

酸性雨全国調査で明らかになった半球規模（大陸規模）越境汚染と 兵庫県による 0.5mm ごとの降雨採取・分析結果からわかったこと

藍川 昌秀

兵庫県立健康環境科学研究所 [全国環境研協議会 酸性雨調査研究部会]

Part I

【はじめに】 全国環境研協議会酸性雨調査研究部会では酸性沈着現象に関する調査・研究を平成3年度から実施してきており、現在第4次全国調査が実施されている。第1次から第4次までそれぞれ特色を持った調査が展開されてきたが、第3次調査からは第2次までの湿性沈着調査に加えフィルターパック法を用いた乾性沈着調査が行われている。第3次調査で実施された乾性沈着調査のうち東海・近畿・北陸支部内の調査結果について調査結果を精査するとともに、その精査結果をもとに今後の調査・研究の計画と立案へ向けた方向性を検討した。さらに、その結果をもとに第4次調査の全国のデータを解析し、半球規模（大陸規模）越境汚染について考察した。

【解析対象データ1】 解析対象としたデータは以下のとおりである。

解析対象期間：平成11年4月-平成14年3月（全環研酸性雨部会第3次全国調査）

解析対象地点：小杉（富山県）、福井、豊橋（愛知県）、緑（名古屋市）、周山（京都府）、池田（大阪府）、奈良、神戸須磨（兵庫県）[東海・近畿・北陸支部内の乾性沈着調査実施地点]（図1）

解析対象データ：乾性沈着調査のうち SO_2 及び SO_4^{2-} （乾性沈着調査はフィルターパック法による）

【結果1】 第3次調査平均の SO_2 濃度及び SO_4^{2-} 濃度の経月変化を示す（図2(a)及び(b)）。 SO_2 濃度経月変化（図2(a)）では3年平均の経月変化でも平成12年の三宅島での火山噴火の影響が現れ、9月に SO_2 濃度が高くなっていた。それに対し SO_4^{2-} 濃度の経月変化（図2(b)）では3年平均すると火山噴火の影響は現れなかった。また SO_4^{2-} 濃度の経月変化では

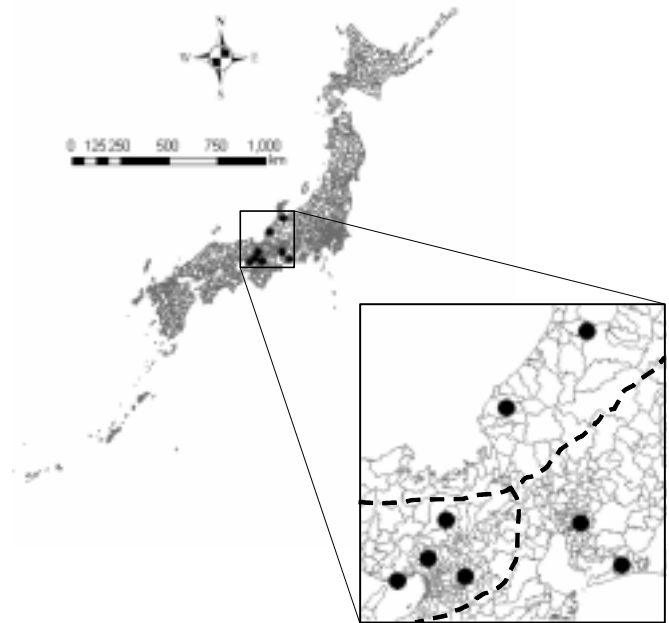


図1 調査地点

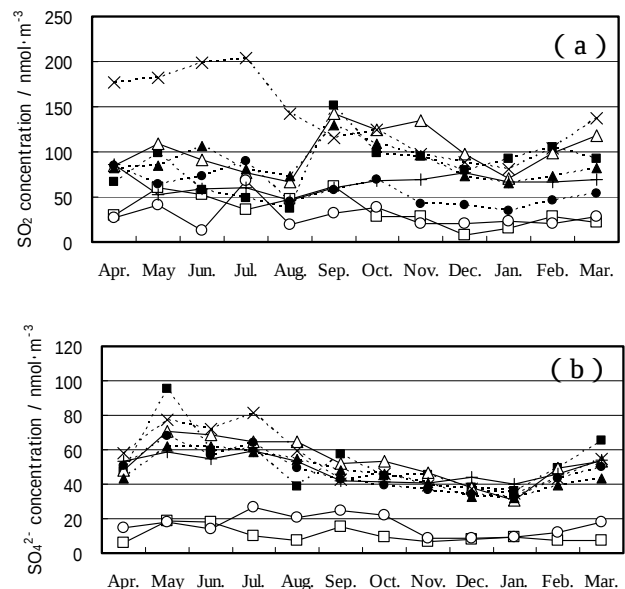


図2 SO_2 濃度経月変化（第3次調査平均）(a) 及び SO_4^{2-} 濃度経月変化（第3次調査平均）(b)

春季から夏季（3月から8月）の濃度が秋季から冬季（9月から2月）の濃度に比べ高くなっており、この傾向はヨーロッパでの SO_4^{2-} 濃度の観測結果とも一致するものであった（EMEPデータによる）。その一方、解析対象地点の平成11年度の平均値はヨーロッパでのいくつかの測定地点での平成11年（1999年）の平均値よりも高くなっていた。

【解析対象データ2】 解析対象としたデータは以下のとおりである。

解析対象期間：平成15年4月-平成18年3月（全環研酸性雨部会第4次全国調査の最初の3年間）

解析対象地点：全国32地点（図3）

解析対象データ：乾性沈着調査のうち SO_2 及び SO_4^{2-} （乾性沈着調査はフィルターパック法による）

【結果2】 SO_2 濃度は観測地点周辺の SO_2 発生量と相関が認められた。それに対し、 SO_4^{2-} 濃度は観測地点周辺の SO_2 発生量とは相関が認められなかった。図4に観測地点の経度と SO_4^{2-} 濃度の関係を示す。 SO_4^{2-} 濃度は東に位置する観測地点ほど低くなるのが分かる。

本調査における調査地点が主には都市域に位置しているにもかかわらず、本調査における SO_4^{2-} 濃度は、東アジア酸性雨モニタリングネットワーク（EANET）の日本国内局（遠隔地8、田園地域1、都市域1）での測定結果と同程度の濃度レベルであった。さらに、本調査の調査結果は、EANETの韓国における調査結果（遠隔地1、田園地域2）よりも低い濃度であった。Aikawa et al. (2008)による欧州及び中緯度北米地域との比較結果を合わせて考えると、 SO_2 濃度は観

測地点近傍の地域規模の大気汚染の影響を受けているのに対し、 SO_4^{2-} 濃度は地域規模よりもより大きな規模（半球規模または大陸規模）での影響により濃度が支配されていると考えられた。

【謝辞】 本調査に参加いただいた全環研協議会会員機関、並びに全面的な支援及び協力を頂いた、環境省、(独)国立環境研究所、(財)日本環境衛生センター・酸性雨研究センターに厚く御礼申し上げます。

Part II

【はじめに】 酸性雨に関する環境省の国内モニタリングをはじめ、世界の観測ネットワークでも、日単位や週単位での降水の採取に基づくデータベースの構築が進められている。全国環境研協議会酸性雨調

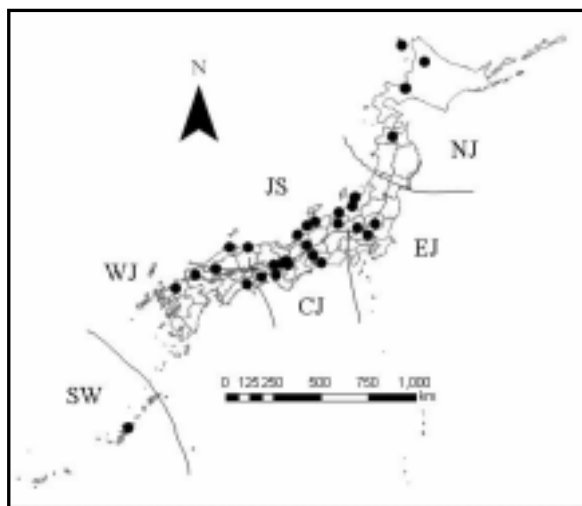


図3 調査地点

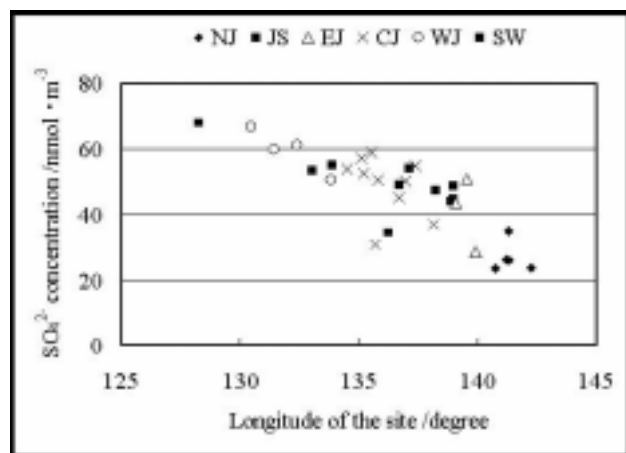


図4 観測地点の経度と SO_4^{2-} 濃度の関係

査研究部会による酸性雨全国調査でも週単位の試料採取とそれに基づく月平均値の解析・とりまとめが行われている。

一方、兵庫県では0.5mm 降水ごとに pH 及び電気伝導率 (EC) を、また 1mm 降水ごとに SO_4^{2-} 及び NO_3^- 濃度を自動分析する装置 (紀本電子工業製 model AR-107SNA) を用い、分解能の高い降水試料の採取・分析・データの蓄積を行ってきた。今回は、そのうち兵庫県豊岡市 (図5) での調査結果について報告する。

【解析対象データ】 解析対象としたデータは、解析対象期間：平成16年度、特に詳細に解析した最も降水量が多かった降雨：平成16年10月5日00:13～7日17:53の降雨

【結果】 平成16年度に観測された降水は過去

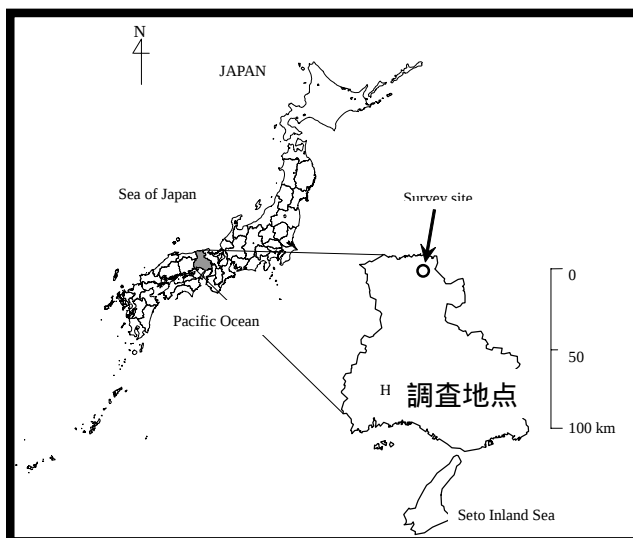


図5 調査地点

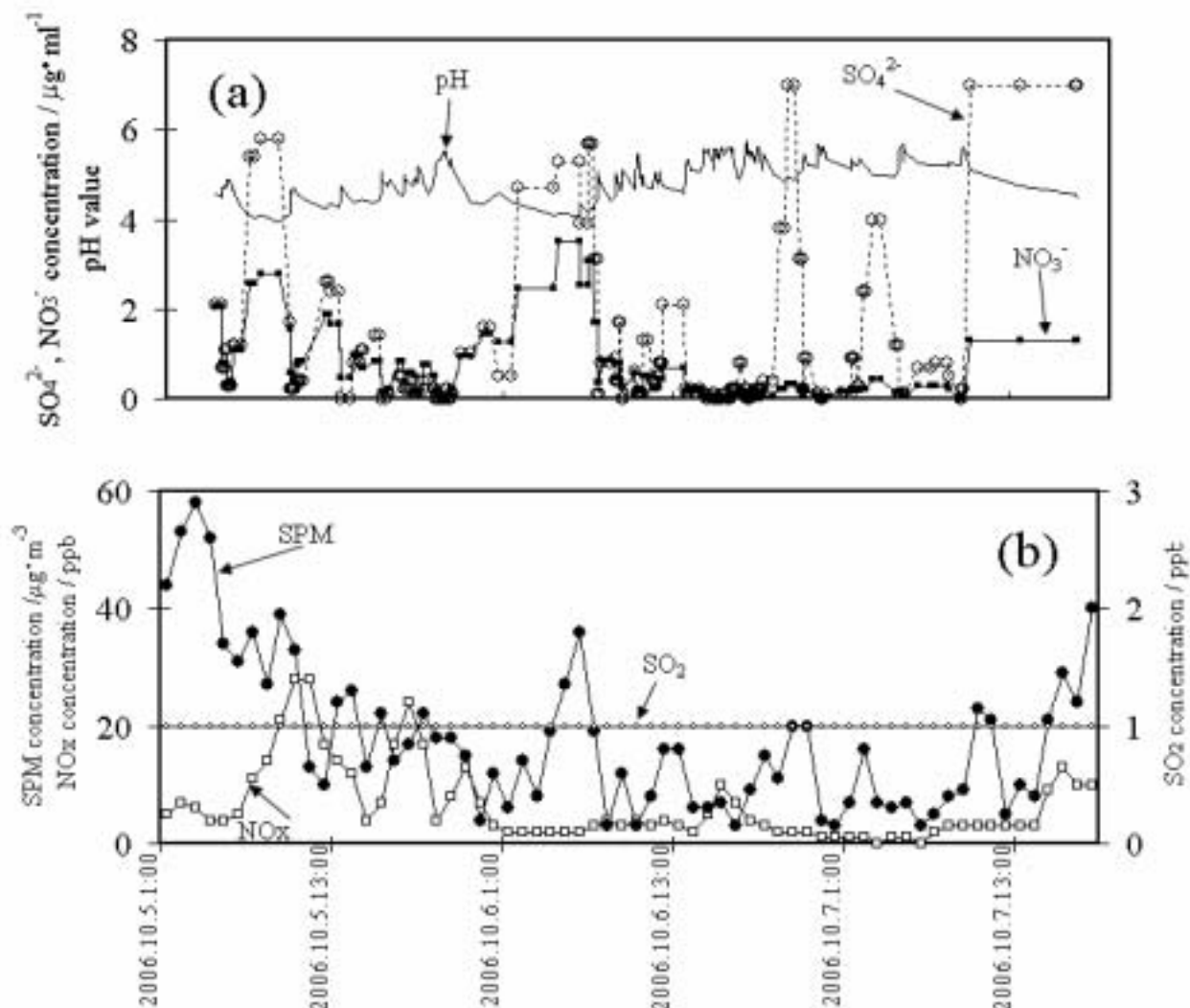


図6 降水中測定成分の時系列変化(a)及び大気中汚染物質濃度時系列変化(b)

10年間の観測結果からほぼ変動の範囲内の降水が観測されていると考えられた。そのうち、1イベントとして最も降水量が多かった降水について詳細に解析した結果、 SO_4^{2-} 濃度はECと、また NO_3^- 濃度は H^+ 濃度と高い相関係数を示し、このことは降水に溶けて NO_3^- をもたらす物質は降水の酸性化と、また、 SO_4^{2-} をもたらす物質は降水の汚染と深く関係していると考えられた。図6に詳細に解析した降水のpH及び SO_4^{2-} 、 NO_3^- 濃度の時系列変化を示す。また、あわせて、近傍の大気汚染常時監視測定局で観測された SO_2 、 NO_x 及びSPM濃度(時間値)の変化も示す。降水中のpH及び SO_4^{2-} 、 NO_3^- 濃度の変化はSPM濃度変化とよく一致した変化を示したのに対し、 SO_2 及び NO_x 濃度変化は一致したものではなかった。大喜多らの sulfate の scavenging coefficient(k)に関する研究に基づくkを、本研究事例でのkと比較するとそれぞれ $1.4 \times 10^{-4} \text{ (s}^{-1}\text{)}$ 及び 0.95×10^{-4} となりよく一致した結果となった。

参考文献

- Aikawa et al. (2008) Regionality and particularity of a survey site from the viewpoint of the SO_2 and SO_4^{2-} concentrations in ambient air in a 250 x 250-km region of Japan. *Atmospheric Environment* **42**, 1389-1398, doi:10.1016/j.atmosenv.2007.11.010
- Okita et al. (1996) Measurements of atmospheric SO_2 and SO_4^{2-} , and determination of the wet scavenging coefficient of sulfate aerosols for the winter monsoon season over the Sea of Japan. *Atmospheric Environment* **30**, 3733-3739.