

# 立山室堂における春季のPM<sub>2.5</sub> 化学成分濃度と越境汚染の影響

Effects of transboundary air pollution on chemical composition of PM<sub>2.5</sub>  
in spring at Murodo, Mt. Tateyama, central Japan

木戸 瑞佳<sup>1\*</sup>・万尾 和恵<sup>1</sup>・袖野 新<sup>1</sup>・藤島 裕典<sup>1</sup>・清水 厚<sup>2</sup>

Mizuka KIDO<sup>1\*</sup>, Kazue MANO<sup>1</sup>, Arata SODENO<sup>1</sup>, Hironori FUJISHIMA<sup>1</sup> and Atsushi SHIMIZU<sup>2</sup>

<sup>1</sup> 富山県環境科学センター 大気課

<sup>2</sup> 国立研究開発法人 国立環境研究所 地域環境保全領域

<sup>1</sup> Atmosphere Division, Toyama Prefectural Environmental Science Research Center

<sup>2</sup> Regional Environment Conservation Division, National Institute for Environmental Studies

## 摘 要

高所山岳を利用した大気観測は、自由大気中のエアロゾルの観測に適していると考えられる。富山県では、自由大気の大気汚染物質の動態や越境汚染の寄与を明らかにするために、北アルプスの立山室堂（標高 2,450 m）で大気観測を実施しており、2013 年からは、微小粒子状物質（PM<sub>2.5</sub>）の質量濃度や化学成分の測定を行っている。本稿では、2018 年及び 2019 年の春季に立山室堂で得られた PM<sub>2.5</sub> 質量濃度、水溶性イオン成分及び炭素成分の測定結果や、ライダーの観測結果を用いて黄砂など越境汚染の影響を検討した結果について紹介する。

キーワード：化学成分，黄砂，山岳大気観測，PM<sub>2.5</sub>，ライダー

Key words：chemical composition, kosa, mountain observation, PM<sub>2.5</sub>, lidar

## 1. はじめに

大気中に浮遊する粒径 2.5 μm 以下の微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) は、大気汚染の原因になるほか、呼吸器や循環器など人体への影響が懸念されることから、2009 年 9 月 9 日に「微小粒子状物質による大気汚染に係る環境基準について」が告示され、PM<sub>2.5</sub> の環境基準が定められた (環境省, 2009)。これを受けて、2010 年 3 月 31 日に「大気汚染防止法第 22 条の規定に基づく大気汚染の状況の常時監視に関する事務の処理基準について」が改正され (環境省, 2010)、PM<sub>2.5</sub> の環境基準の達成状況を把握し、地域ごとの特色に応じた効果的な PM<sub>2.5</sub> 対策を推進するために、全国各地で PM<sub>2.5</sub> の質量濃度の測定に加えて成分分析が導入された。

PM<sub>2.5</sub> には様々な物質が含まれているが、アジア大陸の乾燥・半乾燥地域や経済的・工業発展の著しい地域から放出される黄砂や大気汚染物質は偏西風によって長距離輸送され、PM<sub>2.5</sub> 濃度の上昇の要因になっていることが数多く報告されている (例えば 兼保ほか, 2010; 金谷ほか, 2010)。PM<sub>2.5</sub> を含むエアロゾル粒子やそのもととなる気体成分の発生源の多くは地表面近くに存在するため、一般には対流が活発な大気境界層と呼ばれる地表から高度 1~2 km までの範囲にエアロゾル粒子は多く存在する。そのた

め、越境汚染の寄与について明らかにするために、大気境界層より上の自由対流圏の高度にある高所山岳や発生源から離れた離島といった、国内の汚染大気の影響を受けにくい地点での大気観測が有用であると考えられる。

そこで、富山県では、偏西風が卓越し越境汚染の寄与が大きいと考えられる春季に、北アルプスの立山室堂 (標高 2,450 m) で大気中の PM<sub>2.5</sub> の質量濃度や成分測定を行っている。本稿では、2018 年及び 2019 年の春季に立山室堂で得られた PM<sub>2.5</sub> 質量濃度、水溶性イオン成分及び炭素成分の測定結果や、ライダーの観測結果から越境汚染の影響を検討した事例について紹介する。

## 2. 立山室堂での PM<sub>2.5</sub> 観測及び化学分析

### 2.1 観測地点

観測地点の立山室堂 (36.6°N, 137.6°E, 標高 2,450 m) の位置を図 1 に示す。電源や交通手段が確保できる標高の高い山岳域は限られているが、立山室堂は、4 月下旬から 11 月末まで公共交通機関 (立山黒部アルペンルート) や許可を得た車で自由対流圏の高度まで達することができ、電源も利用可能である。立山室堂にホテルや山小屋はあるが工場などの発生源はなく、人間活動は限られている。また、春季の立

受付：2022 年 7 月 29 日，受理：2022 年 11 月 24 日

\* 〒 939-0363 富山県射水市中太閤山 17-1, E-mail : mizuka.kido@pref.toyama.lg.jp



図1 調査地点。  
▲：立山室堂，●：富山県環境科学センター(小杉太閣山)

山室堂は例年6~8mほどの積雪で地表面が覆われるため、局所的な汚染物質や土壌、植物の影響は極めて少ないと考えられる。

## 2.2 試料の採取

PM<sub>2.5</sub>試料の採取は、2018年5月22日から6月4日及び2019年5月24日から6月6日に行った。立山室堂では、10ライン・グローバルサンプラー(GS-10, 東京ダイレック)を用いて粒子状物質を採取した。二段型ローポリウムサンプラに石英ろ紙(2500QAT-UP, Pallflex)を装着して流量20 L/minで吸引し、エアロゾル粒子を分離径2.5 μmで粗大・微小粒子領域別に捕集した。

立山室堂では、エアロゾル化学成分濃度やオゾン濃度に日内変動が観測されている(Kido *et al.*, 2001; Osada *et al.*, 2003)。日中は山腹が日射で熱せられて上昇気流が起き、それを補う形で平地から山へ向かって風が吹く(谷風)ため、昼間には平野部の汚染大気の影響を受けていると考えられる。一方、日没後は山腹が放射冷却されて、風は平地に向かって吹く(山風)ため、平野部の大気はもたらされず、上空から大気の下りてくると考えられる。そこで、山風条件下で平野部の影響が小さいと考えられる深夜0時から5時にかけてPM<sub>2.5</sub>試料の採取を行った。

## 2.3 分析

PM<sub>2.5</sub>試料の分析は環境省のPM<sub>2.5</sub>成分測定マニュアル(環境省, 2019)に従った。粒子を捕集する前後の石英ろ紙は、21.5±1.5℃、相対湿度35±5%で調整した後、秤量して、質量濃度を算出した。秤量後の石英ろ紙は、イオン成分分析用に分取してポリプロピレン製遠沈管に入れ、超純水を加えて水溶性イオン成分を抽出し、イオンクロマトグラフ法(ICS-2000, Thermo)によりCl<sup>-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、Na<sup>+</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、K<sup>+</sup>、Mg<sup>2+</sup>及びCa<sup>2+</sup>を分析した。炭素成分の分析は、サーマルオプティカル・リフレクタンス法

(OCEC Carbon Aerosol Analyzer Model 4L, Sunset)により有機炭素(Organic Carbon: OC)及び元素状炭素(Elemental Carbon: EC)を分析した。

## 2.4 ライダー観測

ライダーはレーザーを光源とした遠隔計測装置であり、大気中に浮遊する粒子状物質の高度分布をリアルタイムで連続観測できる。立山室堂から西北西方向に約46 km離れた富山県環境科学センター(小杉太閣山: 36.7° N, 137.1° E, 標高22 m)に設置されているライダーは、国立環境研究所が開発したもので、環境省が北東アジア地域におけるモニタリングネットワーク構築の一環として2004年2月に設置したものである。ライダーでは、波長532 nmと1,064 nmのレーザーを用いて散乱信号を測定するほか、532 nmでは散乱の偏光特性も測定しており、粒子の偏光解消度を用いて、混合したエアロゾル中の黄砂消散係数や球形粒子消散係数を算出している(Shimizu *et al.*, 2016)。

## 3. 観測結果

### 3.1 立山室堂におけるPM<sub>2.5</sub>質量濃度及び化学成分

春季に立山室堂で得られたPM<sub>2.5</sub>質量濃度及び化学成分濃度の時系列変化を図2に示す。あわせてPM<sub>2.5</sub>粒子に占める各化学成分の割合も示す。PM<sub>2.5</sub>質量濃度は2018年5月25日(53.7 μg m<sup>-3</sup>)と2019年5月24日(34.5 μg m<sup>-3</sup>)に高かった。PM<sub>2.5</sub>質量濃度が高い日にはSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度も高く、両者の変化はよく似ていた。NH<sub>4</sub><sup>+</sup>もSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度の変化と類似していた。OCはSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>と同程度の濃度の日もあるが、PM<sub>2.5</sub>やSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度の変化とは異なっていた。また、Ca<sup>2+</sup>やNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度が高い日もみられた。

表1にPM<sub>2.5</sub>質量及び各化学成分の濃度範囲と平均値、PM<sub>2.5</sub>質量濃度に占める平均割合を示す。測定値が検出下限値未満の場合は、検出下限値の1/2の値を用いて平均値を算出した。PM<sub>2.5</sub>質量濃度の平均値は、2018年は16.2 μg m<sup>-3</sup>、2019年は12.4 μg m<sup>-3</sup>であった。立山室堂のPM<sub>2.5</sub>に占める割合はSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>が最も多く、2018年は11.8%、2019年は17.9%であり、次いでOC、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>が多かった。どの成分も非常に濃度変動範囲が大きかった。化学組成をみると、立山室堂ではその他の成分の割合が多いが、PM<sub>2.5</sub>の中でSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、OC、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>の割合が多い傾向は富山県の平野部の結果(万尾ほか, 2020)と同様であった。

### 3.2 ライダー観測結果との比較

ライダー観測で得られた黄砂消散係数及び球形粒子消散係数の高度分布を図3に示す。黄砂消散係数が大きいときには黄砂粒子が、球形粒子消散係数が大きいときには大気汚染物質が存在していると考えられるが、PM<sub>2.5</sub>質量濃度が高かった2018年5月25日(UTCでは24日)及び2019年5月24日(同23日)には立山室堂付近の高度で黄砂消散係数が大き

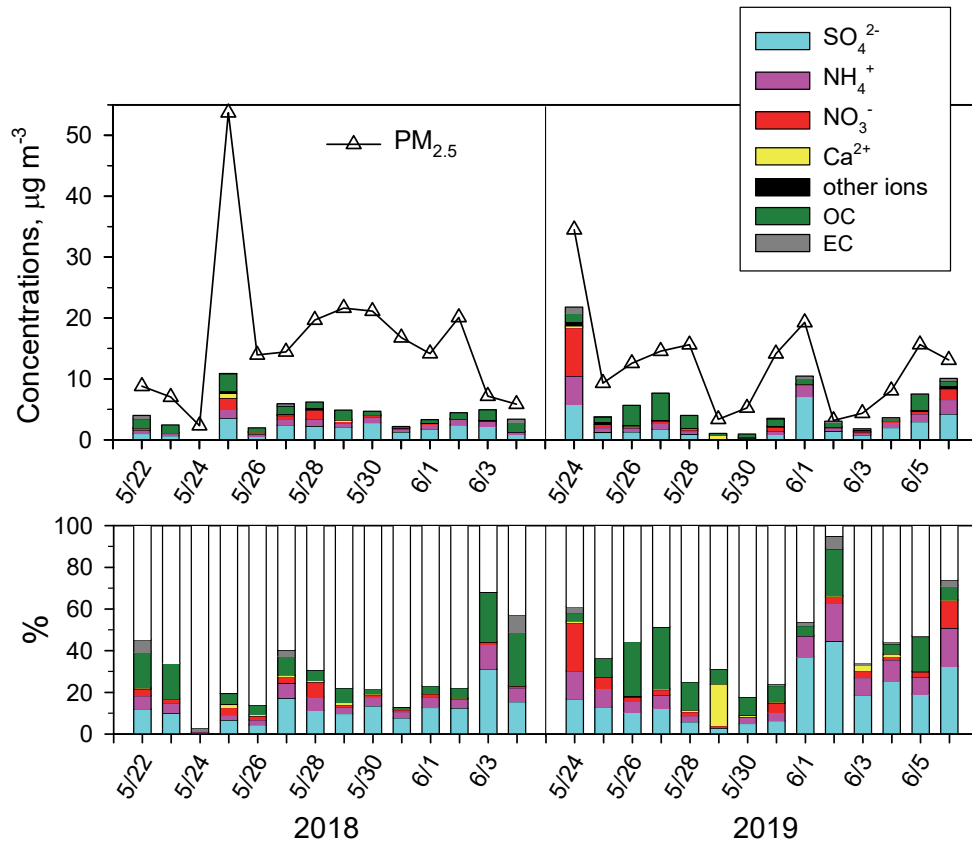


図2 立山室堂におけるPM<sub>2.5</sub>質量濃度、化学成分濃度及び化学組成.

表1 立山室堂におけるPM<sub>2.5</sub>質量、水溶性イオン成分及び炭素成分の濃度範囲、平均値[ $\mu\text{g m}^{-3}$ ]及びPM<sub>2.5</sub>質量濃度に占める平均割合[%].

	2018年			2019年		
	濃度範囲	平均値	平均割合	濃度範囲	平均値	平均割合
PM <sub>2.5</sub>	2.4 ~ 53.7	16.2		3.2 ~ 34.5	12.4	
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	0.019 ~ 3.6	1.7	11.8	0.094 ~ 7.1	2.2	17.9
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	0.0071 ~ 1.4	0.71	4.9	<0.016 ~ 4.6	1.1	9.1
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	<0.0049 ~ 1.9	0.38	2.1	<0.032 ~ 8.0	0.90	5.4
Ca <sup>2+</sup>	<0.0046 ~ 0.76	0.11	0.6	0.0081 ~ 0.67	0.12	2.1
OC	<0.049 ~ 2.8	1.1	9.7	<0.0049 ~ 4.3	1.4	12.4
EC	<0.0001 ~ 0.53	0.11	2.7	<0.0001 ~ 0.99	0.16	1.5

く、黄砂粒子が存在していることが示唆される。黄砂が飛来するとAlやCa濃度が増加することが報告されている(Nishikawa *et al.*, 1991)が、これらの日にCa<sup>2+</sup>濃度が検出されていることから、黄砂の飛来によってPM<sub>2.5</sub>質量濃度が上昇したと考えられる。2018年5月25日は地表付近よりも上空で黄砂消散係数が高くなっているが、平野部の小杉太閤山における同時刻の平均PM<sub>2.5</sub>質量濃度は6.0  $\mu\text{g m}^{-3}$ (浮遊粒子状物質(SPM)濃度は17.6  $\mu\text{g m}^{-3}$ )であり、立山室堂のPM<sub>2.5</sub>質量濃度の方が高くなっており、ライダーの観測結果ともよく一致していた。

### 3.3 黄砂・大気汚染物質の飛来と化学成分の関係

ライダー観測結果をもとに、立山室堂の高度付近において黄砂消散係数が大きい日を(1)黄砂飛来日(2018年5月25日, 2019年5月24日), 黄砂消散係数がやや大きい日を(2)弱い黄砂飛来日(2018年5月27日, 28日, 29日), 球形粒子消散係数が大きい日を(3)大気汚染物質飛来日(2018年5月22日, 6月2日, 3日, 2019年5月26日, 27日, 6月1日, 5日, 6日), 黄砂消散係数・球形粒子消散係数ともに小さい日を(4)清浄日(2019年5月30日, 31日, 6月2日)に分けて、それぞれの化学成分濃度の平均

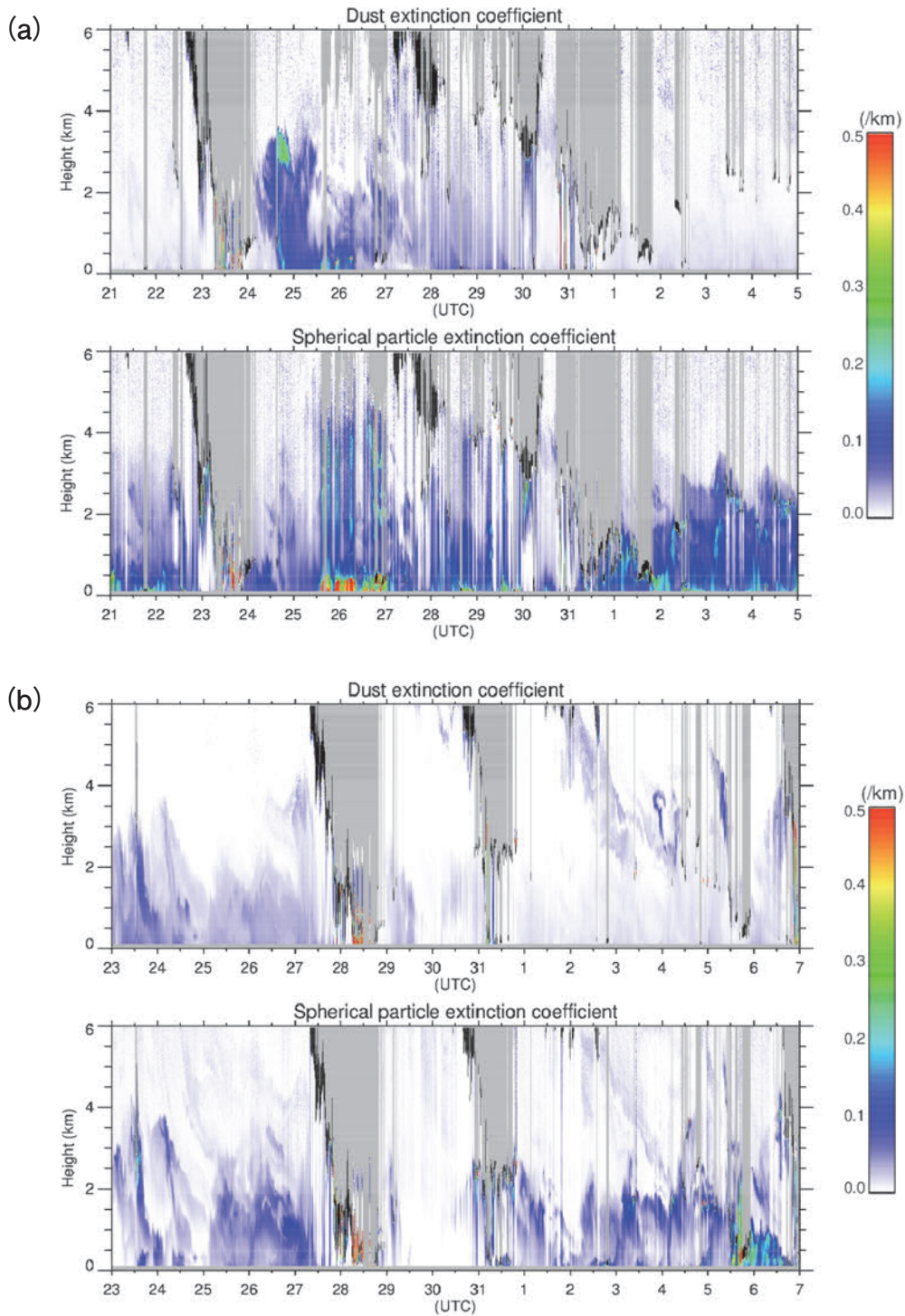


図3 富山におけるライダー観測結果。(a)：2018年，(b)：2019年。  
横軸は協定世界時(UTC)で日本時間(JST)より9時間遅れている。上：黄砂消散係数，下：球形粒子消散係数

値を算出した結果を図4に示す。なお、黄砂を第一指標としたため、黄砂飛来日には黄砂と大気汚染物質の両方が飛来している場合も含まれている。

PM<sub>2.5</sub>、Ca<sup>2+</sup>及びNO<sub>3</sub><sup>-</sup>は、黄砂飛来日に濃度が最も高く、弱い黄砂飛来日、大気汚染物質飛来日、清浄日の順に濃度が低下した。立山室堂におけるPM<sub>2.5</sub>質量濃度は黄砂の飛来が大きく関係していると考えられる。特にCa<sup>2+</sup>とNO<sub>3</sub><sup>-</sup>は黄砂飛来日には他の日と比べて顕著に濃度が高かった。一方、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、

OC、ECは黄砂飛来日に最も濃度は高いが、黄砂飛来日の次に濃度が高いのは大気汚染物質飛来日であった。これらの成分は、大気汚染物質の越境輸送によって濃度が上昇し、黄砂と一緒に輸送される場合が多いと考えられる。

### 3.4 立山室堂における春季のPM<sub>2.5</sub>質量濃度の経年変化

2013年から2019年にかけて、立山室堂で春季に得られたPM<sub>2.5</sub>質量濃度の経年変化を表2に示す。

いずれも0時～5時に測定した値であるため、春季の自由大気中のPM<sub>2.5</sub>質量濃度を表すと考えられる。表には富山県内の平野部にある大気汚染常時観測局で測定されたPM<sub>2.5</sub>質量濃度の年平均値(富山県, 2020)をあわせて示す。

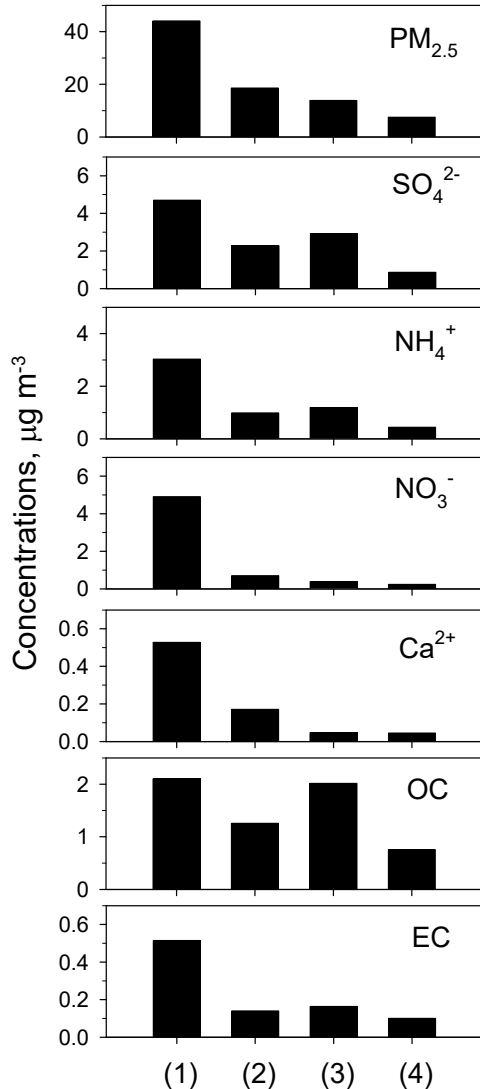


図4 立山室堂における黄砂及び越境汚染の飛来状況別のPM<sub>2.5</sub>質量濃度及び化学成分濃度。

(1)黄砂飛来日, (2)弱い黄砂飛来日, (3)大気汚染物質飛来日, (4)清浄日

立山室堂における2013年から2019年にかけての春季の平均PM<sub>2.5</sub>質量濃度は8.5~16.2 μg m<sup>-3</sup>であり、濃度の増減傾向はみられていない。一方、富山県内の年平均PM<sub>2.5</sub>質量濃度は2013年から2019年にかけて減少傾向がみられている。全国的にもPM<sub>2.5</sub>質量濃度は2013年から2016年にかけて年々減少しており、化学輸送モデルから中国での排出量の減少が要因であることが報告されている(鶴野ほか, 2017)。また、季節や粒径は異なるが、富士山頂で夏季に得られた粒子数濃度(粒径15~149 nm)も2006年から2019年にかけて、平野部とよく似た減少傾向がみられている(五十嵐ほか, 2022)。

立山室堂で年によってPM<sub>2.5</sub>質量濃度の最大値に差があるのは、黄砂飛来の有無や黄砂の規模に加えて、黄砂とともに輸送される大気汚染物質の量に関係しており、各年の平均PM<sub>2.5</sub>質量濃度は越境輸送される黄砂や大気汚染物質の影響を強く受けていると考えられる。春季の立山室堂のPM<sub>2.5</sub>質量濃度の年変化が日本の平野部や夏季の富士山頂と異なるのは、春季の日本上空は越境大気汚染の影響が大きいためであろう。近年、平野部の年平均値よりも春季の立山室堂の方がPM<sub>2.5</sub>質量濃度が高い傾向にあることから、春季の日本上空の自由対流圏エアロゾルは引き続き越境輸送の影響が大きい可能性がある。

#### 4. おわりに

本稿では、著者らがこれまでに行ってきた山岳大気観測について述べた。高所山岳での現地観測は苦労も大きいですが、現地でしか得られない化学成分に関する情報の積み重ねは重要と考えられる。全国的にPM<sub>2.5</sub>質量濃度は減少し、年平均基準(長期基準)を満たす地点は増加しているが、春季の立山室堂のPM<sub>2.5</sub>質量濃度は、平野部のように濃度は減少しておらず、引き続き越境汚染の影響を強く受けていると考えられた。今後も立山室堂で大気観測を継続してデータを蓄積するとともに、ライダーやモデルとのデータ比較を行っていきたいと考えている。

表2 立山室堂における春季のPM<sub>2.5</sub>質量濃度の経年変化(μg m<sup>-3</sup>)。

観測期間	濃度範囲	平均値	中央値	データ数	富山県*年平均
2013.5.25~6.7	3.3~18.4	10.9	11.7	11	13.0
2014.5.27~6.16	1.8~26.8	12.0	11.4	20	12.8
2015.5.23~6.19	1.1~28.0	10.6	8.4	24	11.5
2016.5.20~6.16	1.2~22.5	10.8	9.3	21	9.7
2017.5.26~6.22	0.6~55.4	8.5	3.9	27	8.9
2018.5.22~6.4	2.4~53.7	16.2	14.3	14	9.0
2019.5.24~6.6	3.2~34.5	12.4	12.8	14	7.9

\*: 富山県平野部における年平均値(富山県, 2020)

謝 辞

立山室堂での試料の採取では、立山センター及び立山自然保護センターの皆様にご協力をいただきました。ここに記して感謝申し上げます。本稿の内容は、地方公共団体研究機関と国立環境研究所との第I型共同研究「ライダー観測データを用いた越境大気汚染物質の寄与に関する研究(2019~2021年度)」の成果の一部である。

引用文献

五十嵐博己・森 樹大・三浦和彦・岩本洋子・大河内博・和田龍一・加藤俊吾(2022)夏季の富士山頂における粒子数濃度の経年変化. エアロゾル研究, 37, 36-44.

金谷有剛・竹谷文一・入江仁士・駒崎雄一・高島久洋・鶴野伊津志(2010)九州福江島における通年PM<sub>2.5</sub>質量濃度測定値の大気環境短期基準超過. 大気環境学会誌, 45, 289-292.

兼保直樹・高見昭憲・佐藤 圭・畠山史郎・林 政彦・原圭一郎・Chang, L.-S.・Ahn, J.-Y.(2010)九州北部における春季の高濃度PM<sub>2.5</sub>と長距離輸送. 大気環境学会誌, 45, 227-234.

環境省(2009)微小粒子状物による大気汚染に係る環境基準について. <https://www.env.go.jp/kijun/taiki4.html>(2022年7月1日確認)

環境省(2010)「大気汚染防止法第22条の規定に基づく大気汚染の状況の常時監視に関する事務の処理基準について」の一部改正について(平成22年3月31日環水大発第100331001号, 環水大自発第100331002号). [https://www.env.go.jp/air/osen/law22\\_kijun.html](https://www.env.go.jp/air/osen/law22_kijun.html)(2022年7月1日確認)

環境省(2019)大気中微小粒子状物質(PM<sub>2.5</sub>)成分測定マニュアル(2019年5月). <https://www.env.go.jp/air/osen/pm/ca/manual.html>(2022年7月1日確認)

Kido, M., Osada, K., Matsunaga, K. and Iwasaka, Y. (2001) Diurnal variation of ionic aerosol species and water-soluble gas concentrations at a high-elevation site in the Japanese Alps. *Journal of Geophysical Research*, 106, 17335-17345.

万尾和恵・相部美佐緒・藤島裕典・岩倉功貴・袖野新・島田博之(2020)富山県の常時監視におけるPM<sub>2.5</sub>成分分析結果(平成25年度~令和元年度)について. 令和2年度版富山県環境科学センター年報, 48, 74-79. <https://www.pref.toyama.jp/documents/17746/r2nenpo.pdf>(2022年7月1日確認)

Nishikawa, M., Kanamori, S., Kanamori, N. and Mizoguchi, T. (1991) Kosa aerosol as eolian carrier of anthropogenic material. *The Science of the Total*

*Environment*, 107, 13-27.

Osada, K., Kido, M., Iida, H., Matsunaga, K., Iwasaka, Y., Nagatani, M. and Nakada, H. (2003) Seasonal variation of free tropospheric aerosol particles at Mt. Tateyama, central Japan. *Journal of Geophysical Research*, 108, 8667. <https://doi.org/10.1029/2003JD003544>

Shimizu, A., Nishizawa, T., Jin, Y., Kim, S.-W., Wang, Z., Batdorj, D. and Sugimoto, N. (2016) Evolution of a lidar network for tropospheric aerosol detection in East Asia. *Optical Engineering*, 56(3), 031219.

富山県(2020)令和2年版環境白書. <https://www.pref.toyama.jp/documents/7449/2hakusho.pdf>(2022年7月1日確認)

鶴野伊津志・王 哲・弓本桂也・板橋秀一・長田和雄・入江仁士・山本重一・早崎将光・菅田誠治(2017)PM<sub>2.5</sub>越境問題は終焉に向かってしているのか?. 大気環境学会誌, 52, 177-184.



木戸 瑞佳 / Mizuka KIDO

富山県環境科学センター 大気課副主幹研究員。富山大学理学部卒業。同大学院理学研究科修士課程修了。名古屋大学大学院理学研究科博士(後期)課程満了。博士(理学)。



万尾 和恵 / Kazue MANO

富山県環境科学センター 大気課副主幹研究員(現在は富山県企業局和田川水道管理所子撫川支所副主幹)。PM<sub>2.5</sub>調査では炭素成分の分析を担当。



袖野 新 / Arata SODENO

富山県環境科学センター 大気課研究員(現在は富山県生活環境文化政策課技師)。PM<sub>2.5</sub>調査ではサンプリング、質量濃度の測定、無機元素成分の分析を担当。



藤島 裕典 / Hironori FUJISHIMA

富山県環境科学センター 大気課主任研究員(現在は富山県企業局和田川水道管理所係長)。北海道大学水産学部卒業。同大学院水産科学研究科修士・博士課程修了。博士(水産科学)。PM<sub>2.5</sub>調査ではイオン成分の分析を担当。



清水 厚 / Atsushi SHIMIZU

国立研究開発法人 国立環境研究所 地域環境保全領域(広域大気研究室)・主幹研究員。京都大学理学部卒業。同大学院理学研究科修士・博士課程修了。博士(理学)。