

論文

神奈川県西部地域における大気汚染発生機構解明 —大山における酸性物質等の移流について—

阿相敏明*、三村春雄*、相原敬次*、牧野 宏*、須山芳明*、金子幹宏*、
若松伸司**、鶴野伊津志**
(* 大気環境部、** 国立環境研究所)

Air pollution distribution in the western part of Kanagawa Prefecture (Study on transport of Acidic Matters at Mt.Ohyama)

Toshiaki.ASOH*, Haruo.MIMURA*, Keiji.AIHARA*, Hiroshi.MAKINO*, Yoshiaki.SUYAMA*,
Mikihiko.KANEKO*, Shinji.WAKAMATU**, Ithusi.UNO**
(*Environmental Research Center of Kanagawa Prefecture,
**National Institute for Environmental Studies)

summary

Transport mechanism of the polluted air mass was investigated by the field observation at the western part of Kanagawa covering Mt.Ohyama. The observation was conducted on 8 Aug.1990 and 8 Aug.1991 about vertical distribution of the acidic ions, O₃ and SO₂ concentration in atmosphere and the upper wind at Hiratuka and Mt.Ohyama.

The results are as follows.

- 1) It was found that acidic matters and SO₂ distribution was similar to O₃ distribution. These O₃ and air pollutants concentration was higher in the sea breeze layer than the upper layer, it is suggested that air pollutants had been transported at about the same sea level altitude from Hiratuka to Mt.Ohyama.
- 2) Groundlevel concentrations was lower than the upper layer concentrations, it was suggested that air pollutants was removed by deposition to trees.
- 3) Height of sea breeze layer of Mt.Ohyama was 200~300meters higher than that of Hiratuka, and thickness of sea breeze layer of Mt.Ohyama was about 400meters thinner than that of Hiratuka.
- 4) Acidic matters was richer than alkaline matters in the sea breeze layer. Therefore, it was suggested that the precipitation became acidic when the air pollutants were scavenged by precipitation. Contribution to the acidification of precipitation was higher for SO₄²⁻ than NO₃⁻, followed by Cl⁻.
According to the results of current and previous investigation, it is assumed as follows.

Air pollutants such as SO₂, NO_x which are discharged from industrial area along Tokyo bay and urbanized area are transported to over the Sagami bay by north-east breeze in the morning. These pollutants induce photochemical reaction and produce O₃, acidic matters such as SO₄²⁻, NO₃⁻ over sea. These reactants are transferred to Hiratuka area by sea breeze over Sagami bay (south breeze) and photochemical damages are brought over there. The pollutants transported to Hiratuka area are further transfer to Mt.Ohyama, consequently it seems that the forest damage is represented as a dead of firs.

1. はじめに

県西部地域の丹沢山地はブナ、モミ等の自然林などが広く分布し、生態学的に重要な環境特性を持っている。その丹沢山地の東に位置する大山(標高1,252m)の東南斜面の750mから1,100mの範囲に自生しているモミの原生林は、天然記念物にも指定され学術的に価値の高い貴重なものである。しかしこのモミ林に20年ほど前から立ち枯れが目立つようになり、特にここ10年ほど急速に悪化して、1/3近くが枯死又は、枯死寸前の状態になっているという報告もされ注目されている。¹⁻³⁾この原因として、酸性雨、酸性霧、オキシダント(OX)等の影響が考えられ、大山下社等において降水、イオン降下物、霧、大気汚染物質調査等が実施され結果が報告されている。⁴⁾⁻⁷⁾

著者らは1980年から県西部地域の光化学スモッグ発生機構を解明するため、ヘリコプターを用い平面的、立体的なオゾン(O₃)濃度等の測定を実施するとともに、上層風観測、テトルン調査等を行い、汚染物質が京浜工業地域から朝方の北東気流により相模湾に移送され、光化学反応後、午後南風の相模湾海風によって県内に流入し、一部大山に移流することを明らかにした。^{6).8).9)}

一方、地上における酸性物質等の動態について調査を行い、光化学反応過程でO₃が生成するとともに二酸化硫黄(SO₂)及び窒素酸化物(NO_x)はそれぞれ数%/h、2~30%/hで酸化し、酸性雨の原因物質である硫酸(H₂SO₄)及び硝酸(HNO₃)が生成し、これらの物質が光化学スモッグの中かなりの濃度で存在することをみいだした。^{10).11)}また、大山周辺における酸性ガス、アンモニアの濃度分布を調査した結果、各汚染物質濃度は平塚等都市部で高く、山間部で低くなっていたが、その差はSO₂で大きく、HNO₃、HClで小さくなっていた。これらガス物質の海岸部から丹沢山間部に至る濃度分布を詳細に調査した結果においても汚染物質濃度は海岸から山間部にかけて徐々に減衰していた。その中でSO₂及びHClは平塚市街地でピークを示し、特にSO₂は高く、近傍の工場群からの影響が考えられた。また、大山山頂において各汚染物質は中腹よりもかなり高い値を示していたのが特徴的であった。^{12).13)}一方、粒子状物質をみると、夏季における大山下社及び平塚

のCl⁻、NO₃⁻、Na⁺、Ca²⁺等イオン成分濃度を比較するとほとんどの成分で平塚の方が高かったが、SO₄²⁻、NH₄⁺は大山下社の方が高くなっていた。SO₄²⁻、NH₄⁺、K⁺は微小粒子が多く、その他のイオン成分は粗大粒子が大部分を占めており、発生形態が異なることを示していた。¹⁴⁾

以上のことから、大山の相模湾に面した斜面では相模湾から進入した汚染物質を含んだ海風によって樹木が暴露され、直接ガスにより、また海風が斜面を上昇する際生じる汚染物質を多量に含んだ霧によって被害を受けることが考えられた。

今までの調査で上空におけるO₃の挙動、また地上における酸性物質等大気汚染物質の挙動についてかなり把握されてきたが、上空における酸性物質等の動態については未だ解明されていない。

そこでモミ枯れの一原因と考えられる汚染物質の挙動を把握し、これらの大山への流入過程を解明するため、被害地域に隣接している大山下社(海拔約700m)と汚染気塊の通り道である平塚において地上及び上空におけるO₃濃度、H₂SO₄、HNO₃等酸性物質、またアンモニア(NH₃、NH₄⁺)、カルシウム(Ca²⁺)等アルカリ性物質の濃度を測定し、併せて上層風観測を行った。

2. 調査方法

2.1 調査地域

調査地域及び調査地点の概要を図1、2に示す。

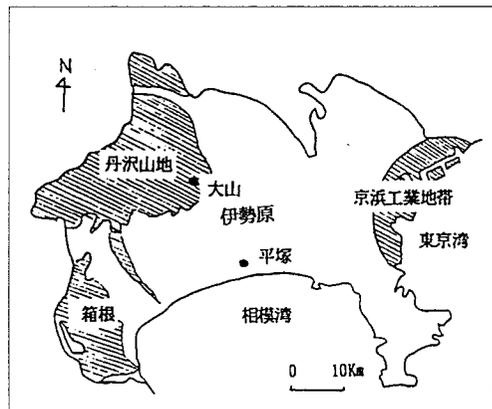


図1 調査地点

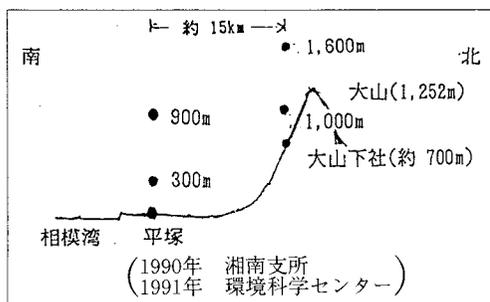


図2 調査地域及び調査地点の概略

調査地域は、平塚から大山に至る地域で、その南部には相模湾が存在し、北西部に丹沢山塊、南西部に箱根、伊豆半島があり、県内平野部の西端に位置している。

大山は、標高1,252mで丹沢山塊の東南の端に位置し、平塚の海岸から北西約18kmに位置する。海岸から大山の麓までは平坦であり、相模湾からの風を遮る山地はない。

平塚市は、人口約25万人の中規模都市で、かなり工業が盛んである。

伊勢原市は、大山山麓に位置し、人口約9万で平塚に比べ工場は少ない。

大山における調査地点は、大山下社で大山の東南斜面にあり、海拔約700mに位置する。

平塚における調査地点は調査年によって異なり、1990年調査は旧公害センター湘南支所で行い、1991年調査は環境科学センターで行った。

旧公害センター湘南支所は、平塚市街地の西端に位置し、北東約1kmに工業団地があり、海岸から約2kmにある。(以下、湘南支所という)

環境科学センターは、平塚市街地の北端に位置し、南東に工業団地があり、海岸から4kmにある。

2.2 調査日

調査は、光化学スモッグが発生し易い夏季に行った。

- 1) 1990年8月8日
- 2) 1991年8月8日

2.3 調査項目及び測定方法

大山下社及び平塚においてO₃濃度(ダシビー社製1006-AHJ型、紫外線吸収方式、応答速度12sec)と、

多段ろ過捕集法により約10ℓ/minで1時間ごとにイオン成分濃度を測定した。

多段ろ過捕集法は、大気開放型ろ紙ホルダーの1段目にポリフロンろ紙(住友化学製、FP-065ポア径0.65μm)、2段目にポリアミドロろ紙(ザルトリウス製、SM-11906ポア径0.45μm)、3段目にアルカリ含浸ろ紙(東洋ろ紙No51Aを1%炭酸ナトリウム溶液に浸し、乾燥した。)、4段目にシュウ酸含浸ろ紙(東洋ろ紙No51Aを1%シュウ酸溶液に浸し、乾燥した。)を装着し、大気試料を採取する方法である。

試料を採取したろ紙は10mlの蒸留水で抽出した後、ポリフロンろ紙抽出液はイオンクロマトグラフィ(IC法)を用いて粒子状のCl⁻、NO₃⁻、SO₄²⁻、Na⁺、NH₄⁺、K⁺、Mg²⁺、Ca²⁺を分析した。またポリアミドロろ紙抽出液及びアルカリ含浸ろ紙抽出液はIC法によりそれぞれNO₃⁻、SO₄²⁻を分析した。シュウ酸含浸ろ紙抽出液は、インドフェノール法によりNH₄⁺を分析した。

今回用いた多段ろ過捕集法は、温湿度の変化、酸アルカリ反応等によるろ紙捕集面におけるアーティファクトにより硝酸、硝酸塩、塩酸、塩化物、アンモニア、アンモニウム塩が揮散、吸着等することが知られている。¹⁵⁾その影響の度合いは、温湿度変化、サンプリング時間、酸ミストの量等によって異なると思われる。そこで今回の調査結果は、ガス状物質と粒子状物質を分けずに考察を行った。

上層風に関しては、平塚においてパイロットバルーンを放球し、これをセオドライトを用いて高度2,000mないし雲入まで追跡観測して上層の風向、風速を求めた。1991年調査では大山下社においても観測を行った。

またこの地域のO₃濃度と気温及びイオン成分濃度の立体分布を知るため、県所有のヘリコプターに地上調査同様O₃計、温湿度計(新栄製、THR-10A)を搭載し連続測定を行った。さらに多段ろ過捕集法によりNO₃⁻等イオン成分濃度も併せて測定した。1991調査ではSO₂計(サーモエレクトロン製、Model43A、パルス蛍光方式)も搭載し、連続測定を行った。

調査飛行は両年とも13時30分頃から約1時間30分を行った。

調査観測地点は図2のとおりであり、イオン成分

調査は平塚上空300m、900m、大山上空1,000m、1,600mで1地点10~15分巡回飛行を行い、その間20~25ℓ/minで試料採取を行った。また平塚から大山までは高度300mで飛行した。

なお、解析にあたっては神奈川県常時監視測定局、及び大山下社臨時測定局及び館野高層気象観測局の結果を参考とした。

3. 調査結果

3.1 1990年調査

3.1.1 調査日の気象状況

調査日の天気図を図3に、館野高層気象台における成層の状態曲線を図4に示す。台風が三陸沖に去り小笠原高気圧の勢力下に入るが西から移動性高気圧が近づく。上層大気には西風が入るが、下層は弱い北風となっていた。上層900m~1,100mには逆転層がみられ大気は安定状況を示し、神奈川県内は光化学スモッグが発生し易い状況であった。

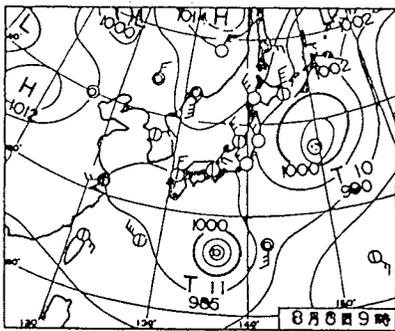


図3 天気図(1990年8月8日9時)

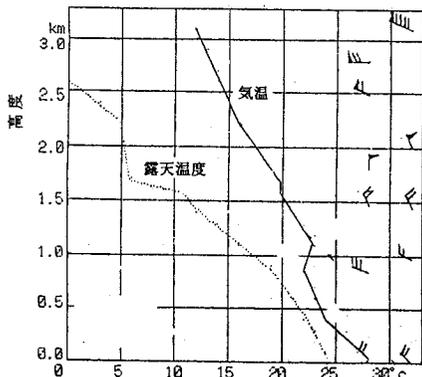


図4 館野における成層の状態曲線
(1990年8月8日9時)

3.1.2 神奈川県下の地上風及び地上オキシダント濃度分布

神奈川県下の朝方の地上風及び NO_x (NO + NO₂)濃度を図5に、調査時における O₃濃度を図6に示す。

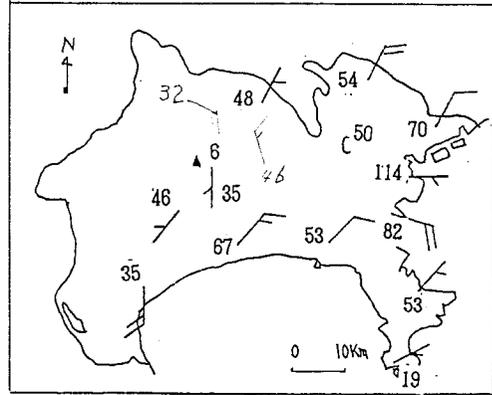


図5 地上風及び NO_x 濃度(1990年8月8日8時)

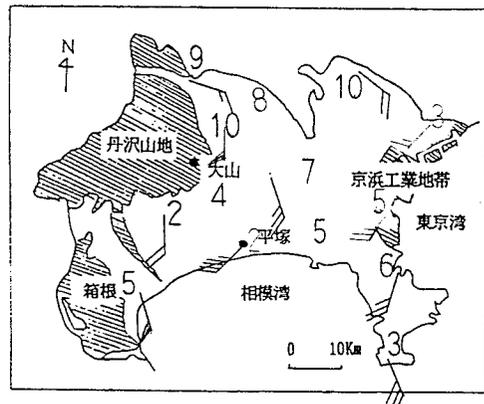


図6 地上風及び O₃ 濃度(1990年8月8日14時)

朝方、県内は弱い北東気流であり、NO_x濃度は県東部から県中部までかなり高濃度であった。調査時には県内は南風となっており、O₃濃度は相模湾沿岸地域で低く、県北部で高濃度となっていた。平塚市役所及び大山下社における大気汚染物質濃度及び風向風速の時刻変化を図7に示す。

平塚では9時から南~南西風となり、朝方高濃度であった NO_x は11時から低下し、調査時には20ppb程度まで低くなった。O₃濃度は13時にピークを示したが約30ppbで低かった。しかし、大山下社では8時から15時まで弱い南風が入り、O₃濃度は

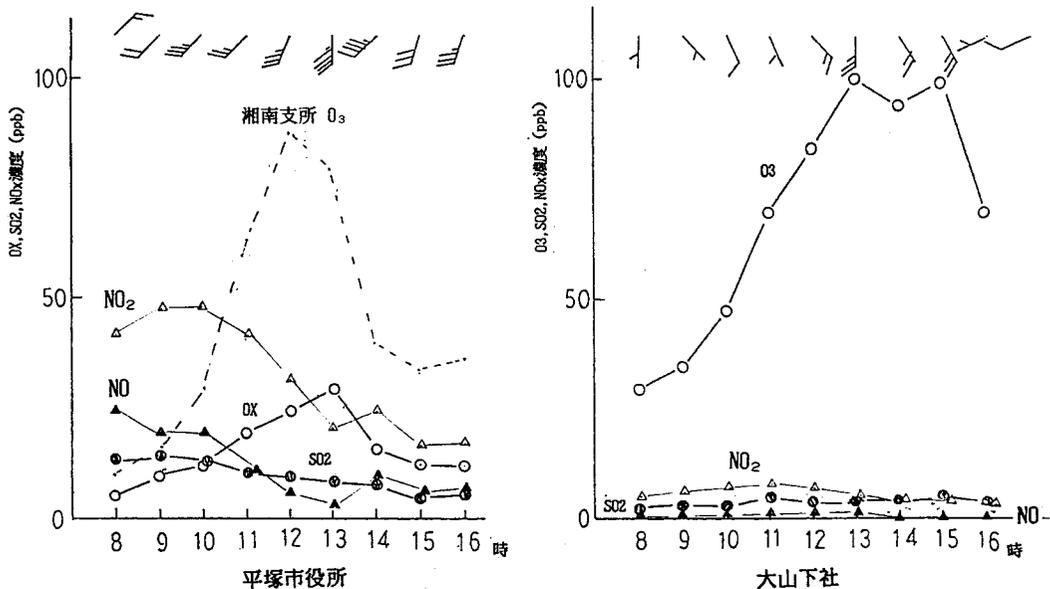


図7 平塚市役所及び大山下社における大気汚染物質の時間変化(1990年8月8日)

午前中徐々に上昇し、調査時には約100ppbを示した。平塚でOX濃度が低かったのは、後述する上空のO₃等の結果と考え併せると朝方の北東気流が弱かったため、京浜工業地域からの汚染物質が十分相模湾の内部まで移送されなかったこと、また早くから県内に相模湾海風が入り、清浄気塊が平塚の下層に入り込み、汚染気塊が北に押しやられたためと考えられる。さらに、湘南支所におけるO₃濃度が12時、13時に80~90ppbであったことから、平塚市役所ではNO等によってO₃が一部分解されていることが考えられた。

3.1.3 上層風の状況

湘南支所における上層風の結果を図8に示す。上空調査時における上層風は、地上から1,200mまでは南よりの風、その上層で西風となっており、相模湾海風の高度は約1,200m程度であった。海風層内の下層400mまでは南南西~南西の若干異なった風系であり、先に述べた様に清浄空気層であることが推測された。

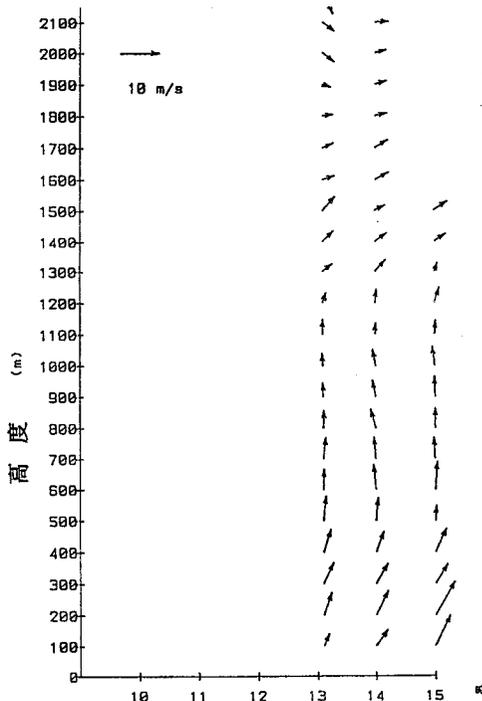


図8 上層風観測結果(1990年8月8日・湘南支所)

3.1.4 上空のオゾン濃度分布

平塚における上空のO₃濃度は高度300mで87ppb、

900mで125ppbと上空の方が高くなっていた。この時の地上のO₃濃度は34ppbであった。このことか

らも汚染気塊の下層に清浄な気塊が流入してきていることが伺われた。

大山上空では、高度1,000mで112ppbであり、その上空1,600mでは70ppbと低濃度であった。大山下社の濃度が100ppbであったことから、大山における汚染気塊の厚さは約800m程度であり、平塚方面から運ばれたものと考えられた。また海風層の高度は平塚では1,200m程度と考えられたが、大山では1,600mと高くなっており、これは大山における

地表面の高度が高いことによるものと考えられた。

3.1.5 地上におけるイオン成分濃度の状況

湘南支所における地上のイオン成分濃度等の測定結果を表1に示す。各イオン成分濃度の時刻変化はO₃濃度変化と同じ動きを示し、12:00~13:00が高濃度となっていた。上空調査時における13:30~14:30の濃度は12:00~13:00の濃度からかなり低くなっていた。

表1 イオン成分濃度測定結果(1990年8月8日)

			HCl	Cl ⁻	HNO ₃	NO ₃ ⁻	SO ₂	SO ₄ ²⁻	NH ₃	NH ₄ ⁺	Na ⁺	K ⁺	Mg ²⁺	Ca ²⁺	O ₃ (ppb)
平塚 湘南支所	10:30~11:30		6.4	2.7	19.5	12.5	14.2	15.5	5.9	2.1	1.3	0.3	0.4	0.7	71
	12:00~13:00		7.6	2.1	34.0	13.5	16.1	22.8	2.2	3.5	1.2	0.3	0.4	0.9	80
	13:30~14:30		3.0	1.8	13.4	2.9	6.5	20.5	2.3	2.1	1.1	0.2	0.2	0.5	37
	高度 300m	13:38~13:53	3.6	2.4	18.8	3.2	6.2	24.8	10.8	3.3	0.7	0.2	0.1	0.3	84~90
高度 900m	13:58~14:13	7.9	3.4	15.8	1.2	9.8	14.5	5.0	1.6	1.3	0.3	0.0	0.0	100~160	
大山下社	高度 1,000m	14:19~14:34	3.7	3.3	18.0	0.7	17.6	25.3	12.8	4.2	0.7	0.5	0.0	0.0	100~130
	高度 1,600m	14:38~14:53	3.1	2.6	4.3	1.6	3.3	22.8	9.8	3.9	0.8	0.3	0.0	0.0	66~72

(単位: $\mu\text{g}/\text{m}^3$)

3.1.6 上空におけるイオン成分濃度分布

平塚及び大山におけるイオン成分濃度の立体分布

調査結果を表1及び図9-1、9-2に示す。13:30~14:53の上空調査時における高度別各イオン成

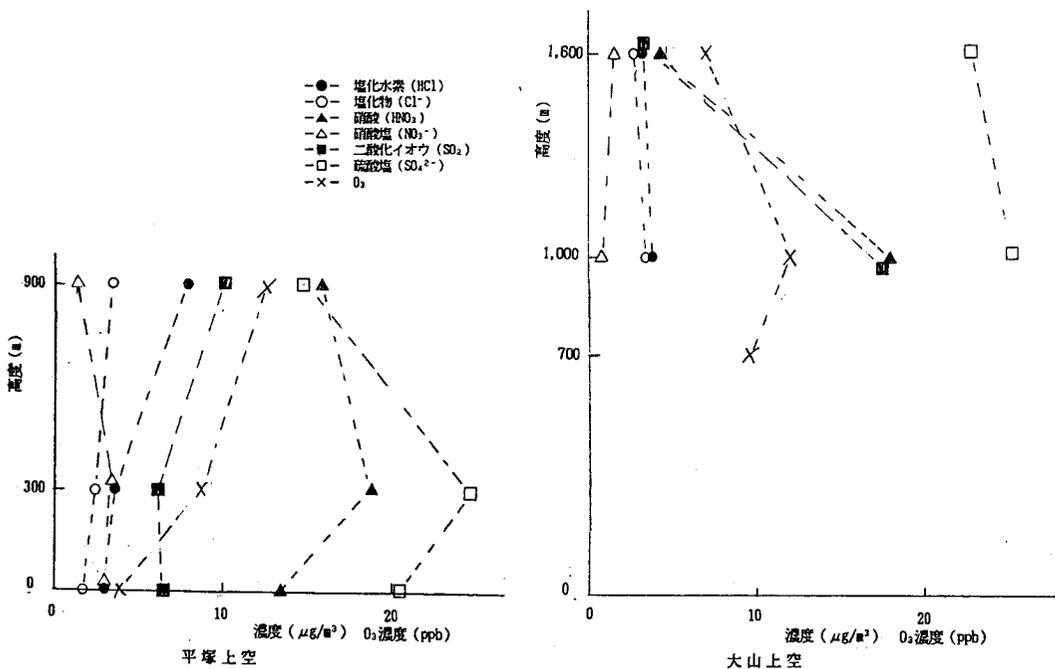


図9-1 高度別イオン成分濃度分布(アニオン)(1990年8月8日)

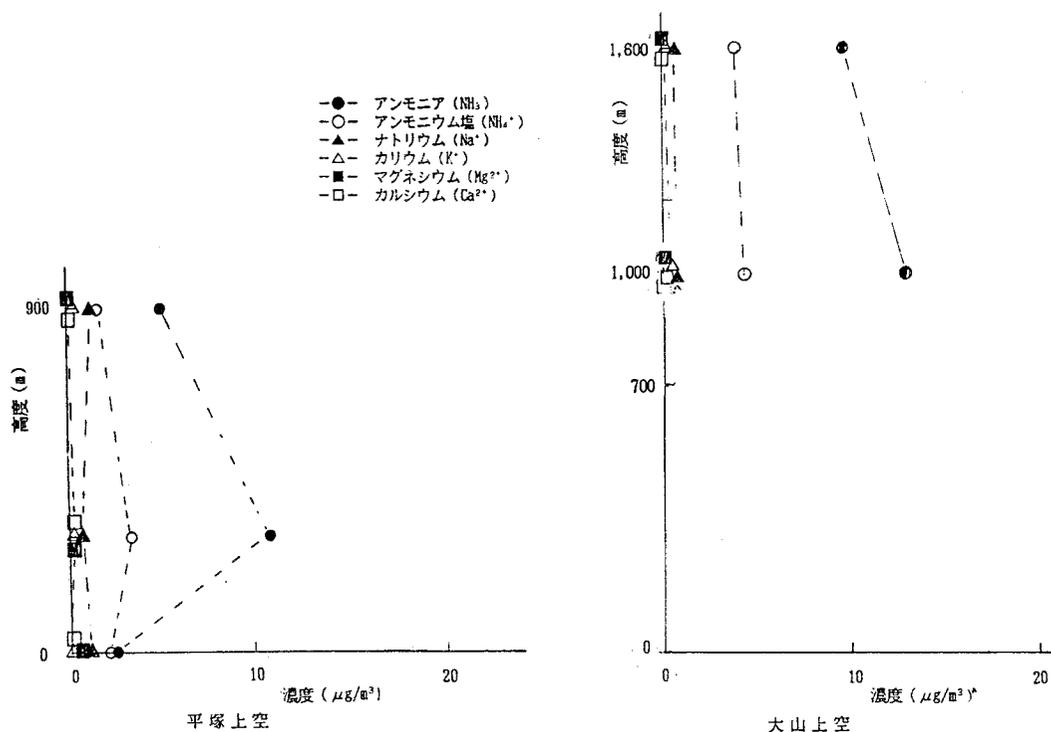


図9-2 高度別イオン成分濃度分布(カチオン)(1990年8月8日)

分濃度は、 O_3 濃度に比例しており、平塚の地上、大山の1,600mで低く、平塚の300m、900m、大山の1,000mで高くなっていた。また、平塚の300m、900mと大山の1,000mでは O_3 濃度も各イオン成分濃度もほぼ同様の濃度を示していた。平塚の地上では上空よりもいずれの成分も低くなっており、また地上データも前時刻よりかなり低くなっていることから、高濃度汚染気塊の下層に清浄気塊が流入していることが推察された。

また大山の上空1,600mで各イオン成分濃度は低くなっているが、これは大気混合層(相模湾海風)の上限高度(リッド)の上に出たためと考えられる。しかし、 SO_4^{2-} 濃度は大山の1,600mでもかなり高濃度で存在し、地域的、立体的に広域に分布しているものと考えられた。これは、 SO_4^{2-} が主に SO_2 の光化学反応によって生成することから粒子が微小であるため、大気中における寿命が長いと推測された。また NH_4^+ も同様の分布を示しており、生成した SO_4^{2-} は大気中の NH_3 と反応し、 $(NH_4)HSO_4$ または

$(NH_4)_2SO_4$ として存在することが示唆された。またアンモニアもかなり広域に分布していることが分かった。

これら汚染物質が降水に全て溶解した場合、酸性を示すか、またどの成分の影響が強いかを調べるため、大気中各イオン成分の当量濃度の構成割合を地点高度毎に図10-1、10-2に示す。相模湾海風内ではいずれも陽イオンより陰イオンの方が多くなっており、これらが全て降水に溶解した場合には酸性を示すことを示唆していた。しかし、相模湾海風の上層ではほぼ陽イオンと陰イオンはバランスが取れている状況であった。陰イオン成分の中での割合が大きかったのは $(SO_4^{2-} + SO_2)$ で次いで $(NO_3^- + HNO_3)$ であり、 $(Cl^- + HCl)$ が一番少なくなっていた。また中和物質である陽イオンは $(NH_4^+ + NH_3)$ が大部分を示しており、その他は Na^+ で1~3%程度、平塚の地上で Ca^{2+} が2%を示す程度であった。

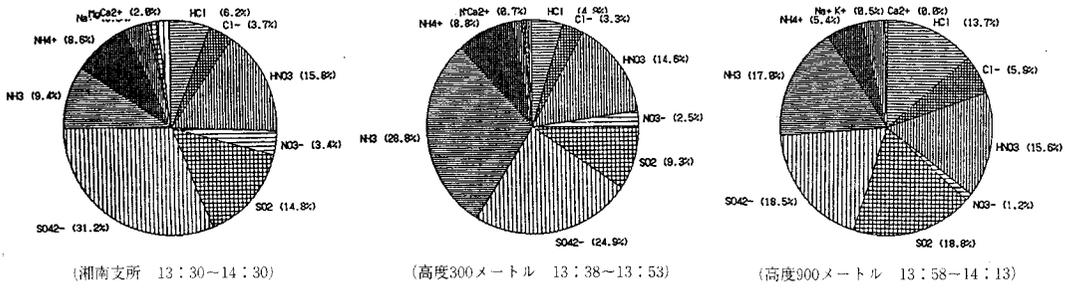


図10-1 平塚における大気中イオン成分濃度の割合(1990年8月8日)

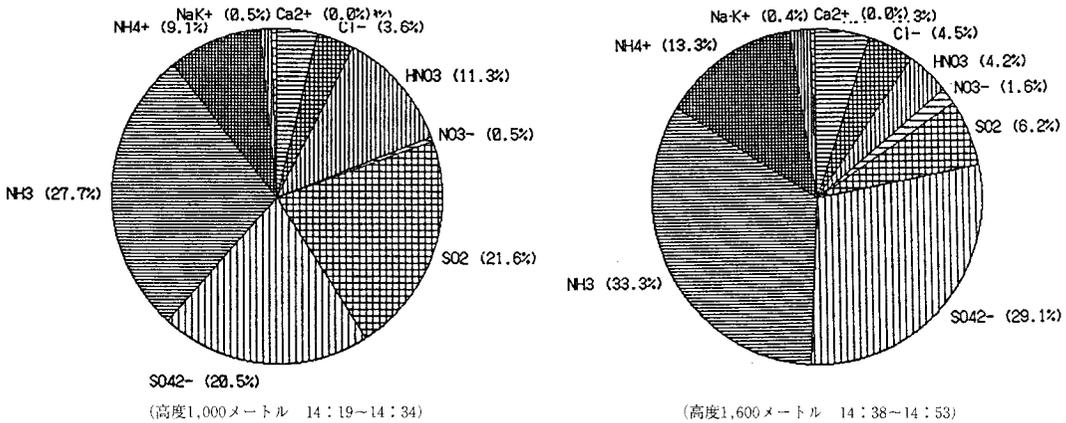


図10-2 大山下社における大気中イオン成分濃度の割合(1990年8月8日)

3.1 1991年調査

3.2.1 調査日の気象状況

9時における天気図を図11に、館野高層気象台における成層の状態曲線を図12に示す。三陸沖を低気圧が北東に進む。一方日本海を高気圧が南東に進む。館野では、高度別の風向は複雑に変化しており、下層100mで南風、1,500mまで西風、2,000mで北風、その上層で冷たい西風が入っていた。大気は前日同様湿った状態となっており、雨の降り易い状況を示していた。また上空の気温が下がり前日より若干大気が不安定状態となっていた。

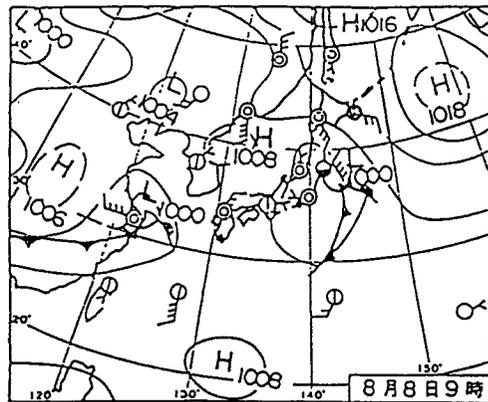


図11 天気図(1991年8月8日9時)

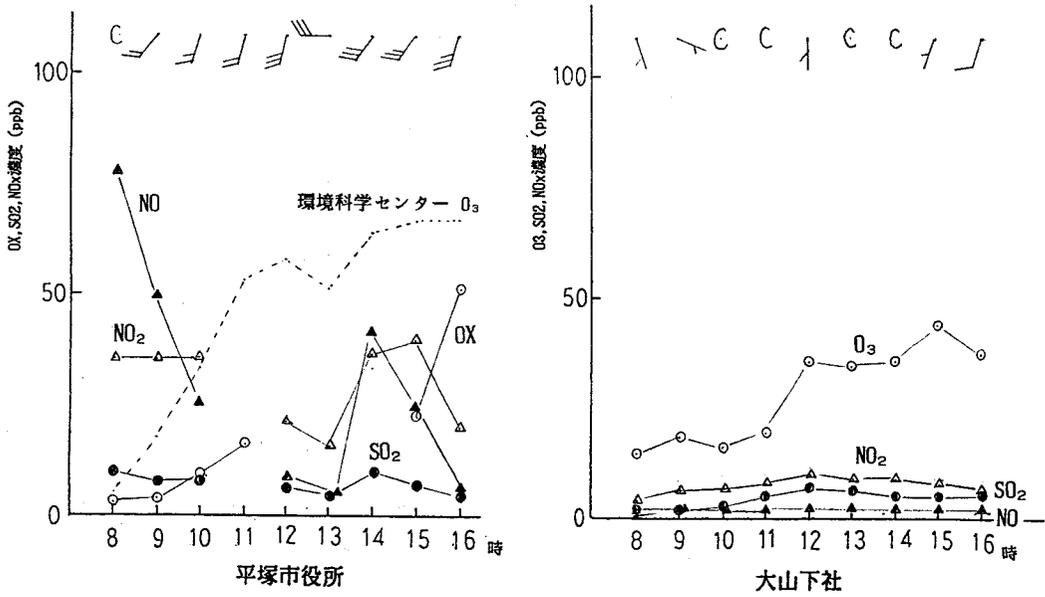


図15 平塚市役所及び大山下社における大気汚染物質の時間変化(1991年8月8日)

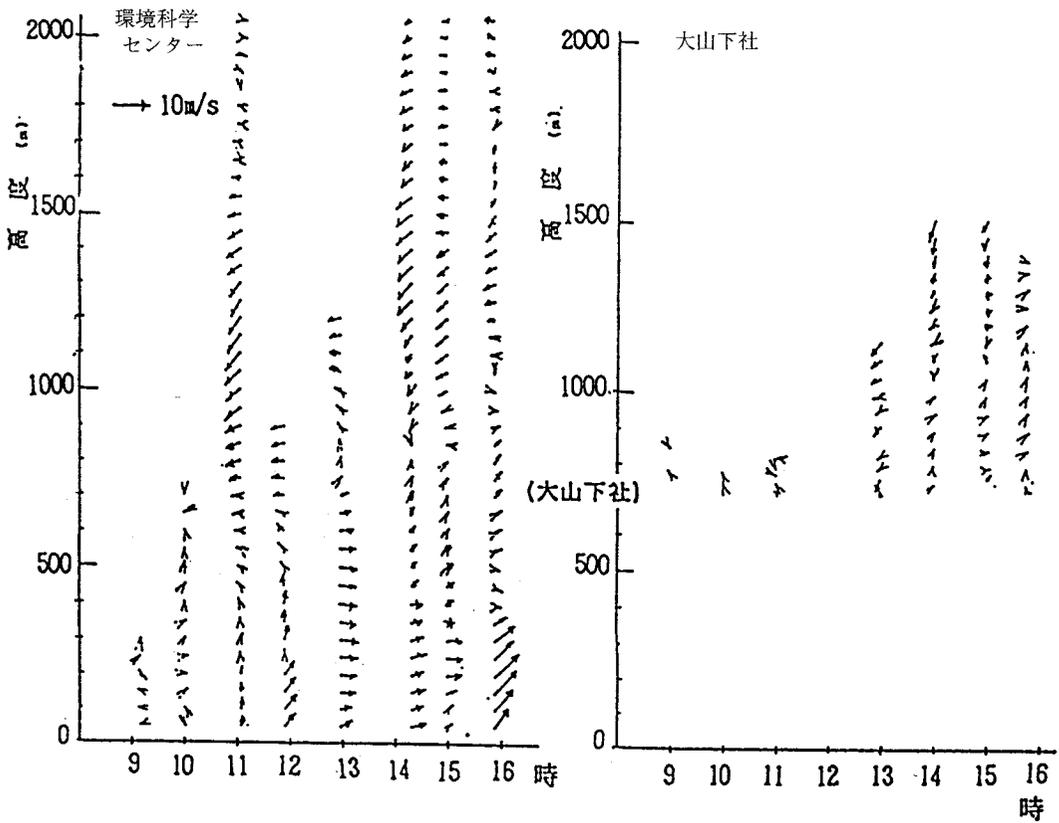


図16 上層風観測結果(1991年8月8日)

3.2.3 上層風の状況

環境科学センター及び大山下社における上層風観測結果を図16に示す。平塚における上層風は700～900mより上層では午前午後とも北東風であった。その下層では、午前中は風は弱く風向は不定となっていたが、11時、12時と南風が下層から若干強まり、その後西風に変化していた。この下層風と上層の北東風の間には弱風層が見られた。大山下社では、午前中雲が低く雨がばらつく状況でありほとんど観測できなかったが、午後は地上から500～600mまで観測された。風は、下層で南西風、上層で北東風となっていた。平塚と大山下社の風を比べると、大山下社では平塚における下層の比較的強い南～西風は見られず、その上層の北東風に対応した風がみられ、風向き、強さとも両地点の海拔高度にほぼ対応していたが、大山下社の方が平塚より南風系の海拔高度が200～300m高くなっていた。これは相模湾からの南～西風の海風が大山の斜面を昇るためと考えられる。

3.2.4 上空のオゾン濃度、及び二酸化硫黄濃度分布

平塚における14時のO₃濃度は、地上で70ppb、300mで90～100ppb、900mで60～70ppbとなっており、海風層内で高く、その上層の北風層で若干低く

なっていた。SO₂濃度も同様の分布を示し、300mで0.9～2.3ppb、900mで0.2～1.2ppbとなっていた。大山下社のO₃濃度は地上(海拔700m)で40ppb、1,000mで75～93ppb、1,600mで50～60ppb、SO₂濃度は1,000mで1.2～2.5ppb、1,600mで0.3～1.0ppbとなっており、O₃濃度もSO₂濃度も平塚同様海風層内で高く、その上層で若干低くなっていたが、O₃濃度は平塚より10ppb程低くなっており、山の影響によるその上層の北風との乱流混合が考えられた。

3.2.5 地上におけるイオン成分濃度の状況

環境科学センター及び大山下社における地上イオン成分濃度の測定結果を表2、図17及び18に示す。平塚における各イオン成分は午前中比較的高濃度であったが、昼頃若干の降雨が見られた時にいずれの成分も濃度が急激に低下した。その後、雨が止むとともに若干濃度は上昇した。前年度はイオン成分濃度とO₃濃度とは比例関係が見られたが、今年度は比例関係がみられなかった。これは降水に取り込まれ易いイオン成分が大気中から除去されたためと考えられた。また大山下社におけるイオン成分濃度は平塚に比べ降水の影響が考えられた。

表2 イオン成分濃度測定結果(1990年8月8日)

(単位: μg/m³)

		HCl	Cl ⁻	HNO ₃	NO ₃ ⁻	SO ₂	SO ₄ ²⁻	NH ₃	NH ₄ ⁺	Na ⁺	K ⁺	Mg ²⁺	Ca ²⁺	O ₃ (ppb)				
平塚	環境科学センター	9:25~10:25	6.7	3.4	10.2	4.1	9.5	6.5	-	1.6	2.1	0.8	0.8	1.7	44			
		10:26~11:25	7.3	4.3	11.6	1.3	7.2	7.1	-	0.8	3.6	1.2	0.4	2.1	57			
		11:26~12:28	2.7	1.6	13.3	1.6	2.7	5.5	-	2.3	2.4	0.7	0.3	0.8	56			
		12:29~13:06	7.5	2.9	9.2	1.4	5.2	5.4	-	1.6	2.5	0.9	0.2	0.8	58			
		13:39~14:29	1.7	0.8	6.3	1.1	4.0	2.7	-	0.7	0.7	0.2	0.1	0.3	67			
		14:30~15:27	4.1	0.8	9.1	1.4	4.8	3.1	-	0.6	0.8	0.3	0.1	0.6	68			
		15:30~16:15	3.7	1.0	12.8	2.1	5.2	4.0	-	1.7	1.0	0.3	0.2	0.5	63			
高度	300m	13:46~13:56	6.6	0.4	10.7	1.2	3.0	5.0	-	4.7	0.7	0.3	0.0	0.1	87~106	97		
高度	900m	13:59~14:09	1.4	0.7	3.3	1.0	2.0	0.7	-	3.7	2.3	0.2	0.0	0.4	58~67	63		
大山下社	地上	8:55~9:52	0.4	0.4	1.9	2.6	0.7	2.3	-	2.6	0.2	0.1	0.1	1.9	17			
		9:53~10:49	1.6	0.8	1.7	5.1	2.0	4.3	-	3.1	0.3	0.3	0.2	2.0	20			
		10:53~11:51	3.9	1.2	0.4	7.4	1.9	2.9	-	3.8	0.2	0.2	0.1	0.5	36			
		11:53~12:48	0.2	0.7	0.7	3.8	1.2	1.9	-	2.7	0.3	0.3	0.1	1.0	35			
		12:50~13:50	1.8	0.3	2.6	2.0	1.2	2.3	-	1.3	0.1	0.2	0.0	0.5	36			
		13:51~14:47	2.4	0.2	2.4	1.7	2.1	2.0	-	1.8	0.1	0.1	0.1	0.8	44			
		14:48~15:33	2.8	0.2	2.4	1.3	1.8	1.9	-	1.3	0.3	0.2	0.1	0.4	38			
		高度	1,000m	14:17~14:27	3.8	0.7	8.5	1.1	3.4	2.2	-	4.2	1.1	0.4	0.0	0.3	75~93	84
		高度	1,600m	14:30~14:40	1.8	1.6	1.9	1.1	-	-	-	2.8	1.8	0.3	0.0	0.4	52~62	57

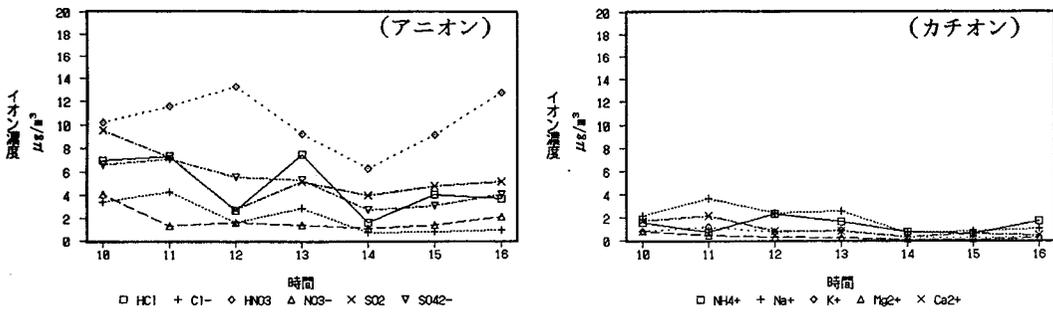


図17 環境科学センターにおけるイオン成分濃度の時間変化(1991年8月8日)

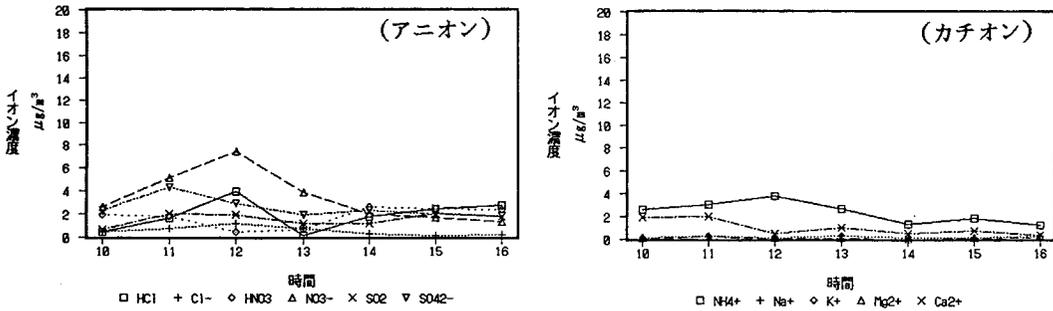


図18 大山下社におけるイオン成分濃度の時間変化

3.2.6 上空におけるイオン成分濃度分布

平塚及び大山におけるイオン成分濃度の立体分布

調査結果を表2及び図19-1、19-2に示す。平塚におけるイオン成分濃度の高度別変化は、300mで

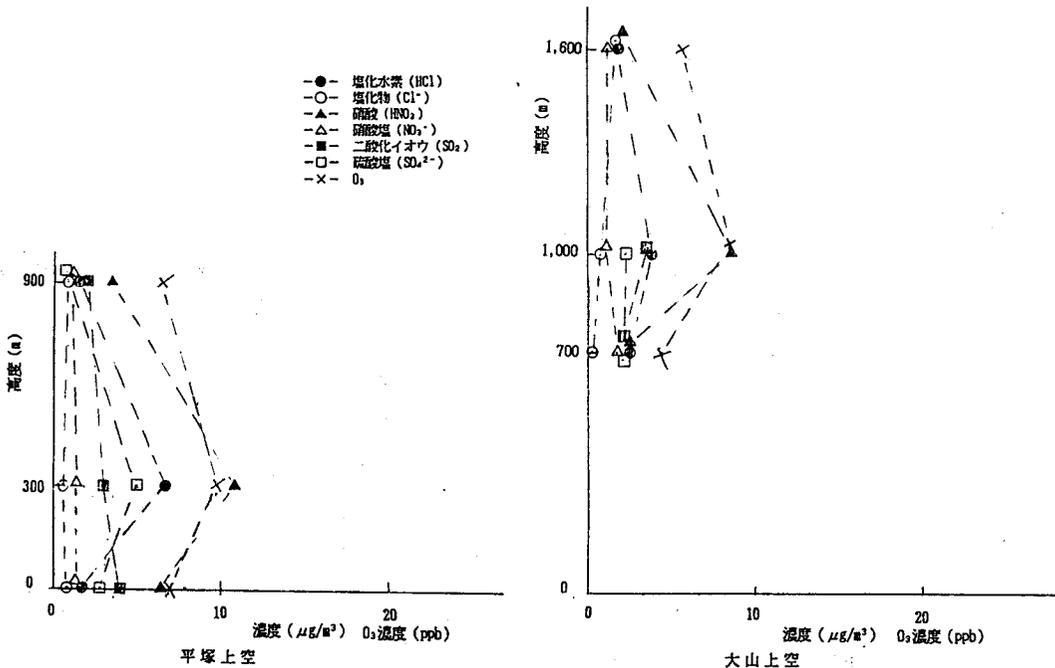


図19-1 高度別イオン成分濃度分布(アニオン)(1991年8月8日)

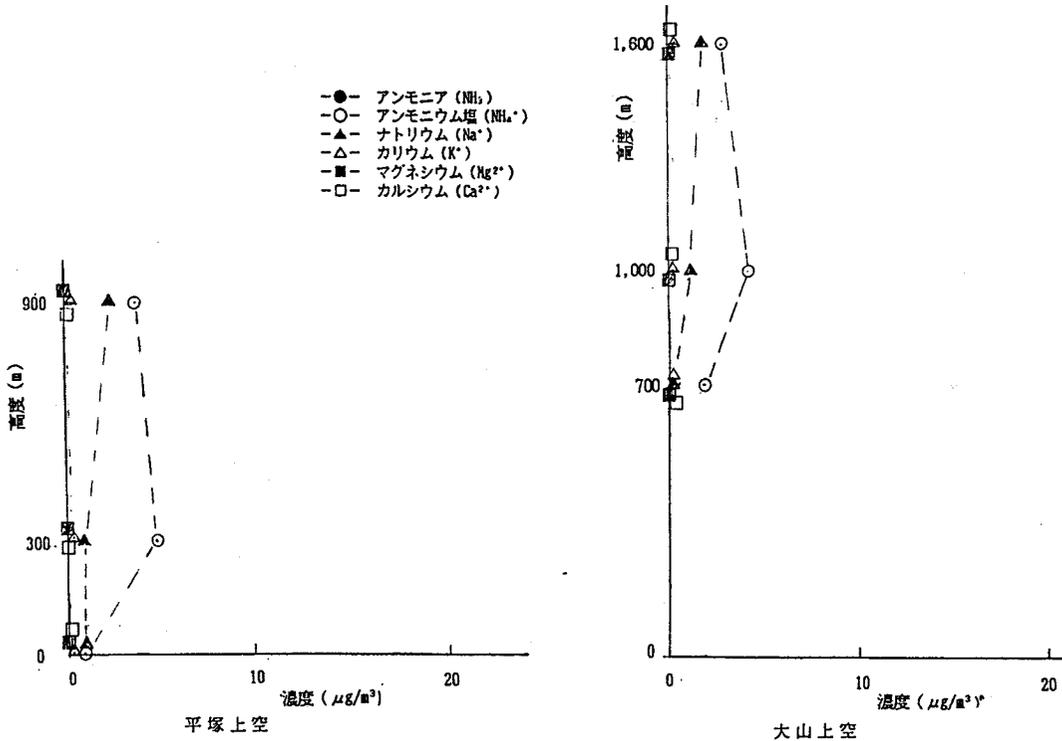


図19-2 高度別イオン成分濃度分布(カチオン)(1991年8月8日)

高く900m及び地上で低くなっていた。これはO₃濃度と同様であり、海風層内で高く、その上層の北東風内で低くなっていた。また地上においては、昼間の降水に濡れた地表面、樹木の葉等によって沈着除去されたことが考えられた。大山におけるイオン成分濃度の高度別変化は、1,000mで各成分とも高く、地上(700m)と1,600mで低くなっており、平塚同様海風層内で高くなっていた。また地上では平塚同様樹木の葉等への沈着が考えられた。前年度調査ではSO₄²⁻、NH₄⁺が海風層外でも高く、広域的な広がりを示していたが、1991年調査ではSO₄²⁻濃度は低く、海風層内だけで高くなっており、SO₄²⁻濃度分布は数日前からの気象状況によって異なることが考えられた。

4. 考察

1990年及び1991年に実施した上層風観測及び、O₃、SO₂濃度、イオン成分濃度等の立体的調査結果を要約し、相模湾から大山に至る調査地域内の上空の風系とO₃濃度及びSO₂濃度分布の概略図を図20、

21に示す。

今回の調査から酸性物質等イオン成分濃度及びSO₂濃度の立体分布はO₃濃度と同様の分布を示していることが分かった。

これらO₃等汚染物質濃度は海風層内で高く、その上層で低くなっており、平塚における汚染気塊が大山のほぼ同高度(海拔)に移送されていることが分かった。

地上においては、上層より低濃度となっており、樹木の葉等への沈着除去が考えられた。

海風層の上限高さは、1990年調査は平塚で800m、大山で1,000m、1991年調査は平塚で1,200m、大山で1,500m程度となっており、平塚より大山の方が200~300m高くなっていた。しかし、海風層(汚染気塊)の厚さは、地表面高度が大山下社の方が約700m程高くなっていることから、大山の方が平塚に比べ400m程薄くなっていた。これらのことから平塚における下層大気は大山の裾野を通り厚木、愛川方面に移流し、平塚地域の層大気が大山に移流することが考えられた。

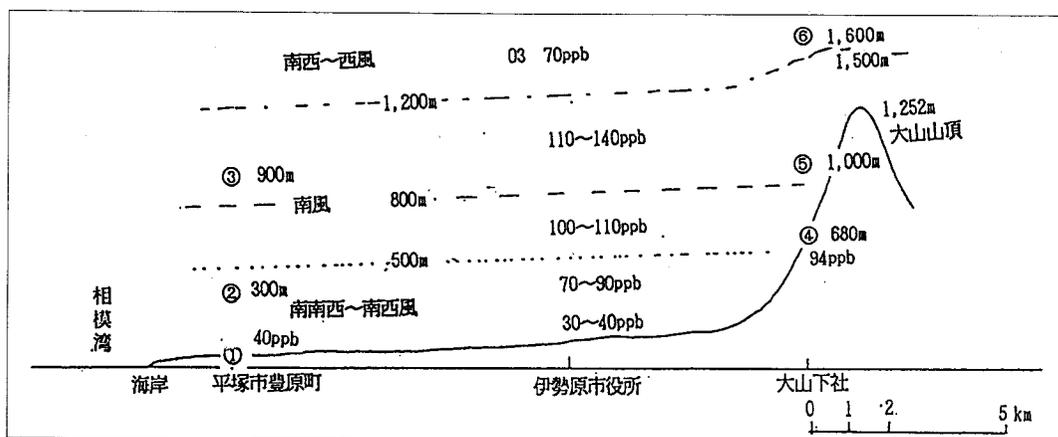


図20 調査地域における立体的風系及びオゾン濃度分布状況(1990年8月8日)

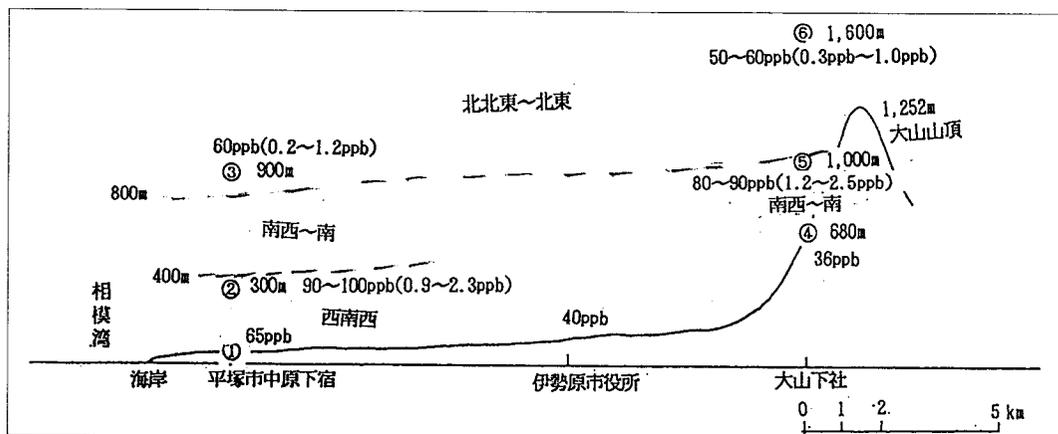


図21 調査地域における立体的風系及びオゾン及び二酸化硫黄濃度分布(1991年8月8日)

数値は O₃濃度、()内は SO₂濃度

上空におけるイオン成分当量濃度は、酸性物質の中では SO₄²⁻ が大きな割合を示し、次いで NO₃⁻、Cl⁻ の順であり、アルカリ性物質では NH₄⁺ が大きな割合を示していた。酸性物質とアルカリ性物質を比べると、海風層の上層では酸性物質とアルカリ性物質はほぼバランスが取れていたが、海風層内ではかなり酸性物質が過剰であり、これらが降水に溶解した場合にはかなり酸性を示すことが示唆された。

調査地域における海風層内の SO₄²⁻、NO₃⁻ は SO₂、NO_x の排出量分布から考えると、大部分は東京湾岸の工業・都市地域から排出された SO₂、NO_x が朝方の北東気流により相模湾上に移送され、光化学反応により生成されたものと考えられる。この東京

湾岸の川崎市、横浜市、横須賀市における SO₂ 及び NO₂ の排出量(1990年)は、11,000SO₂t/y、50,000NO₂t/y(神奈川県環境部が集計した値¹⁶⁾から推計)と SO₂ より NO₂ の方が数倍多くなっていること、さらに SO₂ 及び NO₂ の酸化速度は NO₂ の方が数倍早いことが観測されている¹³⁾ ことから SO₄²⁻ より (HNO₃ + NO₃⁻) の方がより高濃度になると考えられるが、平塚及び大山上空では (HNO₃ + NO₃⁻) に比べ SO₄²⁻ の寄与が大きくなっている。この理由として、酸化生成した H₂SO₄ は反応性が強く大気中の NH₃ と反応し、(NH₄)HSO₄ あるいは (NH₄)SO₄ となり、これら物質は化学的に安定で、また粒子も小さいことから大気中での寿命がかなり長いことが考えられ

る。一方 HNO_3 も反応性が強く NH_3 との反応により一部 NH_4NO_3 を生成するが、大気中では不安定で解離し易く、特に気温の高い夏季には HNO_3 として多く存在し、大気中の粗大粒子である海塩粒子、炭酸カルシウム等、あるいは樹木、地表面等と反応し大気中から除去され、大気中での寿命は短い。その結果、大気中での濃度は一般的に NO_3^- より SO_4^{2-} の方が高くなることが考えられた。また Cl^- は海塩粒子、及び大気中での HCl と NH_3 との反応によるものの影響が大きく、さらにその HCl は焼却炉からの排出及び海塩粒子と HNO_3 との反応によるものの影響が大きいと考えられるが、影響の割合については正確に把握されていない。焼却炉から排出された HCl は地表面近くから排出されるため、 HNO_3 同様、樹木等と反応し沈着除去され、比較的局地的で大気中濃度もあまり高濃度とならないことが考えられた。

上空におけるカチオンは NH_4^+ が大きな割合を示したが、神奈川県では都市域で NH_3 濃度が高く、都市活動からの排出の影響が大きいと考えられる。¹⁴⁾ 平塚では Na^+ の割合も比較的多くなっていたが、大山ではかなり低くなっていることから、 Na^+ は粗大粒子である海塩粒子の影響と考えられた。降水における中和物質として大きな寄与を示す Ca^{2+} は⁹⁾、平塚の地上において若干の濃度が測定されたが、上空ではほとんど測定されなかった。したがって、 Ca^{2+} は、セメント工場等特定の発生源を除けば、土壌、道路ダスト等の粗大粒子の地表面からの舞上がりによるものと考えられる

今までの調査で、大山下社では夏季の日中はもとより夜間にも O_3 が 0.1ppm 以上の高濃度を示すことが度々あり、樹木に対する O_3 ドースが高いことが分かっている⁵⁾ が、この O_3 高濃度気塊には高濃度の HNO_3 、 H_2SO_4 、PAN、アルデヒド類、 H_2O_2 等が含まれていることが知られている。^{10)、11)} また、 $\text{pH}3$ 以下の酸性度の高い霧が観測されているが⁸⁾、この原因として、特殊な気象状況下で相模湾上において光化学反応を経た湿った汚染気塊が大山の斜面を上昇する時に気温降下して霧を発生し、これに硝酸等が溶解することが考えられる。また著者らは、森林内外の大気汚染物質の濃度を測定し、森林内部における O_3 、 HNO_3 等反応性の強い汚染物質が外部におけるそれよりも低くなっていることを確認し、

それらが樹木の葉表面と反応、気孔による呼吸等により除去されていることを明らかにした。^{17)~19)} 本調査においても、地上では O_3 、 HNO_3 、 HCl 等は上空より濃度がかなり低くなっており、樹木の葉等によって沈着除去されたことを裏付けていた。一方、これら汚染物質の樹木に対する影響はかなり報告されているが、樹種の感受性の差によって影響の程度はかなり異なる。これらの報告によれば、 O_3 の 0.1ppb 長期暴露により光合成等の低下がみられ²⁰⁾、また人工酸性雨暴露試験による可視葉被害発生しきい値はほぼ $\text{pH}3$ とされており^{21)、22)}、現状においてもこれら汚染物質がモミの葉に対し何らかの影響を与えていることは考えられる。

川崎市における SO_2 排出量は、1963~1970年代はほぼ $150,000\text{t/y}$ で推移し、その後減少し、1990年では約 $2,000\text{t/y}$ と約 $1/75$ となっている。 NO_x 排出量は、1970~1975年で固定発生源からは $27,000\text{t/y}$ 程度であったが、1990年で $14,000\text{t/y}$ と半減している。しかし移動発生源からは増大しており、全体ではやや減少傾向であったと考えられる。環境濃度においても、 SO_2 、 NO_x 、非メタン炭化水素(NMHC)、OX 濃度は、1972、3年から漸減し、ここ10数年はほぼ横ばい状態で推移している。¹⁶⁾ SO_2 、OX 等の汚染は、1970年前後が最も悪い状況にあり、その後鎮静化し現在に至っている。

このように大山の樹木は、東京湾岸地域の影響による汚染度の高い O_3 、硝酸、硫酸等酸性物質及び酸性霧等によって長期間暴露されていることが示唆された。

5. まとめ

1990年8月8日及び1991年8月8日の2日間、大山及び平塚において O_3 、 SO_2 濃度及び酸性イオン成分濃度等の立体分布調査を行い、併せて上層風観測を実施し、大山における汚染気塊の流入過程について解析した。

- 1) イオン成分濃度及び SO_2 濃度等は O_3 濃度と同様の立体分布を示していた。これらの汚染物質濃度は海風層内で高く、その上層で低くなっており、平塚地域における上層汚染気塊が大山のほぼ同高度(海拔)に移送されていることが分かった。
- 2) 地上においては上層より低濃度となっており、

樹木等への沈着除去が考えられた。

- 3) 海風層の高さは平塚より大山の方が200~300m高くなっていたが、海風層の厚さは大山の方が400m程薄くなっていた。
- 4) 海風層内ではアルカリ性物質に比べ酸性物質が過剰に存在し、これらの物質が降水に取り込まれた場合、雨水がかなり酸性を示すことが示唆された。雨水の酸性化への影響は SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 Cl^- の順で大きくなっていた。

今回の調査結果と著者らが行った従来の調査結果^{4)~19)}を考え合わせると次のような事柄が想定された。

東京湾岸の工業、都市地域から排出された NO_x 、 SO_2 等汚染物質は朝方の北東風により相模湾上に移送される。これらの汚染物質は移送の過程で光化学反応を引き起こし、 O_3 や SO_4^{2-} 、 NO_3^- 等酸性物質を海上で生成する。生じた汚染物質は南系の相模湾海風により平塚地域に運ばれ、光化学被害をもたらす。この平塚に運ばれた汚染物質は更に大山まで輸送され、モミ等の森林に影響を及ぼしていることが考えられた。

大山におけるモミ枯れの原因調査は過去十年来実施しており、現在もイオン成分降下量調査、霧水調査、 O_3 等の測定、気象観測、植生調査、土壌調査等が多機関において総合的に実施され、今後も継続される予定である。著者らは、今後上記現象をより一般化するため、同様の調査を進めるとともにモデル化を図って行きたいと考えている。

本報告は、神奈川県西部地域における大気汚染発生機構解明調査(8)ーガス状物質及び粒子状物質の立体分布²³⁾、神奈川県西部地域における大気汚染発生機構解明調査(9)ー大山における酸性物質等の移流調査²⁴⁾をまとめたものである。

本調査に当たりご協力をいただいた神奈川県警航空隊、大山下社の方々に厚くお礼申し上げます。

文 献

- 1) 野上教子：丹沢山塊モミ林の衰退についてー大山と札掛の比較ー,玉川大学農学部卒業論文,83(1989)
- 2) 杉本龍志、相原敬次、古川昭雄：森林衰退の現状ー丹沢大山モミ林の場合ー,第30回大気汚染学会講演要旨集,364(1989)
- 3) 鈴木 清：神奈川県林業試験所研究報告,19,23~42(1992)
- 4) 三村春雄、阿相敏明、牧野宏：神奈川県の山間部等における酸性ガス濃度及び湿性降下物量について,第30回大気汚染学会講演要旨集,344(1989)
- 5) 牧野宏、相原敬次、三村春雄、若松伸司、鶴野伊津志：神奈川県山岳部(大山)におけるオゾンの挙動について,第30回大気汚染学会講演要旨集,212(1989)
- 6) 牧野宏、阿相敏明、三村春雄、相原敬次、須山芳明、才木義夫：神奈川県西部地域における上空オゾンの動態について,第31回大気汚染学会講演要旨集,291(1990)
- 7) 三村春雄、阿相敏明、小山恒人、牧野宏：神奈川県における酸性降下物量と大気中濃度との関係,第31回大気汚染学会講演要旨集,405(1990)
- 8) 三村春雄、阿相敏明、相原敬次、牧野宏、金子幹宏、岸川敏朗、篠崎光夫、小島幸夫：神奈川県大山における霧水の化学組成について,第32回大気汚染学会講演要旨集,447(1991)
- 9) 岸川敏朗、中村陽光、篠崎光夫、小島幸夫、山田 勉、保坂忠夫：神奈川県大山における大気汚染の状況について,第32回大気汚染学会講演要旨集,447(1991)
- 10) 神奈川県環境部：西湘地域における光化学大気汚染調査結果報告書(昭和57年)
- 11) 阿相敏明、須山芳明、三村春雄、相原敬次、牧野宏：神奈川県西部地域の光化学オキシダント発生機構解明調査(7),第30回大気汚染学会講演要旨集,211(1989)
- 12) 阿相敏明、鈴木正明、金子幹宏、佐野貞夫：酸ミスト等二次汚染物質の経時変化について,第26回大気汚染学会講演要旨集,360(1985)
- 13) 阿相敏明、山崎宣明、金子幹宏、深野松三：大

- 気汚染物質の動態に関する研究—環境大気中における NO_x 及び SO₂ の変換速度について—神奈川県公害センター年報,19,37(1987)
- 14) 阿相敏明、三村春雄、牧野宏、金子幹宏：神奈川県における酸性ガス及びアンモニア濃度の地域分布,第30回大気汚染学会講演要旨集,343(1989)
- 15) 阿相敏明、金子幹宏、天野正明：拡散アニューダ管を用いた大気中酸性ガス状物質と粒子状物質の分別測定,大気汚染学会誌,25(1),30~40(1990)
- 16) 神奈川県環境部大気保全課：大気汚染調査研究報告書、第33報(平成4年3月)
- 17) 相原敬次、三村春雄、篠崎光夫：樹木による大気浄化能の実態調査(公園の林内、外におけるオゾン濃度),第26回大気汚染学会講演要旨集,456(1985)
- 18) 相原敬次、大道章一、篠崎光夫、古川昭雄、戸塚績：樹木による大気浄化能の実態調査(公園における窒素酸化物濃度),第26回大気汚染学会講演要旨集,457(1985)
- 19) 阿相敏明、三村春雄、相原敬次、牧野宏、才木義夫：大気中二次汚染物質の地域特性の検討—大気汚染物質の樹木による除去—,神奈川県公害センター年報,22,43(1990)
- 20) Reich,P.B.:Quantifying plant response to ozone:A unifying theory,Tree Physiol.,3,63~91(1987)
- 21) Bytnerowicz, A.;Temple, P.J.;Taylor, O.C.:Effects of simulated acid fog on leaf acidification and injury development of pinto beans, Can.J.Bot.,64,918~922(1986)
- 22) Musselman,R.C.;Sterret,J.L.:Sensitivity of plants to acidic fog,J.Environ.Qual.,17,329~333(1988)
- 23) 阿相敏明、三村春雄、相原敬次、牧野宏、須山芳明、金子幹宏、若松伸司：神奈川県西部地域における大気汚染発生機構解明調査(8)—ガス状物質及び粒子状物質の立体分布—,第32回大気汚染学会講演要旨集,389(1991)
- 24) 阿相敏明、三村春雄、相原敬次、牧野宏、須山芳明、金子幹宏、若松伸司、鶴野伊津志：神奈川県西部地域における大気汚染発生機構解明調査(9)—大山における酸性物質等の移流調査—,第33回大気汚染学会講演要旨集,550(1992)