

栃木県内における酸性降下物の分布特性

THE CHARACTERISTICS OF THE DISTRIBUTION OF AN ACIDIC FALLOUT IN TOCHIGI PREFECTURE

桑川高德¹・長谷部正彦²・栗山徹也³

Takanori KUMEKAWA, Masahiko HASEBE, Tetsuya KURIYAMA

¹ 正会員 宇都宮工業高校 (〒320-8558宇都宮市京町9-25)

² 正会員 宇都宮大学大学院工学研究科 (〒321-8585栃木県宇都宮市陽東7-1-2)

³ 学生員 宇都宮大学大学院工学研究科 (〒321-8585栃木県宇都宮市陽東7-1-2)

There are sulfate ion and nitrogen ion that acidify raindrops in rainfall. Those chemical ions are taken in rain by rain in or wash out. Until now, the authors have been investigating through measurement of acid rain in local area. And it is made clear that there are a seasonal characteristic of acidity in Tochigi region.

In this study, it is examined a characteristic of distribution about ion concentration or amount of fallout in rainfall. As a result, there is a tendency that sulfate ion concentration is high in summer, but low in winter on the whole of Tochigi region. And a rate of contribution of the origin of sea salt is not so much. But, there is a tendency that potassium ion is high in winter, but low in summer in Nikko. As a rate of contribution of the origin of a salt is a few, it is assumed that the origin of potassium ion and sulfate ion are in inland area

Key Words : acid rain, sulfate ion, potassium ion, an acidic fallout, land use

1. はじめに

硝酸イオンなどの酸性降下物は、雨滴に取り込まれ酸性雨となり、地上の植物等に影響を与える。降雨を酸性化させるメカニズムには、レインインやウオッシュアウトがある¹⁾。酸性化物質の代表としては硫酸イオンや硝酸イオンがあるが、これらはほとんどが地上での生物活動や自動車や工場等による人為的な活動による排ガス及び海水起源や火山活動によるものが考えられる²⁾。

酸性降下物には湿性沈着によって酸性雨となり、地上に降雨となって影響を及ぼすものと乾性沈着となり降下し影響を及ぼすものがある。これらの降下物量はほぼ同じ程度と見積もられているが、はっきりしたことはわからない³⁾。

酸性雨の影響には腐食等による構造物への被害や人体への被害及び杉の立ち枯れなどの植生への被害がある。森林などの樹木へ影響は、直接的に樹冠に作用し、樹冠を枯死させ、または土壌を酸性化させることにより、アルミニウムイオン等が土壌から溶出し、根系の発達を阻害することにより、樹林減退として影響を及ぼすことが懸念

される^{4) 5)}。

本研究では、将来顕在化してくると考えられる湿性沈着による酸性降下物の影響を検討するために、まず、栃木県内における酸性雨を取り上げ、その降雨分布を、降雨量や降雨イオン濃度及び降下物量について時間的季節変動特性や地理的・地形的分布について明らかにし、次に、降雨イオンの起源についても、海水起源等の寄与率を用い推定し、さらに、土地利用を考えてその影響について検討し、栃木県内の酸性降下物の分布特性を明らかにすることとする。

2 観測地点及び土地利用について

栃木県の概況は南北に約100km、東西に約80kmの地域で、北に日光連山、那須山地、東に八溝山地がつらなり、中央部を鬼怒川が流れている。したがって、東西方向には山谷山の地形であり、南から北向きには逆扇形によって狭まり、60mから300mと標高も高くなっている。

図1に観測地点の一覧と土地利用を示す。観測地点は宇都宮を始めとした各都市で、これに壬生を加えた計8地点である。雷雨性降雨イオンは壬生で観測した。

3 降雨のpH, EC, 雨量について

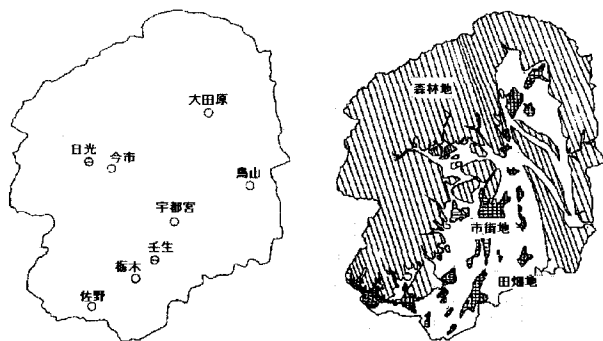


図 - 1 観測地点と土地利用形態図

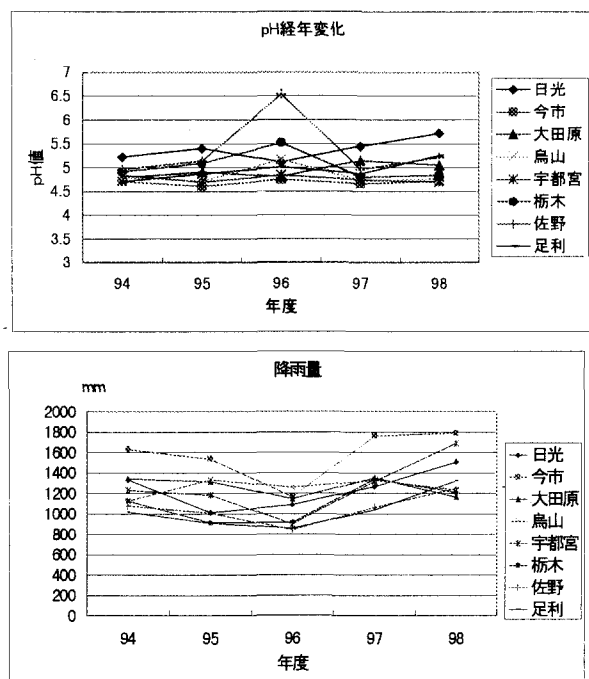


図 - 2 観測地点での降雨のpH及び雨量

図2に観測地点での降雨のpH及び雨量を示す。観測年は1995年4月から1999年3月までである⁶⁾。この図から示されるように、降雨量は最も多い今市で1800mmから、佐野の800mmとかなりばらつきがみられるが、分布として、県北から県西の日光・今市にかけて降雨量が多く、足利・佐野の県南から県西にかけては少なくなる傾向がある。酸性度を表すpH値の経年変化は、日光では年度と共に酸性度が大きい傾向が見られるが、近接する今市では約4.7程度とpH値は小さい。佐野はpH値の変動が大きく、特に96年度は酸性度が6.5と中性に近い値を示すが、97、98年度にはpH値が小さくなっている。この地方は、近くの葛生に石灰石採取のずり山があり、降雨が少ないことによる影響が出ている可能性があると思われる。しかし、鳥山、宇都宮、大田原ではおしなべてpH値が5.0以下と厳しい酸性雨になっていることが示され

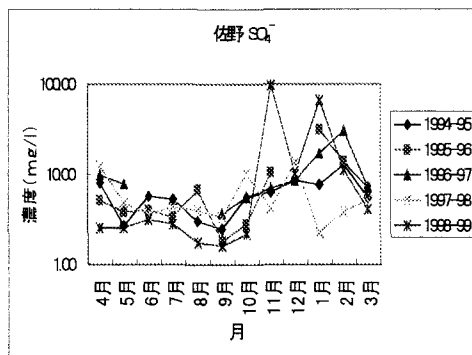


図 - 3 壬生での雷雨開始時から降雨量、pH及びEC

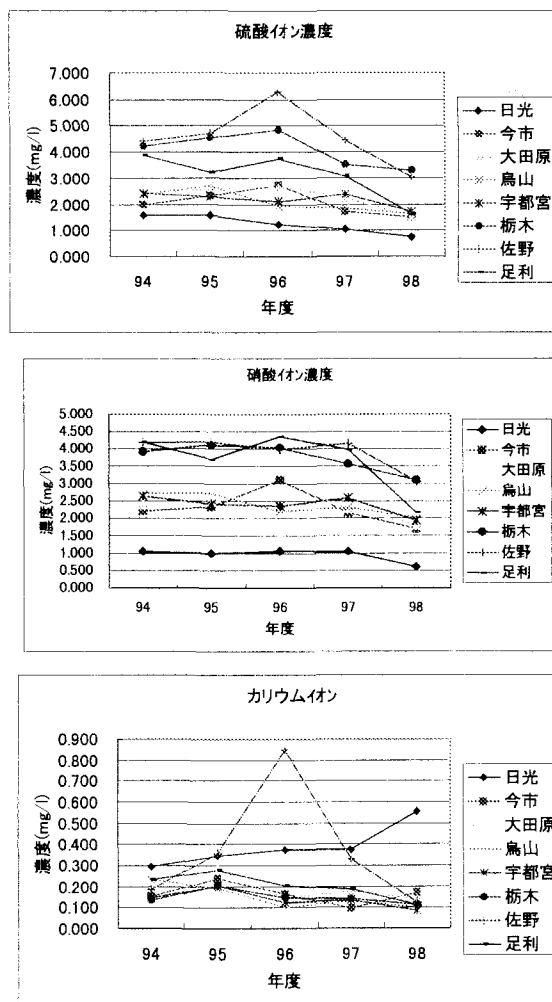


図 - 4 硫酸イオン、硝酸イオン、カリウムイオン濃度の経年変化図

る。

次に、図3に1997年に壬生で観測した雷雨の降雨開始時から終了までの10分毎の降雨量とpH, ECについて示す⁴⁾。この降雨は、日光の山間部で発生した雷雨が平野部まで移動してきたものである。降雨パターンは初期の40分程度に高強度の雨量が降り、それ以降は収束に向かい少なくなっている。また、pH値は各10分間

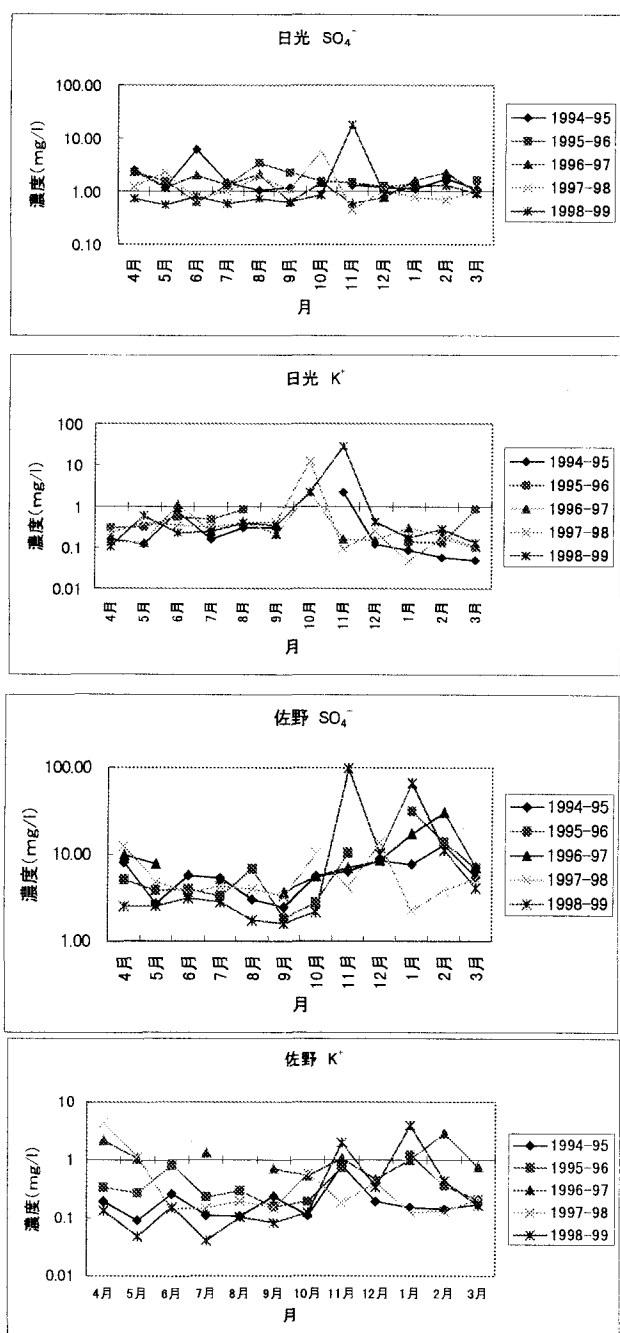


図-5 日光、佐野における硫酸イオン、カリウムイオン濃度月別変化図

での観測地であるが、どれも5.6以下で、中には4.0とかなりきつい酸性雨である事が示されている。ECは降雨量パターンと反対のパターンを示しているが、最大でも50 μ S/cmと溶存成分が比較的少ないと思われる。

4 降下物の分布について

(1) イオン濃度分布の経年変化

図4に酸性化を促す硫酸イオン濃度の経年変化を示す。濃度としては、1mg/lから6mg/lで、平均するとこれは、日本での降水の平均値4.5mg/lとほぼ同じ値である⁷⁾。濃

度は全体的に年度と共に少なくなる傾向を示している。このことは、図2のpHの上昇傾向を裏付けていると思われる。そして、栃木・佐野・足利の県西南地区では濃度が高く、県央以北では低い傾向が見られる。また、硝酸イオンでは、こうした地域差が端的に現れている。図より、日光、栃木・佐野・足利、宇都宮・烏山・大田原・今市の3つに区分される動きを示している。これも全体としては、硫酸イオンと同じく硝酸イオンについても減少傾向が見られる。また、陽イオンのカリウムイオンについては、減少傾向が見られるものの、日光は増加傾向が見られる。この地域は多くが森林地域で、ゴルフ場、スキー場が点在する。こうした土地利用による影響によるものかははっきりしない。96年度の佐野での濃度はかなり多くなっている。佐野の降雨量は800mm程度で、栃木・足利より100mm程度少ないが、栃木・足利のカリウムイオン濃度は佐野の約1/4であり、降雨量からは説明できない。それ以外の要因が関係していると思われる。

(2) 季節変動について

図5に月毎の日光、佐野での、硫酸イオン、カリウムイオンについての濃度を示す。硫酸イオン濃度は、日光で、1.0mg/l付近に分布し、季節的な変動は少ないが、佐野での濃度分布は、5月から10月にかけての時期は約5mg/lで、晩秋から春先にかけては平均で約9から10mg/lと上昇し、変動に明確な季節変化が見られる。カリウムイオンの濃度分布は、日光が春から秋口にかけてと12月から4月までの冬期とでは異なった傾向、すなわち夏期に高く、冬期に低くなる傾向が見られる。一方佐野では、夏期に低く、冬期に高い現象が見られ、日光とは対照的な変動を示している。こうした変動は、降雨をもたらす経路等によるものか、大気のがれによる移流の影響によるかまたは土地利用特有の現象であるのかは今後さらに検討する必要がある。その他の地域については、こうした変動の間の変動を示している。

(3) 濃縮係数

濃縮係数とは、試料中のイオン濃度について、海水に比べてどの程度濃縮されているかを判断する指標で、次式によって求められる⁷⁾。

イオンMの濃縮係数＝

$$(M/Cl) \text{ sample} / (M/Cl) \text{ sea water}$$

ここで、(M/Cl)sampleは試料中のイオンMと塩素イオンの等量比、(M/Cl)sea waterは海水中のイオンMと塩素イオンの等量比である。この濃縮係数は、1に近いほどその物質が海水起源であることを示している。したがって、この係数を求めれば、海水による影響の度合いが求められることとなる。

図6に硫酸イオン、カリウムイオン、ナトリウムイオンの濃縮係数の経年変化を示す。降雨中の硫酸イオンは減少傾向にある。95年度の日光では、濃縮係数が約1.0

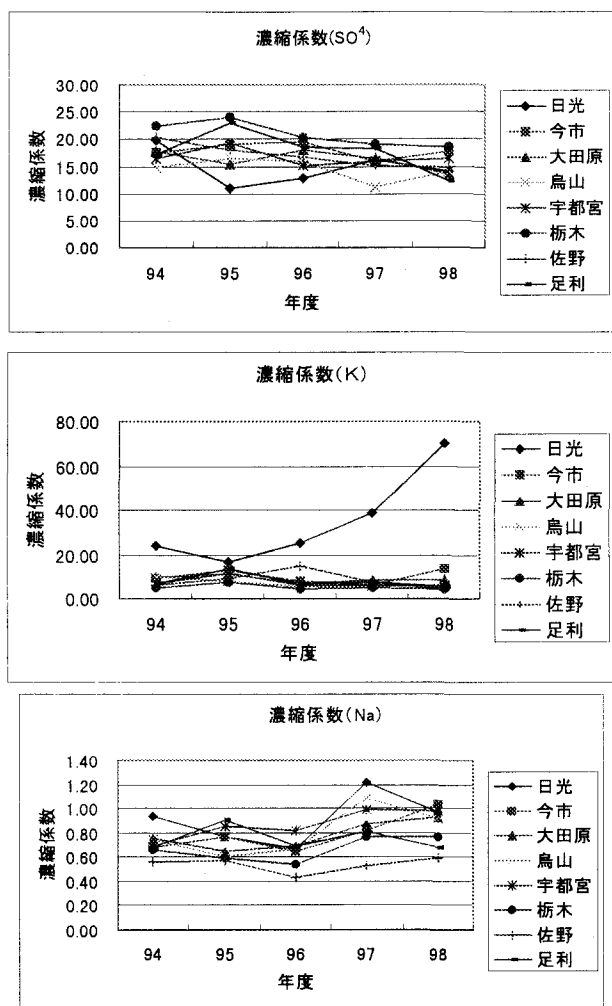


図 - 6 硫酸イオン、カリウムイオン、ナトリウムイオンの濃縮係数の経年変図

と低く、他の年度に比べて海水起源に近いことが推定される。カリウムイオンについては、日光が年度と共に大きいことから、日光でのカリウムイオンが海水起源でなく、カリウムの濃度が春先にそれほど高くないことから（図5）、大陸による影響よりも内陸に起因して由来していると思われる。また、ナトリウムは97年度において日光・烏山で1より大きくなったが、それでも1に近く海水由来であると思われる。しかし、多くの観測点で、1以下であり、このことは、ナトリウムの多くが、途中で経路で降水と一緒に降下してしまうことによる影響によるものと思われる。一般に、海岸よりも離れるに従い、塩化物イオンは急激に激減する事が報告されているので、この影響であろう⁷⁾。しかしながら、平均的な降水では、濃縮係数が、硫酸イオンで約30、ナトリウムで1.82、カリウムで12と報告されていることから⁷⁾、カリウムで95年度は県内各点で海水以外の影響が強く、ナトリウム、硫酸イオンでは平均以下であり、海岸から内陸に来る過程において多くが降下しているものと推定される。

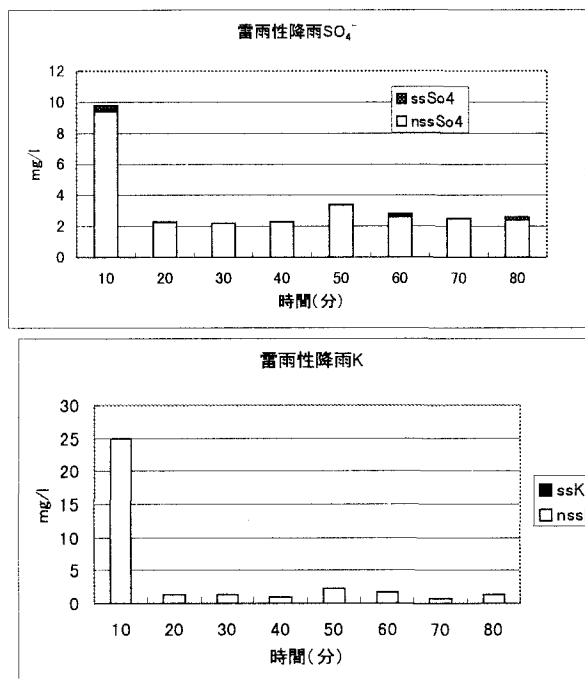


図 - 7 雷雨性降雨での硫酸イオン、カリウムイオンの時間毎変化図

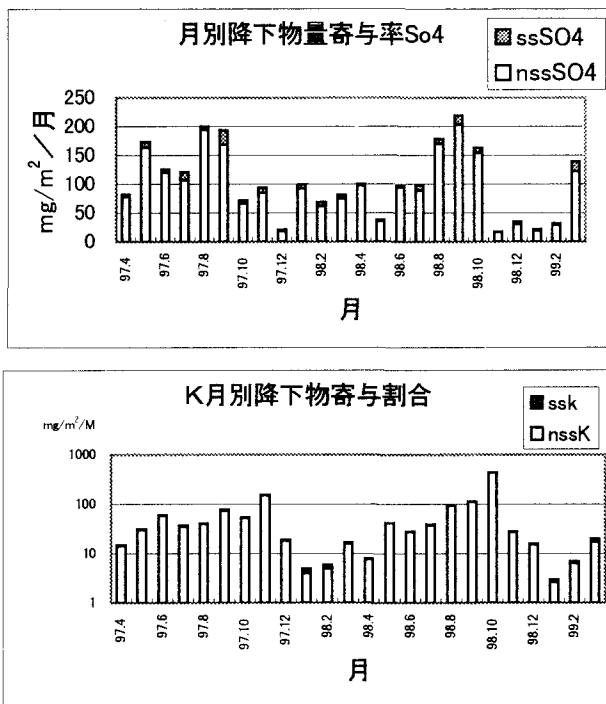


図 - 8 硫酸イオン、カリウムイオンの降下物量の月別変化図（日光）

（4）イオン濃度と非海水起源イオン濃度分布

酸性雨の影響を検討するには、酸性度pHばかりでなく、降下物質量で検討することが指摘されている⁸⁾。ここでは、雨量と各イオン濃度の関係から降下物質量を算定した。

降雨中に含まれるイオンの起源は多くが海水である場合が多いが、それに至る過程において、また、雨量や地形

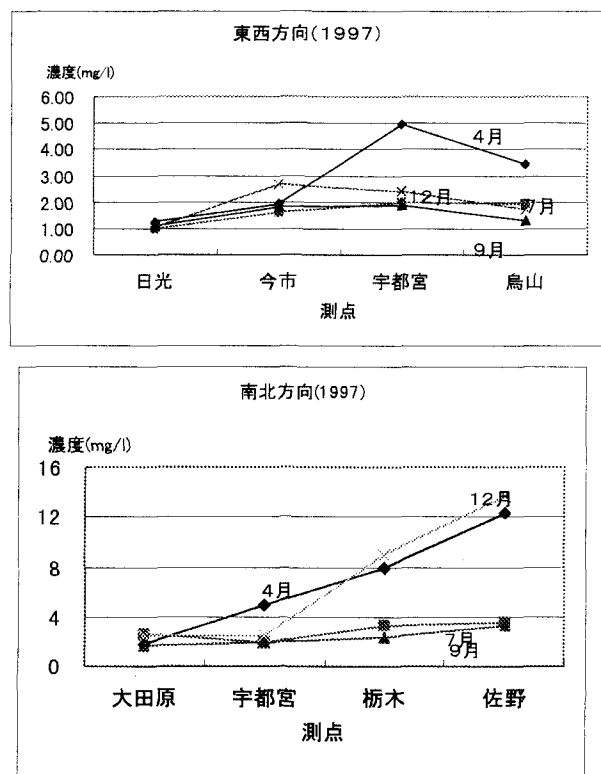


図-9 東西方向、南北方向に沿った硫酸イオンの季節代表月における濃度変化図

他により変化する。しかし、海水から大気に放出供給される粒子は海水の組成を保っていると考えられる。

そこで、各イオンの海水よりの寄与率を算定出来れば、各降雨イオン濃度からこれらを差し引くことにより、海水以外の影響を見積もることが出来る。(非海水起源のイオンをnssSO₄などと表記する。⁹⁾)

非海水起源イオンは次式によって求めた^{9) 10)}。

$$\text{海水起源寄与率 } f (\%) = \left(\frac{(\text{Na}^+)_{\text{sample}}}{(\text{M}/\text{Na}^+)_{\text{sea water}} / (\text{M})_{\text{sample}}} \right) * 100$$

$$\text{非海水起源イオン nss (M) sample} =$$

$$(1 - f/100) * (\text{M})_{\text{sample}}$$

ここに、(M) sampleは観測資料中のイオン濃度、(M) sea waterは海水中のイオン濃度、fはナトリウムイオンを基準とした海水起源イオンの寄与率である。

図7に雷雨性降雨での時間毎の硫酸イオン・カリウムイオンの分離した濃度変化を示す。また、図8に1997から1998までの月別に分離した硫酸イオン、カリウムイオンの降下物量の変化を示す。図7から、硫酸イオンは、初期の10分間には海水起源によると推定される硫酸イオンが少し見られるが、それ以降はほとんど非海水起源であることを示している。カリウムイオンでは海水による寄与はほとんど認められない。図8から、硫酸イオンの月別変動は、春から秋までの夏期に増加し、冬期には少ない傾向を示している。この傾向は、新潟などの積雪による影響を受けている日本海側の冬期にイオン

降下物量が多くなる傾向¹¹⁾とは異なっていることを示し、この地域の特長となっていると考えられる。また、カリウムイオンについては、ほとんどが非海水起源であることが示されている。月別変動では、硫酸イオンと同様な傾向を示している。これらのイオンの由来は、畑地・田への施肥や都市化による土地利用形態や土壌の風化や生物活動が考えられる。しかしながら、月別の変化から、硫酸イオンやカリウムイオンには明確な2期の変動が見られ、それらのイオンの海水にいる起源はイオンによって異なった挙動であることが示された。これらの原因について今後検討する必要があると思われる。降下物量は、降雨水量により影響されるために、イオン濃度と降下物量と雨量を総合的に考えて比較検討する必要があると思われる。

(5) 降下物量の経路による影響

これまで、著者らは、酸性雨の観測を行い、栃木県内において明確な季節変動があること示した¹²⁾。その結果、酸性度分布は、季節的な要因、すなわち気団等の移動や移流による影響を受けていることが推定された。

図9に、代表する季節として、1997年の3月、7月、9月、11月、2月を取り上げ、東西南北に沿った硫酸イオン濃度変化を示す。東西方向では、日光でイオン濃度が低く、今市、宇都宮で高くなり、烏山で低くなる傾向が見られる。しかし、4月の宇都宮、烏山ではかなり高いイオン濃度である。降雨量は日光で65mmで、宇都宮29mmと今市の53mmに比べて多い影響かも知れないが、烏山での降雨量の65mmとはほぼ同じである。したがって、降水量だけで説明ができないと思われる。春先における烏山の硫酸イオンは、海水起源による寄与が少ないことや偏西風などの風向きによる影響が日光・今市で少ないことを考慮すると、内陸での影響によるものと推定される。

また、南北方向では、県南の佐野から県北の大田原に行くに従い、濃度は低下している傾向が示される。4月の降雨量は、大田原が他の地点より約2倍程度多く、12月では4地点の降雨量はほぼ同じである。海水起源の寄与はそれほどないことから、この時期の栃木、佐野での高濃度の出現はこの地方特有の影響、例えば、工場など影響によるのかも知れない。

(6) 土地利用との関係

栃木県内の土地利用は、市街地・農地・森林に大きく区分される。3.2でカリウムイオンは海水起源よりも内陸での活動、特に施肥によって発生していることが推定されている。

この地方の主たる農作物は稲作と麦・野菜である。肥料の主たる要素は、窒素、カリウム、リンである。図5によると、カリウムの降下物量は年計で平均約240mg/m²/年(240t/km²)である。水田での使用量がリン酸塩として約5~6g/m²程度¹³⁾であるから、施肥さ

れた後、その約1/20～1/30程度が大気との交換後、降下していることが伺われる。

5. まとめ

降雨を酸性化させていると考えられる物質に硫酸イオンと硝酸イオンやアンモニウムイオンがある。しかし、降雨後に土壤に浸透すると、硝酸イオンは作物の生長にプラスとして働くことや土壤の酸性化が進むと急激にアルミニウムイオンが溶出し、根茎に大きな影響を及ぼすことが懸念される^{3) 14)}。

この研究から、栃木県内における湿性沈着として酸性降下部物に関して、硫酸イオンについては、日本海側の濃度パターンと同じパターンであるが、降下物量では異なったパターンになっている。イオン濃度は平均的降水成分とほぼ同じような値であった。また、降水イオン濃度の濃縮係数からは、硫酸イオンやカリウムイオンでは平均的な降水の濃縮係数よりも低い値となっていた。このことは、この地域に至る過程において、降雨と共に降下し、低くなっている可能性があることが示唆される。しかし、こうした観点については、これからさらに、硫黄同位体比などを用いて検討する必要があると思われる。海水起源のイオン濃度の寄与については、カリウムではほとんどその影響がなく、経路についての検討から地理的または土地利用形態の影響が関係していることが推測された。特に、烏山では、施肥等による影響が考えられる。濃度分布の季節変動は、夏型と冬型の2つに分類でき、このパターンは降雨量とも関係している。また、栃木、佐野では、夏期に硫酸イオン濃度が高くなっており、この地域の活動によるものと推定される。

また、雷雨性降雨の時間毎の観測から、多くのイオン濃度は初期に高く、その後急激に低下し、降下物量は初期に約2程度で、今後の降雨量の取扱いの参考になると考えられる。

酸性化物質の1つである硝酸イオンの窒素は、多くが生物活動や土壤、大気等に含まれ、そのサイクルが0.1年と速く、かつ大気との交換速度が大きく、大気中での雨滴等との交換過程もあり解明されていない^{8) 15)}。今後の課題であろう。

酸性雨降雨のメカニズムに関しても、これから観測を

継続し、洗浄比や洗浄係数等による降雨形態によった大気中での交換過程を含めた検討を行いたい。

最後に、貴重な資料及びご助言をいただきました栃木県生活環境部環境管理課の皆様に感謝の意を表します。

参考文献

- 1) 村野健太郎：酸性雨と酸性霧，裳華房，1993
- 2) 日本化学会・酸性雨問題研究会編：身近な地球環境問題，コロナ，1997
- 3) 原 宏：酸性雨とは？：定義とその生成機構，天気VOL. 42 pp34-111，1995
- 4) 長谷部正彦他：雷雨性降雨のイオン濃度特性とその降水の土壤への影響について，水工学論文集42，1998
- 5) 松原従彦：酸性雨が植物に及ぼす影響とその対策，環境管理32，pp. 471-478，1996
- 6) 栃木県大気汚染常時監視測定結果報告書，1995，96，97，98，99，12（発刊予定）
- 7) 多賀光彦・那須淑子：地球の化学と環境（第2版），三共出版，1998. 3
- 8) 大喜多敏一：酸性雨，気象研究ノート182号，1994. 3
- 9) 大泉毅他：硫黄同位体比から見た大気降下物中硫黄の供給源—新潟県の場合—，日本化学会誌，1991，pp675-681
- 10) 大泉毅他：硫黄同位体比を利用した大気降下物中硫黄の供給源寄与率の推定，日本化学会誌，No9，pp822-827，1994
- 11) 北村守次他：硫黄安定同位体比からみた石川県の降水中的硫酸イオンの起源と推定，地球化学27，pp109-118，1993
- 12) T.KUMEKAWA et al：The relationship between rainfall intensity and the distribution of acid rain in a districted area，Proc.of Inter.Congress of Acid Snow and Rain，pp80-85，1997.10
- 13) 栃木市 J A・栃木農業改良普及センター監修：水稻・転作作物の栽培資料，1998. 3
- 14) 桑川高德他：酸性化させた土壌における植物成長阻害に関する実験的研究，水文・水資源学会，1999年研究発表会要旨集，pp92-93，1999. 8
- 15) 酒井均・松久幸久：安定同位体地球科学，東京大学出版会，1996

（1999. 9. 30受付）