

(40) 摩周湖周辺におけるバックグラウンド大気汚染と汚染負荷

Measurement of Background Air Pollution and Deposition around Lake Masyu

鈴木 英之*, 深澤 達矢**, 村尾 直人**, 橘 治国**, 藤沼 康実***, 清水 達雄**

Hideyuki Suzuki*, Tatsuya Fukasawa**, Naoto Murao**, Harukuni Tachibana**, Yasumi Fujinuma***, Tatsuo Shimizu**

ABSTRACT ; Continuous samplings of atmospheric aerosols, gas and fallout were carried out from July 1998 to December 1999 at the peak of Mt. Birao in Teshikaga town, eastern Hokkaido, Japan. Also, we collected lake water both in Lake Masyu near Mt. Birao and Lake Kuttara in Shirai town, southern Hokkaido. Atmospheric concentrations of total particulate mass (TPM), carbonaceous matter and sulfate were not shown seasonal variations, however, the concentrations of heavy metals such as lead, zinc and arsenic etc. significantly increased in winter. From the results of isentropic trajectory analyses, the pollutant was supposed to be transported from the direction of northeastern China and Siberia in winter season. Also the metals in insoluble atmospheric fallout significantly increased from winter to spring. Pollutant such as nickel and lead, which supposed to fall out from the atmosphere, in both lakes. Moreover, the concentrations such as zinc, nickel, vanadium and copper, tend to increase from those measured in 1981.

KEYWORDS ; Aerosol, Long-range transport, Heavy metal, Atmospheric fallout, Lake water

1. はじめに

近年、工業の発達により発展途上国の国々はめざましい経済成長を遂げる一方、硫黄化合物や重金属成分など大量の汚染物質を未処理のまま環境中に放出している¹⁾。また、これらの汚染物質が大気の長距離輸送を経て、自国や近隣諸国に影響を及ぼしていることが知られている²⁾。東アジア最大の排出量を持つ中国の東側に位置している日本は、今後排出量の増大とともに越境汚染による影響がますます強まることが考えられる。酸性雨の視点から長距離輸送された汚染物質が降水や沈着により、陸水や土壌にどのような影響を与えているかという問題に関しては、精力的に研究が行われているが、重金属等の微量汚染物質に関しては研究例が少ない。

そこで本研究では、特に重金属成分に注目し、北海道のバックグラウンド湖沼である摩周湖、倶多楽湖及びその周辺地域を対象に、大気中の微量汚染物質の水質に与える影響に関する研究を行った。1998年7月から北海道東部の美羅尾山山頂に大気汚染物質及び大気降下物の採取装置を設置し、摩周湖周辺のバックグラウンド大気及び大気降下物中の汚染物質濃度変動を把握するために継続的に測定した。また、大気汚染物質の降下による水質への影響を明らかにするために、流入、流出のない摩周湖及び北海道南部の倶多楽湖における汚染物質濃度の測定を行い、沈着量をもとにした大気降下物の汚染負荷による湖沼水質への長期的、短期的な影響評価を行った。さらに、流跡線解析により摩周湖周辺大気中の汚染物質の発生源を推定した。

2. 調査地点の概要

北海道弟子屈町美羅尾山山頂(43°N, 144°E, 標高 554m, 図1)において摩周湖周辺のバックグラウンド大気汚染物質及び大気降下物の通年測定を行った。美羅尾山は、摩周湖の西南西約10kmにあり、局地的な人為汚染排

* 日本理水設計株式会社 (Nippon Risui Sekkei Co., Ltd)

** 北海道大学大学院工学研究科 (Graduate School of Engineering, Hokkaido University)

*** 国立環境研究所 (National Institute for Environmental Studies)

出源の影響を受けない。

北海道川上郡弟子屈町にある摩周湖（43° N, 144° E, 図 1）は、日本で最も人為汚染の影響が少ない湖とされており、世界的に清澄な湖のひとつとして知られている。集水面積の約 60%が湖面を占め、湖面標高は 352.3m, 周囲の火口壁との比高は 130～150m である。供給は湖水面への直接の降水が 1100 mm/year, 集水域への降水が 568 mm/year（降水量の 79%が湖水に入るとした値）, 湖底の湧水が 60 mm/year, 放出は水面からの蒸発が 370 mm/year, 湖盆からの浸透が 1360 mm/year となり、平均滞留時間は約 84 年と計算される³⁾。

白老郡白老町にある倶多楽湖（42° N, 141° E, 図 2）は、日本では摩周湖に次ぐ清澄な湖であり、約 4 万年前に形成されたと推定されている。倶多楽火山の外輪山は基底直径 6km で上部ほど急な、平均斜度 20 度の円錐状をなしている。湧水としてアヨロ川が確認されている。両湖沼とも火口型カルデラ湖で、主要流入流出河川がないため、汚染物質は主として大気から入ってくるものと考えられる³⁾（表 1）。

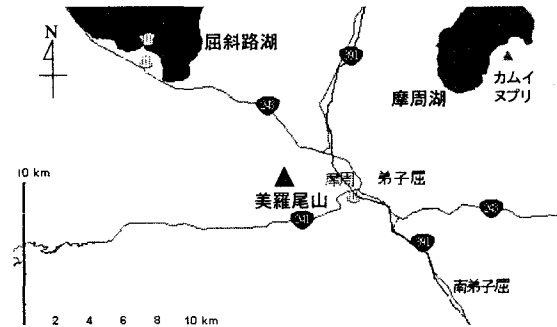


図 1 美羅尾山と摩周湖



図 2 倶多楽湖

表 1 各湖沼の諸元

	湖面積 (km ²)	湖容積 (km ³)	最大水深 (m)	平均水深 (m)	年降水量 (mm)	滞留時間 (年)
摩周湖	19.6	2.86	212	146	1100	84
倶多楽湖	4.7	0.49	148	105	1857	28.7

3. 方法

3. 1 大気汚染の現況調査

1998 年 7 月～1999 年 12 月まで約 1 ヶ月ごとに美羅尾山山頂において、大気汚染物質のサンプリングを行った（図 3）。捕集対象は粒径 2 μm 以下の大気エアロゾル及び SO₂ ガスであった。テフロンフィルター（住友電工, WP-500-50, 47mm φ, pore size : 5 μm）を用いて、エアロゾル総重量濃度（TPM）、イオン成分濃度、重金属成分を測定し、石英繊維フィルター（PALLFLEX PRODUCTS 2500QAT-UP, 47mm φ）を用いて炭素成分を測定した。イオン成分濃度は、テフロンフィルターの 1/4 をイオン交換水に浮かべ、15 分間超音波抽出した後、抽出液をイオンクロマトグラフ（横河電機, IC-7000）で分析した。重金属成分濃度（Al, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Ni, Cu, Zn, As, Cd, Pb）は、Jalkanen⁴⁾の方法に基づき、1/8 に切ったテフロンフィルターを超高純度硝酸（関東化学, Elgrade61%）1.5mL と超高純度フッ化水素酸（ダイキン工業, 半導体用 50%）0.5mL の混合液に 2 日間浮かべ、抽出液を 50 倍希釈した後、

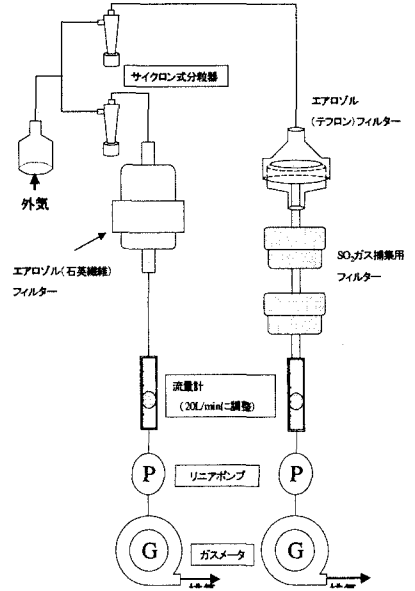


図 3 サンプリング装置

誘導結合プラズマ質量分析装置 (ICP-MS, 横河電機, HP-4500) で分析した。

SO₂ ガス成分濃度は、1%炭酸ナトリウムを含浸させたフィルター (東洋ろ紙 51A, 55mmφ) を用いてサンプリングし、0.6mg/L 過酸化水素水溶液に1日浸して抽出した後、イオンクロマトグラフで分析した⁵⁾。

炭素成分濃度は、800℃1.5 時間で強熱した石英繊維フィルターを用いてサンプリングし、サンプリングしたフィルターのうち 1/4 をそのままカーボンアナライザー (住友化学, NC-80) で分析しトータルカーボン (T.C.) を、1/4 を 300℃30 分間加熱し有機炭素 (O.C.) を燃焼させた後、エレメンタルカーボン (E.C.) を分析した⁶⁾。なお、各成分の検出限界は 10μg (炭素成分)、0.1mg/L (イオン成分)、10ng/L (重金属成分) であった。

3. 2 湖沼の水質調査

摩周湖においては、1998 年 8 月 22 日、10 月 7 日、1999 年 9 月 4 日に 0 (表層)、2, 5, 10, 20, 50, 100, 200m の 8 層でバンドン式採水器 (5L) (1998 年 8 月、10 月)、ゴーフロー式採水器 (10L) (1999 年 9 月) を用いて採水を行った。また、1999 年 11 月 11 日に表層水のみを採水した。倶多楽湖においては、1999 年 10 月 20 日及び 25 日に 0 (表層)、1, 2, 5, 10, 15, 20, 30, 50, 80, 120m の 11 層で採水を行った。採水した湖沼水はポリプロピレン製容器 (NALGENE, 250ml) に 2 本保存し、重金属成分測定用の容器は硝酸濃度が 1% になるように、超高純度硝酸を添加した。採水した湖沼水中の水溶性成分及び重金属成分濃度を 3. 1 節と同様にイオンクロマトグラフ、ICP-MS で分析した。

3. 3 大気汚染負荷量の算出と湖沼水質への影響評価

美羅尾山山頂において、大気エアロゾルのサンプリング期間に合わせて大気降下物全量採取器 (柴田科学器械, W-102) を用い、約 1 ヶ月ごとに大気降下物を採取した。採取した試料は、ポアサイズ 0.45μm のろ紙 (ADVANTEC, GF75, 47mmφ) で水溶性成分と不溶性成分にろ別し、水溶性成分貯留量及び不溶性成分量を測定した。また、ろ液をポリプロピレン製容器に 2 本保存し、重金属成分測定用の試料は硝酸濃度が 1% になるように超高純度硝酸を添加し、3. 1 節と同様にイオン成分をイオンクロマトグラフで、重金属成分を ICP-MS で分析し、沈着量を算出した。1999 年における月毎の沈着量の和から年間沈着量を算出し、摩周湖におけるより長期的な大気汚染負荷量を試算した。それをもとに、1981 年の環境庁による調査結果と本研究による結果により、湖沼水質への影響を評価した。倶多楽湖において、1999 年 10 月 20 日～25 日の 6 日間、大気降下物の採取を行い、またそれに合わせて湖水の採水を行った。その結果をもとに大気汚染負荷の湖沼水質への短期的な影響を評価した。

3. 4 汚染物質発生源の推定

美羅尾山において測定された大気汚染物質の排出源を推定するために、等温位面モデルを用いた後退流跡線解析を行った。解析には気象庁全球客観解析データを用いた。このデータのグリッド間隔は 1.25° であり、鉛直方向に 18 層に切られた格子点ごとの海面気圧、ジオポテンシャル高度、気温、湿度、風速の水平及び鉛直方向のデータがグリニッジ標準時で 0, 6, 12, 18 時に対応して記録されている。本研究においては、美羅尾山上空 850hPa を出発点高度として、5 日間計算を行った⁷⁾。

4. 結果及び考察

4. 1 大気汚染の現況調査

美羅尾山山頂で測定された TPM (1.3～6.1)、エレメンタルカーボン (0.27～1.5)、有機物 (0.29～2.8)、イオン成分濃度 (SO₄²⁻; 0.56～2.1) (単位: μg/m³) 及び SO₂ ガス濃度 (0.17～1.8ppbv) には明確な季節変動は見られなかった (図 4)。

札幌市における TPM は 11～35⁸⁾、二セコで 5～10⁹⁾、沖縄辺

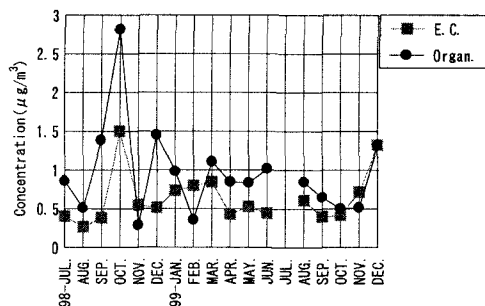


図 4 エアロゾル各成分の季節変化

戸岬で3~11¹⁰⁾ (単位: $\mu\text{g}/\text{m}^3$) であり、日本の他のバックグラウンド地域と同程度かそれ以下であった。エアロゾル中の重金属成分濃度は Pb: 0.13~6.1, Zn: 0.38~7.2, Ni: 0.023~0.51, Cu: 0.022~0.29, V: 0.10~0.51, As: 0.079~1.1, Cd: 0.020~0.16 (単位: ng/m^3) であった。上記の成分は、冬期に濃度が増加する傾向が見られた(図5)。これは、北海道西部の清浄地域である二セコ⁹⁾でも同様の傾向が見られた。

沖縄辺戸岬¹⁰⁾における大気エアロゾル中の重金属成分の測定結果は、Pb: 0.3~13, Zn: 0.5~45, Ni: 0.15~0.95, Cu: 0.14~1.64, V: 0.3~1.2 (単位: ng/m^3) であり、北海道のバックグラウンド地域の方が沖縄のバックグラウンド地域より濃度が低かった。

4. 2 湖沼の水質調査

図6に1999年9月4日の摩周湖水の重金属成分の鉛直分布を示す。摩周湖水中の重金属成分濃度は、表層付近で濃度が高い傾向が見られた。倶多楽湖についても摩周湖と同様に表層付近の濃度が増加する傾向が見られた。これは、両湖沼とも濃度の減少している深さ付近に温度躍層が発達していたため、大気から入ってきた汚染物質が表層付近に滞留したことが考えられた。国立公害研究所による摩周湖水の測定結果³⁾を見ると、温度躍層の発達していない6月に測定した値は全層ほぼ一定の値をとっていた。しかし、温度躍層の発達した8、9月に測定した値は表層濃度が高くなっていた。このことを考慮に入ると、温度躍層による影響が強いことが考えられた。

また、1981年の国立公害研究所の測定結果(Ti, Al, Fe, Mn, Zn, Pb, Cu, Cd, V, Ni)³⁾と比較すると、Zn, Ni, V, Cuといった重金属成分は、全層を通じて濃度が若干増加していた。

4. 3 大気降下物の測定と湖沼に与える影響

水溶性成分の沈着量については、イオン成分(SO_4^{2-} ; 24~465 $\text{mg}/\text{m}^2/\text{month}$)、重金属成分(V; 4.4~75, Cr; 7.0~303, Ni; 8.0~871, Cu; 12~283, Zn; 272~8604, As; 4.4~54, Cd; 1.5~31, Pb; 6.7~4661, 単位: $\mu\text{g}/\text{m}^2/\text{month}$) 共に明確な季節変動が見られなかった。不溶性成分の重金属成分の沈着量は全体的に冬期から春期にかけて増加する傾向が見られた(図7)。水溶性成分と不溶性成分の沈着量を加えた各月の沈着量を見ると、冬期から春期にかけて沈着量が増加する傾向が見られた。また、

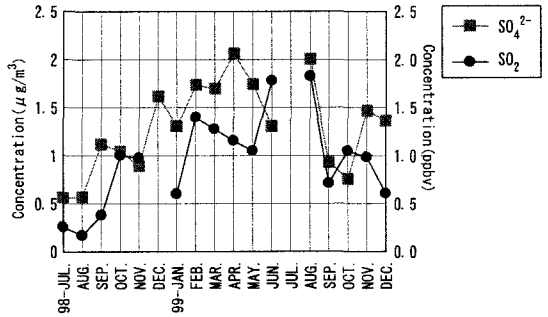


図4 エアロゾル各成分の季節変化

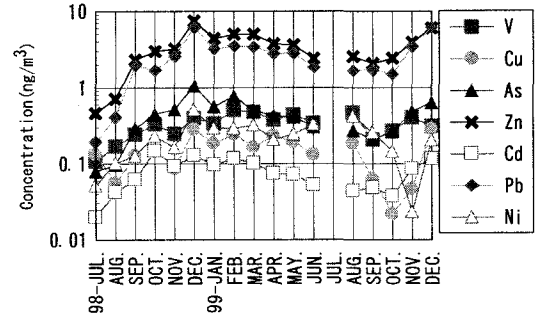


図5 エアロゾル重金属成分の季節変化

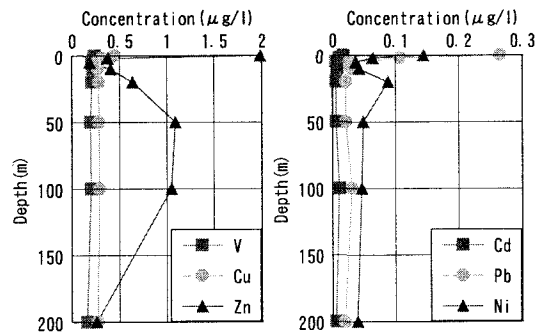


図6 摩周湖水中重金属成分の鉛直分布

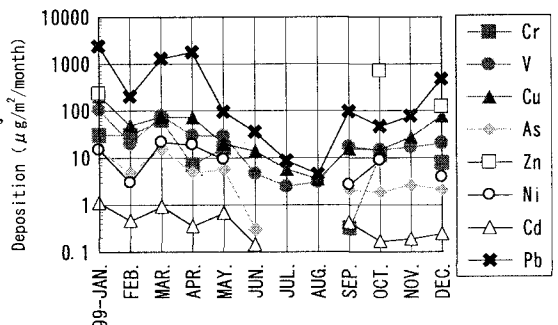


図7 不溶性成分中重金属成分の沈着量の季節変化

水溶性成分の貯留量が多かった月に沈着量が増加する傾向が見られた。

本研究の測定結果をもとに、各月の水溶性成分と不溶性成分との沈着量の和から算出した 1999 年の年間沈着量を表 2 に示した。表に示すように、1981 年から濃度増加の見られた Zn, Ni, V, Cu は年間 1m² 当たり各々 31, 2.2, 0.63, 1.7mg 沈着していることがわかった。

1999 年の年間沈着量が、1981 年から 1999 年までの各年の年間沈着量と等しいと仮定した場合における沈着負荷量は、摩周湖湖面面積当たり Zn : 11t, Ni : 783kg, V : 220kg だった (表 3)。摩周湖水中の全層平均濃度は 1981 年³⁾において Zn : 0.58, Ni : 0.024, V : 0.15 (単位 ; $\mu\text{g/L}$)、1999 年において Zn : 2.0, Ni : 0.028, V : 0.26 (単位 ; $\mu\text{g/L}$) であったことから、大気汚染負荷によりこれらの物質濃度がほぼ横ばいもしくは増加したことが考えられた (表 4)。しかし、Pb や Cd といった成分のように沈着負荷があるにもかかわらず減少しているものもあるが、これらの成分は底泥への沈降等の影響により減少していたと考えられた。

倶多楽湖においては、10 月 20 日と 10 月 25 日の間に沈着した大気降下物が表層でとどまると仮定した。このように仮定すると、採水間隔の 6 日間で、20 日の表層濃度が大気降下物濃度より高ければ、25 日の表層濃度は減少し、低ければ表層濃度は増加することになる。今回の測定において、表層の Cd, Pb の濃度が大きく変化した (Cd : 0.024 $\rightarrow$ 0.053, Pb : 0.21 $\rightarrow$ 0.47 (単位 ; $\mu\text{g/L}$))。そのときの大気降下物中の濃度は Cd : 0.050, Pb : 0.37 (単位 ; $\mu\text{g/L}$) で、6 日間の沈着量は Cd : 0.92, Pb : 6.1 (単位 ; g) であった。逆に、As は、0.82 $\rightarrow$ 0.80 $\mu\text{g/L}$ (降下物濃度 ; 0.15 $\mu\text{g/L}$) と表層濃度が減少した (表 5)。その結果、表層濃度は大気汚染負荷により増加もしくは減少したことが示唆された。また、大気降下物中の濃度より表層の濃度が高かったり低かったりした原因として、蒸発による濃縮等の影響が考えられた。ただし、長期的には底泥への沈降や湖沼の循環などにより、その影響は緩和されることが考えられた。

表 2 摩周湖における 1999 年の年間沈着量 (単位 : mg/m²/year)

	V	Cr	Ni	Cu	Zn	As	Cd	Pb
沈着量	0.63	1.0	2.2	1.7	31	0.32	0.096	15

表 3 摩周湖における 1981 年から 1999 年までの沈着負荷量の試算値 (単位 : kg)

	V	Cr	Ni	Cu	Zn	As	Cd	Pb
沈着負荷量	220	361	783	587	10814	111	34	5360

表 4 1981 年と 1999 年の摩周湖水中の重金属成分の全層平均濃度 (単位 : $\mu\text{g/L}$)

	V	Cr	Ni	Cu	Zn	As	Cd	Pb
1981 年 ³⁾	0.15	—	0.024	0.063	0.58	—	0.060	0.072
1999 年	0.26	0.22	0.028	0.36	2.0	0.23	0.050	0.065

表 5 倶多楽湖における 10 月 20, 25 日の表層濃度、6 日間の大気降下物濃度 (単位 : $\mu\text{g/L}$) 及び沈着量

	V	Cr	Ni	Cu	Zn	As	Cd	Pb
10 月 20 日	0.43	0.12	0.91	1.2	6.6	0.82	0.024	0.21
10 月 25 日	0.46	0.24	0.78	2.7	8.0	0.80	0.053	0.47
降下物濃度	0.21	0.42	1.4	0.89	37	0.15	0.056	0.37
沈着量 (g)	3.4	6.8	23	15	614	2.4	0.92	6.1

4. 5 汚染物質排出源の推定

5 日間後退流跡線解析により、摩周湖周辺に流入してくる気塊の流跡線が冬期と夏期では大きく異なっていることがわかった (図 8)。夏期は東シナ海方面から日本列島、朝鮮半島、中国北東部を通過する気塊が卓越していた。夏から秋にかけて徐々にロシア東部からの気塊が卓越し、冬期には中国北部、ロシアといった大陸方面からの気塊の流入が卓越していた。また、これらの気塊はロシアの人為排出起源と考えられる都市上空を通過していたことも分かった。本研究における摩周湖周辺の大気エアロゾルの測定の結果、冬期に重金属成分濃度が増加していたことから、これら大陸方面を排出源とする大気汚染物質が摩周湖周辺大気にも影響を及ぼしていることが考えられた。

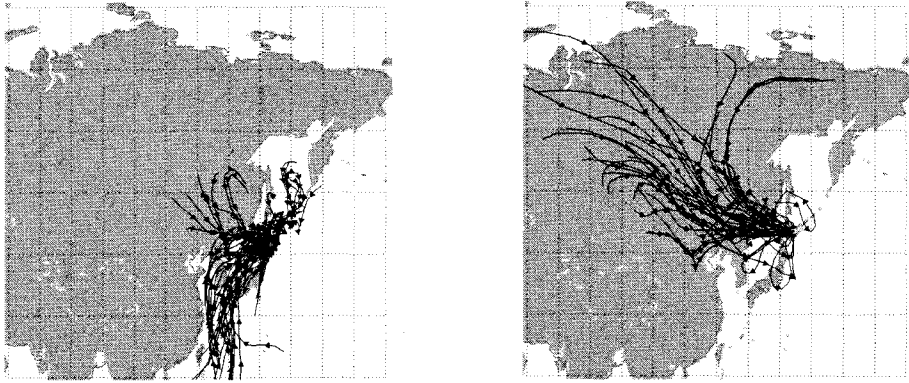


図8 流跡線解析結果（左：97年8月1～15日，右：98年12月1～15日）

5. おわりに

1998年7月から1999年12月まで、大気汚染物質の湖沼水質に与える影響について研究を行った。摩周湖周辺の大気エアロゾル中の人為起源と考えられる重金属成分は冬期に濃度が増加する傾向が見られた。湖沼水は成層期における測定だったため、表層付近で濃度が増加している成分が多かった。大気降下物の不溶性成分の重金属成分沈着量は、冬期に増加する傾向が見られた。大気降下物の沈着量から、摩周湖への沈着負荷量を試算し、1981年の調査結果と本研究における測定結果を比較した。測定した成分は、1981年の濃度と同程度もしくは増加しており、沈着負荷による影響があったことが考えられた。また、大気汚染負荷の短期的な影響を評価したところ、表層濃度が大気降下物濃度により影響を受けていたことが考えられた。排出源の推定を行い、冬期に大陸方面からの気塊が摩周湖周辺に汚染物質が流入することがわかった。これらの気塊が、冬期に人為起源と考えられる成分の濃度を増加させていたことが考えられた。

今後は、継続調査によるデータの蓄積、湖沼の流入流出モデルを用いた沈着負荷の影響評価、摩周湖上空に影響を与えている気塊の排出源地域の特定をしていきたい。

謝辞

摩周湖の水試料を北見工業大学の厚谷郁夫学長、南尚嗣助教教授他に提供していただきました。また、大気汚染物質のサンプリングにおいて、北海道開発局釧路開発建設部機械通信課に施設利用を許可していただきました。心より謝意を表します。

参考文献及び引用文献

- 1) 村野健太郎 (1998) アジア大陸からの越境大気汚染研究, 環境技術, pp.771-776
- 2) 鶴野伊津志 (1997) 東アジアスケールの長距離輸送・変質過程のシミュレーション, 大気環境学会誌, pp.267-285
- 3) 田中敦, 相馬光之編 (1993) 摩周湖 1980-1992 調査概要と資料, 国立公害研究所
- 4) L.M.Jalkanen, E.K.Häsänen (1996) Simple Method for the Dissolution of Atmospheric Aerosol Samples for Analysis by Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry, Journal of Analytical Atomic Spectrometry, Vol. 1, pp.365-369
- 5) Ferek R.J., Hegg D.A. (1991) An improved filter pack technique for airborne measurement of low concentrations of SO_2 , Journal of Geophysical Research, Vol.96, pp.22373-22378
- 6) Countess (1980) The Denver Winter Aerosols, A Comprehensive Chemical Characterization, Journal of Air Pollution Association, pp.1194-1200
- 7) Danielsen EF: Trajectories: Isobaric, Isentropic and actual J.Met., 18, pp.479-486
- 8) 堀雅裕 (1993) 微小大気エアロゾルの組成分析, 北海道大学卒業論文
- 9) N.Kaneyasu (1990) The Albedo Effect of Atmospheric Aerosols on Climate, 北海道大学大学院修士論文
- 10) 近藤浩毅 (1997) 沖縄海域大気エアロゾルの化学組成と光学特性, 北海道大学大学院修士論文 (1997)