

三宅島火山ガスが愛知県内の大気および 降水中の硫黄酸化物濃度に与える影響*

大塚 治子**・井上 広史**・古田 正次**

キーワード

①硫黄酸化物 ②火山ガス ③三宅島 ④酸性雨
⑤浮遊粒子状物質 ⑥大気汚染常時監視

要 旨

2000年8月以降1年間の常時監視による愛知県内の二酸化硫黄濃度の時間変動において、明らかに三宅島火山ガスの影響と考えられる二酸化硫黄濃度の上昇(2局以上で50ppb以上)は20例以上が観測された。各地域から選出した11測定局の2000年8月以降の二酸化硫黄の年平均濃度(6.9ppb)は、前年に比べて約1.7ppb上昇していた。

火山ガスは、北東太平洋上の高気圧の外縁に沿う形で県域に達する場合が多く、東南東の暖湿流の流入により、二酸化硫黄濃度の上昇に続いて降雨のある事例が多かった。これらの降水は、平時に比べると水素イオンと硫酸イオンの濃度が高く、酸性物質としては硫酸の寄与が大きくなっていた。水素イオンと硫酸イオンの湿性沈着量は増加していることが概算された。

火山ガス影響時には、浮遊粒子状物質にも二酸化硫黄と類似する濃度変動が見られた。この時の浮遊粒子状物質中の硫酸イオンは約30%と平時の約10%に比べて高くなっていた。

1. はじめに

2000年7月に噴火した三宅島雄山からの火山ガスの放出は同年8月18日以降活発化し、世界でも観測例がないとされる大量の二酸化硫黄の放出が継続している¹⁾。この火山ガスの本州陸域への影響は、初め関東地方で“異臭事件”として取り上げられたが、気象条件によっては三宅島の北西から西北西200~300kmに位置する愛知県にも移流してくる。東海豪雨直後の2000年9月13~15日には、100ppbを超える二酸化硫黄濃度が県内各地で観測され、それ以降、本県においても監視や情報提供の体制が強化されている。この三宅島火山

ガスの影響により、2000年度の愛知県における二酸化硫黄濃度の環境基準達成率は44%で21年ぶりに100%を下回った²⁾。

8月18日以降の三宅島火山ガスはマグマから直接もたらされる高温タイプに分類されている。その主成分は二酸化硫黄であり、二酸化炭素や塩化水素のほか硫化水素も二酸化硫黄の10~20%程度含むとされている³⁾。これらの一部は移流拡散する過程で光化学反応などにより酸化され硫酸ミストに変化することが考えられる。また二酸化硫黄は水に比較的溶けやすい⁴⁾ことなどから、大気環境への影響としては、二酸化硫黄濃度の上昇のほ

*Influence of Volcanic Gases from Miyake Island on Concentrations of Sulfur Oxides in the Air and Wet Deposition in Aichi Prefecture

**Haruko Otsuka, Hirofumi Inoue and Masaji Furuta

¹⁾ (愛知県環境調査センター) (Aichi Environmental Research Center)

か、降水の酸性化、粒子状硫酸塩の増加なども考えられる。

本報告では、愛知県における2000年8月以降1年間の常時監視による二酸化硫黄濃度の変動を調べた。また降水や浮遊粒子状物質の性状を調べ、三宅島火山ガスの大気環境への影響を検討した。

2. 方 法

二酸化硫黄濃度の検討は、愛知県大気汚染常時監視網全66測定局の中から、各地域を代表するような11局を選び(図1)、その時間値を対象として行った。検討期間は三宅島の火山活動が活発化した2000年8月以降の1年間である。

降水の採取は、気象条件や二酸化硫黄濃度の変動から火山ガスの影響を考慮しつつ、愛知県環境調査センター(当所)屋上(名古屋市北区:図1)において手動により行った。降雨直前に採取容器を設置し、一雨の全量と、HORIBA製レインゴランドⅡによる1mmごとの分別採取を行った。採取期間は2001年5月下旬から同年9月である。

降水のpHはHORIBA製F-22型pHメータにより、導電率は東亜製CM-40S型導電率計により、また主要イオン濃度はイオンクロマトグラフィー(YOKOGAWA IC7000)により測定した。解析に用いた降水量、二酸化硫黄濃度等の時間値データは当所に設置された自動測定器による値を用いた。

浮遊粒子状物質の検討は、日進局(日進市、図1)を対象とし、 β 線式質量濃度計による測定済みのガラス繊維ろ紙を用いた。日進局は濃尾平野北東部の丘陵住宅地域にあり、夏季には海風が進入する先端域に位置している。分析は、1時間ごとの浮遊粒子状物質が付着したろ紙に10mlの純水を加え、50℃に加温後、超音波抽出(10分)し、粒子状の硫酸イオンと関連イオンをイオンクロマトグラフィー(YOKOGAWA IC7000)により測定した。同一ろ紙の未使用部分を同様に処理し、ブランクとした。

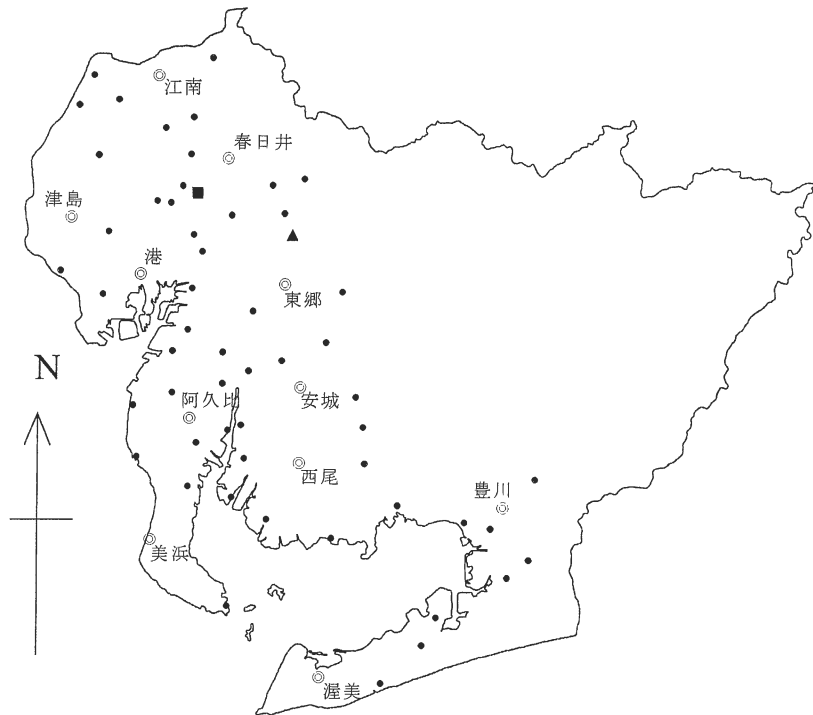


図1 愛知県内の二酸化硫黄測定局(・)
 ◎: 選定11局, ■: 降雨調査局(環境調査センター)
 ▲: 浮遊粒子状物質調査局(日進局)

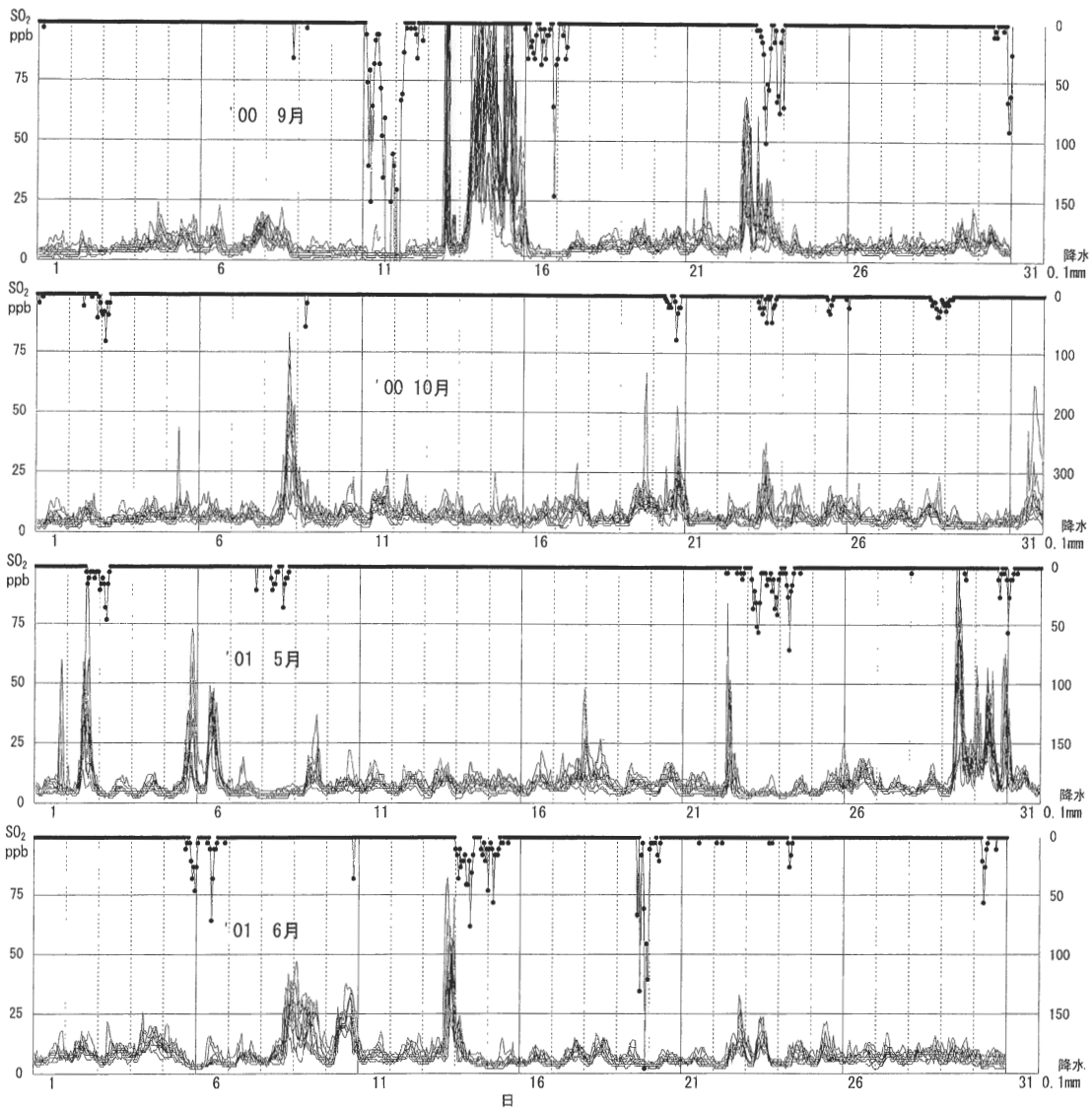


図2 選定11局の二酸化硫黄濃度(—)と環境調査センターにおける降水量(●—●)の時間変動(2000年9月10月, 2001年5月6月)

3. 結果と考察

3.1 二酸化硫黄濃度の変動

11測定局(図1)における二酸化硫黄濃度の時間値の変動の例を図2に示した。これらの二酸化硫黄濃度の変動から、2局以上で50ppb以上を示した時を三宅島火山ガスによる高濃度時として抽出し、表1にまとめた。2000年8月以降の1年間に、2日間にわたるものも含めて高濃度の事例

は22あった。また1局で50ppb以上を示した事例も5回あり、それらは表1の別枠に示した。最高濃度は県管理測定局全体で、673ppb(瀬戸市)²⁾であった。

各事例について、高濃度の県域での出現状況や気象条件を検討した結果は別報⁵⁾にまとめた。ここでは概要を示す。

高濃度域は、見かけ上、県域を南東から北西に

表1 二酸化硫黄の高濃度事例*) (2000/08~2001/07)

事例 No.	年月日	SO ₂ 最高濃度		出現地域や県域通過の方向
		ppb	時間帯	
1	2000/08/30	81	12~13	SE→NW
2	2000/09/13	303	11~17	SE→NW
3	2000/09/14-15	156	8~2	SE→NW
4	2000/09/15	409	8~19	県央部→NW
5	2000/09/22-23	69	16~23	SE→NW
			4	県央部→SW
6	2000/10/08	83	15~20	県央部
7	2000/11/07	91	8~13	全県
8	2001/03/22	59	11~12	SE→NW
9	2001/03/24-25	67	14~16	SE→NW
			20~1	NE→SW
10	2001/04/08	166	10~17	県央部→NW
11	2001/04/09	60	11~13	SE→NW
12	2001/04/18	59	10~11	中北部→NW
13	2001/05/02	99	11~15	県央部
14	2001/05/05	73	18~21	知多半島→NW
15	2001/05/22	84	8~10	南部 E→W
16	2001/05/29	100	10~14	E→W
17	2001/05/30	63	10~14, 0~1	SE→NW
			8~12, 19~22	
18	2001/06/13-14	83	15~22	SE→NW
19	2001/07/02	105	12~20	S→N
20	2001/07/07	139	13~17	SE→W→N
21	2001/07/10	96	10~18	中北部
22	2001/07/28-29	69	23~3	S→N
1局のみで50ppbを超えた事例				
	2000/10/19	67	17~18	渥美半島
	2000/10/20	53	17	西部→S
	2000/10/31	62	16~18	三河湾東
	2001/04/29	65	3~6	渥美半島
	2001/05/01	61	19	渥美・知多半島先端

*) 選定した11局の2局以上で二酸化硫黄濃度が50ppbを超えた事例

移動するパターンが多い。高濃度のピークは昼間の時間帯に現われることが多い。高濃度時の気圧配置は、東シナ海から四国沖太平洋に低気圧が、北東太平洋に高気圧があるというパターンが多く、冬型（北西風）が卓越する12~2月には高濃度は見られない。高層気象観測データによると、浜松上空高度1,000~3,000mにおける主風向は、ほぼ南東を示している。また下層に暖湿な気塊があって熱的に不安定な状態が多い。

一般に、北東太平洋上の高気圧の外縁に沿って火山ガスが運ばれてくるケースが多く、これらの高濃度の出現状況は、原子力研究所による三宅島火山ガス拡散シミュレーション予測結果^{6)~8)}とも

良く一致した。

愛知県内の二酸化硫黄の年平均濃度は、1968年度の47ppbをピークとして低減傾向にあったが、三宅島火山ガスの影響が現れた2000年度には微増した²⁾。今回の11局についてみると、2000年8月以降の年平均濃度(6.9ppb)は、前年(1999年8月~2000年7月)に比べて約1.7ppb上昇していた。この二酸化硫黄の増加量は、愛知県(面積5146km²)の上空500mまでの空気塊に当てはめると約12tに相当する。三宅島の二酸化硫黄噴出量が、推定日量1万~数万t¹⁾であることからすると、そのごく一部が県域地表付近へ到達しているともいえる。

3.2 火山ガス影響時の降水の性状

三宅島火山ガスの影響時は、その気圧配置から、県域には東南東の暖湿流が流れ込み、二酸化硫黄の濃度上昇に続いて降雨のあることが多かった。2000年8月以降の1年間に、二酸化硫黄濃度の上昇に続く降雨は10例以上が確認できた⁵⁾。例として図2には二酸化硫黄の濃度変動に併せて、当所における降水量の変化も示した。2001年5月下旬から9月にかけてこれらの降水を採取し、その性状の検討を試みた。

検討した13事例の降雨(全量採取分)の概要を表2にまとめた。手動で採取したため、期間中のすべての降雨の採取はできていない。またそのうち、気象条件、二酸化硫黄濃度の変動および原子力研究所による拡散シミュレーション予測結果⁸⁾などから、三宅島の火山ガスの影響があると判断される8事例については、表中に“V”印で示した(以下三宅島火山ガス影響時とする)。

3.2.1 1mm採取による測定例

二酸化硫黄濃度の上昇とそれに伴う降雨の事例

表2 採取降雨の概要(名古屋市北区, 2001年)

事例 No.	採取開始 月/日 時刻	降水量 mm	pH	導電率 μS/cm	H ⁺ μeq/l	SO ₄ ²⁻ μeq/l	H ⁺ 沈着量 meq/m ²	SO ₄ ²⁻ 沈着量 meq/m ²	主風向	SO ₂ * ppb	備考*
1	5/29 16	1.5	3.30	250.0	501.2	651	0.75	0.98	SE	83	V
2	5/30 17	16.5	4.13	36.0	74.1	65.5	1.22	1.08	SE	58	V
3	6/19 15	75.0	5.34	3.9	4.6	9.0	0.34	0.68	SSE	9	
4	6/24 7	5.0	3.89	73.4	128.8	127.9	0.64	0.64	NW	10	V
5	6/30 6	12.0	7.83	37.8	14.8	112.0	0.18	1.34	S	16	
6	7/16 9	3.5	6.04	13.0	0.9	—	0.00	—	SE	8	
7	8/7 8	8.5	4.09	47.1	81.3	83.6	0.69	0.71	E	39	V
8	8/7 12	12.0	4.20	34.7	63.1	49.4	0.76	0.59	ESE	9	V
9	8/11 11	108.5	4.39	21.2	40.7	40.1	4.42	4.35	E→NW	—	V
10	8/21 5	196.0	5.64	3.5	2.3	11.6	0.45	2.28	NE	5	T
11	8/30 18	61.5	3.83	72.7	147.9	132.3	9.10	8.14	NNE	27	V
12	9/7 12	8.0	3.99	61.1	102.3	128.7	0.82	1.03	SE	25	V
13	9/10 2	21.0	4.88	9.7	13.2	27.7	0.28	0.58	N	12	
8月集計	総降水量	502.5									
	三宅島影響(V)	190.5					14.96	13.79			
	台風影響(T)	196.0	4.10		78.6	72.4	0.45	2.28			
	未測定	116.0	5.64		2.3	11.6					
H11年度	県内平均 ⁹⁾	2218.8					25.50	29.30			

*) 降雨に隣接する最高濃度

***) Vは三宅島火山ガスの影響があると判断された事例, Tは台風の影響を示す。

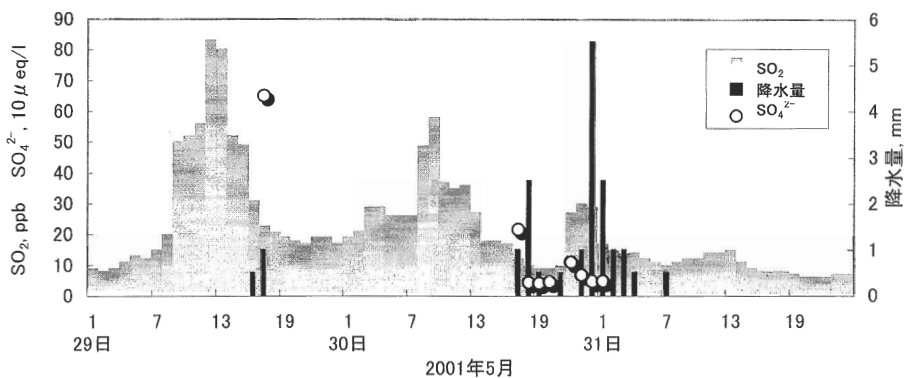


図3 火山ガス影響時における二酸化硫黄濃度、降水量および降水中硫酸イオン濃度の変化(名古屋市北区)

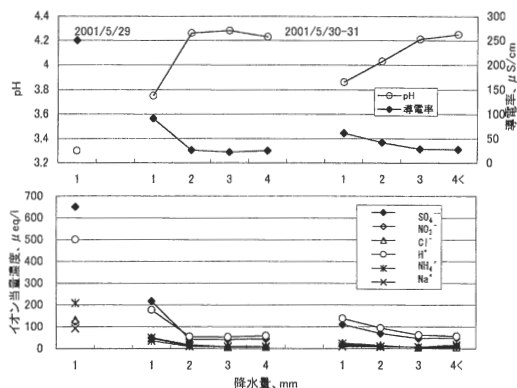


図4 火山ガス影響時の降水中成分濃度の降水量に伴う変化(2001/5/30-31, 名古屋市北区)

として2001年5月29日～31日(表1 No.16～17, 表2 No.1～2)の時間変化を図3に示した。二酸化硫黄濃度のピークは29日昼頃(最高85ppb), 30日朝および30日夜10時頃の3回現われ, そのピークの合間を埋めるように降雨があった。

これらの降雨を1mmごとに採取し, イオン成分の濃度を測定した結果を図4に, またそのうち硫酸イオン濃度の経時変化を先の図3に示した。イオン種のなかでは水素イオンと硫酸イオンの濃度が相対的に高く, 最高は降り始めの29日の降雨(1.5mm)の501μeq/l(pH3.3)と650μeq/lであった。

各種イオン濃度は, この事例のように降始めの降雨で高いことが多かった。しかし一方で, No.11の事例のように, 全降雨期間(61.5mm)を通じてpHが低く(3.54～4.11), その最低値が降雨途中で現われた例もあり, 高濃度の現われ方は雨の降り方や火山ガスの影響の仕方などによって異なってくると考えられる。

3.2.2 降水のpH

検討した13降雨の全量採取によるpHや硫酸イオン濃度を表2に示した。

三宅島火山ガス影響時の降水のpHは, 1mm採取による測定では3.30～4.49, 全量採取による8事例の平均では4.10(3.30～4.39)であった(表2)。このpH範囲は, それ以外の降雨(平時)のそれぞれ, 4.83～6.30や4.83～6.04(表2)に比べると低く, また1999年度における県内の最低値3.5以上, 平均値5.29等に比べても低かった。

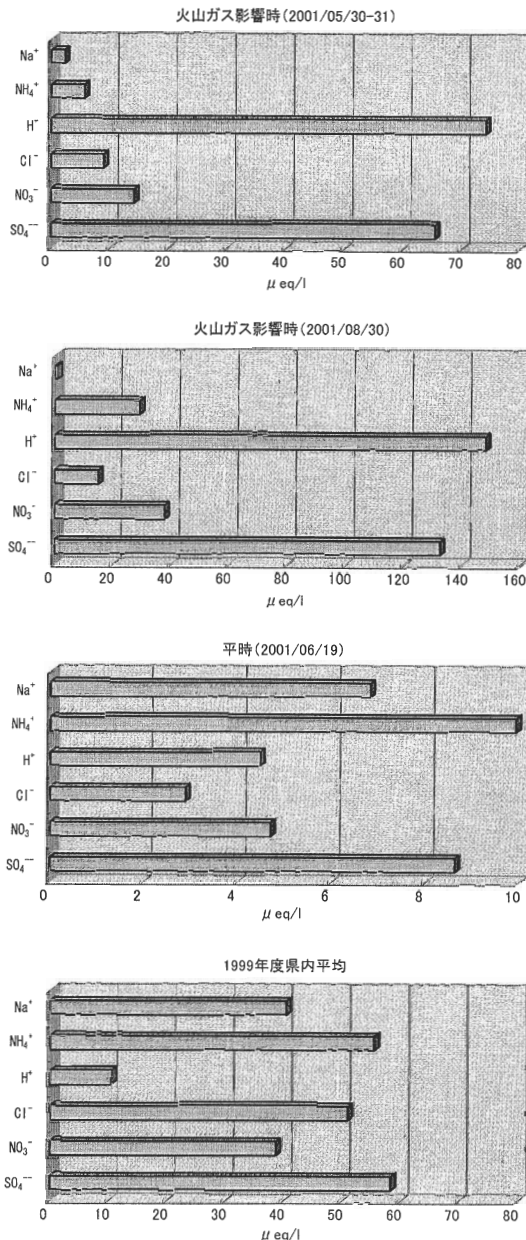


図5 降水中主要イオン濃度の比較(名古屋市北区)
 1 段目: 火山ガス影響時(2001/5/30-31)
 2 段目: 火山ガス影響時(2001/8/30)
 3 段目: 平時(2001/6/19)
 4 段目: 1999年度県内平均(工業地域を除く4地点分)⁹⁾

三宅島火山ガスによる降水の酸性化は, 他の地域においても観測されており¹⁰⁾, 降始めの1mmで, 埼玉県所沢市においてpH3.02, 横浜市にお

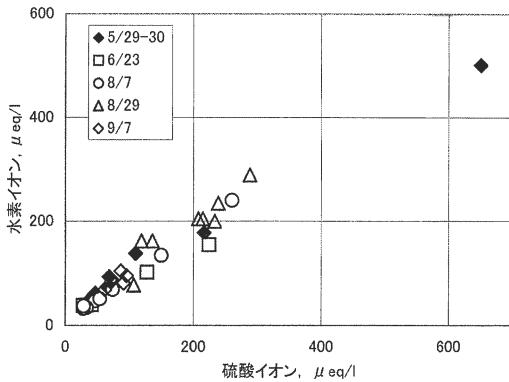


図6 火山ガス影響時の降水中硫酸イオン濃度と水素イオン濃度の関係

いて pH2.98などが報告されている。

3.2.3 硫酸の寄与

三宅島火山ガスの影響が考えられる事例 No. 2 と No.11 を例にとり、その全量降雨の主要イオン濃度を、1999年度の県内平均濃度⁹⁾や平時の降雨(事例 No. 3)と比較した結果を図5に示した。三宅島火山ガス影響時の降雨は、平時に比べて水素イオン濃度と硫酸イオン濃度が相対的に高く、また両イオンの当量濃度がほぼ一致するのが特徴であった。

図6に三宅島火山ガス影響時の降水中の硫酸イオンと水素イオンの当量濃度の関係を示した。水素イオン濃度は硫酸イオン濃度とほぼ1対1の関係を示し、酸性物質としては硫酸の寄与が大きくなっていた。人為的影響が小さい太平洋側からの気流によるためか、アンモニウムイオン等の中和成分の割合は低かった。また、三宅島火山ガスは相当量の塩化水素を含むとされている³⁾が、塩化物イオンの存在比は硫酸イオンに比べると小さく(全量採取による最高濃度56.6 μ eq/l)、その影響は明らかでなかった。

3.2.4 水素イオンと硫酸イオンの湿性沈着量

比較的観測事例数が多かった8月について、水素イオンと硫酸イオンの湿性沈着量の概算を試みた(表2)。8月の総降水量は502.5mmであった。このうち三宅島火山ガス影響時の4事例の総降水量は190.5mm、残る196mmは台風の影響によるもの、約100mmは未測定分である。これらの降水による三宅島火山ガス影響時の水素イオンと硫

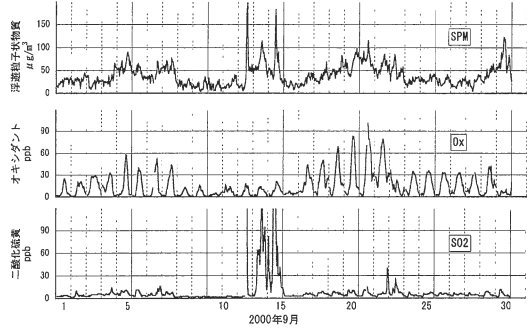


図7 2000年9月における二酸化硫黄、浮遊粒子状物質、およびオキシダント濃度の推移(日進局)

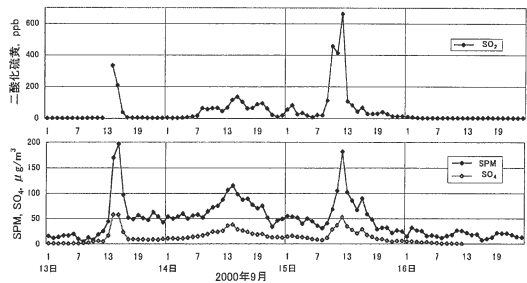


図8 火山ガス影響時の浮遊粒子状物質(SPM)と粒子状硫酸イオン(SO₄)の濃度変化(日進局:2001/9/13~16)

酸イオンの湿性沈着量は、それぞれ、約15meq/m²と約14meq/m²となった。これは、降水量がほぼ同様であった台風時(それぞれ0.45meq/m², 12meq/m²)の約30倍と約6倍に、また平成11年度年間量の県内平均値⁹⁾のそれぞれ約60%と約47%に相当した。年間降水量(約2,000mm)の約10%の降雨による沈着量としてはかなり大きな値であり、三宅島火山ガスの影響により2000年度以降の県内の硫酸の湿性沈着量は増加していると考えられる。

3.3 浮遊粒子状物質中の硫酸イオン

図7に日進局(図1参照)における2000年9月の二酸化硫黄濃度と浮遊粒子状物質濃度の時間変動を示した。三宅島火山ガスの移流によって東海近畿地方で異臭事件が報道された9月13日~15日(表1 No. 2~4)には、浮遊粒子状物質濃度(5~197 μ g/m³)にも二酸化硫黄濃度(2~662ppb)と呼応する明らかな変動が認められた。

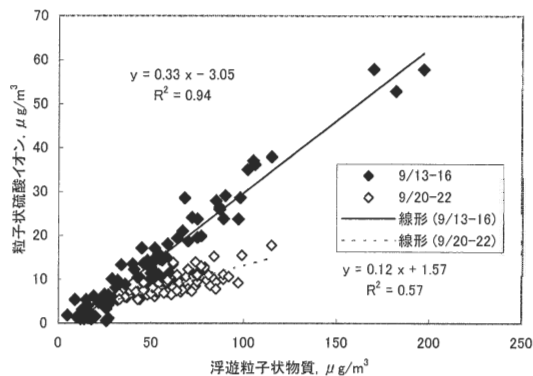


図9 浮遊粒子状物質濃度と粒子状硫酸イオン濃度の関係

◆：火山ガス影響時

この9月13日～16日の日進局における浮遊粒子状物質について硫酸イオン濃度を測定した結果を図8に示した。粒子状硫酸イオン濃度(0.6～58 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)は浮遊粒子状物質濃度とよく一致する時間変動を示した。またこの浮遊粒子状物質と粒子状硫酸イオンの濃度の関係は、図9のとおりであり、その回帰関係から三宅島火山ガス影響時の浮遊粒子状物質中の硫酸イオンの割合はほぼ一定で、約30%と算定された。

一方、この時期の浮遊粒子状物質濃度は、風が弱く日射の強い日が継続した時に上昇することが多く、光化学反応による二次生成粒子の寄与が考えられている。その例は、同日進局の9月20日～22日の期間にも見られる(図7)。比較のため、この間の浮遊粒子状物質についても硫酸イオン濃度を測定し、その浮遊粒子状物質濃度に対する関係を、9月13～16日と対比して、図9に示した。

20日～22日の粒子状硫酸イオン濃度は、浮遊粒子状物質濃度に依らずほぼ一様である傾向を示し、その割合は10%前後となっていた。同様の関係は、県内の微小粒子(粒径 $2.1\mu\text{m}$ 以下)についても報告されており¹¹⁾、夏季における浮遊粒子状物質の一般的な性状を示すと考えられる。

以上の比較に明らかなように、三宅島火山ガス影響時の浮遊粒子状物質は、硫酸イオンの含有率が約30%と平時に比べ高くなっていた。これらの粒子状硫酸イオンと粒子状アンモニウムイオンの関係を図10に示した。硫酸イオンとアンモニウムイオンは、当量濃度ではほぼ1対0.7の関係を示

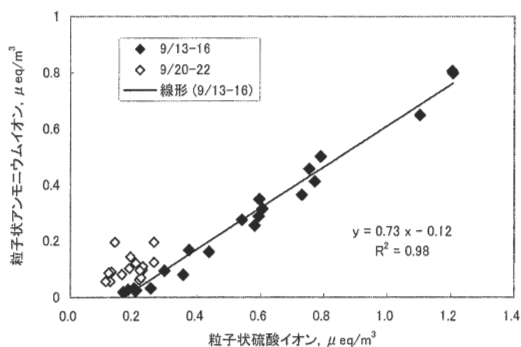


図10 粒子状硫酸イオン濃度とアンモニウムイオン濃度の関係

◆：火山ガス影響時

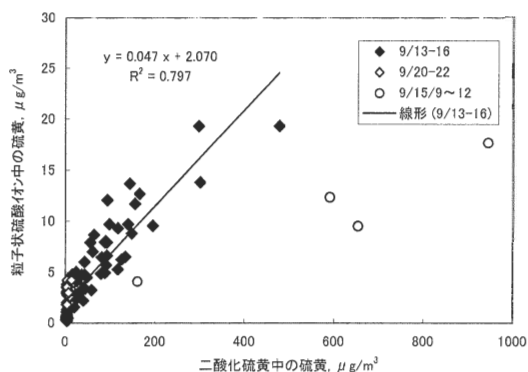


図11 二酸化硫黄中硫黄と粒子状硫酸イオン中硫黄の濃度の比較

◆, ○：火山ガス影響時

し、粒子状硫酸イオンの大部分は硫酸アンモニウムや硫酸水素アンモニウムとして存在したと考えられる。これらのアンモニウム塩は都市大気中に普遍的に見られる形態であり¹¹⁾、予想された硫酸ミスト状のものは確認できなかった。これは試料保存期間が半年以上あったことから、変質の可能性も考えられ、今後検討が必要である。

粒子状硫酸イオンの沈着量について見ると、火山ガス影響時の浮遊粒子状物質の濃度上昇率が大きくて平時の2～3倍程度であることから、上昇率が10～100倍以上の二酸化硫黄に比べると小さいことが推測できる。因みに、日進局の9月13日～16日について、二酸化硫黄と粒子状硫酸イオンの存在比を硫黄濃度で見た関係は図11のとおりであり、粒子状硫黄はガス状硫黄の5%前後と

なっていた。

後とも重要な課題と考えられる。

4. ま と め

三宅島火山ガスが愛知県内の大気、降水、および浮遊粒子状物質中の硫黄酸化物濃度に与える影響を検討し、以下の知見を得た。

三宅島火山ガスの影響により常時監視局の二酸化硫黄濃度が明らかに上昇した事例は2000年8月以降の1年間に22回あった。各地域から選んだ11測定局の二酸化硫黄の年平均濃度は2000年7月以前に比べて約1.7ppb 上昇していた。

太平洋側からの暖湿気流の流れ込みにより、二酸化硫黄濃度の上昇に続いて降雨のある事例が多く見られた。これらの降水は平時よりも高い酸性度を示し、酸性物質としては硫酸の比率が高くなっていた。県内の水素イオンと硫酸イオンの湿性沈着量は増加していることが概算された。

火山ガス影響時には浮遊粒子状物質も二酸化硫黄と類似する濃度変動を示した。この時の浮遊粒子状物質は硫酸イオンの含有率が約30%と平時に比べて高くなっていた。

以上のように三宅島火山ガスが移流してくる時期には、愛知県内の大気や降水中の硫黄酸化物濃度が増加している。三宅島の火山ガスの放出は継続しており、その影響の把握と定量的な評価は今

—参 考 文 献—

- 1) 気象庁地震火山部・三宅島測候所：火山観測情報。http://www.kishou.go.jp/press/miyake/jyoukyo
- 2) 愛知県：大気汚染測定局における調査。平成12年度大気汚染調査報告，pp.5-77，2001
- 3) 平山順一：火山噴火と火山ガス。大気環境学会編，三宅島噴火と広域大気汚染，pp.7-15，公害対策技術同友会，東京，2001
- 4) 指宿堯嗣：酸性雨（環境酸性化）の原因物質。日本化学会編，大気の科学，pp.99-115，学会出版センター，東京，1990
- 5) 大塚治子，井上広史，古田正次：三宅島2000年噴火の愛知県大気環境への影響。愛知県環境調査センター所報，**29**，1-15，2002
- 6) 茅野政道：三宅島火山性ガスの広域拡散シミュレーション。大気環境学会編，三宅島噴火と広域大気汚染，pp.27-36，公害対策技術同友会，東京，2001
- 7) 茅野政道：三宅島から噴出する二酸化イオウの広域拡散シミュレーション。空気清浄，**39**，40-48，2001
- 8) 原子力研究所環境科学研究部：SPEEDI 三宅島火山性ガス拡散シミュレーション。http://des.tokai.jaeri.go.jp/incoming/miyake.html
- 9) 愛知県環境部：酸性雨等実態調査。平成11年度大気汚染調査報告，pp.123-130，2000
- 10) 日本経済新聞：関東各地で酸性雨観測。6月26日夕刊，2001
- 11) 大塚治子，角脇 怜：愛知県における環境大気中の微小粒子と粗大粒子の濃度と組成。愛知県環境調査センター所報，**27**，9-25，1999