

報告

神奈川県平塚における酸性雨調査結果

三村春雄, 阿相敏明*
(水質環境部, 大気環境部*)

Note

Research on Precipitation Chemistry at Hiratuka in Kanagawa Prefecture

Haruo MIMURA, Toshiaki ASO*
(Water Quality Division, *Air Quality Division)

キーワード：酸性雨, 経年変化, 天気図型

1. はじめに

酸性雨による環境汚染により、欧米を中心に森林被害や湖沼水の酸性化などの自然生態系に対する影響が顕在化しており、国際的にも非常に高い関心が持たれている。

酸性雨は、大気中の酸性物質が直接雨滴に取り込まれたり、雨滴中で酸性物質が生成して生ずるものである。汚染物質としては、人為発生源である工場や自動車等から発生する窒素酸化物(NO_x)、硫黄酸化物(SO_2)、炭化水素(HC)、自然排出源である火山から排出される SO_2 、HCl、畑地等から発生するアンモニア(NH_3)などがある。これらの排出された汚染ガスは大気中を輸送され、その途中で太陽光による光化学反応等の様々な反応を受けて酸性のガスや粒子状物質が生成される。生成されたこれらの酸性物質は遠くまで輸送され、そのままの状態で乾性沈着として、或いは雲や雨に取り込まれて酸性雨となって湿性降下物として、土壌や植物に降り注ぐ。その結果土壌が酸性化し植物が枯れたり、湖沼が酸性化するなどの被害が生じる。

神奈川県においては酸性雨の実態を把握するために、1974年から県内の8～10地点において、酸性雨の発生しやすい梅雨期を中心に酸性雨のモニタリング調査を継続して実施し夏期の酸性雨の実態について把握してきた。また1990年から3年間、大山のモミ枯れの原因調査¹⁾の一環として降水、霧水の測定を行った。ここでは神奈川県西部に位置し大発生源から離れた平塚において1990年6月から降水の自動採取器を用いて5年間にわたって

降水毎に継続調査した結果に基づいて季節的な変動、気象的な要因等について検討した結果について報告する。

2. 調査方法

2.1 調査期間

'90年6月から'95年3月

2.2 試料採取地点

① 公害センター湘南支所屋上('90年6月～'91年3月)：相模川流域の平野部に発達した平塚市の南部の市街地に位置し、付近にはビルが多く国道からも近い。相模湾からは北に2 km、相模川からは西に2.5 kmの位置にある。

② 環境科学センター屋上('91年4月～'95年3月)：相模川流域の平野部に発達した平塚市の市街からはやや北に位置し付近には畑も点在する。相模湾からは北に4 km、相模川からは西に1.5 kmの位置にある。①地点の北東方向約2 kmに位置しており工業団地も近くにある。

2.3 試料採取方法

降水自動採取装置(小笠原計器：US-400)を用いて、口径354mmのテフロンコーティングステンレスロートにより採取した。試料は一降水毎に降水量1～5 mmまでは降水量1 mm毎にガラス容器に採取し、これ以後の降水は一括して10 l ポリ容器に採取した。

2.4 分析項目と方法

試料は採取量を確認後出来るだけ早くミリポアフィルター(0.8 μ m)で濾過し、pH(pHメーター)、電導度(電導度計)、イオン成分(イオンクロマト法)について測定した。

3. 結果

一降水の平均濃度等については、降水量で重み付けして平均値を求めた。

3.1 降水量等

調査期間中に毎年約80回の降水があり、合計400回の降水を採取した(一部欠測データを除く)。横浜地方気象台の気象月報²⁾の平塚における月降水量と比較すると(図1)、一部採取ミス、オーバーフロー等で差が見られるが概ね一致していた。そこで以下の解析においては当地点での換算降水量を使用した。

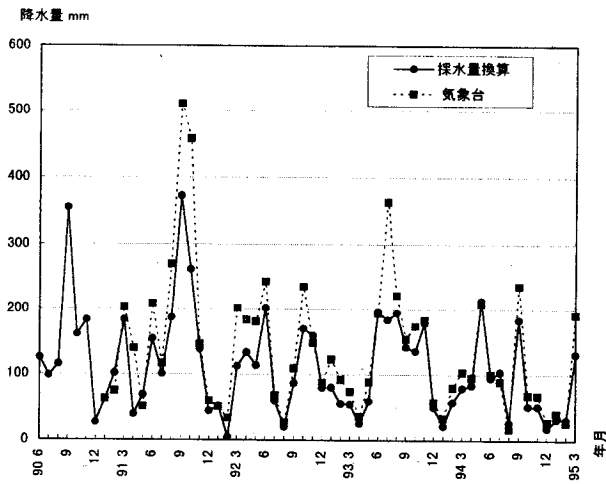


図1 月降水量の変化

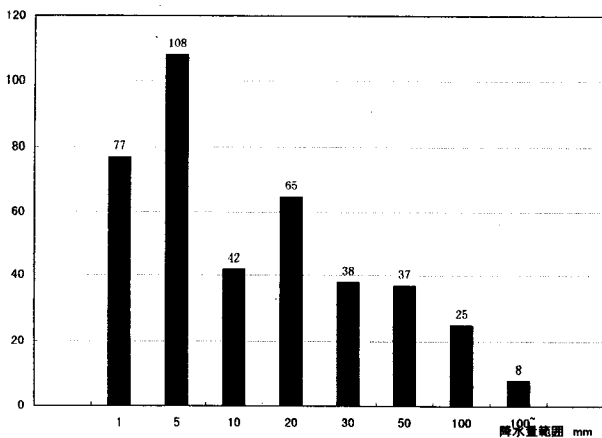


図2 降水量別降水回数

年降水量は1000~1400mmの間で変動しており横浜地方気象台の平年値1596mmに比べて少なかった。月別の降水量の変化(図1)は梅雨期、秋雨前線時に多く、冬季に少ない変動を示しており、太平洋岸の降水の特徴を示していた。

降水量範囲別に降水回数を求めそのヒストグラムをみると(図2)降水量5mm以下の降水量の少ない降水が185回と約半分近い回数を占めており、降水量が少ない降水の割合が多いことを示していた。一方降水量50mm以上の降水量の多い降水は全降水回数の約8%と降水回数は少ないものの、全降水量に占める割合は約41%であり降水量に対する寄与が大きかった。

3.2 pHの測定結果

5年間の全平均pHは一降水で4.71であり、初期降水で4.49であり一降水に比べて低かった。pHの年平均値を見ると一降水では4.58~4.85、初期降水では少し低く4.39~4.63の範囲にありほぼ横這いで推移しており(図3)年度間には顕著な差は見られなかった。降水量範囲別の平均pH(図4)をみると、降水量の少ない降水ではpH範囲が広くpHが低い傾向を示しており、降水量の増加に伴い4.24から5.06迄上昇していた。これは成分濃度の低い後続降水による希釈効果を示していると考えられた。全部の降水について降水量とpHの関係をプロットすると(図5)の様になり降水量の増加に伴いpH5付近に収束する傾向が見られ、これはバックグラウンド値を示すと考えられる。玉置等³⁾は台風に伴う降水を除いた降

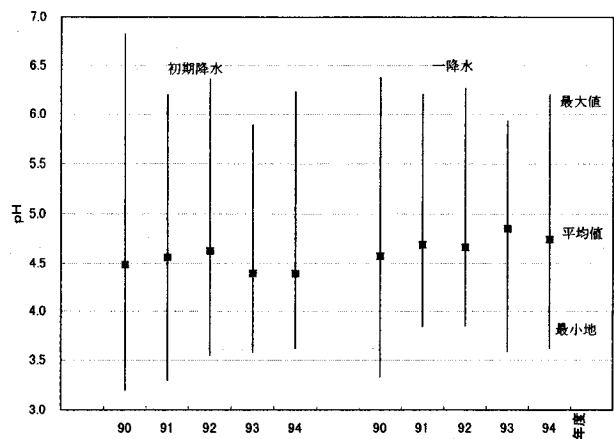


図3 pHの経年変化

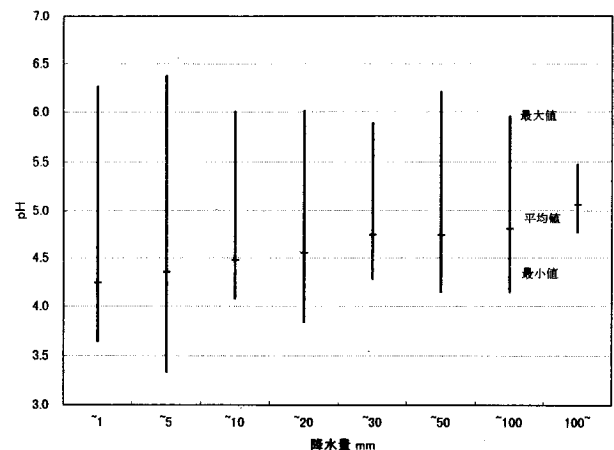


図4 降水量とpHの関係

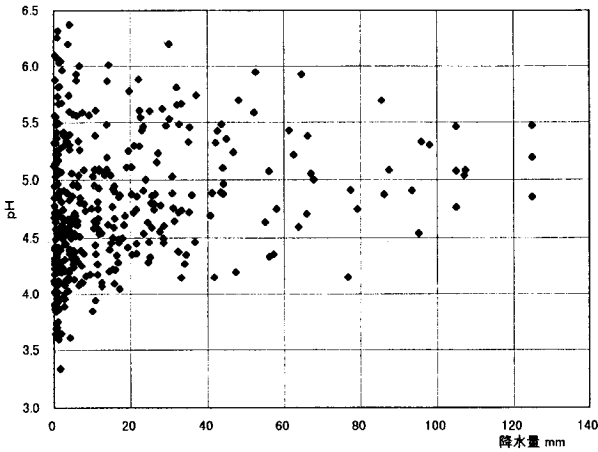


図5 降水量とpHの関係

水についてpH4.5~4.6に収束するとしているが、今回の平塚における降水は台風の影響もあり高い値に収束したと考えられる。季節毎(春：3~5月、夏：6~8月、秋：9~11月、冬：12~2月)に区分してpHの度数分布を見ると、初期降水(図6)、一降水(図7)ともに夏季のpHの分布が低pH側にピークを持ち、逆に冬季には高くなる傾向を示しており、夏季には光化学反応等により生成した酸性物質がpH低下に寄与していると考えられた。

3.3 成分濃度の測定結果

成分濃度の年平均値を初期降水及び一降水について表1、2に示す。90年は台風の影響で降水量が多く、初期降水、一降水ともに海塩成分濃度が高かった。その他の年度では各成分濃度ともあまり大きな差はみられなかった。

降水量範囲別の一降水の平均濃度を表3に示す。降水中のほとんどのイオン成分の平均濃度は、降水量の増加とともに減少する傾向を示しており、全イオン濃度の指標である導電率は降水量の増加により急激に減少していた(図8)。しかし海塩成分であるナトリウムイオン(図9)、塩化物イオン(図10)については降水量30~50mmの降水での濃度がその前後の降水量での平均濃度と比べて高くなっており、台風による海水の巻き上げの影響を強

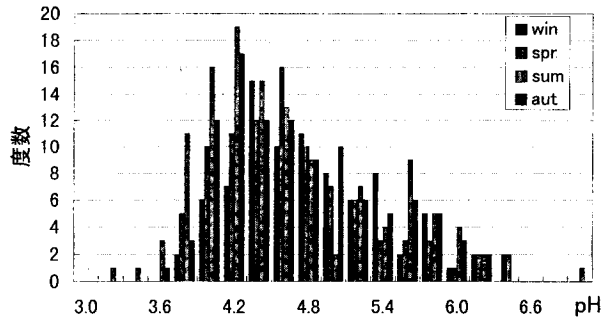


図6 季節別pH度数分布(初期降水)

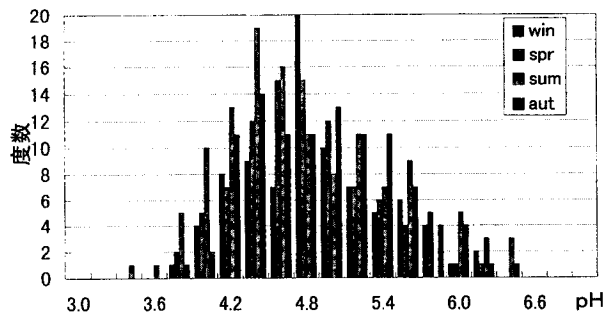


図7 季節別pH度数分布(一降水)

表1 初期降水濃度の年平均値

年度	EC μS/cm	pH			イオン成分濃度(mg/l)							
		MIN	MAX	AVE	NH ₄ ⁺	K ⁺	Na ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻
90	129.8	3.20	6.82	4.49	3.29	0.65	7.35	2.18	1.15	10.61	9.55	16.86
91	99.2	3.30	6.20	4.56	3.24	0.40	3.77	1.72	0.53	8.65	8.31	9.96
92	82.5	3.55	6.36	4.63	2.31	0.30	3.52	1.15	0.48	6.72	6.30	8.40
93	81.0	3.58	5.89	4.40	3.42	0.38	2.92	2.00	0.50	7.19	8.64	6.60
94	86.8	3.62	6.23	4.39	3.82	0.41	3.31	1.89	0.51	8.44	9.94	8.05
全体	91.3	3.20	6.82	4.49	3.17	0.40	3.64	1.69	0.57	8.11	8.39	8.80

表2 一降水濃度の年平均値

年度	雨量 mm	EC μS/cm	pH			イオン成分濃度(mg/l)							
			MIN	MAX	AVE	NH ₄ ⁺	K ⁺	Na ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻
90	1,410	32.0	3.34	6.37	4.58	0.54	0.12	2.13	0.25	0.30	2.09	1.26	4.46
91	1,534	22.6	3.84	6.20	4.69	0.64	0.07	0.64	0.21	0.08	1.67	1.37	1.59
92	1,214	25.4	3.84	6.26	4.66	0.61	0.07	0.96	0.23	0.13	1.90	1.47	2.26
93	1,321	17.4	3.59	5.93	4.85	0.56	0.07	0.59	0.27	0.10	1.32	1.30	1.37
94	1,021	25.9	3.63	6.20	4.74	0.78	0.10	1.05	0.38	0.16	2.11	2.02	2.39
全体	1,300	23.7	3.34	6.37	4.71	0.59	0.08	1.08	0.25	0.15	1.72	1.38	2.40

表3 降水量範囲別成分濃度

降水量範囲	回数	雨量 mm	導電率 $\mu\text{S/cm}$	pH	イオン成分濃度(mg/l)							
					NH_4^+	K^+	Na^+	Ca^{2+}	Mg^{2+}	SO_4^{2-}	NO_3^-	Cl^-
~ 1	77	42	102.9	4.24	4.14	0.46	3.67	2.04	0.60	8.99	11.03	9.20
~ 5	108	297	56.3	4.35	1.83	0.23	1.98	0.78	0.29	4.63	4.44	4.75
~10	42	280	41.3	4.48	1.18	0.15	1.71	0.51	0.22	3.26	2.95	3.77
~20	65	899	29.7	4.55	0.87	0.09	0.81	0.36	0.12	2.46	2.31	2.03
~30	38	927	24.4	4.74	0.61	0.08	1.25	0.24	0.18	1.82	1.40	2.76
~50	37	1,375	18.9	4.74	0.46	0.05	0.78	0.18	0.10	1.37	0.94	1.75
~100	25	1,782	18.2	4.81	0.34	0.06	0.92	0.14	0.12	1.08	0.77	2.05
100~	8	905	15.3	5.06	0.21	0.07	1.35	0.13	0.18	0.88	0.33	2.57

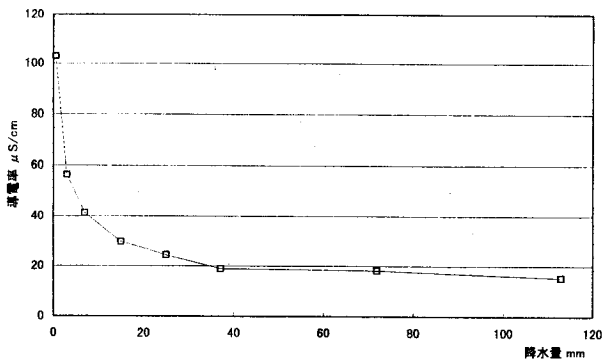


図8 降水量別濃度(導電率)

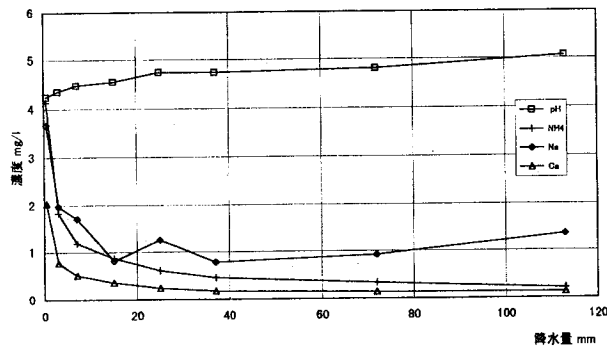


図9 降水量別濃度(陽イオン)

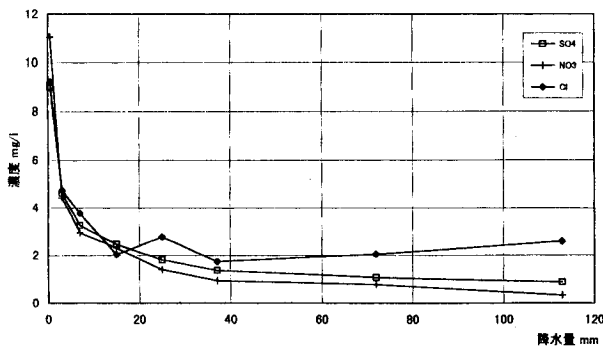


図10 降水量別濃度(陰イオン)

く受けていたと考えられる。これ以外のイオン成分濃度は導電率と同様の減少傾向を示していた。

一降水のpHの月平均値の推移を最高値、最低値とともに図11に示す。月毎に平均値は大きく変動しているが、月平均pH値と経過月数との間には危険率5%で正の相関がみられ、pHはやや増加傾向にある。即ち酸性度が低下していることを示している。同様に主要なイオン成分について一降水の月平均濃度の推移を見ると、カルシウムについて正の相関があったが、硫酸イオン、硝酸イオン、アンモニウムイオンについては相関が認められなかった。このことからpH増加にはカルシウムイオンの増加の寄与が大きいことが考えられる。

降水の酸性化に対する硝酸イオンと硫酸イオンの寄与を比較するため、 NO_3^- と nssSO_4^{2-} の当量濃度比(N/nssS)が用いられる。N/nssSは冬季に低く夏季に高い傾向を示す(図12)が、同時に降水量の影響を強く受けており、降水量が少ないほど高い傾向を示した。これは NO_3^- が降水に取り込まれやすく、初期降水でN/nssSが高いことを反映している。また経年変化を見るとN/nssSが増加しており、 NO_3^- の寄与が相対的に大きくなる傾向を示していた。この値は酸性雨対策調査第一次調査の値⁴⁾と比較すると、首都圏にあり発生源の寄与の大きい東京都江東区の値に相当する高い値であった。

3.4 天気図型による降水成分濃度の変化

降水濃度と気象要因との関係を明らかにするため、ここでは気象月報に記載された天気図型による分類を用いて検討した。即ち気圧配置を中心に各降水を12種類の天気図型(降水日の午前9時の天気図型)に各降水を分類し(図13)、天気図型と降水濃度との関係からどのような気象条件で降水が酸性化しやすいかについて検討した。天気図型別の平均濃度等を表4に示す。各天気図型における降水回数と平均降水量について検討したところ天気図型別の平均降水量には大きな差が見られた。前線型(F)、

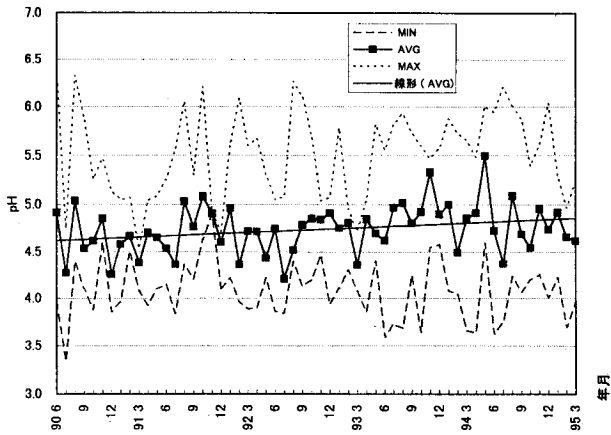


図11 一降水phの経年変化

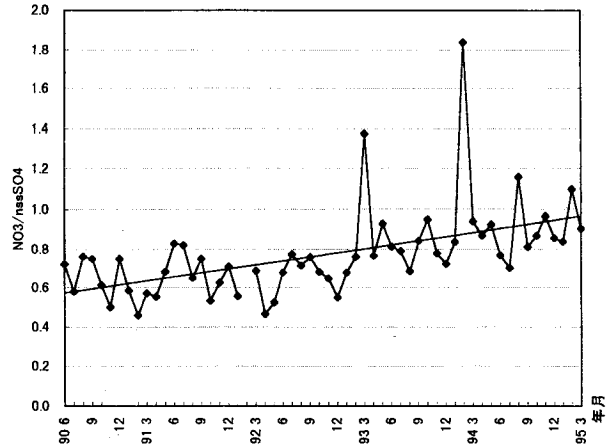


図12 NO₃/nssSO₄の経年変化

	H 1 西高東低型 (冬型)		L 1 日本海低気圧		F 1 日本海を南下 する前線
	H 2 移動性 高気圧型		L 2 本州付近の 低気圧		F 2 本州付近を通 過中の前線
	H 3 北高型		L 3 本州南沖の 低気圧		F 3 本州南沖に 停滞する前線
	H 4 南高北低型 (夏型)		H 5 移動性高気圧 の後面		T 台風、

図13 天気図型モデル

表4 天気図型別平均濃度

天気図型	回数	雨量 mm	導電率 μS/cm	pH	イオン成分濃度(mg/l)							
					NH ₄ ⁺	K ⁺	Na ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻
H 1	20	7.2	30.5	4.56	0.86	0.10	0.95	0.42	0.13	2.14	2.74	2.24
H 2	11	2.4	46.7	4.52	1.61	0.21	1.81	0.89	0.27	4.13	4.79	3.89
H 3	29	3.1	56.3	4.28	1.74	0.22	1.52	0.80	0.26	4.51	4.93	3.76
H 4	8	2.9	55.4	4.54	1.12	0.24	4.34	0.78	0.54	3.48	2.48	8.98
H 5	7	6.5	96.0	4.76	0.89	0.51	11.62	0.45	1.85	5.22	1.68	23.90
F 1	11	8.3	24.5	4.81	0.64	0.11	1.33	0.34	0.18	1.94	1.33	2.80
F 2	69	10.7	38.1	4.38	0.90	0.10	1.28	0.33	0.16	2.76	2.33	2.92
F 3	101	21.2	17.9	4.80	0.55	0.06	0.62	0.20	0.09	1.46	1.18	1.46
L 1	24	13.1	24.5	4.95	0.42	0.11	1.80	0.26	0.22	1.50	0.92	3.87
L 2	51	25.2	19.0	4.76	0.48	0.06	0.69	0.22	0.10	1.45	1.12	1.58
L 3	52	15.4	23.4	4.62	0.71	0.07	0.49	0.25	0.08	1.81	1.77	1.36
T	16	50.4	22.7	5.13	0.26	0.12	2.29	0.18	0.32	1.12	0.40	4.56
全体	400	16.3	23.7	4.71	0.59	0.08	1.08	0.25	0.15	1.72	1.38	2.40

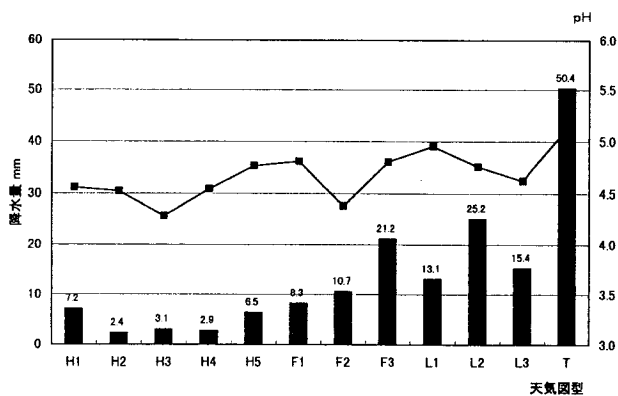


図14 天気図型別降水量とpH

低気圧型(L)での降水回数が多く、特に梅雨前線等によるF3型の南岸の前線に伴う降水が101回と最も多く、平均降水量も多かった(図14)。次いで降水回数が多かったのはF2、L3、L2であった。一方高気圧型(H)では、降水回数、平均降水量ともに少なかったが、降水量が少ないためイオン成分濃度は比較的高濃度を示していた。台風では降水量が多く海塩成分以外の成分濃度は低かった。

一降水のpHをみると、降水量の少ないH3(北高型)で最も低く、次いで比較的降水量の多いF2(本州付近を通過中の前線)で低い傾向を示した。F2では初期降水のpHが最も低く、イオン成分濃度も高い傾向を示していた。これらは前線に向かって北東風の吹きやすい気象条件であり、移流過程において降水中に首都圏から排出された汚染物質を取り込むためと考えられる。湿性大気汚染被害が生じたときの気象解析結果によると、北東気流の条件下で汚染物質が降水に取り込まれ高濃度をもたらしたと報告されており、今回の解析結果もこれと同様の結果であった。Wolf⁽⁵⁾はニューヨークでの降水のpHは雷雨時に最も低く、次いで寒冷前線に伴う降水であると報告しており、今回の結果とよく対応していた。

主要な人為起源イオン成分であるアンモニウムイオン、硫酸イオン、硝酸イオンについて濃度範囲別(当量濃度)の出現割合を天気図型別に求め図15、図16、図17に示した。硝酸イオンは他に比べると広い範囲に分布する傾向を示していた。また硫酸イオンとアンモニウムイオンはほぼ同様の分布を示していた。三成分共に台風時には低濃度側にシフトし、高気圧時には高濃度側にシフトする傾向であった。

4. まとめ

1990年6月～1995年3月における神奈川県平塚における降水を調査したところ以下のことが分かった。

(1) 降水のpHは4.5～5.0の間で推移しており、やや増

加する傾向も見られる。

(2) 夏季のpH低下には硝酸イオンの寄与が大きいと考えられる。

(3) 降水中のイオン成分濃度は降水量と共に低下する傾向を示した。

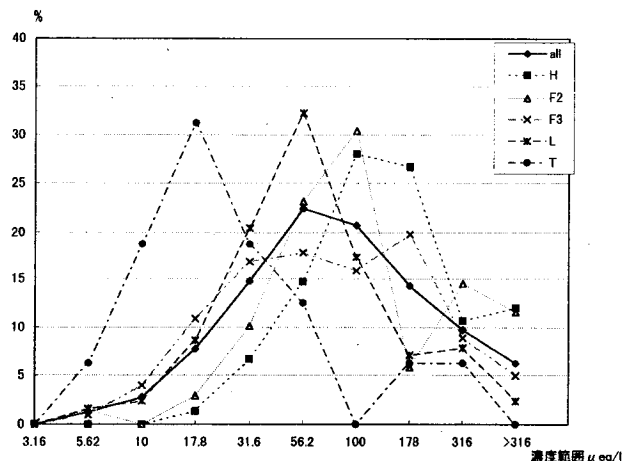


図15 アンモニウムイオン濃度の分布

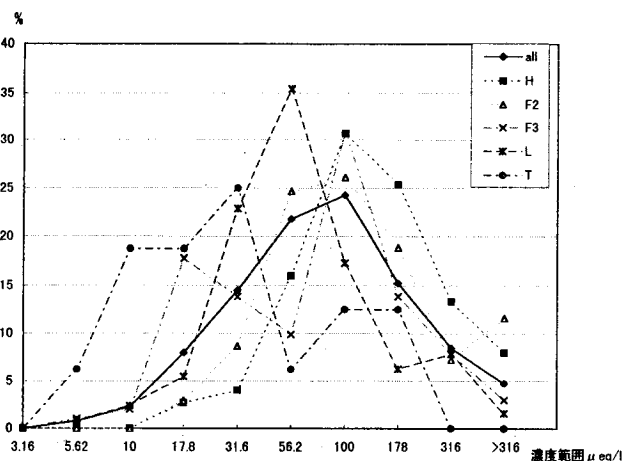


図16 硫酸イオン濃度の分布

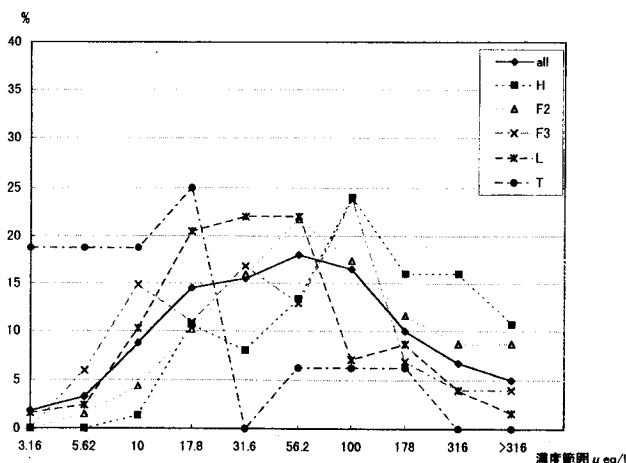


図17 硝酸イオン濃度の分布

- (4) N/nssSは夏季に高く冬季に低い季節変動を示し、経年的には増加傾向であった。
- (5) 天気図型による平均pHはF2(本州付近を通過中の前線)による降水のpHが初期降水で最も低く汚染物質を取り込みやすい気象条件と考えられた。

酸性雨の環境への影響は現在迄のところみられないが、日本に対する東アジアからの汚染の増加等が懸念されており、今後とも監視していく必要があると考えられる。また、これらの監視においては、長期的な推移を考えた場合には降水自動測定器による方法が有用と考えられ、今後その活用について検討していく必要がある。

参 考 文 献

- 1) 神奈川県環境部：酸性雨に係る調査研究報告書(1994)。
- 2) 横浜地方気象台：神奈川気象月報。
- 3) 玉置元則：日本化学会誌, 1990, 930(1990)。
- 4) 酸性雨対策検討会大気分科会：酸性雨対策調査報告書, (1990)。
- 5) G.T.Wolff：E S & T, 13, 209(1979)。