



# HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	北海道のバックグラウンド地域における大気粉じん中の水溶性成分について
Author(s)	秋山, 雅行; 野口, 泉; 大塚, 英幸
Description	第3回衛生工学シンポジウム (平成7年11月9日 (木) -10日 (金) 北海道大学学術交流会館) . 4 都市・水・室内等の環境 . 4-2
Citation	衛生工学シンポジウム論文集, 3, 186-190
Issue Date	1995-11-01
Doc URL	<a href="https://hdl.handle.net/2115/7906">https://hdl.handle.net/2115/7906</a>
Type	departmental bulletin paper
File Information	3-4-2_p186-190.pdf



## 4-2

北海道のバックグラウンド地域における  
大気粉じん中の水溶性成分について○秋山 雅行、野口 泉、大塚 英幸  
(北海道環境科学研究センター)

## 1. はじめに

従来より、主に都市部や工場地域を対象として大気中エアロゾルを採取し、各地域におけるエアロゾル及び各成分濃度の分布や発生源別寄与率等について調査研究を進めてきた。これらのデータを検討するためには、発生源による影響の少ない地域における濃度（バックグラウンド濃度）を知る必要がある。また、このような清浄地域におけるバックグラウンド濃度を長期的にモニタリングすることにより、広域的な環境の状況がどのように変化しているかの把握や、 $\text{SO}_4^{2-}$ 等の二次生成物質の挙動、汚染物質の中・長距離輸送を解析するためのデータを得ることができる。そこで今回は、1993年度より、清浄地域と考えられる3地点において採取している浮遊粉じん中の水溶性成分の分析結果について報告する。

## 2. 試料採取

## (1) 試料採取地点の概要

試料は、図1に示す静内町春別、根室市落石、利尻島の3地点において採取を行った。静内町春別は静内町市街地から北東の方向に約20km離れた山間部に位置している。標高はおよそ700mで、周囲には森林が広がっている。

根室市落石は根室市街地の南側約20kmにある落石岬に位置し、太平洋に面している。周囲の地形は平坦で、北側約1.5kmに落石の集落がある。

利尻島は日本の北端、稚内市の西側約30kmに位置し、周囲を日本海に囲まれている。形状はほぼ円形を呈し、島の中央には利尻山（海拔1,719m）がそびえている。試料採取は島の南側に位置する仙法志で行った。海岸から約1kmの地点に位置し、周囲に民家等の発生源はない。

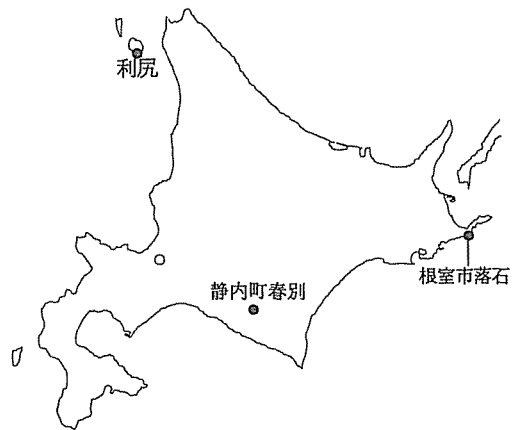


図1 試料採取地点

## (2) 試料採取方法

ハイボリュウムエアサンプラー（HV）を用いて、毎週月曜9時～水曜9時の48時間、石英繊維ろ紙上に1,300 l/minの流量で採取した。なお、試料数は春別:n=95、落石:n=88、利尻:n=70である。

## 3. 分析方法

粉じんを採取したろ紙の1/16を50mlの純水に浸して、30分超音波抽出を行う。抽出液をポアサイズ0.2 $\mu\text{m}$ のメンブレンフィルターでろ過後、イオンクロマト法により陰イオン( $\text{Cl}^-$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ )を、インドフェノール法により $\text{NH}_4^+$ を、原子吸光光度法により他の陽イオン( $\text{Na}^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ )を定量した。

## 4. 結果及び考察

表1に各地点における水溶性成分大気中濃度の総括表を、表2に各地点における水溶性成分の月平均大気中濃度を示す。また、図2に各地点における大気中浮遊粉じん濃度の変動を示す。

表1 各地点における水溶性成分大気中濃度の総括表(1993.6~1995.3)

		Dust ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	$\text{NH}_4^+$ ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	$\text{Na}^+$ ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	$\text{K}^+$ ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	$\text{Mg}^{2+}$ ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	$\text{Ca}^{2+}$ ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	$\text{Cl}^-$ ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	$\text{NO}_3^-$ ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	$\text{SO}_4^{2-}$ ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	nss $\text{SO}_4^{2-}$ ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )
春別	平均値	15.6	0.50	0.37	0.09	0.06	0.13	0.23	0.19	2.39	2.30
	最高値	58.6	2.23	2.19	0.31	0.26	0.92	3.21	0.79	8.63	8.51
	最低値	3.9	0.03	0.02	0.01	0.00	0.01	0.01	0.01	0.32	0.30
	標準偏差	5.1	0.31	0.20	0.03	0.03	0.04	0.04	0.11	0.55	0.60
落石	平均値	18.2	0.09	3.18	0.14	0.37	0.16	5.05	0.30	1.73	0.94
	最高値	77.4	0.40	15.80	0.54	1.66	0.70	28.15	1.97	5.87	4.55
	最低値	2.2	0.00	0.12	0.01	0.04	0.02	0.25	0.02	0.28	0.10
	標準偏差	13.1	0.11	2.72	0.11	0.29	0.14	4.81	0.29	1.10	0.70
利尻	平均値	11.0	0.10	1.47	0.05	0.12	0.07	1.99	0.16	1.40	1.03
	最高値	35.6	0.85	7.66	0.26	0.78	0.50	11.85	0.58	4.01	3.32
	最低値	1.9	0.01	0.07	0.00	0.01	0.01	0.01	0.02	0.11	0.07
	標準偏差	7.2	0.14	1.58	0.06	0.15	0.08	2.64	0.11	0.85	0.70

表2 各地点における水溶性成分の月平均大気中濃度(1993.6~1995.3)

		Dust ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	$\text{NH}_4^+$ ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	$\text{Na}^+$ ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	$\text{K}^+$ ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	$\text{Mg}^{2+}$ ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	$\text{Ca}^{2+}$ ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	$\text{Cl}^-$ ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	$\text{NO}_3^-$ ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	$\text{SO}_4^{2-}$ ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	nss $\text{SO}_4^{2-}$ ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )
春別	1月	11.2	0.42	0.49	0.07	0.07	0.09	0.29	0.14	2.56	2.44
	2月	10.9	0.49	0.32	0.05	0.04	0.07	0.17	0.15	2.36	2.27
	3月	9.7	0.66	0.31	0.06	0.05	0.10	0.15	0.24	2.66	2.58
	4月	23.2	0.68	0.41	0.10	0.08	0.33	0.09	0.52	3.40	3.30
	5月	28.8	0.99	0.49	0.17	0.10	0.41	0.22	0.52	4.69	4.57
	6月	12.7	0.37	0.15	0.10	0.03	0.07	0.04	0.16	1.57	1.53
	7月	18.1	0.54	0.12	0.10	0.03	0.09	0.02	0.10	2.06	2.03
	8月	22.3	0.95	0.28	0.13	0.05	0.09	0.12	0.10	3.58	3.51
	9月	15.2	0.30	0.24	0.12	0.04	0.08	0.10	0.13	1.66	1.60
	10月	15.4	0.19	0.55	0.09	0.08	0.22	0.60	0.24	1.37	1.23
	11月	15.9	0.35	0.72	0.08	0.09	0.16	0.73	0.21	2.09	1.91
	12月	9.6	0.31	0.41	0.05	0.05	0.06	0.14	0.13	1.98	1.88
落石	1月	19.2	0.22	2.96	0.15	0.34	0.13	5.03	0.23	1.95	1.21
	2月	14.0	0.17	2.50	0.13	0.31	0.09	3.73	0.20	1.63	1.01
	3月	14.9	0.19	2.71	0.14	0.32	0.12	4.29	0.30	1.74	1.06
	4月	19.4	0.13	3.14	0.19	0.37	0.23	4.76	0.53	1.94	1.16
	5月	37.9	0.19	6.37	0.26	0.65	0.49	10.01	0.88	3.41	1.81
	6月	11.0	0.01	1.71	0.09	0.20	0.08	2.55	0.23	1.00	0.58
	7月	11.1	0.01	1.93	0.08	0.23	0.08	2.74	0.19	1.22	0.73
	8月	15.8	0.01	2.62	0.11	0.31	0.12	3.57	0.35	1.75	1.09
	9月	16.6	0.02	2.97	0.13	0.36	0.18	4.74	0.27	1.40	0.66
	10月	31.2	0.07	6.25	0.25	0.70	0.28	10.60	0.34	2.43	0.86
	11月	15.9	0.11	2.54	0.11	0.29	0.15	4.15	0.16	1.45	0.82
	12月	17.2	0.14	3.24	0.15	0.41	0.10	5.50	0.22	1.61	0.80
利尻	1月	10.2	0.16	2.64	0.13	0.32	0.13	3.63	0.20	2.60	1.94
	2月	7.0	0.18	1.65	0.06	0.18	0.10	1.78	0.23	2.44	2.02
	3月	8.6	0.18	1.46	0.08	0.15	0.15	1.85	0.25	1.91	1.54
	4月	17.8	0.09	1.95	0.11	0.22	0.20	2.53	0.27	1.71	1.22
	5月	15.3	0.08	1.62	0.10	0.20	0.15	1.94	0.30	1.81	1.40
	6月	6.5	0.04	0.30	0.02	0.03	0.04	0.19	0.07	0.62	0.55
	7月	7.3	0.11	0.23	0.02	0.03	0.03	0.14	0.06	0.69	0.63
	8月	10.4	0.17	0.69	0.03	0.06	0.04	0.62	0.14	1.41	1.24
	9月	14.0	0.02	1.87	0.06	0.15	0.06	2.74	0.17	1.11	0.64
	10月	14.5	0.05	2.16	0.04	0.10	0.04	3.51	0.17	1.04	0.50
	11月	13.3	0.11	2.39	0.06	0.14	0.07	3.55	0.14	1.58	0.98
	12月	7.6	0.07	1.07	0.03	0.08	0.04	1.33	0.12	1.17	0.90

各地点の浮遊粉じん濃度は春別で3.9~58.6  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均15.6  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )、落石で2.2~77.4  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均18.2  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )、利尻で1.9~35.6  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均11.0  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )であり、落石での平均値が最も高かった。

図2に示すように、各地点ともに、各測定毎の濃度変動が大きかったが、月平均値をみると、春別では4、5月及び8月に濃度が上昇する傾向が見られた。落石、利尻では、春別と同様4、5月に濃度の上昇が見られ、また、秋季に濃度が高くなる傾向がみられた。逆に、北西の季節風が卓越する冬季に濃度の上昇が予想されたが、明らかな濃度の上昇は認められなかった。低濃度時の濃度の推移をみると、各地点ともに5~10  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の濃度を示し、降雨の状況を考慮すると、浮遊粉じんのバックグラウンド濃度は10  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度と考えられる。

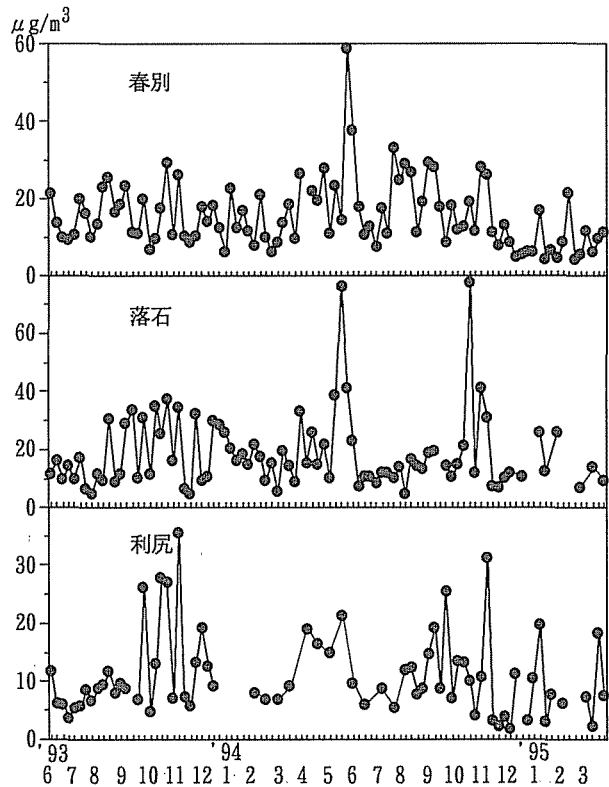


図2 各地点における大気中浮遊粉じん濃度の変動

各成分についてみると、春別においては  $\text{SO}_4^{2-}$ 濃度が他の成分よりも高く、0.32~8.63  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均2.39  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )であった。落石、利尻では、 $\text{Na}^+$ 、 $\text{Cl}^-$ の濃度が高く、落石で $\text{Na}^+$ :0.12~15.8  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均3.18  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )、 $\text{Cl}^-$ :0.25~28.15  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均5.05  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )、利尻で $\text{Na}^+$ :0.07~7.66  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均1.47  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )、 $\text{Cl}^-$ :0.01~11.85  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均1.99  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )であった。次いで $\text{SO}_4^{2-}$ 濃度が高く落石で0.28~5.87  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均1.73  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )、利尻で0.11~4.01  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均1.40  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )であった。落石、利尻両地点ともに海岸部に近いことから、海塩の影響を強く受けたと考えられる。特に、落石は海に囲まれた岬の先端に位置しており、海塩による影響を最も強く受けていたと予想される。逆に、春別は海岸部から20km程はなれた位置にあるため、粒径の大きい海塩粒子の影響は小さかったと考えられる。

各成分の季節変動では、落石、利尻における $\text{Na}^+$ 、 $\text{Cl}^-$ の濃度が秋季(9月~11月)に上昇する傾向がみられた。また、浮遊粉じん濃度と $\text{Na}^+$ 、 $\text{Cl}^-$ の濃度を比較すると、同様の季節変動を示しており、落石、利尻では海塩成分が浮遊粉じん濃度の変動に大きな影響を与えていることが認められた。当量濃度による $\text{Cl}^-/\text{Na}^+$ 比の月平均値は春別で0.11~0.71(全平均0.40)、落石で0.88~1.10(全平均1.03)、利尻で0.40~1.05(全平均0.88)であり、いずれも $\text{Cl}^-$ と $\text{Na}^+$ の当量濃度による海塩比1.16より低く、 $\text{Cl}^-$ の欠損を生じていた。各地点ともに、夏季に $\text{Cl}^-/\text{Na}^+$ 比が小さくなる傾向があり、気温の高い夏季には $\text{Cl}^-$ の欠損がより顕著に生じたものと考えられる。

$\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$ では、各地点ともに4、5月に濃度が上昇しており、共通した空気塊による影響があったと推察され、道内からの影響ではなく、汚染空気塊の中または長距離輸送による可能性が考えられた。

図3に、人為的な汚染の影響をみるための指標の1つである非海塩由来の $\text{SO}_4^{2-}$ (nss $\text{SO}_4^{2-}$ )濃度の変動を示す。各地点のnss $\text{SO}_4^{2-}$ 濃度は、春別で0.30~8.51  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均2.30  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )、落石で0.10~4.55  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均0.94  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )、利尻で0.07~3.32  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均1.03  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )であった。各地点ともに1月~5月及び8月に濃度の上昇がみられ、夏季には二次生成が活発になること、冬季には化石

燃料の使用量が増加することなどが濃度上昇の要因として考えられる。

1993年と1994年の8月の測定値を比較すると、各地点とも明らかに1994年の濃度が高くなっている。1993年の夏は記録的な冷夏であり、対照的に1994年の夏は札幌でも36℃を超えるほどの猛暑であった<sup>2)</sup>。この天候の差が濃度差に反映した可能性があり、1994年の夏には二次生成がより活発さを増したことが、 $nssSO_4^{2-}$ 濃度上昇の一因になったことが予想される。

国設札幌局及び、札幌の郊外にある国設野幌局での $SO_4^{2-}$ 濃度は、札幌局の月平均値でおよそ3~8 $\mu g/m^3$ 、野幌局で2~7 $\mu g/m^3$ であり<sup>3)</sup>、これと比較すると各地点の濃度はかなり低い値であるが、試料によっては札幌と同レベルの濃度を示すこともあり、汚染気塊の流入がみられた。今後は、気塊の流入経路についても詳しく検討することが必要であろう。

表3~5に各々の地点での各成分間の相関を示す。落石、利尻ともに粉じんと海塩成分の相関が高く、この結果からも海塩成分が粉じん濃度に大きく影響していることが読み取れる。春別では粉じんと海塩成分の相関はそれほど高くはなく、 $Mg^{2+}$ 、 $Ca^{2+}$ 、 $nssSO_4^{2-}$ と高い相関を示していたことから、周辺土壌及び輸送されてきた汚染質が粉じん濃度に影響を与えているものと考えられる。

表6に各成分の地点間の相関を示す。 $nssSO_4^{2-}$ に着目して各地点間の相関をみると、春別と落石間で高い相関を示している。落石

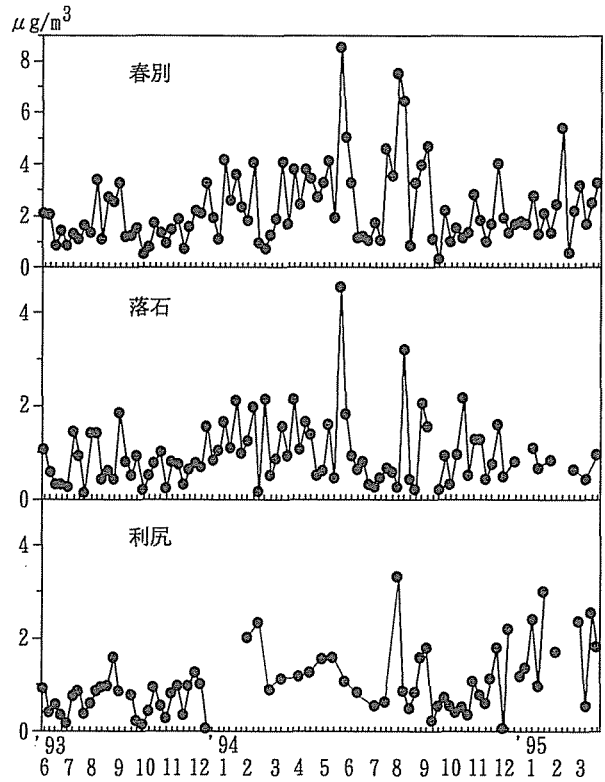


図3 各地点における大気中 $nssSO_4^{2-}$ 濃度の変動

表4 各成分間の相関 (落石)

	Dust	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Cl <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	nss SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>
Dust	1.00									
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	0.38	1.00								
Na <sup>+</sup>	0.96	0.31	1.00							
K <sup>+</sup>	0.93	0.44	0.94	1.00						
Mg <sup>2+</sup>	0.95	0.33	0.99	0.96	1.00					
Ca <sup>2+</sup>	0.85	0.26	0.77	0.74	0.75	1.00				
Cl <sup>-</sup>	0.94	0.29	0.99	0.92	0.98	0.75	1.00			
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	0.55	0.39	0.50	0.60	0.52	0.59	0.42	1.00		
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	0.85	0.55	0.79	0.83	0.81	0.77	0.72	0.69	1.00	
nssSO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	0.40	0.56	0.26	0.39	0.30	0.45	0.16	0.59	---	1.00

表3 各成分間の相関 (春別)

	Dust	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Cl <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	nss SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>
Dust	1.00									
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	0.62	1.00								
Na <sup>+</sup>	0.36	-0.10	1.00							
K <sup>+</sup>	0.83	0.51	0.26	1.00						
Mg <sup>2+</sup>	0.59	0.09	0.96	0.47	1.00					
Ca <sup>2+</sup>	0.77	0.28	0.41	0.62	0.61	1.00				
Cl <sup>-</sup>	0.27	-0.20	0.91	0.18	0.84	0.34	1.00			
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	0.55	0.10	0.62	0.41	0.72	0.73	0.47	1.00		
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	0.74	0.93	0.15	0.63	0.35	0.49	-0.04	0.31	1.00	
nssSO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	0.72	0.94	0.08	0.62	0.29	0.46	-0.10	0.27	---	1.00

表5 各成分間の相関 (利尻)

	Dust	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Cl <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	nss SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>
Dust	1.00									
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	0.01	1.00								
Na <sup>+</sup>	0.85	-0.11	1.00							
K <sup>+</sup>	0.72	0.01	0.85	1.00						
Mg <sup>2+</sup>	0.83	-0.11	1.00	0.86	1.00					
Ca <sup>2+</sup>	0.77	-0.05	0.87	0.80	0.88	1.00				
Cl <sup>-</sup>	0.85	-0.14	0.99	0.81	0.98	0.85	1.00			
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	0.44	-0.15	0.56	0.71	0.59	0.69	0.51	1.00		
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	0.47	0.48	0.59	0.73	0.62	0.64	0.50	0.54	1.00	
nssSO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	0.10	0.65	0.15	0.42	0.19	0.29	0.05	0.35	---	1.00

表6 各成分の地点間の相関

	Dust	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Cl <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	nss SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>
春別-落石	0.34	0.21	0.41	0.18	0.44	0.68	0.39	0.50	0.43	<b>0.68</b>
利尻-春別	0.52	0.56	0.73	0.26	0.71	0.26	0.78	0.37	0.44	<b>0.57</b>
落石-利尻	0.45	0.00	0.45	0.37	0.43	0.40	0.48	0.10	0.20	<b>0.19</b>

と利尻間で相関が低いことを考えると、道内からの汚染の影響も考えられることから、風向を含めての詳しい解析が必要とされる。

#### 5. おわりに

今回の調査において、北海道のバックグラウンド地域における浮遊粉じん濃度レベルを把握することができた。しかし、都市域と同レベルの $\text{rsshSO}_4^2$ 濃度が出現する場合もみられており、今後は、気象条件等も含めて汚染気塊の流入経路について検討していくことが必要である。また、気象条件の他に金属成分等についても測定することにより、 $\text{SO}_4^2$ の汚染源を推定した報告もあり<sup>4)</sup>、水溶性成分のみならず、総合的に調査を行うことが必要である。

#### 参考文献

- 1) 向井人史・安部喜也・椋達則・竹下和男・福間常夫・高橋順一・溝田真司(1989)：隠岐島における大気粉じん成分の長期的変動、国立公害研究所研究報告、第123号、7-50
- 2) 日本気象協会北海道本部(1993～1995)：北海道の気象、第37巻6号～第39巻3号
- 3) 日本環境衛生センター(1993)：国設大気測定網(NASN)浮遊粉じんおよび浮遊粒子状物質分析結果報告書
- 4) Liaquat Husain, Vincent A Dutkiewics(1990)：A long-term(1975-1988) study of atmospheric  $\text{SO}_4^2$  :Regional contributions and concentration trends. Atmos. Environ. , 24A, 1175-1187