。非海塩イオン成分およびその他の成分が大気汚染物質に相当する。図2に非海塩イオン成分、その他の成分およびオゾンの月平均値を示す。図3に同様に海塩成分を示す。

非海塩イオン成分の月平均値は平成15年5月が16.3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ で最大で、平成16年2、4月が14 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えた。秋～春季がほぼ10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超え、夏季に5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ に低下した。その他の成分についても同様の傾向を示した。オゾンは平成15年5月と10月が56 ppbで最大で、秋～春季に高く、夏季に低下する傾向がみられた。海塩成分は年間を通して10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度で推移したが、平成15年度9月は台風が4個襲来したため、31.9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ で最大であった。10、11月も台風の影響を受けて20 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ とやや高い濃度を示した。

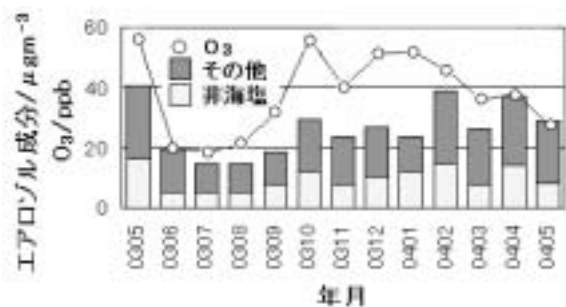


図2 海塩以外のエアロゾル成分月変動

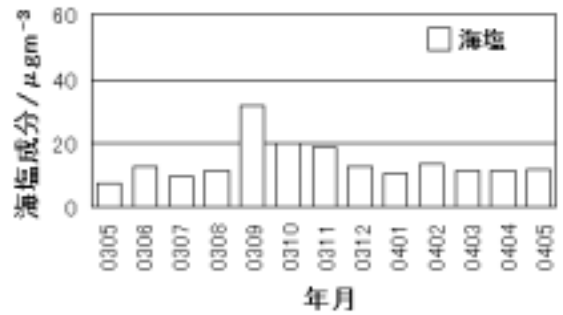


図3 海塩性エアロゾルの月変動

図4に平成15年5月～16年5月の日平均値調査結果を示す。年間のエアロゾル変動の特徴について各月または期間毎の概要は以下のとおりであった。

平成15年5月16日～6月12日

エアロゾルの採取は5月16日より開始した。5月21日は非海塩エアロゾル濃度の上昇がみられ、気象台より煙霧との発表があった。25日にもエアロゾル濃度が上昇したが、これは移動性低気圧の前線通過によるものであった。5月14日に梅雨入りした。エアロゾル、オゾンとも濃度変動が大きく、大陸性と海洋性の大気が交互に影響していた。

6月13日～8月

6月21日に梅雨明けした。梅雨明けから8月の期間は沖縄地方は太平洋高気圧に覆われ、オゾン濃度、エアロゾル濃度とも低く推移した。しかしながら台風が南太平洋に発生し、北上するにつれ海塩成分が増加し、台風通過後は大陸の汚染大気の流入がみられた。また7月末オゾン濃度の上昇、非海塩エアロゾル成分の上昇がみられたが、このとき大気は南方向から流入しており台湾の影響ではないかと推測された。

9月

台風13、14、15、16号が相次いで通過または接近した。19日台風15号が沖縄に接近し、29日台風16号が父島に接近した。この期間の海塩、非海塩エアロゾルおよびオゾン濃度の変動状況を図5に示す。それぞれ台風通過後の

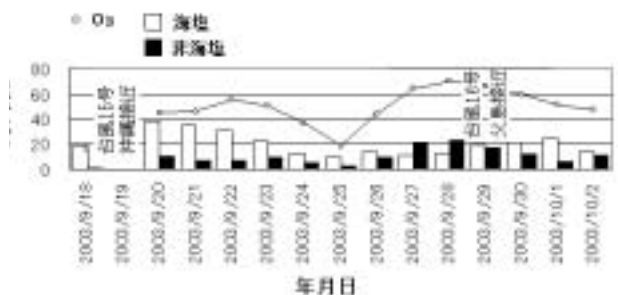


図5 台風接近時のエアロゾル、オゾン濃度の変動

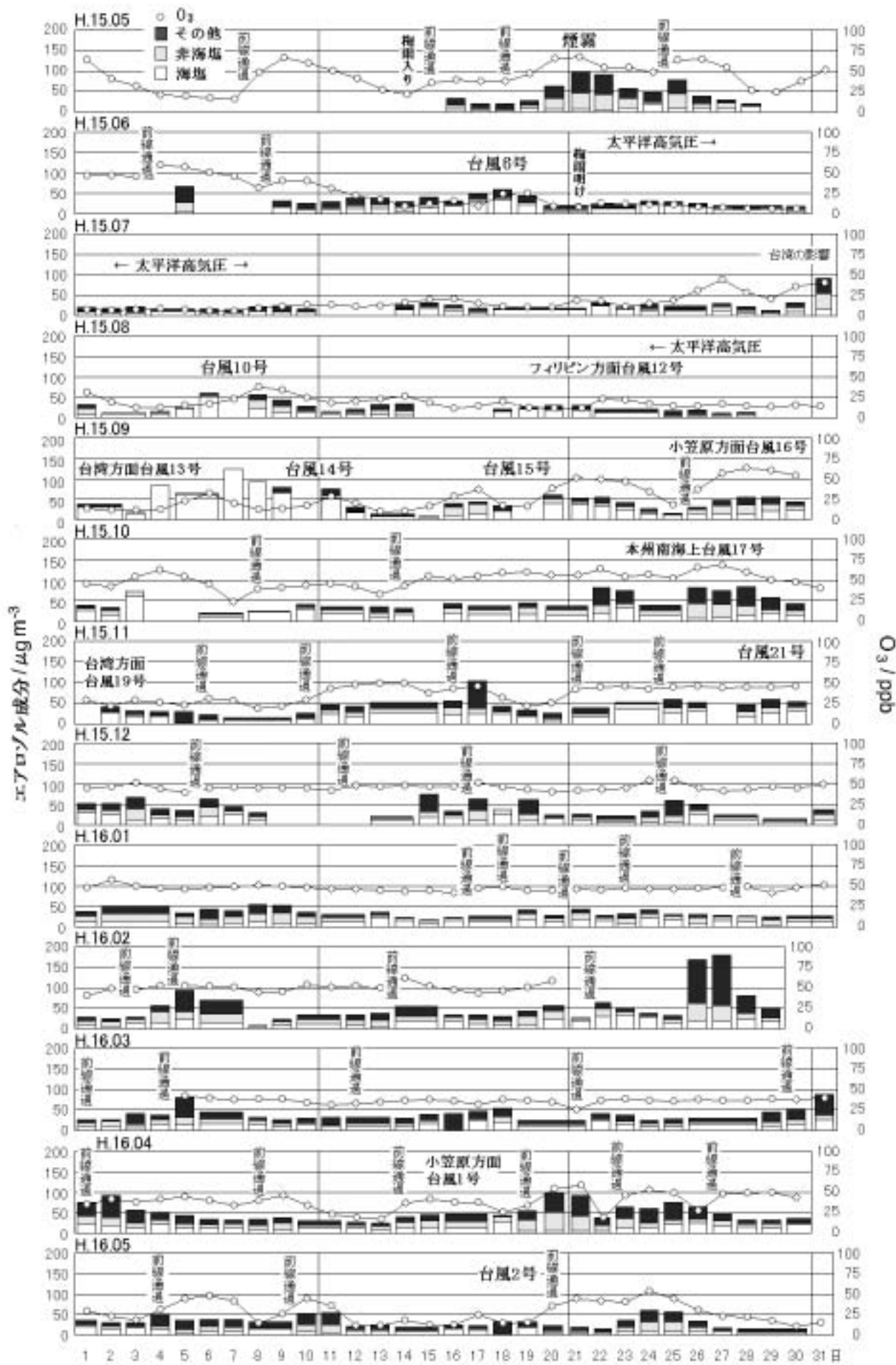


図4 エアロゾル、オゾンの濃度変動と気象条件

西風による大陸方面，また日本本土からの汚染大気の流れによると考えられる非海塩性エアロゾルの増加がみられた。

10月～11月20日

この期間もオゾン濃度の変動が大きく大陸性の大気と海洋性の大気が交互に影響していた。特に寒冷前線通過に伴い，大陸性大気の流れによる，非海塩エアロゾル，オゾン濃度の上昇がみられた。

11月21日～平成16年1月

前線通過に伴う大陸由来のエアロゾル濃度の上昇はみられるものの，西高東低の気圧配置の傾向が強く，オゾン濃度は50ppb程度でほぼ一定に推移した。大陸沿岸からの大気移流速度も大きく，1.5日ほどで沖縄に到達した。

2月

オゾンは40数 ppb で推移し，大陸性の汚染大気の流れにともないエアロゾルの上昇がみられた。26～27日にかけて非海塩エアロゾル濃度が40 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えた。

3月

オゾンは36 ppb 程度で推移し，非海塩エアロゾルも大きな変動は少なかった。後方流跡線解析ではより北方から大気が入り込んでおり，日本本土の影響頻度も2，4月より大きかった。

4～5月

エアロゾル，オゾンとも濃度変動が大きく，大陸性の大気と海洋性の大気が交互に影響していた。移動性低気圧に伴う前線もしばしば通過し，非海塩エアロゾル，オゾン濃度の大幅な上昇がみられた。緩い気圧勾配のため移流速度が小さく，到達に数日以上を要し，また移動性高，低気圧の通過に伴い経路も複雑であった。

2 沖縄流入大気の由来地域

NOAA (アメリカ海洋大気庁) の HYSPLIT モデルによる後方流跡線解析により，中国，韓国等の汚染度の高い地域を通過した大気の沖縄への影響頻度を求めた。

平成15年1月1日から12月31日の9:00における沖縄(大里村)における後方流跡線解析により，大気が大陸のどの地域から，また海洋から流入しているかを求め，分類集計した。流入する大気を，オホーツク海+北太平洋，ロシア，黒竜江+吉林省，遼寧+河北+山東省，江蘇省，浙江省，福建省，広東省，台湾，東南アジア方面，太平洋，北朝鮮，韓国，日本本土の14区分に分類し集計した。遼寧省から浙江省までの中国沿岸部が特に二酸化硫黄等の排出の大きい地域である。中国内陸部は考慮せ

ず，沿岸部のみを対象とした。なお朝鮮半島を通過した大気は中国を大方経由しているが，それぞれ計数した。また日本を経由する場合工業地帯を通過したと思われる場合を計数した。長崎～北海道の本土5地点についても同様に解析し，沖縄と本土各地点とを比較集計した。

図6に沖縄に流入する大気について，年間の大陸沿岸等の通過地域別集計結果を示す。中国沿岸部でも特に渤海沿岸の華北地域(遼寧，河北，山東省)の影響頻度が最も大きく，韓国，日本本土を含め沖縄の北西～北方向の地域からの影響頻度が最も大きいといえる。台湾を含め江蘇省以南の影響頻度は本県に近いにもかかわらず非常に少なかった。

図7に月ごとの結果を示す。華北地域からの影響は10月から4月までの期間が多く，また逆に太平洋からの清浄な大気の流入する期間は6月から8月の夏季に多い。また8月から9月にかけて東南アジア方面からの大気の流入もみられる。

図8に沖縄と本土5地点の比較結果を示す。北に位置する地点ほど，各地点に流入する大気の大陸沿岸通過地域が北側に移動している。北海道は黒竜江省，吉林省，ロシアの影響が大きく，長崎では華北地域，韓国の影響が大きい。渤海沿岸の華北地域は最も汚染度が大きい地域にあたるが，影響頻度としては本土より沖縄が最も大きくなっている。現在高濃度オキシダント発生が問題となっている西日本は中国の影響とともに韓国からの影響頻度が大きい。

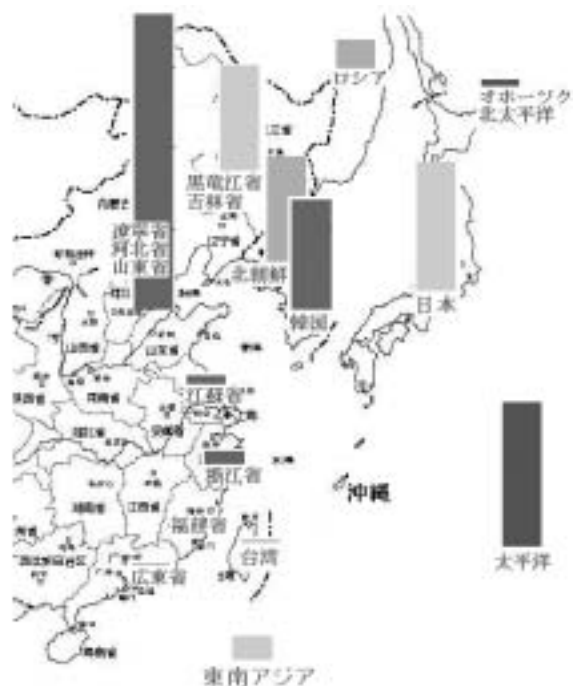


図6 沖縄流入大気の通過地域別集計結果 (年間合計)

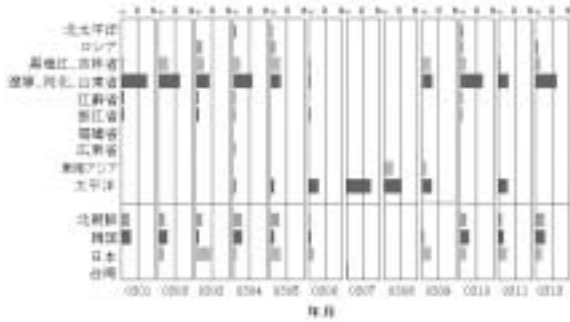


図7 沖縄流入大気の通過地域集計結果 (月別)

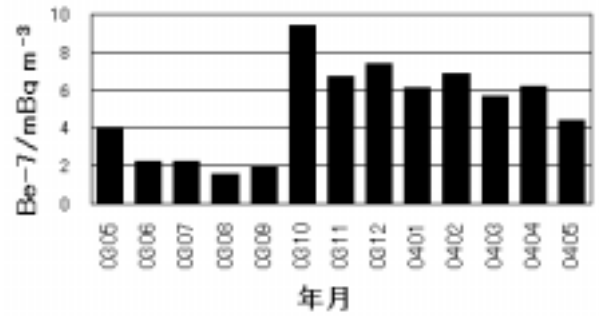


図9 Be-7の月変動

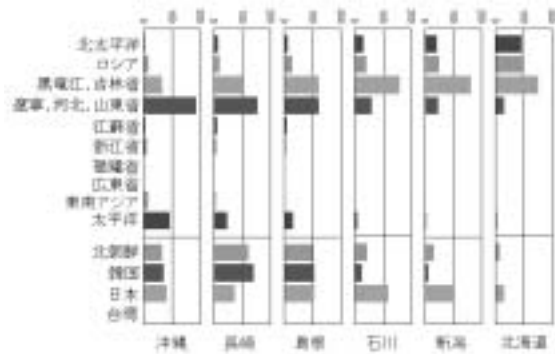


図8 流入大気の通過地域集計結果 (沖縄と本土の比較)

3 Be-7と流入大気

図9にBe-7の月平均値の変動を示す。10月が最も高く9.9 mBq/m³、1月～4月、11月～12月が6～7.6 mBq/m³であった。6月から9月の期間が低く2 mBq/m³程度であった。Be-7濃度は秋季～春季にかけて高く、夏季に低濃度で、非海塩成分等の大気汚染物質の月変動とほぼ同様の変動を示し、これは大陸上の高気圧から発生した気流が、Be-7とともに大陸のオゾン、エアロゾル等の汚染物質を同時に輸送するため、変化が同様の傾向を示したものと考えられる。

図10に濃度別の度数分布を示す。0～3.9 mBq/m³と4 mBq/m³以上の二つのピークに分類できた。エアロゾル採取日開始時と終了時近辺の後方流跡線解析結果が両方とも大陸性または海洋性となったものをそれぞれ大陸由来、海洋由来として分類したもののについて、濃度別度数分布を図11に示す。海洋性と判定できた大気のBe-7濃度は4 mBq/m³以下であり、平均値は2.0 mBq/m³であった。大陸性の大気のBe-7濃度は概ね4 mBq/m³以上であり、平均で7.2 mBq/m³であった。ゆえにBe-7は大気が大陸由来か海洋由来のものかの指標のひとつと考えることができる。しかしながら春、秋季に大陸性であっても前線通過時の大気にBe-7濃度がやや低いものもみられた。

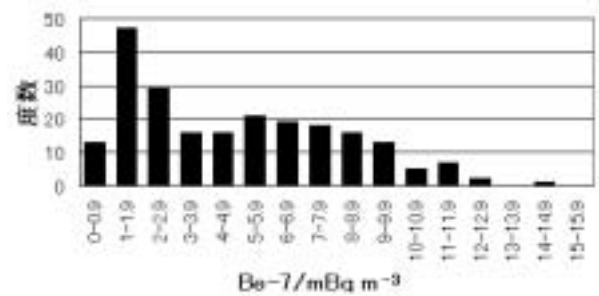


図10 Be-7の濃度別度数分布

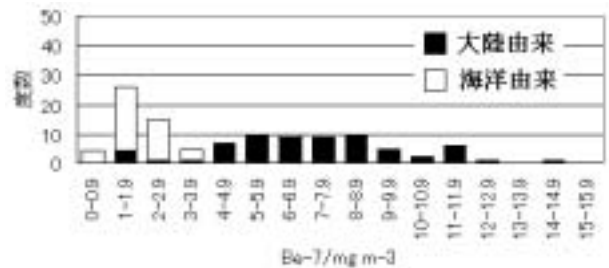


図11 大陸由来大気と海洋性大気のBe-7濃度度数分布

4 非海塩エアロゾル成分とオゾン

図12に大気汚染度の指標として非海塩性エアロゾル濃度とオゾン濃度の関係を月別に示す。非海塩性エアロゾルとしてnss-SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺のモル濃度 (nmol/m³) の合計を用いた。エアロゾル採取日開始時と終了時近辺の後方流跡線解析結果が両方とも大陸性または海洋性となったものをそれぞれ大陸由来、海洋由来と確定できたものとして分類し、また確定できないものについてはBe-7濃度が4 mBq/m³未満と4 mBq/m³以上に分類した。Be-7の測定は数時間以上を要するため未測定の試料も多くなった。特に平成15年9月は大陸性大気の試料が未測定となった。

大陸由来の大気については平成15年10月～16年4月のグラフから、35～50 ppb余りのベースのオゾン濃度に非海塩性エアロゾルの濃度増加とともにオゾン濃度が

比例して上昇している。このベースのオゾン濃度は非海塩エアロゾル成分を0 nmol m⁻³としたときのオゾン濃度といえるが、10月～1月が50 ppb 前後、2月が44 ppb、3～4月が36 ppb で季節変化がみられた。海洋性の大気は低い非海塩性エアロゾル、オゾン濃度を示し、それぞれ1.4～7.0 μg/m³、7～20 ppb であった。大陸性大気と同様非海塩性エアロゾル濃度の増加とともにオゾン濃度の上昇がみられた。その比は海洋性の大気で0.077～0.142 ppb/nmol m⁻³ (モル比で3～6程度)、大陸性の大気では0.013～0.039 ppb/nmol m⁻³ (モル比で0.5～1.6程度) で、両者に大きな差があった。これらの大気の流入時期が異なること、また移流距離の差等考えられるが、それぞれの大気の特徴を表しているものといえる。海洋性大気における非海塩エアロゾル濃度の増加は、主に台風接近時にみられた。

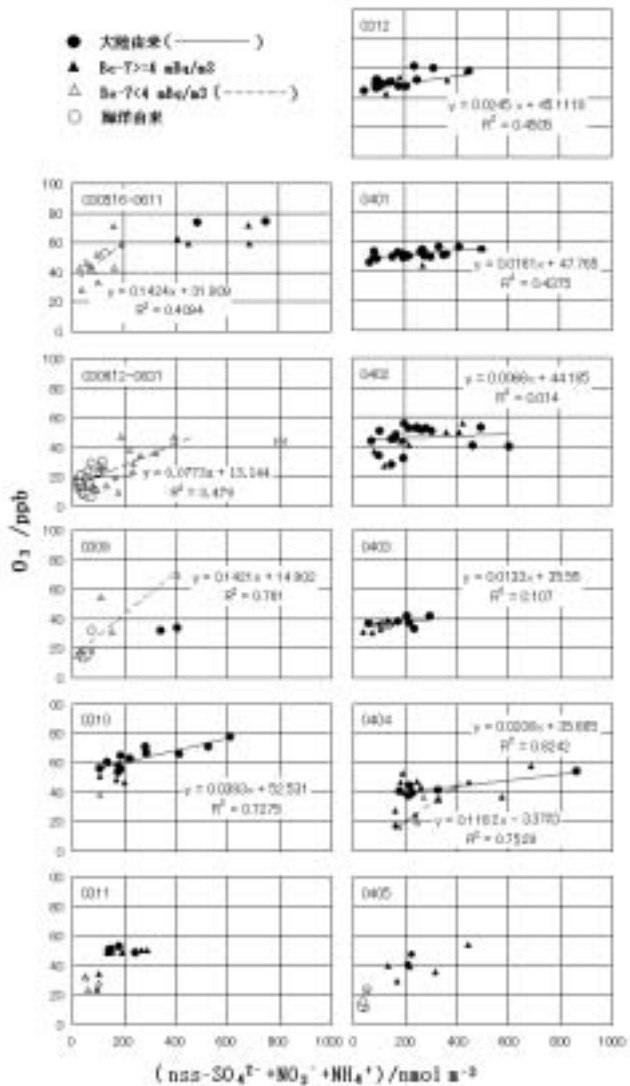


図12 非海塩性エアロゾルとオゾン濃度 (平成15年3月～16年5月)

高濃度オゾンの一因として中、高緯度における成層圏からの大気降下があげられるが、本調査においてはBe-7のオゾン濃度への影響は小さく、非海塩性エアロゾル-オゾンの比例関係から大きく上方にずれるものはなかった。これは沖縄で観測されるBe-7、オゾン濃度の上昇が大陸性大気の移流が要因であるためと考えられる。また図12 (平成16年2月、4月) にみられるように、前2者の大気と異なり、Be-7の濃度が4 mBq/m³以上であるがオゾンは非海塩性エアロゾル-オゾンの関係から期待される濃度を下回るものがあつた。この大気のBe-7の濃度別分布は図13に示したように大陸性大気と同様のものであつた。また平成15年11月、平成16年1月のBe-7濃度別分布 (4 mBq/m³以上) を図14に示すが、11月は2個、1月は1個のピークで分布に差がみられた。

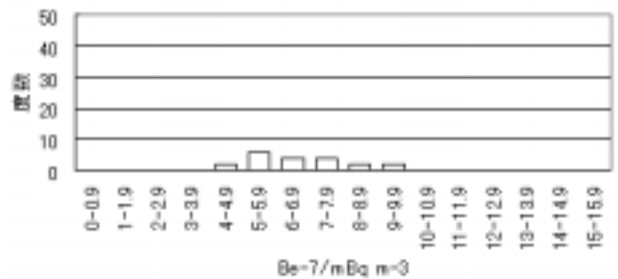


図13 オゾン濃度低下時のBe-7の濃度別分布

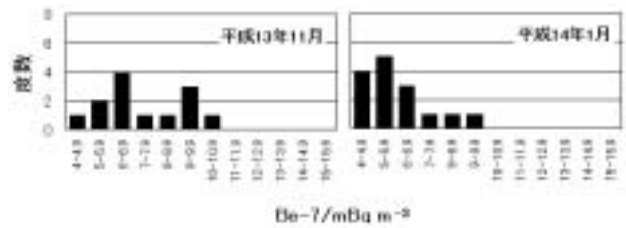


図14 Be-7の濃度分布例 (平成15年11月、16年1月)

まとめ

沖縄県大里村におけるエアロゾルイオン成分、Be-7およびオゾンの濃度変動を気象条件、後方流跡線解析によって分類解析した。冬季は西高東低の気象配置により大陸性大気が卓越し、夏季は海洋性大気が卓越した。春季～梅雨時期、秋季はこれらの大気が交互に影響し、また弱い気流によって比較的高濃度の汚染大気の移流が観測され、オゾン濃度は大きく変動した。中国沿岸部は硫酸化物等の大きな排出源となっているが、沖縄に移流してくる大気は、冬季は渤海沿岸地域が主体であり、この地域の影響頻度は九州より大きかった。台風の襲来もエアロゾル濃度に大きく影響し、台風が比較的遠方(フィ

リピン東方海上) にあるところから海塩性エアロゾルが飛来し、台風通過後は西風による大陸からの汚染大気の移流により、非海塩性エアロゾルの濃度上昇がみられた。

沖縄に到達した大陸由来および海洋性大気のオゾン濃度はそれぞれベースとなる濃度に、汚染により増加した濃度を付加したもので、汚染量の指標となる非海塩エアロゾルとオゾン増加分は比例関係にあった。また大陸由来大気はベースのオゾン濃度に季節変動がみられ、10、11月で50 ppb程度、12～2月で45 ppb程度、3、4月が35 ppbであった。夏季に卓越する海洋性大気のオゾン濃度は7～20 ppb程度で、台風接近時に非海塩性エアロゾルの増加とともに上昇する傾向があった。非海塩エアロゾル濃度に対するオゾンの増加分の比は大陸由来大気に比較し、海洋性大気が大きかった。

Be-7は非海塩イオン成分等の汚染物質とほぼ同様の

季節変動を示したが、これはBe-7と大陸の汚染物質が同時に輸送されるため、頻度的に同様の傾向を示したものと考えられた。Be-7は海洋性大気で4 mBq/m³以下、大陸由来大気で4 mBq/m³以上であった。またオゾン、Be-7とも移流大気に応じた濃度変動を示し、中高緯度地域で出現するとされる上層大気の降下による直接的な現象は観測されなかった。

参考文献

- 1) 金城 (1999) 地域特性から見た沖縄の地表オゾン, 第40回大気環境学会年回要旨集234-235
- 2) 友寄, 与儀, 長嶺 (2003) 沖縄県大里村における湿性沈着調査, 沖縄県衛生環境研究所報, 37, 47-50