立山 (標高2,450m) における揮発性有機化合物 (VOCs) 測定について

鳥山 成一¹⁾, 近藤 隆之²⁾, 溝口 俊明²⁾, 木戸 瑞佳²⁾,
山崎 敬久²⁾, 中谷 訓幸³⁾, 田中 敦⁴⁾, 西川 雅高⁴⁾

¹⁾富山工業高等専門学校 (〒939-8630 富山県富山市本郷町13)

²⁾富山県環境科学センター (〒939-0363 富山県射水市中太閤山17-1)

³⁾富山大学大学院 (〒930-8555 富山県富山市五福3190)

⁴⁾独立行政法人 国立環境研究所 (〒305-8056 茨城県つくば市小野川16-2)

[平成20年5月16日受付, 平成20年12月24日受理]

Determination of Volatile Organic Compounds in Mt. Tateyama Area (Altitude; 1,180m and 2,450m)

Seiichi TORIYAMA¹⁾, Takayuki KONDO²⁾, Toshiaki MIZOGUCHI²⁾, Mizuka KIDO²⁾,
Takahisa YAMAZAKI²⁾, Noriyuki NAKATANI³⁾,
Atsushi TANAKA⁴⁾ and Masataka NISHIKAWA⁴⁾

¹⁾Toyama National College of Technology
(13 Hongo, Toyama, Toyama 939-8630)

²⁾Toyama Prefectural Environmental Science Research Center
(17-1 Nakataikoyama, Imizu, Toyama 939-0363)

³⁾University of Toyama
(3190 Gofuku, Toyama, Toyama 930-8555)

⁴⁾National Institute for Environmental Studies
(16-2 Onogawa, Tsukuba, Ibaraki 305-8056)

[Received May 16, 2008; Accepted December 24, 2008]

Summary

At Mt. Tateyama (Murodo, Altitude; 2,450m) and a summit of Tateyama Mountain Range (Gondola Station, Altitude; 1,180m), 20 volatile organic compounds (VOCs) were determined.

The concentrations of VOCs at each site were as follows; benzene: $<0.2 \mu\text{g}/\text{m}^3 \sim 0.58 \mu\text{g}/\text{m}^3$ and $<0.2 \mu\text{g}/\text{m}^3 \sim 0.55 \mu\text{g}/\text{m}^3$, toluene: $<0.2 \mu\text{g}/\text{m}^3 \sim 1.14 \mu\text{g}/\text{m}^3$ and $<0.2 \mu\text{g}/\text{m}^3 \sim 1.21 \mu\text{g}/\text{m}^3$, and ethylbenzene: $<0.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ and $<0.2 \mu\text{g}/\text{m}^3 \sim 0.28 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Other compounds were below the determination limit value ($0.1 \sim 2.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$).

The influence of East Asia, i.e., China and North Korea, and also the influence of Japan were considered to be the sources of VOCs detected at Tateyama Murodo and Gondola Station.

Key words: VOCs, benzene, Transboundary air pollutant, Mt. Tateyama, East Asia

1. はじめに

古来から黄砂の飛来に見られるように日本の大気環境は東アジアの影響を受けている。しかしながら、近年の中国等の東アジアの産業活動が急激に活発化し、それに伴って越境大気汚染物質の飛来も懸念されてきた。

越境大気汚染物質の一つである黄砂¹⁻⁵⁾は、2002年3月、4月の数日間、大規模な黄砂飛来で日本海側の長崎から新潟までの11府県で、浮遊粒子状物質（Suspended Particulate Matter, 以下SPMという。）の短期評価環境基準値（1時間値）がオーバーし、長期評価環境基準値（24時間平均値）達成率がゼロ%⁶⁾に至る県も出現し、大きな問題となった。そのため、環境省を中心として黄砂対策調査が本格的にスタートしている。また、日本の酸性雨の原因として東アジア由来の越境大気汚染物質の移流が考えられている。

2007年5月8日、9日には、北九州方面で中国等の越境大気汚染物質と考えられるオキシダント（Ox）の高濃度飛来⁷⁻⁹⁾でオキシダント注意報の発令があった。東アジア由来のガス状大気汚染物質の移流は離島や航空機等で多くの研究¹⁰⁻¹⁸⁾がなされていたが、このオキシダント⁷⁻⁹⁾の事例は、日本の常時観測局で大規模な移流が直接観測されたため大きな衝撃を与えた。また、最近、オキシダントの原因物質として揮発性有機化合物（Volatile Organic Compounds, 以下VOCsという。）が注目され、国内で排出抑制対策がスタートしている。

畠山ら¹⁹⁾は、標高2,000mを越えるような高山では、大気境界層内を輸送された大気と、自由対流圏内を輸送された大気の両者の影響を受ける可能性があるとして指摘している。大気境界層は地表面や日射の影響を受け、上下の対流混合が起こり、層の厚さは日変化・季節変化（30～3,000m）する。地上起源の反応性に富む物質の多くは、層内で生成消滅を起こす。一方、自由対流圏は地表面の影響を受けず、季節風や偏西風など一般風が卓越している。自由対流圏では、低温、低湿度に加え反応性の物質も接地境界層に比べ少ないので、化学反応による変動は比較的穏やかなため、一般に反応性物質の寿命が延びる。このため、いったん自由対流圏まで汚染物質が上昇すると、日本で春頃に見られる黄砂現象、オゾンの移流¹⁴⁻¹⁸⁾など多国間に及ぶ汚染物質の長距離輸送が可能となる¹⁹⁾と言われている。

また、山岳地帯における有機化合物に関する研究は、八方でのC₂-C₆のNMHC²⁰⁾や富士山での霧水中のVOC²¹⁾等の報告があるが少ない状況である。

そこで本研究では、オキシダント原因物質の一つでもあるVOCsを富山県にある標高2,450mの立山室堂（富山県立山自然保護センター；以下立山室堂という。）、標高1,180mの Gondola（富山県立山黄砂・酸性雨観測局；

Gondola山頂駅付近にあり、以下Gondolaという。）において測定し、後方流跡線解析等を用いて、日本国内及び東アジアからの影響について調査することを目的とした。

2. 調査方法

2. 1 調査解析期間

2007年8月から10月まで、十数回VOCsを測定し解析を試みた。

2. 2 調査地点

調査地点は、Fig. 1, 2に示す、立山室堂とGondolaの2地点（Fig. 1, 2）で実施した。この2地点は、何れも富山湾を望み展望も良く開けている。立山室堂は、

Fig. 1 Location of Gondola and, Tateyama Murodo

Fig. 2 Altitude of Gondola and Tateyama Murodo

日本海（富山湾）の風が直接あたる3,000m級の山々からなる中部山岳国立公園立山の標高2,450m地点に位置し、ゴンドラは立山山麓にあるらいちょうバレースキー場ゴンドラ山頂駅付近の標高1,180m地点に位置している。

2. 3 調査地点の自由対流圏の可能性

黄砂飛来時にはほとんど、ライダーの測定事例報告²⁸⁾のように、富山平野にあるライダー画像（富山県環境科学センター屋上；環境省設置）の示す標高2,450mの黄砂強度変化と、立山室堂（標高2,450m）の浮遊粒子状物質（ β 線式SUM計）の濃度変化が良く一致している。

富山平野での3年間四季に亘る低層ゾンデ等を用いた臨海部及び内陸部の接地逆転層の調査報告^{29,30)}では、低層ゾンデの温度分布から、接地逆転層は150~200m（最高250m）あり、その上に500m前後（最高850m）の等温に近い安定層（大気境界層）が存在し、しかも、500m（最高850m）以上の層では、温度分布も直線的に低下し、地表からの影響が少なく、1,000m以上の大気層では高気圧性沈降逆転層が観測されていると報告している。

このことから、実測データは無いが、立山地域は、自由対流圏の影響下にある可能性が極めて高いと考えられる。

2. 4 捕集時間帯

山岳では山岳特有な山風谷風等が予想されるため、日中は谷風で山里の気塊が吹き上がり、山里や時には平野部の影響を受けるが、夜間は逆に山風で山頂の気塊が吹き降り、山里や平野部の影響を受けにくい²⁷⁾。試料捕集は全て山風の吹く20時から翌朝の6時までの10時間で実施し、山里や平野部の影響を受けないように配慮した。また、念のため、立山室堂は立山黒部貫光桟道ターミナルビル屋上の風向風速計、温湿度計のデータを、ゴンドラは富山県立山黄砂・酸性雨観測局の風向風速計、温湿度計のデータを解析し、各測定値について山里や平野部の影響のないことを確認した。しかしながら、両地点とも夜間に谷の方向の風（NE系）であることがあった。これは、通常雲海が1,000m以下に見られることと整合しないことから、吹き上がる谷風ではなく、山頂近くの気塊内でのNE系の風であると考えられた。

2. 5 VOCsの測定

VOCsの測定方法は環境省『有害大気汚染物質測定方法マニュアル』²⁸⁾に準拠した。

試料は先端に除湿管（過塩素酸マグネシウム約20g）を取付けた捕集管（スベルコ社製 ORBO-91XL）で0.5 ℓ /minの流量で10時間捕集し、持帰り分析時まで冷

蔵庫で保管した。

捕集管から吸着剤を取り出し、抽出瓶に入れ、1.0m ℓ の二硫化炭素を加え、内標準液（トルエン-d8）を加え試験液とし、GC-MSで測定した。GC-MSの測定条件をTable 1に示す。標準液はスベルコ社製室内大気分析用標準試薬（50成分：CAT. No.49149-U）を希釈して使用した。

2. 6 VOCsの定量限界

VOCs20成分の定量限界（定量下限値）は、環境省の有害大気汚染物質測定マニュアルの精度管理²⁸⁾に準拠して求めた。結果をTable 2-1、2-2に示した。これは、操作と装置のそれぞれの繰返し測定から標準偏差（ σ ）を求め、操作に関する方法定量下限値と装置定量下限値（いずれも10 σ ）と装置に関する定量下限値を求め、これらの高い方の値の最大値を全測定操作の定量下限値とする方法²⁸⁾である。

2. 7 バックトラジェクトリー（後方流跡線）解析

気塊の輸送経路を知る手法として後方流跡線解析がある。これは、ある時間における観測地点の気塊を、気象データを基に一定時間ごとにその位置を遡って行き、飛来経路を推定する方法である。今回、National Oceanic and Atmospheric Administration (NOAA) の Air Research Laboratory (ARL) が提供している HYSPLIT Model²⁹⁾を用いた。計算条件として、気象データはGDAS、緯度は36.6°、経度は137.6°、立山室堂の標高は2,450m (AMSL)、ゴンドラの標高は1,180m (AMSL)、時間は国際標準時間を使用した。

3. 結果及び考察

VOCs20成分濃度の測定結果をTable 2-1、2-2に、対応する後方流跡線解析結果をTable 2-1、2-2及びFig. 3-1~3-4に示す。

表及び図中の試料表示時間は、全て、表示日の20時から翌朝の6時までの10時間捕集試料を示す。例えば、“29 Sep 2007”は2007年9月29日20時~9月30日6時ま

Table 1 GC-MS settings and column specifications

	Equipment & Specifications
GC	HP6890-II (Hewlett-Packard)
MS	HP5971A (Hewlett-Packard)
Column	EquityTM-1 (SUPELCO) FUSED SILICA Capillary Column 60m $\times$ 0.25m $\times$ 1.0 μ m film thickness
Oven temperature	40°C(5min) - 10°C/min - 300°C(3min)
MS mode	SIM

Table 2-1 VOCs concentrations and possible source areas indicated by Backward Trajectories by NOAA HYSPLIT Model

Unit concentration : $\mu\text{g}/\text{m}^3$															
	15-Sep		16-Sep		23-Sep		24-Sep		29-Sep		30-Sep		6-Oct		Q. L. V. *
	Murodo	Gondola	Murodo	Gondola	Murodo	Gondola	Murodo	Gondola	Murodo	Gondola	Murodo	Gondola	Murodo	Gondola	
1 Benzene	—	—	—	—	—	—	—	—	0.58	0.55	0.34	0.33	—	0.36	0.2
2 1,2-Dichloropropane	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	1.7
3 Trichloroethylene	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.1
4 Heptane	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.1
5 Methyl iso-Butylketone	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.2
6 Toluene	—	—	—	—	—	—	—	—	0.84	1.09	1.14	0.46	—	1.21	0.2
7 Chloro dibromoethane	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.7
8 Butyl Acetate	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.8
9 Octane	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	2.5
10 Tetrachloroethylen	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.2
11 Ethylbenzene	—	—	—	—	—	—	—	—	0.21	—	—	—	—	0.28	0.2
12 m/p-Xylene	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.2
13 o-Xylene	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.4
14 α -Pinene	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.1
15 3-Ethyltoluene	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.4
16 4-Ethyltoluene	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.4
17 1,3,5-Trimethylbenzene	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.4
18 2-Ethyltoluene	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.6
19 1,2,4-Trimethylbenzene	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.4
20 1,2,3-Trimethylbenzene	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.6
**															
20:00 (11:00)	(Nagoya)	Toyokawa	Yokaichi	Toyota	S. Korea	Fukui Shiga	Fukui (N. Korea) (Liaoning)	Kashiwazaki (Jilin)	Fukui (N. Korea) (Jilin)	Matumoto Suwa Nagaoka (Jilin)	(Heilongjiang)	Nagaoka			
The point of the source of VOC's flown in Tateyama Murodo, ***															
**															
0:00 (15:00)	(Nagoya)	Toyokawa	(Yokaichi)	Toyota	N. Kyushu	(Fukui) Shiga	(Fukui) (N. Korea) (Liaoning)	Kashiwazaki Jyoetsu (Heilongjiang)	Fukui (N. Korea) (Jilin)	Nagano Suwa Jyoetsu (Liaoning)	(Heilongjiang)	Hirayu Matumoto Nagaoka			
The point of the source of VOC's flown in Tateyama Murodo, ***															
**															
6:00 (21:00)	Yokaichi	Toyota	Yokaichi	Nagoya	N. Kyushu	Osaka	Fukui Gifu (N. Korea) (Liaoning)	Gero Itoigawa (Jilin)	Fukui (N. Korea) (Jilin)	Nagaoka Suwa Fukui (N. Korea)	Fukui Nagaoka Ishikawa (Heilongjiang)	Takayama Gifu Nagoya Yamanashi			
The point of the source of VOC's flown in Tateyama Murodo, ***															
Mean Temperature****	13.3	13.3	13.8	13.8	9.8	8.8	7.2	7.2	7.2	6.5	6.5	4.2			
Mean Wind Speed****	2.0	2.0	1.7	1.7	0.9	0.9	1.3	1.3	1.3	0.6	0.6	1.1			
Most Frequent Wind Direction****	ESE (23%)	W (23%)	WNW (23%)	WNW (23%)	SSW (36%)	Calm (27%)	SSW (27%)	SSW (27%)	SSW (27%)	Calm (45%)	Calm (45%)	SSE (45%)			
W (23%) ESE (23%)															

Quantitation Limit Value ** Greenwich Mean Time, GMT *** Backward Trajectories by NOAA HYSPLIT Model **** Tateyama Murodo observatory															

Table 2-2 VOCs concentrations and possible source areas indicated by Backward Trajectories by NOAA HYSPLIT Model

	Unit concentration : $\mu\text{g}/\text{m}^3$										Q. L. V. *
	7-Oct		13-Oct		14-Oct		19-Oct		21-Oct		
	Murodo	Gondola	Murodo	Gondola	Murodo	Gondola	Murodo	Gondola	Murodo	Gondola	
1 Benzene	0.22	0.47	—	0.42	—	—	—	—	—	—	0.2
2 1,2-Dichloropropane	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	1.7
3 Trichloroethylene	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.1
4 Heptane	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.1
5 Methyl iso-Butylketone	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.2
6 Toluene	0.29	0.68	—	0.29	0.25	—	0.43	—	—	—	0.2
7 Chloro dibromoethane	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.7
8 Butyl Acetate	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.8
9 Octane	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	2.5
10 Tetrachloroethylene	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.2
11 Ethylbenzene	—	0.21	—	—	—	—	—	—	—	—	0.2
12 m/p-Xylene	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.2
13 o-Xylene	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.4
14 α -Pinene	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.1
15 3-Ethyltoluene	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.4
16 4-Ethyltoluene	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.4
17 1,3,5-Trimethylbenzene	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.4
18 2-Ethyltoluene	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.4
19 1,2,4-Trimethylbenzene	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.6
20 1,2,3-Trimethylbenzene	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.4
20:00 (11:00)**	Hiroshima	Nagoya	(N.Korea)	Heilongjiang	Takayama	Jyetsu	(Fukui)	(Takayama)	(N.Korea)		0.6
The point of the source of VOCs flown in Tateyama Murodo. ***	Ouita	(Pacific Ocean)	(Liaoning)		Fukui	Vladi vostok	(N.Kyushu)	(Gifu)	(Jilin)		
	Kumamoto				N.K orea	(Hei longjiang)	Tsushima	(Shizuoka)			
	Nagasaki				Liaoning						
	Totori	Takayama	(N.Korea)	Heilongjiang	Fukui	(Vladvostok)	(Shimane)	(Iki)	(N.Korea)		
0:00 (15:00)**	Hagi	Yokaichi	(Liaoning)		N.K orea	(Hei longjiang)	(Tsushima)	(S.Korea)	(Jilin)		
	Iki	(P acific Ocean)			(Liaoning)		(Shandong)				
	Sasebo										
6:00 (21:00)**	Fukui	Takayama	(N.Korea)	(Liaoning)	(N.Korea)	(Jilin)	(Fukui)	(N.Korea)	(Liaoning)		
	(Himeji)	Gifu			(Liaoning)		(Matue)	(S.Korea)			
	(Tokushima)	Nagoya	(Liaoning)				(S.Korea)	(Shandong)			
	(Kouchi)	(P acific Ocean)									
Mean Temperature****	7.5	7.5	0.4	0.4	-0.3	-0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	
Mean Wind Speed****	3.1	3.1	1.3	1.3	1.6	1.6	3.3	3.3	1.6	1.6	
Most Frequent Wind Direction****	NW (27%)	NW (27%)	S (27%)	S (27%)	W (36%)	W (36%)	WNW (36%)	WNW (36%)	SSW (27%)	SSW (27%)	
Quantitation Limit Value **	Greenwich Mean Time, GMT	WNW (27%)	WNW (27%)	WNW (27%)	WNW (27%)	WNW (27%)	WNW (36%)	WNW (36%)	WNW (36%)	WNW (36%)	
*** Backward Trajectories by NOAA HYSPLIT Model ***** Tateyama Murodo observatory

Fig. 3-1 Backward Trajectories by NOAA HYSPLIT Model

Fig. 3-2 Backward Trajectories by NOAA HYSPLIT Model

Fig. 3-3 Backward Trajectories by NOAA HYSPLIT Model

Fig. 3-4 Backward Trajectories by NOAA HYSPLIT Model

での10時間捕集試料を示す。

後方流跡線解析の図は国際標準時間で11時（日本時間で20時）、15時（日本時間で24時）、21時（日本時間で6時）を重ね書きしたものである。また、Table 2-1、2-2の（地名）の括弧書きは気塊がその地点を通過した高度が高い（2,000m以上）場合を示した。

3. 1 パターン別観測事例

3. 1. 1 VOCs が定量されなかった観測事例

（1）流跡線解析の高度が発生源と思われる地域で高い場合

・9月24日立山室堂、10月6日立山室堂、10月21日立山室堂

後方流跡線解析（Fig. 3-1～3-4）によると気塊は東アジア地域を經由しているが、東アジア地域の通過高度が高く日本海を経て直接立山室堂に飛来しているため、地上の影響を受けにくく、測定値が定量限界以下であったと考えられる。

（2）流跡線解析の高度が発生源と思われる地域で低い場合

・9月15日、16日の立山室堂、ゴンドラ

後方流跡線解析（Fig. 3-1）によると気塊は太平洋側から飛来し、発生源と思われる中京方面を高度が低く通過しているが、すべての測定値（SIM 値）がゼロで痕跡もなく、定量限界以下となった。これは台風後であったためか、ほとんど太平洋上の極めてきれいな気塊が大量に流れ込んだためと考えられる。

・9月23日立山室堂、10月13日立山室堂、10月14日ゴンドラ、10月19日ゴンドラ

後方流跡線解析（Fig. 3-1～3-4）によると気塊は発生源と思われる東アジア及び国内で高度が低く通過しているが、定量限界以下となった。原因は不明である。

3. 1. 2 VOCs が定量された観測事例

（1）流跡線解析の高度が発生源と思われる地域で低い場合

・9月29、30日の立山室堂・ゴンドラ

立山室堂ではベンゼンが $0.58 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、 $0.34 \mu\text{g}/\text{m}^3$ で、トルエンが $0.84 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、 $1.14 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。ゴンドラではベンゼンが $0.55 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、 $0.33 \mu\text{g}/\text{m}^3$ で、トルエンが $1.09 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、 $0.46 \mu\text{g}/\text{m}^3$ で、エチルベンゼンが $0.21 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、 $< 0.20 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。トルエンは観測事例中で比較的高濃度であった。

後方流跡線解析（Fig. 3-2）によると立山室堂に飛来した気塊は、東アジアの発生源と思われる地域（中国遼寧省、吉林省から北朝鮮）で高度が比較的高く、日本海上空を経て、国内地域（立山室堂；福井、一部高山、ゴンドラ；柏崎、上越、下呂、糸魚川、松本、諏訪、長岡、福井）で高度が低く飛来しており地表付近との気塊の混

合が考えられる。VOCs の発生源としては、国内地域が主に考えられるが日本海沿岸地域のため、東アジア地域もあり得ると考えられる。

・10月6日ゴンドラ、10月7日立山室堂・ゴンドラ

6日、7日ゴンドラでは、ベンゼンが $0.36 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、 $0.47 \mu\text{g}/\text{m}^3$ で、トルエンが $1.21 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、 $0.68 \mu\text{g}/\text{m}^3$ で観測事例の中で比較的高い値が得られ、エチルベンゼンが $0.28 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、 $0.21 \mu\text{g}/\text{m}^3$ で僅かに検出された。7日の立山室堂では、ベンゼンが $0.22 \mu\text{g}/\text{m}^3$ で、トルエンが $0.29 \mu\text{g}/\text{m}^3$ でいずれも僅かに検出された。

後方流跡線解析（Fig. 3-3）によると6日、7日のゴンドラに飛来した気塊は、国内經由（6日；長岡、松本、平湯を經由して名古屋、岐阜、山梨、高山、7日；名古屋、四日市、岐阜、高山）で、特に經由地域通過時は高度も低く飛来しており地表付近との気塊の混合が考えられる。

7日の立山室堂に飛来した気塊はゴンドラとは経路が異なり、国内經由（長崎、佐世保、彦岐、熊本、大分、高知、広島、徳島、萩、鳥取、福井）で、特に經由地域通過時は高度も低く気塊との混合が十分に考えられる。

VOCs の発生源として、ゴンドラは両日とも中京方面の工業地域が考えられ、立山室堂は国内の北九州や瀬戸内の工業地域が考えられる。

・10月13日ゴンドラ、10月14日立山室堂

13日のゴンドラではベンゼンが $0.42 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、トルエンが $0.29 \mu\text{g}/\text{m}^3$ で、14日の立山室堂ではトルエンが $0.25 \mu\text{g}/\text{m}^3$ で、いずれも僅かに検出された。

後方流跡線解析（Fig. 3-3、3-4）によるといずれも中国・北朝鮮（13日ゴンドラ；中国黒龍江省、遼寧省、14日立山室堂；中国内モンゴル、遼寧省、北朝鮮）を通り日本海上空を經由して直接両地点に飛来しており、中国・北朝鮮通過時は高度が低く飛来しており地表付近との気塊の混合が考えられる。

VOCs の発生源としては、両地点とも国内ではなく中国黒龍江省、遼寧省及び北朝鮮等の東アジアが考えられる。

・10月19日立山室堂

立山室堂では、トルエンが $0.43 \mu\text{g}/\text{m}^3$ で僅かに検出された。

後方流跡線解析（Fig. 3-4）によると立山室堂に飛来したトルエンの発生源は、中国（山東省）・韓国（南部）地域を経て、日本海上空（対馬、北九州、島根、松江、福井）を通過しており、対馬通過時は高度も低く飛来しており地表付近との気塊の混合が考えられる。VOCs の発生源としては国内地域が主に考えられるが、同日のゴンドラが定量限界以下であって飛来した気塊が中国を經由せず韓国地域のみであることから検出されたトルエンは中国地域の影響も考え得ると思われる。

3. 2 既文献データとの比較

(1) 都市部の VOCs のデータとの比較

既文献の都市部の VOCs のデータ³⁰⁻³⁹⁾を Table 3-1に示す。

都市部のデータ³⁰⁻³⁹⁾との比較では、ベンゼンの立山室堂、ゴンドラの最大値 ($0.58 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $0.55 \mu\text{g}/\text{m}^3$) は、都市部の中で低い値を示す東京都の白金局³⁹⁾、八幡山³⁹⁾の平均値 $0.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $1.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ に近い以外は、他の都市部より1/6~1/50ほど低かった。トルエンの立山室堂、ゴンドラの最大値 (1.14, 1.21) は、都市部の中で低い値を示す東京都の白金局³⁹⁾、八幡山³⁹⁾の平均値 $3.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $4.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ より低く、他の都市部より1/12~1/98ほど低かった。それ以外の項目はエチルベンゼンを除くと全く検出されておらず、立山室堂、ゴンドラの両地点は VOCs が僅かに検出されたとはいえ、都市部に比べて極めてきれいな環境にあると考えられる。

(2) バックグラウンドとの比較

山岳地域や離島等におけるバックグラウンドの測定はされているが、VOCs のデータは少ないため、環境省の有害大気汚染物質調査等のバックグラウンドや一般環境のベンゼン等のデータ³⁹⁻⁴²⁾を比較対象として Table 3-2に示した。

ベンゼンでは、立山室堂、ゴンドラは、検出された最大値 ($0.58 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $0.55 \mu\text{g}/\text{m}^3$) でも、バックグラウンドの沖縄大里⁴¹⁾、与那城⁴¹⁾、国設辺戸岬酸性雨測定所⁴⁰⁾、辺戸岬集中観測⁴²⁾の最大値の約1/2であり、これらのバックグラウンドの平均値 $0.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $0.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $0.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度 (辺戸岬集中観測はデータなし) の低い値であった。また、この検出された最大値でも参考までに載せた富山県内の一般環境観測局の芝園局⁴⁰⁾、魚津局⁴⁰⁾、小杉局⁴⁰⁾の最小値 $0.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $0.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $0.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ と同程度であった。

トルエンでは、立山室堂、ゴンドラは、検出された最大値 ($1.14 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $1.21 \mu\text{g}/\text{m}^3$) でも、バックグラウンドの辺戸岬集中観測⁴²⁾の地域別平均値の1/2~1 倍の低い値であった。

エチルベンゼンでは、検出された立山室堂、ゴンドラの最大値 ($<0.20 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $0.28 \mu\text{g}/\text{m}^3$) は、定量限界値に近く、低い値で、辺戸岬集中観測⁴²⁾の値と同レベルであった。

立山室堂、ゴンドラの両地点は VOCs が僅かに検出されたとはいえ、バックグラウンド等に比べて極めてきれいな環境にあると考えられる。

4. まとめ

標高2,450mの立山室堂や標高1,180mのゴンドラにおいて、オキシダント原因物質の一つでもある VOCs を

Table 3-1 Comparison of VOCs concentration s observed in Tateyama area and those in various urban areas

	Tateyama Murudo	Tateyama Gondola	Taiwan ⁽²⁶⁾	Hamburg ⁽²⁷⁾	Vienna ⁽²⁸⁾	Athens ⁽²⁹⁾	Sydney ⁽³⁰⁾	Osaka ⁽³¹⁾	Chicago ⁽³²⁾	Atlanta ⁽³³⁾	Seoul ⁽³⁴⁾	Tokyo Shirogane ⁽³⁵⁾	Tokyo Yahatayama ⁽³⁵⁾
1 Benzene	<0.20~0.58	<0.20~0.55	4.2	10.4	19.5	16.2	8.4	16.5	7.8	28.6	3.2	0.6	1.1
2 1,2-Dichloropropane	<1.7	<1.7											
3 Trichloroethylene	<0.10	<0.10										0.2	0.1
4 Heptane	<0.10	<0.10			2.5	4.3	1.3	3.6					
5 Methyl iso-Butylketone	<0.20	<0.20											
6 Toluene	<0.20~1.14	<0.20~1.21	27.9	31.4	41.7	54.7	34.1	119.0	14.5	56.3	24.9	3.5	4.5
7 Chloro dibromoethane	<0.70	<0.70											
8 Butyl Acetate	<0.80	<0.80											
9 Octane	<2.5	<2.5	5.7		0.7	1.1	0.7	1.1					
10 Tetrachloroethylen	<0.20	<0.20										0.2	0.1
11 Ethylbenzene	<0.20	<0.20~0.28	4.5	8.3	6.8	10.2	4.9	14.4	2.3	10.6	3.4	0.6	0.7
12 m/p-Xylene	<0.20	<0.20	5.7	19.7	21.6	45.8	14.8	29.1	5.7	28.8	8.7	1.3	1.3
13 o-Xylene	<0.40	<0.40	4.2	6.8	8.7	14.0	5.7	10.6	1.5	10.6	3.8	0.5	0.5
14 α-Pinene	<0.10	<0.10											
15 3-Ethyltoluene	<0.40	<0.40											
16 4-Ethyltoluene	<0.40	<0.40											
17 1,3,5-Trimethylbenzene	<0.40	<0.40	10.9		3.1	40.2	2.2	5.2		7.9	1.3		
18 2-Ethyltoluene	<0.60	<0.60											
19 1,2,4-Trimethylbenzene	<0.40	<0.40	11.4		10.5	17.0	5.7	12.7			3.5		
20 1,2,3-Trimethylbenzene	<0.60	<0.60											

Table 3-2 Comparison of benzene, toluene and ethylbenzene concentrations in Tateyama area and those in various sites in Japan including background sites

		Unit concentration : $\mu\text{g}/\text{m}^3$													
		Toyama Tateyama Murodo	Toyama Gondola	Toyama Shibazono ⁽³⁶⁾	Toyama Uozu ⁽³⁶⁾	Toyama Kosugi ⁽³⁶⁾	Okinawa Oozato ⁽³⁷⁾	Okinawa Yonashiro ⁽³⁷⁾	Okinawa Chibana ⁽³⁷⁾	Okinawa Matsuo ⁽³⁷⁾	Okinawa Chuo- kouen ⁽³⁷⁾	Okinawa Hetomisaki ⁽³⁶⁾	Okinawa Hetomisaki ⁽³⁸⁾	Tokyo Sirogane ⁽³⁵⁾	Tokyo Yahatayama ⁽³⁵⁾
		background	background	public environment	public environment	public environment	background	background	roadside	roadside	surrounding	background	background	public environment	public environment
Benzene	Average	<0.20	<0.20	0.9	1.0	0.9	0.4	0.4	2.5	1.6	1.1	0.4	0.4	0.6	1.1
	Min.	<0.20	<0.20	0.6	0.5	0.4	0.1	0.1	0.9	0.3	0.3	0.0	0.260*		
	Max.	0.58	0.55	1.2	1.9	1.4	0.9	0.9	5.8	3.4	2.5	1.1	1.18*		
Toluene	Average	<0.20	<0.20												
	Min.	<0.20	<0.20												
	Max.	1.14	1.21											1.34*	
Ethylbenzene	Average	<0.20	<0.20											2.21*	
	Min.	<0.20	<0.20											0.049*	
	Max.	<0.20	0.28											0.159*	

2007年8月から10月まで12回測定した。

VOCs20成分の内、ベンゼンは立山室堂が $<0.2\mu\text{g}/\text{m}^3$ ～ $0.58\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、ゴンドラが $<0.2\mu\text{g}/\text{m}^3$ ～ $0.55\mu\text{g}/\text{m}^3$ で、トルエンは立山室堂が $<0.2\mu\text{g}/\text{m}^3$ ～ $1.14\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、ゴンドラが $<0.2\mu\text{g}/\text{m}^3$ ～ $1.21\mu\text{g}/\text{m}^3$ で、エチルベンゼンは立山室堂が $<0.2\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、ゴンドラが $<0.2\mu\text{g}/\text{m}^3$ ～ $0.28\mu\text{g}/\text{m}^3$ で、他の成分は定量限界値 ($0.1\mu\text{g}/\text{m}^3$ ～ $2.5\mu\text{g}/\text{m}^3$) 以下であった。

後方跡線解析によると飛来した気塊のVOCsの発生源としては立山室堂及びゴンドラともに日本国内の影響はあるが、調査日によっては中国及び北朝鮮等の東アジア地域の影響も十分に考えられた。

謝 辞

本研究は富山県の平成19年度日本海学研究グループ支援事業助成金の援助を受けて実施した。また、調査に際して配慮いただいた富山県立山センター（立山自然保護センター）の大沼進所長、立山黒部貫光㈱の城賀津樹課長補佐に深く感謝いたします。

要 約

立山室堂（標高2,450m）や立山山麓ゴンドラ（標高1,180m）において、VOCsを測定した。

立山室堂、ゴンドラにおいて、VOCs20成分の内、ベンゼンは $<0.2\mu\text{g}/\text{m}^3$ ～ $0.58\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、 $<0.2\mu\text{g}/\text{m}^3$ ～ $0.55\mu\text{g}/\text{m}^3$ で、トルエンは $<0.2\mu\text{g}/\text{m}^3$ ～ $1.14\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、 $<0.2\mu\text{g}/\text{m}^3$ ～ $1.21\mu\text{g}/\text{m}^3$ で、エチルベンゼンは $<0.2\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、 $<0.2\mu\text{g}/\text{m}^3$ ～ $0.28\mu\text{g}/\text{m}^3$ で、他の成分は定量限界値 ($0.1\mu\text{g}/\text{m}^3$ ～ $2.5\mu\text{g}/\text{m}^3$) 以下であった。

VOCs発生源は、立山室堂及びゴンドラともに、中国及び北朝鮮の東アジア地域の影響と日本国内が考えられた。

文 献

- 1) 名古屋大学水圏科学研究所：大気水圏の科学－黄砂，古今書院（1991）
- 2) 鹿角孝男，薩摩林 光，佐々木一敏，鹿野正明，太田宗康，畠山史郎，村野健太郎：八方尾根および長野市における浮遊粒子状物質と酸性降下物の特性，大気環境学会誌，**31**，282-291（1996）。
- 3) Nishikawa, M., Hao, Q. and Morita, M.: Preparation and evaluation of certified reference materials for Asian mineral dust. *Global Environmental Research*, **4**, 103-113 (2000).
- 4) Mori, I., Nishikawa, M., Hao, Q. and Morita, M.: Estimation of the concentration and chemical com-

- position of kosa aerosols at their origin *Atoms. Environ.*, **36**, 4569-4575 (2002).
- 5) Mori, I., Nishikawa, M., Tanimura, T. and Hao, Q.: Change in size distribution and chemical composition of kosa (Asian dust) aerosol during long-range transport. *Atoms. Environ.*, **37**, 4253-4263 (2003).
 - 6) 富山県生活環境部環境政策課：平成15年度版富山県環境白書, p13 (2003)
 - 7) 岩本真二, 大石興広, 田上四郎, 力 寿雄：大陸からの移流についてのモニタリングに関する最近の話題, 第48回大気環境学会年會講演要旨集, 202-205 (2007).
 - 8) 早崎将光, 大原利眞, 宮下七重：2007年5月に発生した広域的な光化学オキシダント汚染(1) 観測データ解析, 第48回大気環境学会年會講演要旨集, 639 (2007).
 - 9) 大原利眞, 鷗野伊津志, 黒川純一, 早崎将光：2007年5月に発生した広域的な光化学オキシダント汚染(2) モデル解析, 第48回大気環境学会年會講演要旨集, 640 (2007).
 - 10) 加藤俊吾：東アジアにおける揮発性有機化合物の長距離輸送, 大気環境学会年會講演要旨集, **46**, 158-159 (2005)
 - 11) 畠山史郎, 高見昭憲, 三次猛雄, 王 瑋：中国から東シナ海を経て沖縄まで輸送されるエアロゾル中の主要イオンの関係, *J. Aerosol Res.*, **21**, 147-152 (2006)
 - 12) 高見昭憲, 日暮明子, 三次猛雄, 下野彰夫, 畠山史郎：東シナ海日本側の北部と南部におけるエアロゾル化学組成の差異, *J. Aerosol Res.*, **20**, 352-354 (2005)
 - 13) Hatakeyama, S., Takami, A., Sakamaki, F., Mukai, H., Sugimoto, N., Shimizu, A. and Bandow, H.: Aerial measurement of air pollutants and Aerosols during March 20-22, 2001, over the East China Sea. *J. Geophys. Res.*, **109**, D13304, doi: 10.1029/2003JD004271 (2004)
 - 14) 秋元 肇：東アジアオゾン汚染の日本への影響, 資源環境対策, **39**, 90-96 (2003)
 - 15) 秋元 肇：オキシダントの逆襲, 大気環境学会誌, **35**, A48-A51 (2000).
 - 16) 秋元 肇：光化学オキシダントをとりまく国内外状況ー我が国におけるオキシダントの増加と東アジアオゾン汚染, 環境技術, **32**, 510-516 (2003a).
 - 17) Wild O. and Akimoto, H.: Inter continental transport of ozone and its precursors in a three dimensional global CTM. *J. Geophys. Res.*, **106**, 27, 727-744 (2001).
 - 18) Pochanart, P., Akimoto, H., et al: Surface ozone at four remote island sites and the preliminary assessment of exceedances of its critical level in Japan. *Atoms. Environ.*, **36**, 4235-4250 (2002)
 - 19) 畠山史郎, 片平菊野, 高見昭憲, 菅田誠治, 劉 発華, 北 和之：奥日光山岳域における夏季および秋季のオゾン濃度変動, 大気環境学会誌, **39**, 158-170 (2004).
 - 20) Sharma, U.K., Kajii, Y. and Akimoto, H.: Seasonal variation of C2-C6 NMHCs at Happo, a remote site in Japan. *Atoms. Environ.*, **34**, 4447-4458 (2000)
 - 21) 三宅雄貴, 大河内 博, 皆已幸也, 五十嵐康人, 稲津晃司, 名古屋俊士：有害大気汚染物質の動態解析と降水洗浄機構(4) ~富士山における霧水中のVOC観測と促進吸収機構~, 大気環境学会年會講演要旨集, **48**, 544 (2007)
 - 22) 鳥山成一, 山崎敬久, 近藤隆之, 水畑 剛, 奥村秀一, 水上昭弘, 神保高之, 木戸瑞佳, 日吉真一郎, 溝口俊明, 西川雅高, 杉本伸夫, 松井一郎, 清水 厚：ライダーを使った立山山岳地域, 富山平野におけるオキシダントおよび黄砂の高濃度測定事例, 環境化学, **15**, 269-285 (2005)
 - 23) 富山県公害センター：富山県公害センター業務年報, **2**, 441-465 (1974)
 - 24) 富山県公害センター：富山県公害センター業務年報, **3**, 17-29 (1975)
 - 25) 富山県公害センター：富山県公害センター業務年報, **4**, 17-29 (1976)
 - 26) 白山 肇, 油本幸夫：大気汚染と気象, 公害と対策, **11**, 331-339 (1975)
 - 27) Kido, M., Osada, K., Matsunaga, K. and Iwasaka, Y.: Diurnal variation of ionic aerosol species and water-soluble gas concentrations at a high-elevation site in the Japanese Alps. *J. Geophys. Res.*, **106**, 17335-17345 (2001).
 - 28) 環境庁大気保全局大気規制課監修：「有害大気汚染物質測定の実際」, (財) 日本環境衛生センター, pp102-113, 東京 (1997)
 - 29) "NOAA ARL Real-time Environmental Applications and Display System-HYSPLIT4", (online), available from <<http://www.arl.noaa.gov/ready/open/hysplit4.html>>, (accessed 2007-9-20).
 - 30) Chu-Chin H. and Jiun-Horng Tsai.: VOC concentration characteristics in Southern Taiwan. *Chemosphere*, **50**, 545-556 (2003).
 - 31) Bruckmann, P., Kersten, W., Funcke, W., Balfanz, E., Konig, J., Theisen, J., Ball, M. and Papke, O.:

- The occurrence of chlorinated and other organic trace compounds in urban air. *Chemosphere*, **17**, 2362-2380 (1988).
- 32) Lanzerstorfer, Ch. and Puxbaum, H.: Volatile hydrocarbon in and around Vienna, Austria. *Water Air Soil Pollute*, **41**, 345-355 (1990).
 - 33) Moschonas, N. and Glavas, S.: C3-C10 hydrocarbons in the atmosphere of Athens, Greece. *Atoms. Environ.*, **30**, 2769-2772 (1996).
 - 34) Nelson, P.F. and Quigley, S.M.: The m,p-xylenes ethyl benzene ratio, a technique for estimating hydrocarbon age in ambient atmospheres. *Atoms. Environ.*, **17**, 659-662 (1983).
 - 35) Tsujino, Y. and Kuwata, K.: Sensitive flame ionization detector for the determination of traces of atmospheric hydrocarbons by capillary gas chromatography. *J. Chromat*, **642**, 383-388 (1993)
 - 36) Aronian, P.F., Scheff, P.A. and Wadden, R.A.: Winter-time source-reconciliation of ambient organics. *Atoms. Environ.*, **23**, 911-920 (1989).
 - 37) National Research Council (NRC), Rethinking the ozone problem in urban and regional air pollution, National Academy Press, Washington, DC (1991).
 - 38) Kwangsam N., Kil-Choo M. and Yong Pyo K.: Source contribution to aromatic VOC concentration and ozone formation potential in the atmosphere of Seoul. *Atoms. Environ.*, **39**, 5517-5524 (2005).
 - 39) 星 純也, 中浦久雄, 石井康一郎, 芳住登紀子, 渡辺のぶ子, 松田初弘, 早福正孝: 有害大気汚染物質連続測定データを用いた大気中濃度分布の特徴, 東京都環境科学研究所年報, **2002**, 3-11 (2002)
 - 40) 環境省: 「平成18年度地方公共団体等における有害大気汚染物質モニタリング調査結果について」, 平成19年11月30日 (金), http://www.env.go.jp/air/osen/monitoring/mon_h18/index.html
 - 41) 友寄喜貴, 嘉手納 恒, 与儀和夫: 沖縄県における大気中のベンゼンに関する濃度変動要因と集団リスクの推定, 大気環境学会誌, **42**, 56-62 (2007)
 - 42) ジーラナットスタワリー, 加藤俊吾, 高見昭憲, 畠山史郎, 嘉手納 亘, 渡具知美希子, 友寄喜貴, 与儀和夫, ダニエル ジャッフエ, フイル シュバルツエンデウルバー, エリック プレストボ, 梶井克純: 2004年春季の沖縄辺戸岬集中観測におけるアジアからの汚染大気長距離輸送の大気微量成分への影響, 大気環境学会誌, **46**, 350-361 (2007)