

降水等降下物の地点別汚染特性

古明地 哲人 小山 功 渡辺 のぶ子
石黒 辰吉 (環境保全局水質保全部)

1 はじめに

降水等降下物の汚染と大気汚染との関係は降水の酸性化、それに伴う河川、湖沼の酸性化、森林や土壌生態系への影響等の環境問題として世界的に注目されている。^{1) 2)}

わが国においても酸性雨等雨水の汚染に関しては、環境庁の「湿性大気汚染調査」³⁾および関東地方1都3県湿性大気汚染共同調査⁴⁾等が行われてきた。当所では1973年から、酸性雨被害の原因究明のための初期降水(0~5 mm)の汚染状況を中心に降水の汚染機構究明を行ってきた。^{5) 6)}これまでの調査研究の過程から降水等降下物による大気汚染物質の大気中からの除去等大気汚染物質の物質収支に関する調査研究、さらに生態系への影響に関する調査研究が求められている。筆者らはこれらに関する調査研究のうち乾性降下物、および湿性降下物の溶解成分、不溶解成分、pH、電導度について調査を実施し、若干の検討を加えたので報告する。

2 調査研究法

(1) 調査地点

都市部：東京都千代田区有楽町 当研究所、郊外：青梅市友田(当研究所の西方向約45km地点)、山間地：東京都西多摩郡奥多摩町留浦(当研究所より西方向約70km地点)

(2) 調査期間

1979年3月から1981年3月まで

(3) 試料採取方法

試料の採取は簡易降下ばいじん計、それに当所で試作した雨水自動採取器により行った。図1に雨水自動採取器の概要を示す。図1の雨水自動採取器の作動は感雨計(E)が降水時に降雨を感知するとモーター(F)により、雨水採取ルート(A)の蓋が乾

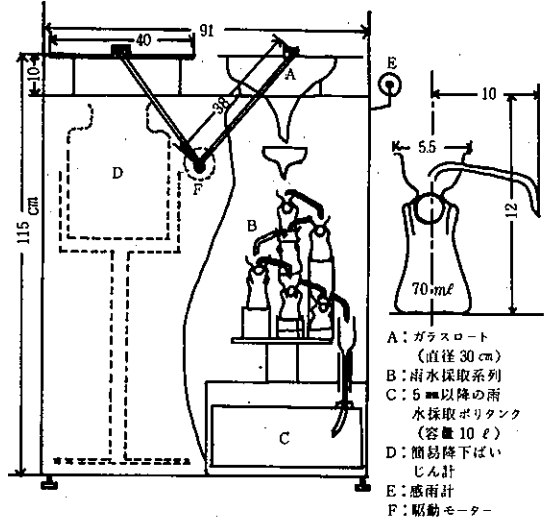


図1 雨水自動採取器

性降下物採取部(D)に移動し、Dをカバーし、Aより降水を採取する。ロート(A)より採取した降水は、雨水採取瓶(B)により順次降水量1 mm毎に1瓶ずつ採取されるが、雨水採取瓶の容量以上の降水はさらにポリエチレン製タンク(C)に流下し、貯蔵される。降水が止むと、感雨計(E)が降水を感知しなくなり、蓋は降水採取ルート(A)をカバーし、乾性降水物採取部(D)が乾性降水物を採取するようになっている。

(4) 測定項目

ア 全降下物

簡易降下ばいじん計により採取した降下物総量を全降下物とした。

イ 乾性降下物

図1雨水自動採取器により無降水時に乾性降下物採取部(D)により採取した降下物を乾性降下物とした。

ウ 湿性降下物

湿性降下物は

湿性降下物 = 全降下物 - 乾性降下物

より求めた。

エ 溶解成分, 不溶解成分, pH, 電導度

全降下物, 乾性降下物の溶解成分, 不溶解成分, pH, 電導度を測定した。採取後の試料の処理方法を図2に示す。

3 調査結果

(1) 全降下物

図3に各地点の月別全降下物を示す。図3から青梅, 奥多摩は冬期から春期にかけての2, 3, 4月に高く夏期から秋期にかけて低い周期性を示した。全降下物の地点別平均値(3地点とも同時に測定値の得られている月のみから平均値を求めた。以下, 平均値という場合は同様にして求めた平均値である。月数: 17月)により, 地点間の比較をすると, 千代田7.9〔g/㎡・30日〕>青梅5.6>奥多摩3.8であった。

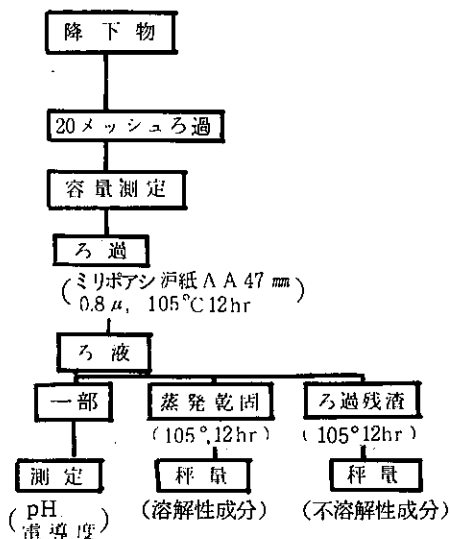


図2 試料の処理

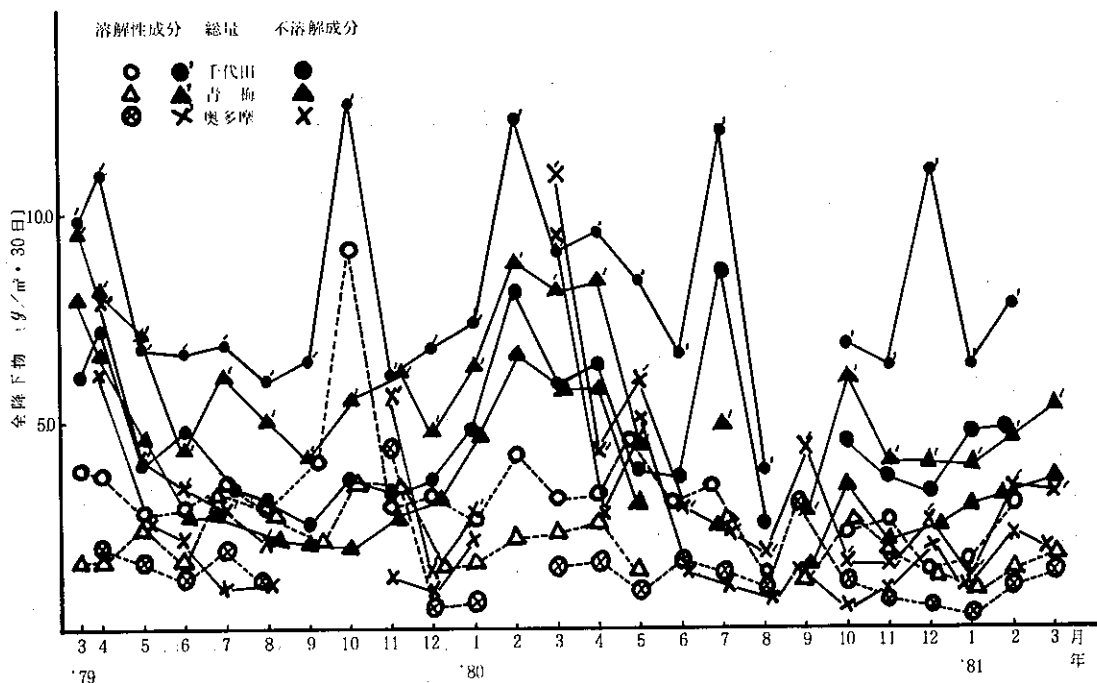


図3 降下物総量

(2) 乾性降下物

乾性降下物の降下量を図4に示す。図4から乾性降下物中の溶解成分の月別変動は降水量, 風速等の季節

的特徴を示す気象要素の影響を明確には示さなかった。地点間差は大部分の月で, 千代田>青梅>奥多摩であった。これを平均値(月数: 13月)で示すと千代田1.5

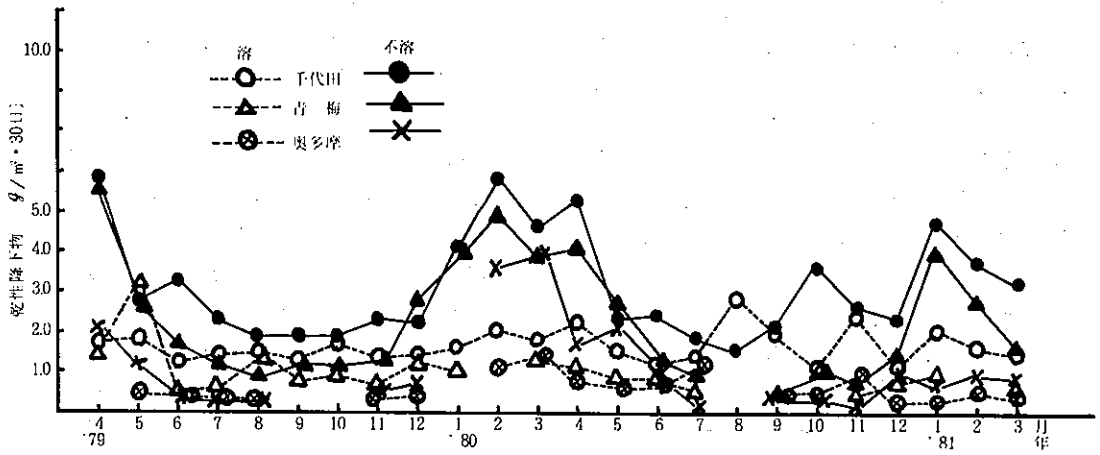


図 4 乾性降下物

〔 $g/m^2 \cdot 30日$ 〕 > 青梅 1.1 > 奥多摩 0.5 であった。

乾性降下物中の不溶解成分の月別降下量をみると、3地点とも冬季に降下量の多い明確な年周期を示した。地点間の差をみると冬季の千代田、青梅の差が他の季節よりも小さい傾向であった。平均値（月数：13）で比較すると千代田 3.1〔 $g/m^2 \cdot 30日$ 〕 > 青梅 2.1 > 奥多摩 1.0 であった。溶解成分と不溶解成分を地点別に平均値で比較すると3地点とも溶解成分は不溶解成分の約 1/2 であり、不溶解成分の降下量が溶解成分

よりも多いことが示された。

(3) 湿性降下物

湿性降下物の降下量を図 5 に示す。図 5 から湿性降下物溶解成分の月別変動は、降水量の多い月に高い値を示す傾向であった。溶解成分降下量の地点間の順位をみると、1979年5、7、11月、1980年4、7、10、11、12月のように千代田よりも他地点が高い値を示す場合がみられた。平均値（月数：13）で比較すると千代田 1.5〔 $g/m^2 \cdot 30日$ 〕 > 青梅 1.3 > 奥多摩 0.9 で

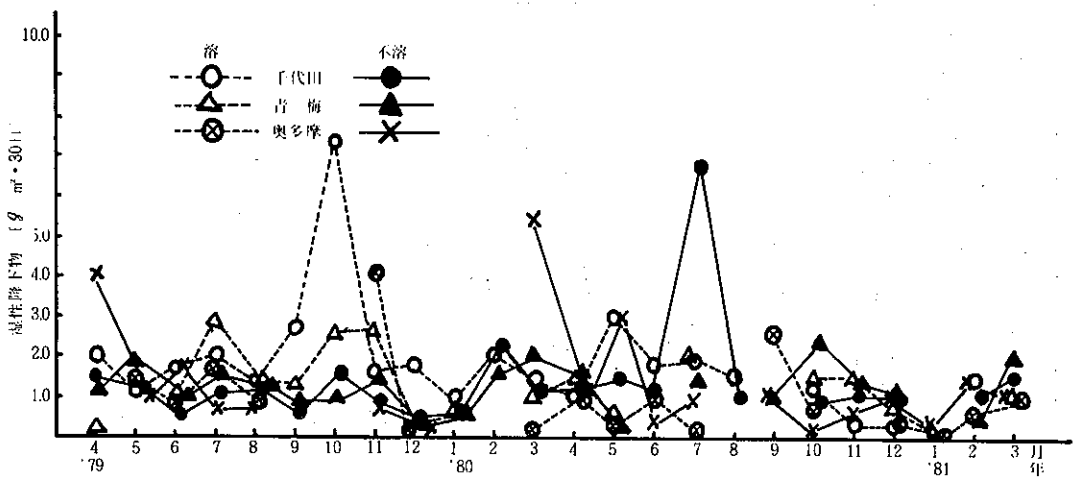


図 5 湿性降下物

あった。

湿性降下物不溶解成分の降下量の月別変動は降水量の少ない月に低い値となる傾向であった。地点間差は乾性降下物の不溶解成分のように明確ではなかった。平均値(月数:13)でみると千代田 $1.5(g/m^2 \cdot 30日)$ > 奥多摩 1.4 > 青梅 1.3 であった。このように千代田、奥多摩の地点間差も殆んどなく、しかも、青梅奥多摩の順位は上述の他の場合にはみられなかったように逆転していた。

(4) H^+

pHの測定結果から地点別、月別に H^+ 降下量($g/m^2 \cdot 30日$)を算出し、図6に示した。乾性降下物水溶液中の H^+ 降下量の月別変動をみると、 $1 \times 10^{-3}(g/m^2 \cdot 30日)$ 以上の値を示す月、地点は1979年青梅の5、8、9月、1980年奥多摩5月だけであった。このように、比較的降水量が多く気温の高い月は乾性降下物による H^+ の降下量が多い傾向であった。地点間

の順位は月により異なり一定の規則性はみとめられなかった。また、 H^+ の降下量は各月により、バラツキが大きく、最高値は1980年5月青梅で $13 \times 10^{-4}(g/m^2 \cdot 30日)$ 、最低値は1979年奥多摩で 3.9×10^{-6} であった。

平均値(月数:6)により地点別順位を示すと奥多摩 $3.6 \times 10^{-4}(g/m^2 \cdot 30日)$ > 青梅 3.0×10^{-4} > 千代田 1.3×10^{-4} であり、3(1)、(2)と逆になった。

湿性降下物の H^+ 降下量の月別変動を図6によりみると $1 \times 10^{-3}(g/m^2 \cdot 30日)$ 以上の降下量のある月は1979年7~11月までの5カ月、1980年3~8月、10、11月の8カ月と冬季以外の月に多い傾向であった。湿性降下物の H^+ 降下量の平均値(月数:6)の地点別順位は千代田 $3.6 \times 10^{-3}(g/m^2 \cdot 30日)$ > 青梅 2.2×10^{-3} > 奥多摩 1.3×10^{-3} であった。このように湿性降下物の H^+ 降下量は3(1)、(2)の場合と同様に、降下量順位は都市 > 郊外 > 山間地となった。

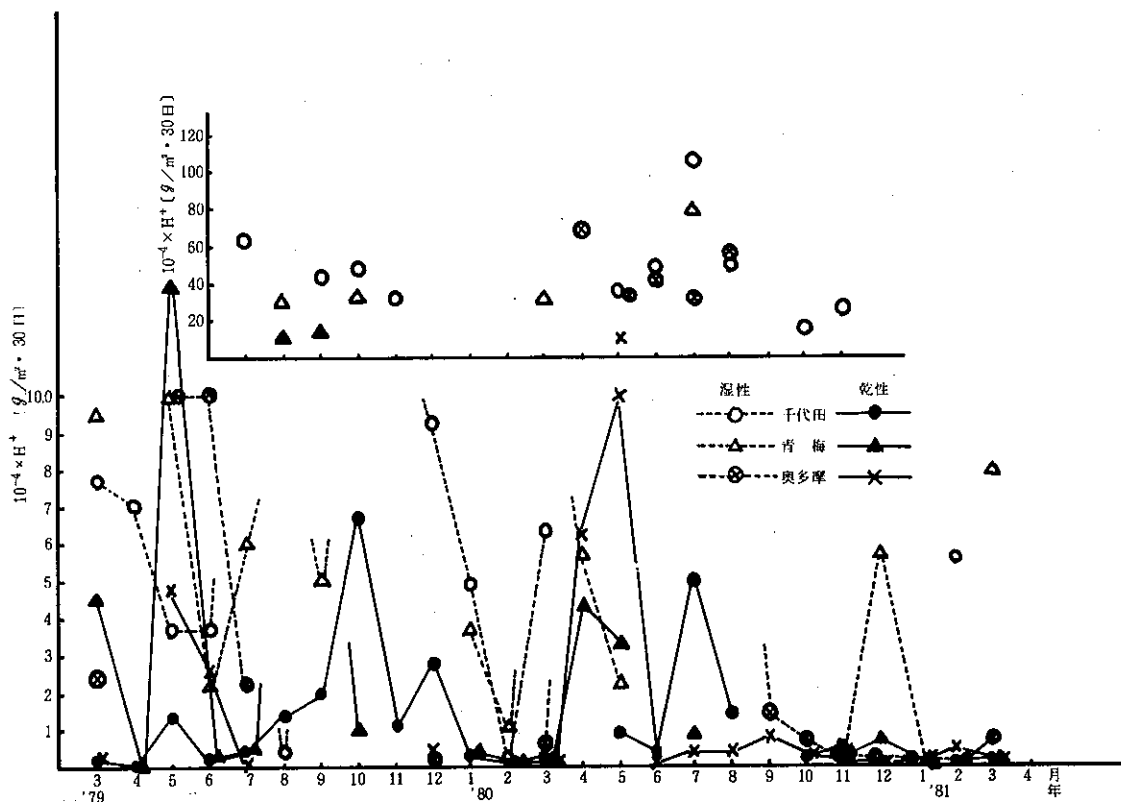


図6 (H^+) 降下量

(5) 電解質

降水物の水溶液の電導度を測定し、その電導度と水溶液量とから電解質量を電導度測定の場合の標準物質であるKCl量に換算してKCl ($g/m^2 \cdot 30日$)として算出した。KClの測定結果を図7に示す。図7から乾性降水物中のKCl降下量の月別変動は小さく、全期間を通してみると、1980年10月以降が他と比較して低い傾向であった。地点間の順位は大部分の月で千代田>青梅>奥多摩の順であり明確な地点間差を示した。これを平均値(月数:11)で比較すると、千代田1.1 ($g/m^2 \cdot 30日$)>青梅0.47>奥多摩0.23であった。

湿性降水物のKCl降下量は降水量の多い月に高い値を示す傾向がみられた。地点間のKCl降下量の順位は乾性降水物の場合と比較すると各月により順位が異なる場合が多い。これを平均値(月数:11)でみると千代田1.8 ($g/m^2 \cdot 30日$)>青梅1.4>奥多摩0.67であった。

4 結果の考察

(1) 乾性降水物と湿性降水物との関係

東京都における大気汚染物質の大気中からの除去に関して乾性、および、湿性降水物の寄与の程度を知るために測定項目別地点別に乾性降水物に対する湿性降水物の比を求め、図8に示した。溶解成分の降下量は降水量の多い月に多く、湿性降水物により降下する降下量が多いと推測される。地点別平均値(月数:10)をみると奥多摩3.1>青梅2.1>千代田1.2であり、都市部からの距離が増加するに従って湿性降水物の寄与が増加する傾向であった。

これを、全降水物の溶解成分に対する湿性降水物の寄与率として地点別に示すと、奥多摩75%>青梅67%>千代田55%となった。これより、郊外、山間地では降水により降下する溶解成分が多いことが示された。

寺部⁷⁾が川崎市の工業、商業、住宅、田園地域で降下ばいじん溶解成分降下量に対する降水の寄与を求めたがそれらは19~46%であった。Meszaros⁸⁾によるとヨーロッパで人間活動により発生したSO₂の43%

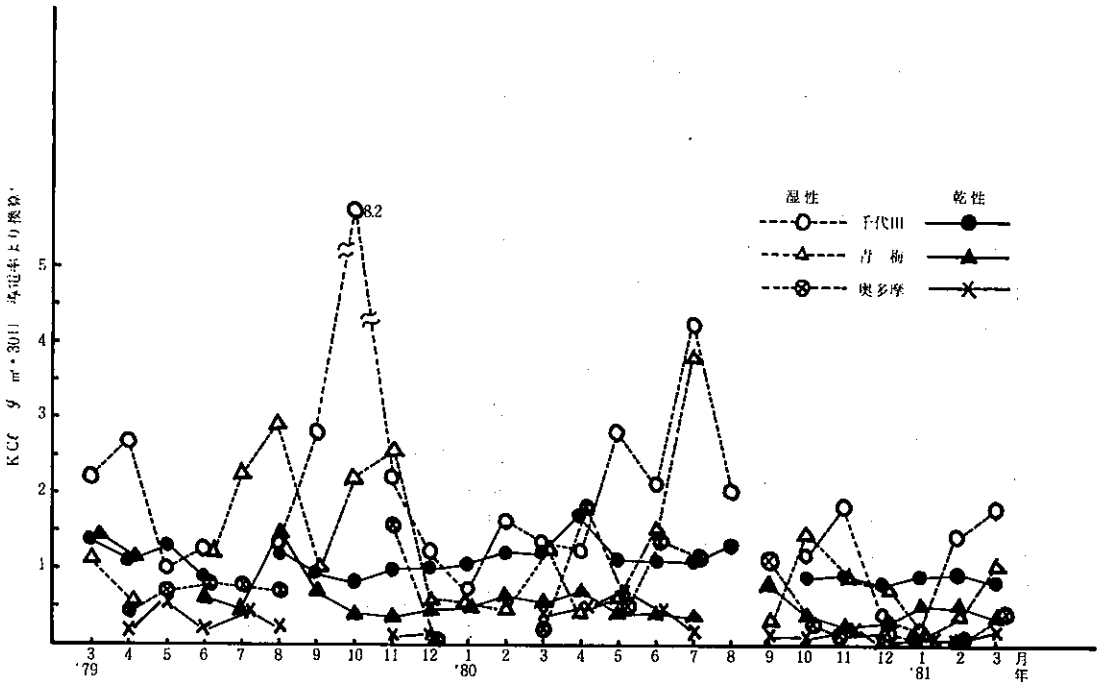


図7 電解質降下量 (KClとして:導電率より換算)

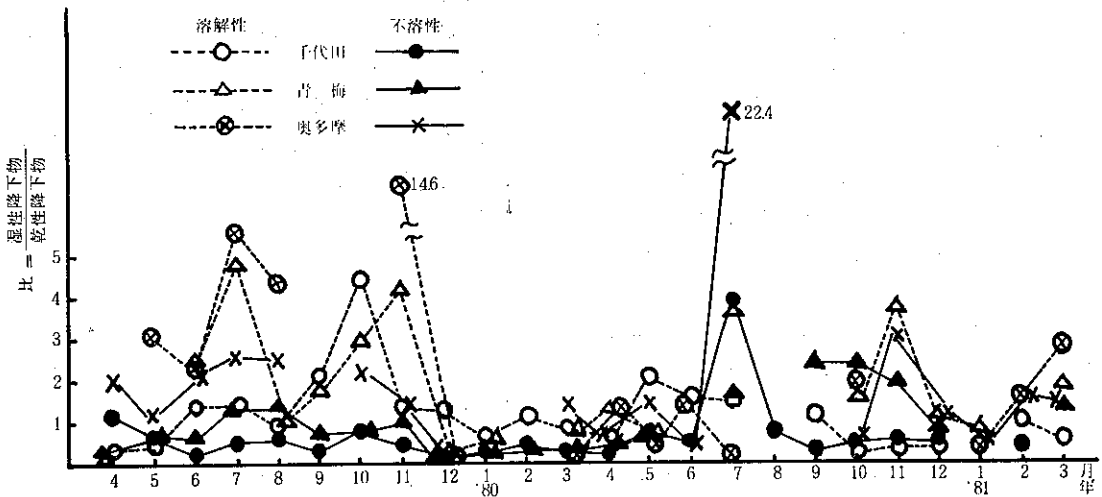


図8 湿性降水物の乾性降水物に対する比

は乾性降水物によって、48%は湿性降水物によってその領域内に降下し残りの9%は領域外に去ると報告されている。寺部の報告と本報告の湿性降水物の寄与率とを比較すると本報告の寄与率が相当に大きい。これについては測定方法等も含めて、さらに検討する必要がある。

(2) 降水物の月別特性

全降水物、乾性降水物の不溶性成分量は降水量、季節風による砂塵等の巻上げ等により影響を受けると考えられる。佐藤等⁹⁾は降下ばいじん量は春および冬期にピーク値を示すこと、また不溶性成分と風速、溶解成分と降水量とが強い正の相関を示したことを報告している。

しかし、溶解成分のうちの化学成分 H^+ 、 KCl はこれらの影響が比較的小さいと考えられる。 KCl については、 KCl の全期間の変動幅が千代田の乾性では、 $0.74 \sim 1.7 [g/m^2 \cdot 30日]$ 湿性では $0.12 \sim 8.2$ 、青梅の乾性 $0.1 \sim 2.6$ 、同湿性 $0.6 \sim 4.2$ 、奥多摩の乾性 $0.03 \sim 0.7$ 、湿性 $0.02 \sim 1.8$ であった。このようにとくに千代田の変動幅が小さいことが認められた。

H^+ については、青梅の乾性降水物の H^+ が $1.0 \times 10^{-3} [g/m^2 \cdot 30日]$ 以上の比較的高い値を示す月で

ある1979年5、8、9月、同様に奥多摩1980年5月については特に風が強い月ではない。また、 H^+ が電解質降水量に関係しているとすれば、これらの月の KCl 降水量も多いと考えられるが、これらはいずれ

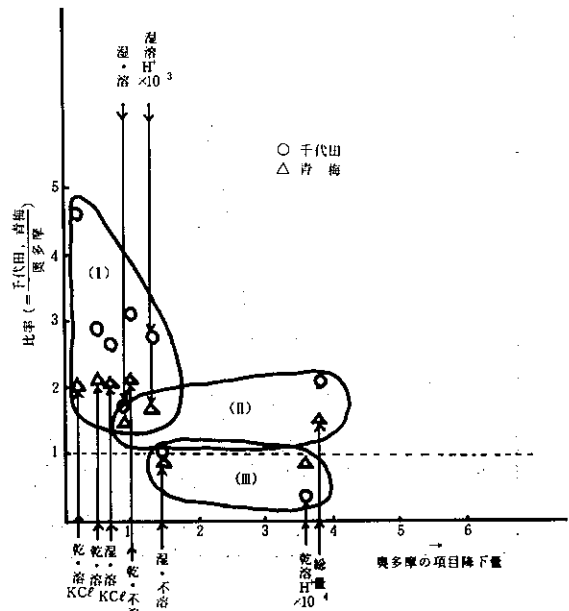


図9 各項目の奥多摩基準の比の分布

も中程度の降水量であった。これらのことから乾性降下物の H^+ 降下量は夏期大気中で二次的に生成される酸性物質の影響も推測される。

(3) 降下物の地点特性

図9に各測定値の平均値を奥多摩を基準に示した。図9から地点間の差を明確に示す項目はグループ(I)であり、この中でもとくに、乾性降下物のKClが都市部>郊外>山間地のように明確な差を示した。つぎに、乾性降下物の不溶解成分、同溶解成分が大きな地点間の差を示した。

地点間の差が不明確であるか、地点間の差の典型的な型である都市部>郊外>山間地の順位を示さない項目は湿性降下物不溶解成分、乾性降下物 H^+ であった。これらの降下物の地点特性から、 H^+ 以外では人為的な活動量の多い都市部では乾性降下物の発生量が多く、しかも、その多くは都市部、都市近郊に降下すると推定される。乾性降下物のKCl、溶解成分、不溶解成分と湿性降下物のそれらとを比較すると、湿性降下物では奥多摩と千代田、青梅との比が乾性降下物の場合よりも小さい傾向がみとめられた。このことから、降水の汚染が広域におよび、都市、山間地の降水の汚染の程度の差が小さくなったのか、あるいは、一般的に、相当広い地域で降水成分が潜在的にある濃度レベル以上であるのかについて今後検討する必要がある。

(4) 溶解成分とKClとの関係

4(3)でみたように乾性降下物のKCl [$g/m^2 \cdot 30日$]は最も明確に地点間の差を示した。このKCl降下量は溶解性成分と関係が深いと考えられる。それは、溶解成分のうち電解質の存在比の高い程電導度はふつう高くなると考えられるからである。ここでは全降下物溶解成分とKClとの関係を図10に示した。さらに、各地点の単相関係数、回帰係数を求めて示した。図10から各地点の回帰式の傾きは、千代田 $0.93 >$ 青梅 $0.92 >$ 奥多摩 0.85 であった。これより千代田、青梅は溶解成分に占める電解質量の比率が高く、しかも、両地点とも電解質組成が類似していると推測される。単相関係数は千代田 $0.87 >$ 青梅 $0.75 >$ 奥多摩 0.50 であり、千代田の相関が他2地点よりも大きい値であった。これらのことから都市部、千代田の全降下物の溶解成分は平均的には大部分が電解質であり、その電解質の平均的な電導度はKClの電導度に近いと考えられる。

また、千代田の単相関係数が大きく、かつ、プロットした点のバラツキが小さいことは全降下物の降下量、および組成が各月によりそれ程大きく変化しないことを示していると考えられる。つぎに、図10中の千代田の点A、B、青梅C、奥多摩D、Eは溶解成分とKClとが1:1で対応する傾き1の点線から上方に大きくずれている。これらの点の H^+ 降下量は点A： $5.1 \times 10^{-3} [g/m^2 \cdot 30日]$ 、B： 1.1×10^{-3} 、C： 8.0×10^{-3} 、D： 5.5×10^{-3} 、E： 7.0×10^{-3} であり、こ

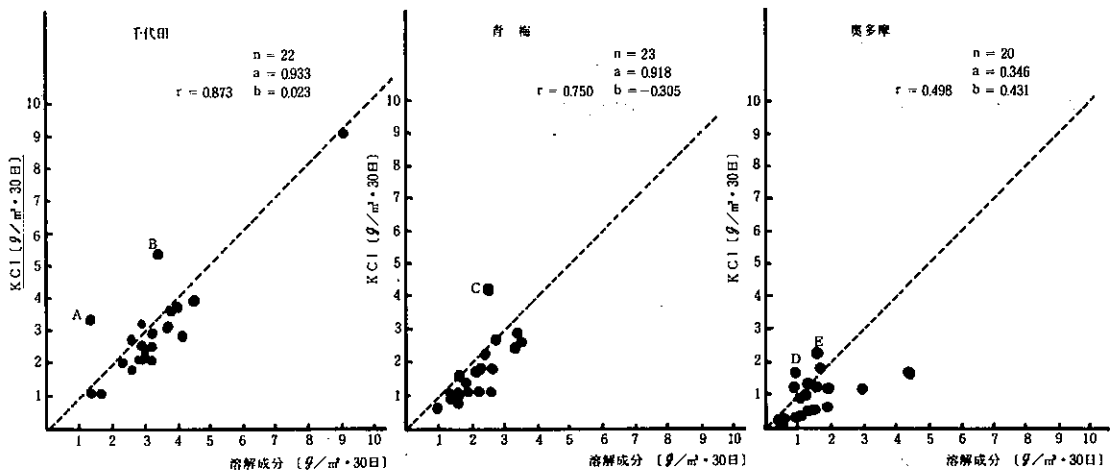


図10 全降下物溶解成分と電解質量の関係

の値は各地点の H^+ の最高値かそれに近い値であった。全降下物のpHで示すとA: 4.3, B: 4.2, C: 4.3, D: 4.6, E: 4.4であった。

このことから全降下物溶解成分の電解質量は、溶解成分量が同程度の場合、中性塩よりも、より大きな電導度をもっている酸濃度の増加によって著しく増大することを示している。これらのことから、溶解成分量との関係を見ることによって溶解成分の電解質組成等の地域特性の概略を知ることが出来ると考えられる。

5 ま と め

大気降下物を乾性降下物、全降下物に区分して採取し乾性、湿性降下物量、および、これらのpH、電導度の測定結果から、大気汚染物質の大気中からの除去に関する情報を検討した。この結果、都市の活動に起因して発生する大気汚染物質の大気中から降下することによる除去を最もよくあらわしている現象は乾性降下物の溶解成分、電導度であることが明らかにされた。

また都市部の全降下物溶解成分の電解質は平均的にはKClとよく対応する。青梅、奥多摩は溶解成分中の電解質量の存在比は千代田より小さく変動の幅が大きい。また低pHは電導度に大きく影響すること等が明らかになった。

降水による降下物量の全降下物量に対する比率は都市部より山間地で大きく、奥多摩では全降下物の溶解成分の75%、不溶解成分の78%が降水により降下したことが明らかとなった。

6 お わ り に

降下物中の化学成分(SO_4^{2-} , NO_3^- ...)については

今後検討を加えたい。本調査の雨水採取に御協力して下さった木村アサ、坂村康国両氏に謝意を表したい。

参 考 文 献

- 1) 大喜多敏一: 湿性大気汚染、公害と対策, 13, 24 - 42 (1976).
- 2) Oden, S.: The acidity problem - an outline of concepts, Water, Air, and Soil Pollution, 6, 137 - 166 (1976).
- 3) 環境庁大気保全局湿性大気汚染(酸性降雨)検討委員会: 湿性大気汚染調査報告書(1975).
- 4) 関東地方公害対策推進本部大気汚染部会-都三県公害防止協議会: 関東地方における「いわゆる酸性雨(湿性大気汚染)について」(1975).
- 5) 東京都公害研究所大気部: 「いわゆる酸性雨に関する調査研究報告書(第一報)」(1975).
- 6) 古明地哲人, 福岡三郎, 中野欣嗣, 朝来野国彦, 大平俊男: 「雨水の汚染とそのメカニズムに関する研究」, 東京都公害研究所年報, 7, 27 - 37 (1976).
- 7) 寺部本次: 大気汚染測定法の実際, 技報堂(1969).
- 8) E. Meszaros, G. Varhelyi and L. Haszpra: On the atmospheric sulfur budget over Europe, Atmospheric Environment, 12, 2273 - 2277 (1978).
- 9) 佐藤泰仁, 他: 「東京都における降下煤塵及び亜硫酸等の動態について」, 東京都衛生研究所年報, 26, 265 - 271 (1975).