

## 27. 福井における酸性降下物への火山の影響

### INFLUENCE OF VOLCANOES TO THE ACID DEPOSITION AT FUKUI

井上 頼輝\*

Yoriteru INOUE\*

**ABSTRACT** ; Air at Fukui in 1993 was traced by Inverse-Trajectory method. Air at Fukui comes from China mainland from October to next May when Siberian anticyclone is superior. In July and August air comes from Pacific Ocean, while June and September comes from almost all directions.  $\text{SO}_2$  load in East Asia was estimated by Akimoto et al<sup>3)</sup>. Using Eliassen's<sup>10)</sup> dispersion and chemical reaction formulae, origin of acid deposition to Fukui was estimated. Fukui is situated close to Japan Sea so that contribution of China mainland reaches up to 90%, but during the summer season no pollution comes from China. Not only artificial sources, but volcanoes discharge  $\text{SO}_2$  in the air. In Kyushu Islands amount of  $\text{SO}_2$  discharged is much more than artificial ones. Sakurajima, Aso and Suwanosejima are three main volcanoes whose  $\text{SO}_2$  release affects the acid deposition at Fukui. In 1993, maximum portion of volcanic vent to the total acid deposition at Fukui was about 40%.

**KEY WORDS** ; Acid Rain, Acid Deposition, Trajectory, Vent of Volcanoes

#### 1. はじめに

わが国の日本海側の空気は春先の黄砂を見てもわかるように、主として中国大陸より飛来する。中国はここ数年来 年率 10%近い盛んな経済成長をしていること、硫黄を多く含む低品位の石炭を主なエネルギー源としていること、福井は日本海に近く、中国大陸の影響を受けやすい位置にあることなどから、現在こそ被害は見られないが、将来は欧米や中国重慶地区のような酸性雨による深刻な被害を受けることが心配される。そこで前報<sup>1)</sup>では福井に到達する空気の由来を逆 Trajectory 解析により 1993 年の月ごとに推定した。結果を要約すると 10 月から翌年 5 月までの 8 ヶ月間は中国大陸から気団が福井に到達する。この間は大陸高気圧が優勢で、大陸では高気圧のため風は弱く、沿岸に近づくにつれて次第に速度を増し、日本海上は等圧線が混むために風速は大となる。夏の 7、8 月は太平洋高気圧が発達し、空気は太平洋上より到達する。5、9 月は夏と冬の季節の変わり目で空気はほぼ全方位からやってくる、などである。酸性降下物は主として硫黄酸化物 ( $\text{SO}_2$ ) と窒素酸化物 ( $\text{NO}_x$ ) から生成されるが、ここでは硫黄酸化物について、前報の結果を用いてわが国に飛来する人工硫黄酸化物のうち、日本、朝鮮半島、中国、台湾等に由来するものの割合を求める。これにより、これら各地域の今後の経済発展に従って福井に降下する酸性降下物原因物質がどのように変化するかを推定できるようになる。

また酸性降下物を考えるときに、人為発生による硫黄酸化物量の他に、火山から放出される天然硫黄酸化物も考えねばならない。特に日本は世界有数の火山国であり、わが国の火山噴火に伴う硫黄酸化物は人工放出量に匹敵すると言われている。福井に影響を及ぼすと考えられる桜島、阿蘇、諏訪之瀬島の三つの活火山からの硫黄酸化物が福井の酸性降下物に及ぼす影響につき 1993 年を例として推算する。

\*福井工業大学 建設工学科 Department of Construction Engineering, Fukui Institute of Technology

## 2. 硫黄酸化物負荷発生量

2. 1 人為起源 福井の酸性降下物に関係する  $\text{SO}_2$  は主として東アジアより発生するものである。これについては藤田等<sup>2)</sup>、秋元等<sup>3)</sup>、東野等<sup>4)</sup>らの推計がある。藤田等は日本、中国、韓国、朝鮮民主主義人民共和国（北朝鮮）、台湾の5か国について1986年の $\text{SO}_2$ 発生量を求めている。秋元等はこれより広い北緯 $10^\circ$  -  $55^\circ$ 、東経 $60^\circ$  -  $150^\circ$ を $1^\circ \times 1^\circ$ のgridに切り、1970、1980、1987年の3ヵ年について $\text{SO}_2$ 、 $\text{NO}_x$ 、 $\text{CO}_2$ の発生量を求めている。東野等も中国について藤田等、秋元等の方法を改良し、省別のデータも入れて $80\text{ km} \times 80\text{ km}$ と $1^\circ \times 1^\circ$ のgridにつき推計している。東野等の推計によると中国では石炭燃焼が $\text{SO}_2$ 排出量の実に9割を占め、四川、山東、江蘇3省の負荷が頭抜けて高い。どの推計も北朝鮮のデータが他の地域に比べて乏しく、精度は落ちるようである。なお全世界につきSpiro et al<sup>5)</sup>、松岡<sup>6)</sup>などが同様の推計をしている。東アジアにつき推計した藤田等、秋元等、東野等の結果を比較すると、燃料中硫黄含有率、燃焼による $\text{SO}_2$ 排出係数の取り方などに差があるために少しずつ数値は違っているが、本研究の目的とする福井の酸性降下物に占める人工硫黄酸化物量の推定にはどれを取っても結果に大きな差は出ない。そこで本報では秋元等の推計を用いた。

2. 2 天然起源 天然起源の硫黄酸化物負荷は主として火山によるものである。わが国では、九州大学の太田らのグループが、桜島、伊豆大島、阿蘇山、浅間山などの火山を対象にして $\text{SO}_2$ 放出量の観測を続けてきた<sup>7)</sup>。藤田<sup>8)</sup>らは、国内の活火山を数グループに分類し、既往の観測データからこれらの火山の平均的な $\text{SO}_2$ 放出率を推定し、さらにわが国全体からの放出量を求めた。主要な12火山からの定常的な $\text{SO}_2$ の放出量は約 $0.55\text{ TgS/y}$ と推定され、阿蘇山の活動が活発であった1989年には、 $1.0\text{ TgS/y}$ 近い $\text{SO}_2$ が放出されていた可能性がある。わが国の火山から定常的に放出される $\text{SO}_2$ の年量は、全地球放出量の6～7%に相当するものとみられる。これらの火山の中で最も多くの $\text{SO}_2$ を放出しているのは、九州の南端にある桜島（ $723\text{ Gg SO}_2/\text{y}$ ）であり、次いで放出ガスが福井に影響すると考えられるのは阿蘇（ $135\text{ Gg SO}_2/\text{y}$ ）と諏訪之瀬島（ $115\text{ Gg SO}_2/\text{y}$ ）である。

## 3. 硫黄酸化物の長距離輸送

3. 1 火山の放出する硫黄酸化物の拡散輸送 硫黄酸化物の多くは $\text{SO}_2$ の形で大気に放出され、大気中で移流拡散を受けながら酸化されて酸性降下物原因物質の硫酸になる。また沈降により物理的にも大気中より除去される。 $\text{SO}_2$ が $\text{SO}_4$ に酸化されるのは半減期2～3日の非常に遅い反応で、この間に気団はおおまかに言って西から東に一日あたり数百km移動する。このような長距離輸送に対して多くのモデルが提案されているが、その中から現象に忠実で合理性を持つばかりでなく、全体の精度とのバランスが良いEllenton et al<sup>9)</sup>の米国での移流拡散について提案したモデルを火山などの点線源について採用する。彼らは汚染物質の物理的、化学的変化がなかった時、汚染物質が風下のある点に到達する確率 $X_i$ を次式で与えている。

$$X_i = \frac{Q_i}{Hu\sqrt{2\pi}\sigma_y} \cdot \exp\left(-\frac{y^2}{2\sigma_y^2}\right)$$

$$\sigma_y^2 = \sigma_{y0}^2 + (\alpha X_L^\beta)^2$$

ここに  $Q_i$ :  $\text{SO}_2$ の放出量 (t/d)、 $H$ : 混合層の厚さ(km)、 $u$ : 平均風速(km/d)  $\sigma_y$ : 拡散幅(km)  $\sigma_{y0}$ : 初期拡散幅(km)、 $\alpha$ 、 $\beta$ : 拡散に関する定数である。発生した $\text{SO}_2$ はTrajectoryに沿って拡散・希釈を受けながら福井に到達するが、同時に $\text{SO}_4$ への酸化と、沈着により変質・除去される。その過程は

$$\frac{d(\text{SO}_2)}{dt} = -\left(\frac{Vd}{H} + k_i + k_w\right)(\text{SO}_2) = -k_A(\text{SO}_2)$$

$$\frac{d(\text{SO}_4)}{dt} = 1.5k_i(\text{SO}_2) - k_B(\text{SO}_4)$$

で示せる。ここに  $(SO_2)$ 、 $(SO_4)$  はそれぞれ  $SO_2$  と  $SO_4$  の濃度 ( $t/km^3$ ) である。

また Parameter は Eliassen<sup>10)</sup> の与えた数値とともに示す。

$k_t$  : 気体状  $SO_2$  から粒子状  $SO_4$  への化学変化速度係数 ( $2 \times 10^{-6}$  1/秒)

$k_w$  :  $SO_2$  の湿性沈着速度係数 ( $3 \times 10^{-6}$  1/秒)

$v_d$  :  $SO_2$  の沈着速度 ( $8 \times 10^{-3}$  m/秒)

$k_A = \frac{Vd}{H} + k_t + k_w$  :  $SO_2$  の減衰速度係数

$k_B$  :  $SO_4$  の減衰速度係数 ( $4 \times 10^{-6}$  1/秒)

これを解くと

$$(SO_2) = (SO_2)_0 \exp(-k_A t)$$

$$(SO_4) = (SO_4)_0 \exp(-k_B t) + \frac{1.5k_t(SO_2)_0}{k_A - k_B} \{ \exp(-k_B t) - \exp(-k_A t) \}$$

ここに、 $(SO_2)_0$ 、 $(SO_4)_0$  は初期濃度である。 $SO_2$ 、 $SO_4$  濃度に Trajectory に沿って飛来する  $SO_2$  の確率を乗じることにより、移流・拡散と変質・除去を考慮した  $SO_4$  の濃度が求められる。なお初期には  $SO_4$  は存在しなかったとする。

### 3.2 人工硫酸化物の拡散輸送

人工硫酸化物負荷発生量を秋元等のように東経  $1^\circ$  x 北緯  $1^\circ$  の grid で与えるとき、線源よりは面源の性質を持つ。Eliassen<sup>10)</sup> は OECD の欧州における酸性雨原因物質長距離輸送のモデルとして面源からの  $SO_2$  の発生の場合には、面源において混合層内で完全混合が起ると仮定し、以後拡散は起こらないとして変質と沈着除去を受けながら輸送される式を提案した。面源を単位面積のグリッドに切り、そこでの硫酸化物の発生量を  $Q_i(t/km^3d)$  また発生源で完全混合を仮定しているが、このうち a だけは発生源で沈着除去されるとし、また b は  $SO_2$  でなく  $SO_4$  として放出されるとして、 $a=0.15$ 、 $b=0.05$  を与えた。Trajectory がグリッド i を通過する時間を  $\Delta t_i$  また Trajectory の最終端 (福井) に到達する時間を  $t_f$  としたとき、解析的に次の式が得られる。

$$(SO_2) = (SO_2)_0 \exp(-k_A t_0) + \sum_{i=0}^{N-1} \frac{Q_i \Delta t_i}{H} (1-a-b) \exp(-k_A t_i)$$

$$(SO_4) = (SO_4)_0 \exp(-k_B t_0) + \frac{3k_t}{2(k_B - k_A)} \sum_{i=0}^{N-1} \frac{Q_i \Delta t_i}{H} (1-a-b) \{ \exp(-k_B t_i) - \exp(-k_A t_i) \} +$$

$$\frac{3}{2} \sum_{i=0}^{N-1} \frac{Q_i \Delta t_i b}{H} \exp(-k_B t)$$

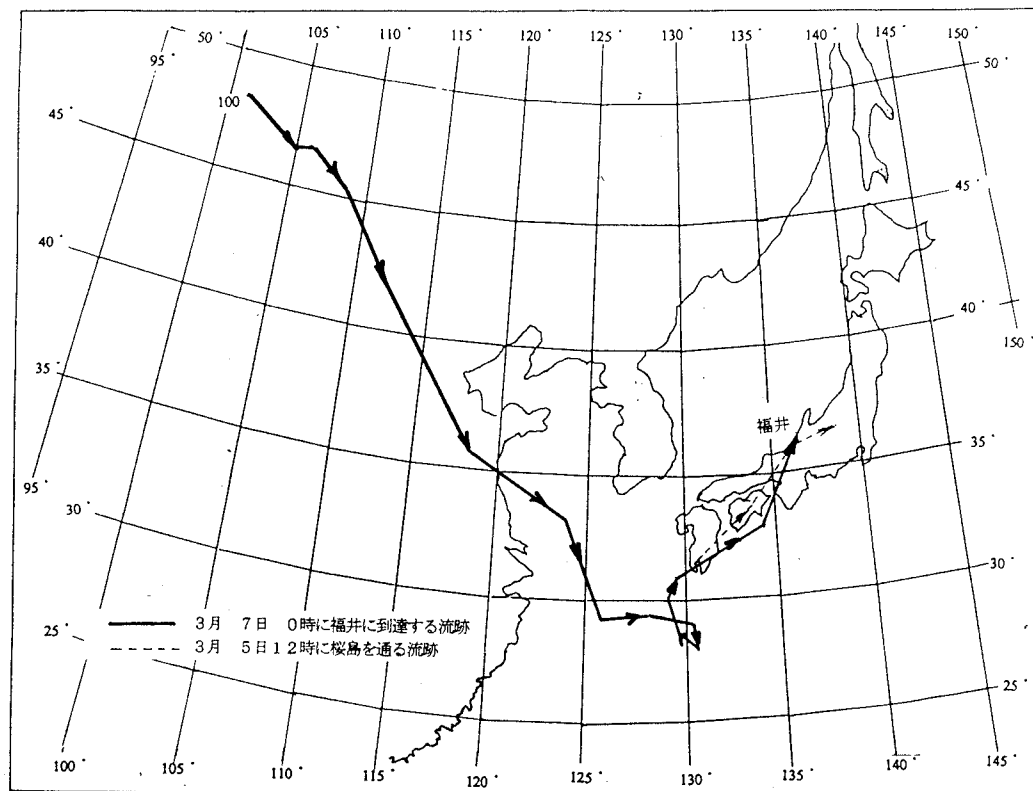
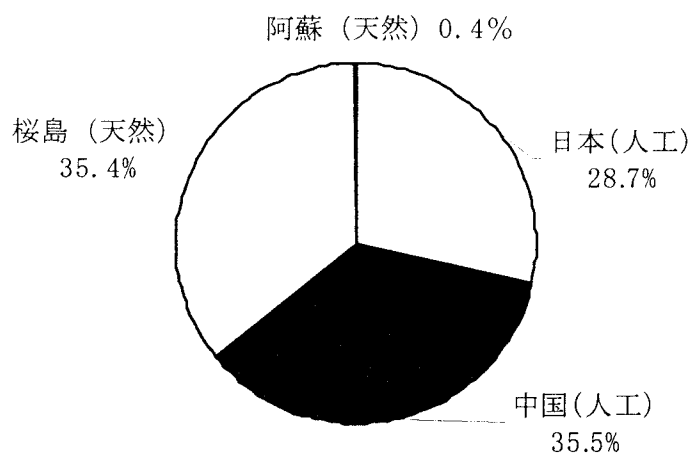
ここで、 $t_0$  は Trajectory の風上端から風下端までの移動時間を示す。汚染物質の移流の計算は流積線がその上を通った発生源だけをたし合わせる手法がとられている。

## 4. 計算と結果

### 4.1 計算方法と3月の結果

天然の  $SO_2$  発生源である火山のうち、福井に影響を与える可能性があり、かつ放出量の多いものは藤田等<sup>8)</sup> によると桜島 (723Gg/y)、阿蘇 (135Gg/y)、諏訪之瀬島 (115Gg/y) の3火山であり、そのうち桜島が74%と圧倒的大量の  $SO_2$  を放出している。そこで桜島火山からの  $SO_2$  の福井への影響を検討する。桜島から福井に向けて風が吹くのは7、8、9月の夏に多いが、その他の月も12月を除いて一日程度は桜島の近くを通っている。例として1993年3月7日の流跡と、火山と人工起源の  $SO_2$  負荷の福井に対する寄与を図-1に示す。この日の空気は中国大陸から九州、四国、近畿を通って福井に達している。人為起源の  $SO_2$  の負荷は秋元が  $1^\circ$  x  $1^\circ$  の grid で与えており、点源より面源と考えたほうが良いので、Eliassen の式<sup>10)</sup> を使用した。火山の  $SO_2$  放出は点源であるので Ellenton 等<sup>9)</sup> の式を

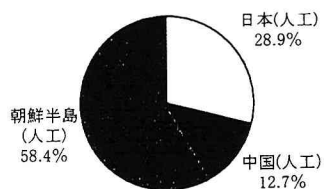
福井における天然および人工酸性降下物  
1993年3月7日



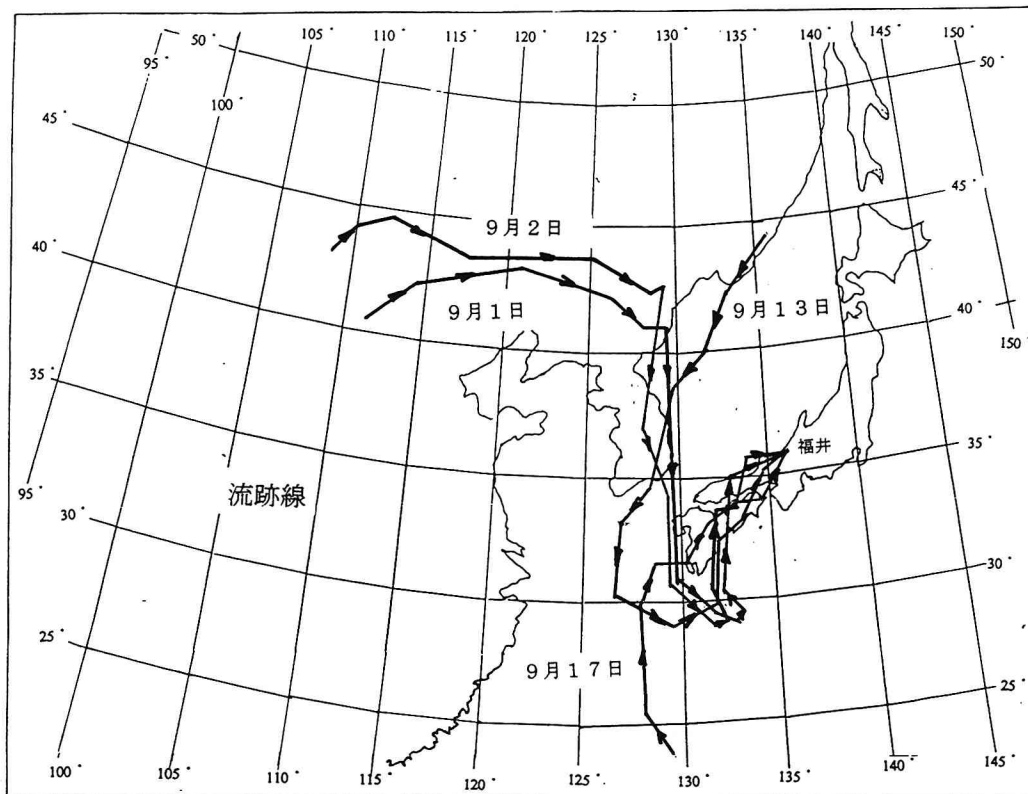
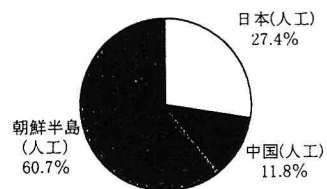
図－1 福井における酸性降下物への天然と人工硫酸化物の寄与

3月7日

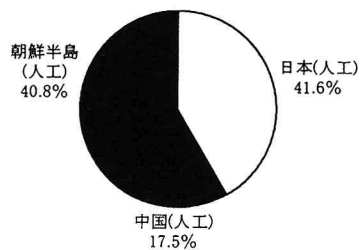
福井における天然および人工酸性降下物  
1993年9月1日



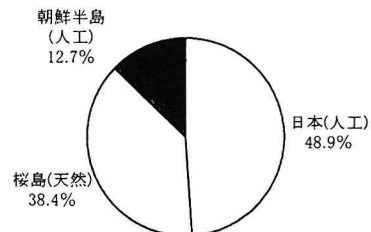
福井における天然および人工酸性降下物  
1993年9月2日



福井における天然および人工酸性降下物  
1993年9月13日



福井における天然および人工酸性降下物  
1993年9月17日



図－2 福井における酸性降下物への天然と人工硫黄酸化物の寄与

1993 年 9 月

用いて計算した。福井への酸性降下物原因物質は天然起源である桜島の火山と、人為起源である日本と中国の寄与がそれぞれ約1/3づつをなしている。

4. 2 7,8,9月の結果 桜島等の火山の影響が考えられる7,8,9月についても同様の計算を行った。一例として9月の場合を図-2に示す。流跡が桜島の近くを通ったのは9月1, 2, 13, 17日の4日である。そのうち桜島の影響が顕著であったのは9月17日の場合で全負荷の38.4%を占めていた。あまり拡散幅が広がらないので空気が桜島のごく近くを通らないと影響が少ないようである。

## 5. まとめと今後の課題

福井の酸性降下物に占める人工硫黄酸化物について見ると

1. 福井における酸性降下物原因物質に占める中国の割合は大きい。
2. 気団が朝鮮半島の上を通って来るときは朝鮮半島の寄与も大きくなる。
3. 福井は海に近く、気団が日本海上から直接到達することが多いために、日本の寄与は4.の場合を除いて大きくないが、気団が瀬戸内海などの西日本を通るときは無視できない。
4. 夏は気団が太平洋上より来るために、日本の寄与がほぼ100%になる。
5. 各国の寄与の割合は、その日のTrajectoryによって大きく変化する。

ことがわかった。人工ばかりでなく天然起源、ことに火山噴気による硫黄酸化物の負荷も存在する。SO<sub>2</sub>負荷発生量のうち九州から人為的に発生するものは、秋元等によると約120Gg/年なのに対し、太田によると桜島火山一つで723Gg/年と約6倍の放出量がある。このため風向きによっては、天然起源である火山の影響を無視できない時があるようであり、1993年についての計算では全負荷のうち最大1/3を占めることがある事を知った。特に日本は、世界有数の火山地域であり我が国の火山に伴う天然硫黄酸化物の影響は大きい。

## 参考文献

- 1) 井上 頼輝：“福井における酸性降下物の由来” 土木学会第6回地球環境シンポジウム講演論文集 79-84頁 (1998)。
- 2) S. Fujita Y. Ichikawa R. K. Kawaratani and Y. Tonooka : “ Preliminary Inventory of Sulfur Dioxide Emission in East Asia”, Atmospheric Environment 25, 1409-1411 (1991).
- 3) H. Akimoto and H. Narita : “Distribution of SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub> and CO<sub>2</sub> Emission from Fuel Combustion and Industrial Activities in Asia with 1x1 Resolution”, Atmospheric Environment 28, 213-225 (1994).
- 4) 東野 晴行、外岡 豊、柳沢 幸雄、池田 有光：“東アジア地域を対象とした大気汚染物質の排出量推計-中国における硫黄酸化物の人為起源排出量推計-” 大気汚染学会誌 30, 374-390 (1995) .
- 5) P. A. Spiro, D. J. Jacob and J. A. Logan : “Global Inventory of Sulfur Emissions with 1° x 1° Resolution” Jour. Geophysical Research 97, 6023-6036 (1992).
- 6) 松岡 譲：“人為起源硫黄酸化物による地球規模的な環境影響について” 環境システム研究 20, 142-151 (1992).
- 7) 太田 一也、清水 洋：“桜島火山における二酸化硫黄放出量の推移”、第7回桜島火山の集中総合観測、京都大学防災研究所 77-80(1989)
- 8) 藤田 慎一、外岡 豊、太田 一也：“わが国における火山起源の二酸化硫黄の放出量の推計”、大気汚染学会誌、27, 336-343(1992)
- 9) G. Ellenton, B. Ley and P. K. Misra : “ A Trajectory Puff model of Sulfur Transport for Eastern North America” Atmospheric Environment 19, 727-737 (1985).
- 10) Anton Eliassen : “ The OECD Study of Long Range Transport of Air Pollutants: Long Range Transport Modeling” Atmospheric Environment 12 479-487 (1978).