

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 4 月 19 日現在

機関番号：32612

研究種目：基盤研究(B) (海外学術調査)

研究期間：2012～2015

課題番号：24404002

研究課題名(和文) 火山性化学成分モニタリングによるインドネシアムラピ火山活動の実態調査と環境影響

研究課題名(英文) The investigation for environmental influence of Merapi volcano by a long-term air observation at Yogyakarta, Indonesia

研究代表者

田中 茂 (TANAKA, SHIGERU)

慶應義塾大学・理工学部・教授

研究者番号：10137987

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,000,000円

研究成果の概要(和文)：インドネシア・ジョグジャカルタ市にて、ガジヤマダ大学の協力により、フィルター捕集とイオンクロマト分析による大気粉塵中化学イオン成分濃度観測とTiO₂を塗布した捕集管とイオンクロマト分析による大気汚染ガス濃度観測を2012年9月から3年間にわたり継続的に行った。PMF解析を発生源数5として行った結果、大気汚染による二次生成、海塩、バイオマスの燃焼、化石燃料の燃焼、土壌が起源と見られる大気粉塵が解析された。

研究成果の概要(英文)：In October 2010, Mt. Merapi, a remarkably active volcano locating in the center of Java Island, triggered large-scale explosion. This brought severe damage, including ash fall and air pollution due to air pollution gases, in Yogyakarta City, locating 30 km south of Mt. Merapi. Generally, air pollutions are caused by the complex of natural sources such as volcanic activities and transport from continents or oceans by winds and artificial sources such as fossil fuel combustion and automobiles. The classification of aerosol sources in Yogyakarta was carried out by using Positive Matrix Factorization(PMF) analysis. 5 sources such as secondary generated aerosol from air pollution gases, sea salt, biomass combustion, fossil fuel combustion and volcanic soil were classified.

研究分野：環境化学

キーワード：ムラピ火山 火山性化学成分 火山性ガス 環境モニタリング 環境影響 インドネシア 実態調査

1. 研究開始当初の背景

東南アジアに位置するインドネシア共和国¹⁾は、日本と同様に活発な火山が多く存在しており、近年は大規模な火山活動が多発している。ジャワ島の中央部に位置するムラピ火山は、20世紀のおよそ100年間、数年ごとに小規模な噴火を繰り返してきたが、2010年10月には、1872年以来の規模となる記録的な大噴火をし、ムラピ火山から30km南に離れたジョグジャカルタ市に、火山灰や大気汚染ガスによる大きな被害をもたらした(Suronoら, 2012)²⁾³⁾。

こうした火山活動⁴⁾⁵⁾⁶⁾のほか、土壌粒子や海塩粒子など自然起源によって発生し、季節風による陸域・海域からの輸送の自然的な要因、そして、化石燃料の燃焼や野焼きなど人間活動によって発生する粒子による人為的な要因が複合して、大気環境へ影響を与える。こうした大気環境への影響を検討するには、広域的かつ継続的な大気観測体制を構築することが不可欠である。しかし、インドネシアではいまだ、そこまでの観測体制を確立するために必要なモニタリング手法やモニタリング体制、研究資金が十分でないという現状がある(Santosaら, 2008)⁷⁾。そこで、安価かつ簡便で、多地点での同時的観測も可能であり、長期観測を行う際にも負担の少ない大気汚染物質の捕集ユニットを用いて、インドネシア・ジョグジャカルタ市の大気環境の実態と動向を把握し、有効な環境対策を提案するために2012年9月～2015年9月の3年にわたり、長期的な大気観測を行った。

2. 研究の目的

2010年10月、インドネシア・ジャワ島のムラピ火山が噴火し、隣接するジョグジャカルタ市に多大な被害をもたらした(Fig. 1参照)。ムラピ火山をはじめとする近隣火山の噴火やその他自然的要因、人工的要因の視点からジョグジャカルタ市の大気汚染の実態と動向を把握し、有効な環境対策を提案できる精度の高い環境影響評価を行うことを研究の目的とする。



Fig. 1 Map of Merapi volcano and Yogyakarta, Indonesia

3. 研究の方法

ジョグジャカルタ(Yogyakarta)市のガジヤマダ(Gadjah Mada)大学のSri Juari

Santosa教授との協力のもと、ジョグジャカルタ市における大気汚染物質の観測を行った。ガジヤマダ大学はジョグジャカルタ市の下町地区にあり、ジョグジャカルタ市の中心部であるKraton(王宮)からは北東方向約7kmに位置している。大気汚染物質試料の採取は、ガジヤマダ大学キャンパス構内の化学科棟の屋上、地上約5mで、主要道路であるKaliurang通りから約300m離れた地点で行った。183.36ヘクタールのキャンパス内は建物同士が舗装道路でつながっており、樹木が多く、公共車両の多くは進入できない。大気汚染物質試料の概要をTable 1で示した。採取した大気試料は大気粉塵と大気汚染ガス(SO₂, NO₂, NH₃, HCl)の4種類であり、いずれも1試料の採取期間は1週間で、2012年9月～2015年9月の3年間でのべ144試料の採取を行った。

大気粉塵試料の捕集に用いたフィルターは酢酸セルロースC080A047A(ポアサイズ0.80μm、直径47mm、ADVANTEC製)である。大気粉塵を捕集したフィルターを20mm径に切り抜いたものを純水10mlを入れたビーカーへ超音波により抽出した。この試料抽出液をイオンクロマト分析することにより、大気粉塵に含まれる水溶性化学イオン成分8種類(Na⁺, NH₄⁺, K⁺, Mg²⁺, Ca²⁺, Cl⁻, NO₃⁻, SO₄²⁻)と有機酸イオン3種類(CH₃COO⁻, HCOO⁻, C₂O₄²⁻)を測定した。濃度を求める際は、捕集に使ったものと同じフィルターを同様の方法で抽出して得られるフィルターブランク値を差し引いた。

大気汚染ガス試料の捕集には、TiO₂を塗布した捕集管とミニポンプを用いた。1つのサンプルにつき大気導入量0.1L/minで7日間、合計1m³の大気を採取した。TiO₂塗布した捕集管で捕集した大気汚染ガス(SO₂, NO₂, NH₃, HCl)は、捕集管に純水10mlを入れ、振とうして抽出し、その抽出液をイオンクロマト分析した。

Table 1 Outline of air pollutant sampling in Yogyakarta

Sample	Method	Period	Total air
Aerosol	Low Volume Sampler & Filter (Air intro. 10L/min)	7 days	100m ³
Pollution gases (SO ₂ , NO ₂ , NH ₃ , HCl)	TiO ₂ coated sampling tube (Air intro. 0.1L/min)		1m ³

4. 研究成果

(1)ジョグジャカルタ市の大気粉塵中化学イオン成分濃度と大気汚染ガス濃度

ジョグジャカルタ市の大気粉塵中化学イオン成分と大気汚染ガスの平均濃度をTable 2とTable 3に示した。

Table 2 Mass and equivalent concentration of ionic species in aerosol in Yogyakarta (September 2012-September 2015)

Ionic species	Atmospheric conc.		
	Mass ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	Equivalent (nmol/m^3)	n
Na^+	1.43 \pm 1.02	62.1 \pm 44.5	143
NH_4^+	0.18 \pm 0.18	9.9 \pm 9.9	136
K^+	0.57 \pm 0.13	14.6 \pm 3.3	143
Mg^{2+}	0.20 \pm 0.13	16.8 \pm 10.7	143
Ca^{2+}	0.70 \pm 0.39	34.9 \pm 19.5	143
H^+	0.00 \pm 0.00	3.7 \pm 3.0	44
Total ($\text{Na}^+ \sim \text{Ca}^{2+}$)	3.09	138.4	
Cl^-	1.57 \pm 1.52	44.1 \pm 42.7	142
NO_3^-	1.25 \pm 0.54	20.1 \pm 8.7	143
SO_4^{2-}	2.92 \pm 1.10	60.8 \pm 23.0	143
CH_3COO^-	0.07 \pm 0.06	1.3 \pm 1.0	104
HCOO^-	0.04 \pm 0.03	0.8 \pm 0.8	106
$\text{C}_2\text{O}_4^{2-}$	0.04 \pm 0.03	1.0 \pm 0.6	119
HCO_3^-	0.13 \pm 0.09	6.6 \pm 5.3	35
Total ($\text{Cl}^- \sim \text{C}_2\text{O}_4^{2-}$)	5.89	128.1	

Table 3 Atmospheric concentration of pollution gases in Yogyakarta (September 2012-September 2015)

Gas species	Atmospheric conc. , ppbv	n
NH_3	24.7 \pm 15.4	125
NO_2 (HNO_3)	8.5 \pm 6.5	114
SO_2	1.1 \pm 1.2	124
HCl	1.3 \pm 1.4	109

ジョグジャカルタ市の季節は、11月から6月の雨季と7月から10月の乾季に分類される。ジョグジャカルタ市の地球物理局の観測⁸⁾による気温・降水量・相対湿度のデータによると2013年の年平均気温は 26.3 ± 0.6 で、赤道に近い地域に特有の年中気温が高く、気温の年変化の乏しい気候である。なお、最高気温の平均は1年を通じて31前後、最低気温の平均は1年を通じて23前後である。降水量は、2013年の年降水量が2318mm、そのうち1月の雨量が最多で442mm、逆に8月と9月は最も少なく0mmである。このように1年の間に雨がかなり多い雨季とほとんど雨の降らない乾季がある。この理由は、1年間に雨天をもたらす熱帯収束帯と晴天をもたらす亜熱帯高圧帯に交互に支配されるためである。2013年の年平均相対湿度は $86 \pm 3\%$ で、乾季でも湿度80%程度とわずかに乾燥する程度でおおむね年中多湿である。

2012年9月～2015年9月の3カ年の期間中のジョグジャカルタ市の大気粉塵中化学イオン成分濃度の経時変化をFig.2に示した。この図から Na^+ 、 Cl^- が乾季(7～10月)に顕著に増加し、同様に Mg^{2+} と Ca^{2+} も増加している。乾季に海塩起源の発生源の寄与が高まるためと考えられる。また、 NH_4^+ は反対に雨季(11～6月)に増加しており、この季節に大気汚染ガスからの2次生成起源の寄与が増加するためである。

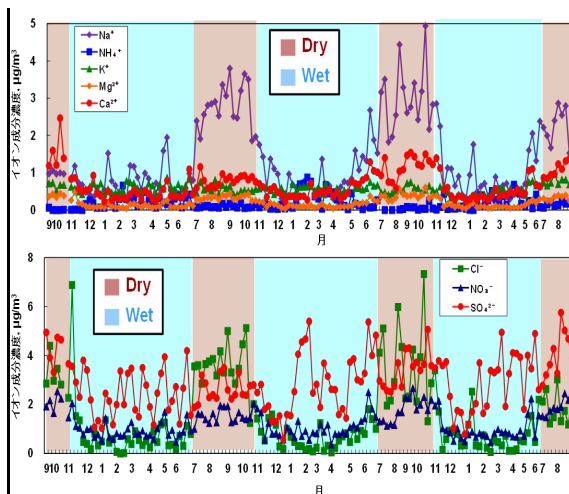


Fig.2 Atmospheric concentration of ionic species in aerosol in Yogyakarta (September 2012-September 2015)

酢酸・ギ酸・シュウ酸イオンを加えた大気粉塵の11種類のイオン成分についての組成をFig.3に示した。全イオン成分の合計は $8.74 \mu\text{g}/\text{m}^3$ である。日本の首都圏での観測例と比較した結果、大気汚染に由来する NH_4^+ 、 SO_4^{2-} が少なく、代わりに海塩由来の Na^+ 、 Cl^- 、バイオマス燃焼由来の K^+ が多い特徴があった。

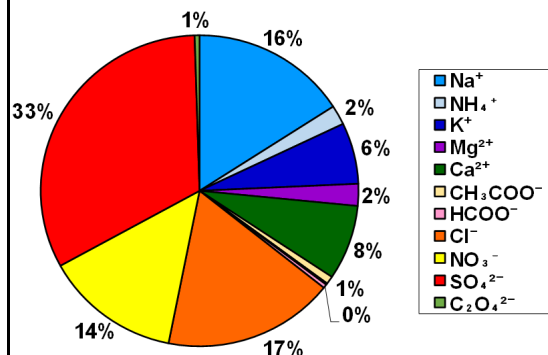


Fig.3 Composition of ionic species in aerosol in Yogyakarta (September 2012-September 2015, n=143)

さらに、炭酸イオン成分とpH電極で測定した H^+ を含めた13種類の成分について陽イオンと陰イオンの全当量濃度を比較した結果がFig.4である。陽イオン/陰イオン当量濃度比が 0.99 ± 0.10 と、高い水準で両者の当量濃度が一致しており、イオンクロマト分析の妥当性が確認できた。

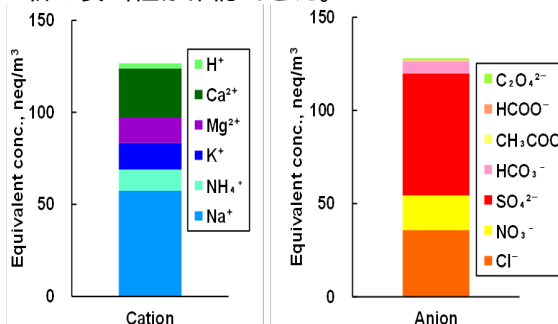


Fig.4 Comparison of equivalent concentration between cation and anion in aerosol in Yogyakarta (September 2014-May 2015, n=36)

(2)後方流跡線解析によるジョグジャカルタ市へ流入する気流の季節変化

後方流跡線解析により、ジョグジャカルタ市周辺に流入する気流とその季節変動を検討した。後方流跡線解析では、3次元的な風向の場をモデル化することで、時間をさかのぼって大気汚染物質の発生源や輸送経路を解析する⁸⁾。

ジョグジャカルタ市へ流入する大気进行分类するため、方向別にセクタを導入し、SE(南東)、SW(南西)、W(西)、N(北)、E(東)分類不可の6種類に区分した。WとEは陸上大気の影響の大きい気流、SW、SEは海上大気の影響の大きい気流である。Nはムラピ火山が位置する方向であり、ムラピ火山が噴火した場合に影響が及ぶと考えられる。

Fig. 5に、現地時間昼12時にジョグジャカルタ市へ流入した大気がどのセクタから来たかを後方流跡線解析により毎日分類し、その分布を月ごとにまとめた。乾季(7~10月)には海上の影響を受けるSEの気流が、雨季(11~6月)には陸上の影響を受けるWなどの気流が卓越した。この結果から、大気粉塵中のNa⁺やCl⁻などの海塩起源の成分が乾季に大きく増加し、雨季に減少するなどの季節変動が裏付けられた。

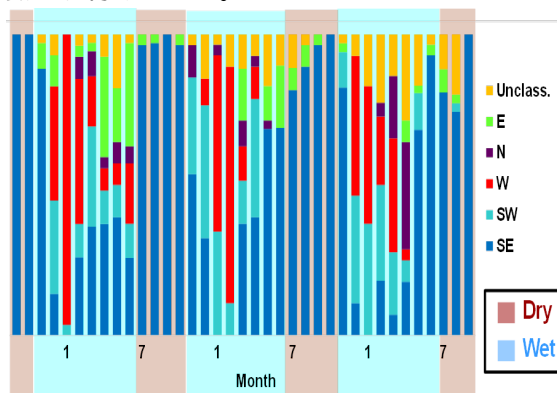


Fig. 5 Monthly sector classification in Yogyakarta by backward trajectory analysis (December 2012-September 2015, n=974)

(3)PMG(Positive Matrix Factorization)法によるジョグジャカルタ市における大気粉塵の発生源の解析

PMF(Positive Matrix Factorization)法による、大気粉塵中化学イオン成分を対象成分とした発生源解析を行った。PMF法は、粒子状物質の発生源寄与を評価するに当たり、広く用いられている数学的なモデリング手法の一つである。アメリカ合衆国環境保護庁(EPA)が配布するPMF EPA 5.0⁹⁾を用いて、PMF解析を行った。ジョグジャカルタ市の大気粉塵中の8つの化学イオン成分と3つの有機酸成分を対象成分として、2012年12月から2015年5月にわたる108試料について、PMF法を用いた解析を行った結果、その発生源の数は5つとなった¹⁰⁾。Fig. 6に、大気汚染による2次生成、海塩、バイオマス燃焼、化石

燃料の燃焼、土壌の5つの発生源プロフィールを示した¹¹⁾¹²⁾。

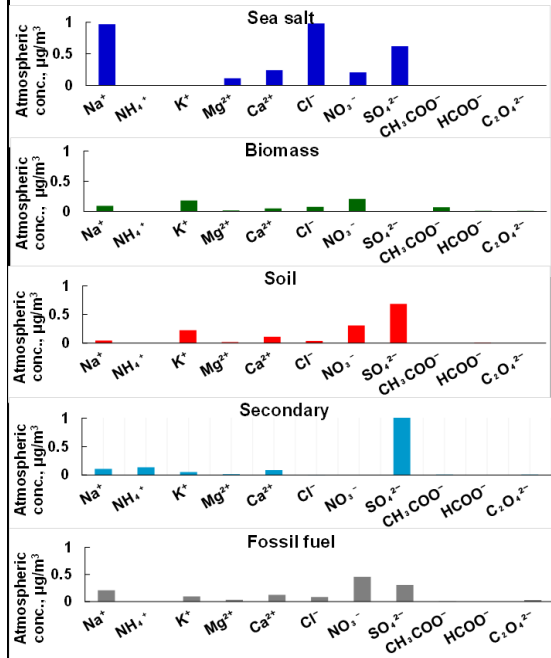


Fig. 6 Source profiles of aerosol in Yogyakarta by PMF analysis

大気汚染からの2次生成由来(secondary)の大気粉塵は、主成分がNH₄⁺とSO₄²⁻である。2次生成によって硫酸アンモニウムを主体とする大気粉塵が生成する。硫黄分を含む石炭などの化石燃料が燃焼すると、大気中にSO₂が放出される。SO₂ガスは大気中で酸化されてH₂SO₄などになり、大気中NH₃と反応することで硫酸アンモニウム塩となる。このときにNH₃による中和がどこまで行われたかによって、生成するアンモニウム塩はNH₄HSO₄又は(NH₄)₂SO₄となる。この発生源プロフィールのNO₃⁻、SO₄²⁻当量濃度比を計算したところ、ほぼ1となった。従って、ジョグジャカルタ市のアンモニウム塩は、高い濃度の大気中NH₃によって中和されてほとんど(NH₄)₂SO₄となっていることがわかった。

最後に、大気粉塵の各発生源の寄与の季節変動を確認した。乾季(7~10月)、雨季(11~6月)に区分した場合の各発生源寄与の変化をFig. 7に示した。CH₃COO⁻、HCOO⁻、C₂O₄²⁻の観測データがないため解析期間は2012年12月からである。乾季により増加している発生源は海塩、化石燃料、土壌起源であり、雨季により増加していた発生源は大気汚染ガスからの2次生成、バイオマス燃焼起源の大気粉塵であった。乾季の海塩起源の寄与の増加は際立っており、南東方向のインド洋の海上から大気が入ることが原因である。亜熱帯高圧帯のため晴れて乾燥するこの海域から、多量の高塩粒子が生成していることがわかる。一方、2次生成起源の大気粉塵は、人口の多い都市圏が存在する西や東方向から大気が入る雨季に寄与が増加する。人間活動が盛んな地域からジョグジャカルタ市へ長距離輸送されることが考えられる。

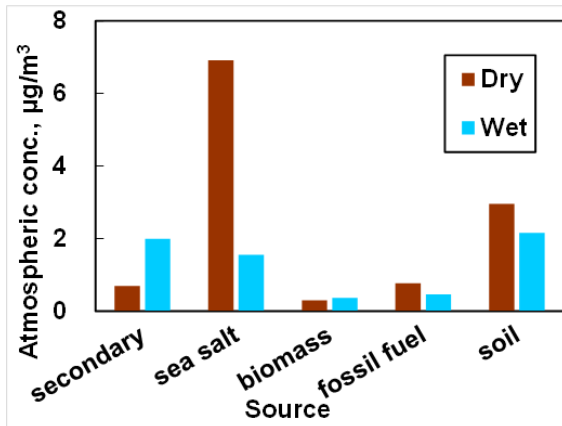


Fig. 7 Seasonal variation of sources of aerosol in Yogyakarta by PMF analysis between dry season and wet season (December 2012-September 2015)

<引用文献>

- Badan Pusat Statistik, インドネシア中央統計庁、<http://www.bps.go.id/>
- Surono et al., Journal of Volcanology and Geothermal Research, 241, 121-135, 2012
- スミソニアン協会 グローバル火山活動プログラム <http://www.volcano.si.edu/>
- 篠原宏志、火山噴火と大気環境 第2講 火山ガスの放出量と組成の測定、大気環境学会誌、Vol. 50, No. 5, p. A59-A65, 2015
- Le Guern, F. et al., Journal of Volcanology and Geothermal Research, 47, 223-245, 1982
- R.B. Symonds et al., Journal of Volcanology and Geothermal Research, 108, 303-341, 2001
- Santosa, S J. et al., Air Pollution and Urban Air Quality Management in Indonesia, Clean-Soil Air Water, 36 (5-6), 466-475, 2008
- HYSPLIT(Hybrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory) model, NOAA(National Oceanic and Atmospheric Administration), <https://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT.php>
- PMF EPA 5.0, EPA(U.S. Environmental Protection Agency), <http://www.epa.gov/heads/research/pmf.html>
- A. Reff et al., J. Air & Waste Manage. Assoc., 57, 146-154, 2007
- M. Koçak et al., Atmospheric Environment, 45, 6891-6900, 2011
- P. Lestari et al., Atmospheric Environment, 43, 1760-1770, 2009

5 . 主な発表論文等

[学会発表](計2件)

谷 敦史、田中 茂、Sri Juari Santosa、インドネシア・ジョグジャカルタ市における長期間大気観測による環境影響評価、第 56

回大気環境学会年会、2015年9月18日、早稲田大学(東京都新宿区)

田中 茂、谷 敦史、渡辺 秀平、司馬 里佳、Sri Juari Santosa、ムラピ火山によるインドネシア・ジョグジャカルタ市の環境大気へ及ぼす影響、第55回大気環境学会年会、2014年9月18日、愛媛大学(愛媛県松山市)

[その他]

ホームページ等

<http://www.applc.keio.ac.jp/~tanaka/lab>

6 . 研究組織

(1)研究代表者

田中 茂(TANAKA, Shigeru)

慶應義塾大学・理工学部・教授

研究者番号：10137987