

44. ウォッシュアウトおよびレインアウトによる 降雨中全窒素含有量の推定

ESTIMATION OF TOTAL NITROGEN CONTAINED IN THE PRECIPITATION
BY THE WASH-OUT AND THE RAIN-OUT

篠田成郎*・日置琢三**・竹下 慶***・鷲見 力****・マドウスダン B シュレスト*・
野田幸嗣****・湯浅 晶*

Seirou SHINODA, Takuzo HIOKI, Kei TAKESHITA, Tsutomu SUMI, Madhusudan Bakta SHURESTHA,
Kohji NODA, Akira YUASA

ABSTRACT; The annual amount of the supplied total nitrogen (TN) from the atmosphere into the land surface through the rainwater was estimated from the field observations and the numerical model of the TN balance of the atmosphere. Especially, the TN contained in the precipitation was separately measured in the single precipitation event to evaluate the amount of the TN contained by the rain-out. As the result, the annual amounts of the TN by the rain-out and the wash-out were respectively estimated as 0.86 and 0.13 t/km²/y in the forested mountain areas, and the annual amounts of the TN by the wash-out were respectively estimated as 0.97 and 0.18 t/km²/y in the urban area.

KEYWORDS; wash-out, rain-out, precipitation process, acid-rain, total nitrogen balance

1. 緒言

酸性雨は、森林の衰退、湖沼の酸性化と魚の死滅、金属の腐食など、欧米を中心に深刻な被害を与えている。日本においても酸性雨・酸性霧によると見られる樹木の立ち枯れ現象が国内各地で報じられつつあり¹⁾、森林域等の一部地域では陸水に対する酸性雨の影響が顕在化してきていると考えられる。

こうした酸性雨問題は、降水 pH の値のみで評価されがちであるが、その原因物質となっている化学物質の量に関する収支から捉えなければ、原因、被害予測、具体的対策などを考えることはできない²⁾。我が国における酸性雨の主要因は、大陸から飛来する硫黄酸化物によるものよりも、むしろ、都市域での人間活動に伴う窒素酸化物によるとの報告³⁾もある。窒素酸化物などが雨滴中に含有されるプロセスには、雨滴の生成・成長過程で物質が雨滴に取り込まれるレインアウト現象と雨滴落下時に大気中の物質と衝突・併合して雨滴に取り込まれるウォッシュアウト現象がある⁴⁾。前者は雨雲の発生・成長地域における大気中の物質を、後者は降水発生箇所での大気中の物質を含むことになるため、雨滴中に含有している物質にも 2 つの起源が存在することになる。こうしたことから、雨水中に含有する物質の起源を降水過程に基づいて特定し、その動態を明らかにすることが、酸性雨問題の基本的対策になると考えられる。

本研究では、雨水中の含有全窒素成分に焦点を当て、大気中に浮遊する窒素成分の雨滴への取り込み現象をレインアウト過程とウォッシュアウト過程に分け、降雨により陸域に供給される全窒素量を現地観測およびモデル解析から推定する。

2. 降水中全窒素の時間変化モデル

2.1 大気中全窒素濃度の時間変化

著者ら⁵⁾は、図-1 に示すような大気塊内部での全窒素量の質量保存則に基づき、大気中全窒素濃度 N_A の時間変化を次のように定式化している。

$$N_A(t) = \frac{\lambda}{\mu} + \left(N_{A0} - \frac{\lambda}{\mu} \right) e^{-\mu(t-t_0)}, \quad \lambda = \frac{s}{A} n_T, \quad \mu = 2 \frac{\beta_A}{z_e} \dots\dots\dots (1)$$

* 岐阜大学流域圏科学研究センター River Basin Research Center, Gifu University
** 株式会社クボタ Kubota Corporation
*** 株式会社日建技術コンサルタント Nikken Gijutsu Consultants Co.
**** 岐阜大学大学院工学研究科 Graduate School of Eng., Gifu University

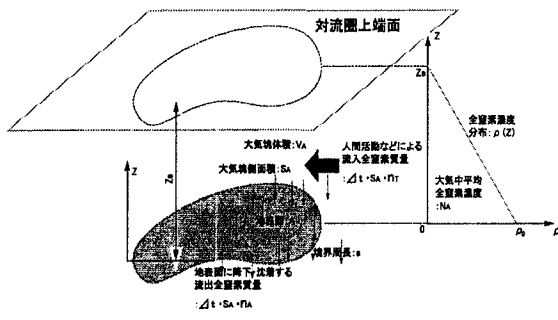


図-1 大気中における全窒素収支の模式図

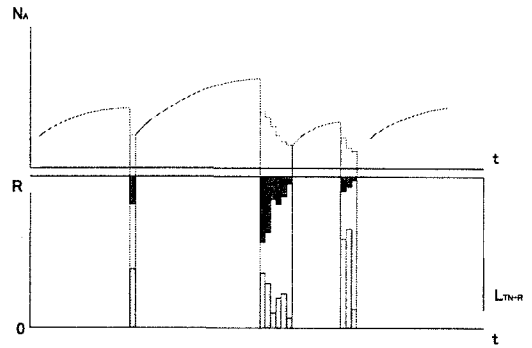


図-2 降水による大気中全窒素除去過程の模式図

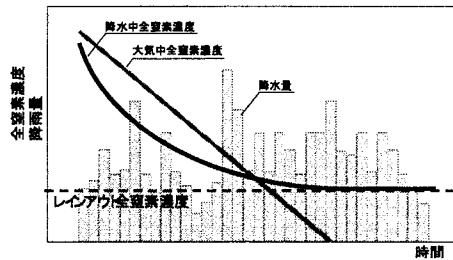


図-3 降水中全窒素濃度の時間変化に関する模式図

ここに、 n_T は、単位時間あたりに大気塊側面の単位面積を通過して大気塊に供給される全窒素成分の質量（大気への流入全窒素フラックス）であり、時空間的にほぼ一様として扱う。 β_A は、単位時間あたりに大気から地表面へ降下・沈着する全窒素質であり、無降雨時の乾性降下・沈着率に相当する。 N_{A0} および $t-t_0$ は、それぞれ大気中初期全窒素濃度および先行無降雨期間を表す。

2.2 降水による大気中全窒素の除去（ウォッシュアウト過程）

大気中の汚濁物質は全窒素成分に限らず、降水によって除去される。降雨による大気中全窒素除去率を k_A とすれば、降雨による大気中全窒素の除去フラックス n_R を次式で表すことができる。

$$n_R = \frac{L_R}{A} = k_A R N_A \quad \dots \dots \dots (2)$$

ここに、 R は降水量であり、 k_A を時間的および空間的に一定な無次元パラメータとして扱うことにする。

以上より、無降雨時には大気中窒素濃度は時間経過とともに単調増加するが、降雨発生と同時に単位時間・単位面積あたりに式(2)で表される質量だけ除去され、降雨終了後、再び式(1)に従って単調増加するといったことを繰り返していることになる。こうした様子を模式的に示したものが図-2である。

2.3 レインアウトによる全窒素取込量のパラメータ化

前述のように、ウォッシュアウトにより大気中の全窒素成分は雨滴に捕捉されるため、降水の開始から終了までの時間経過とともに、大気中全窒素濃度は単調に減少すると考えられる。長時間降水が続き、ウォッシュアウトによって大気中に存在する全窒素成分がすべて洗い流された状態においては、降水に含まれる窒素の大部分はレインアウトによって落下前から雨滴中に含まれていた窒素成分となる。このため、降水の時間経過とともに降水中全窒素濃度は単調減少しつつ、次第にほぼ一定値に収束していると考えられる。こうした降水過程の経過に伴う降水中全窒素濃度の時間変化を図-3に模式的に示す。この図より、降水過程の時間経過に従って一定値になった状態での全窒素濃度を現地観測から知ることにより、雨滴落下前から含有していた全窒素量を把握し、降水中に含まれるレインアウト量をパラメータ化できると期待される。

2.4 モデルパラメータの推定手順

現地観測で得られる降水中全窒素負荷量は、上述のウォッシュアウトによって含有する全窒素成分とレインアウトによって含有する全窒素成分の両者が混合したものである。そこで、各降水サンプル採取期間ごとに観測された降水中全窒素負荷量 L_R から上述の考え方で定義されるレインアウト全窒素負荷量 L_{R-RO} を減ずることで、ウォッシュアウトによって供給される全窒素負荷量 L_{R-WO} を算出する。ついで、こうして得られるウォッシュアウト全窒素負荷量 L_{R-WO} を式(1)および式(2)のモデル式に適用し、最小自乗法によって各パラメータを決定する。

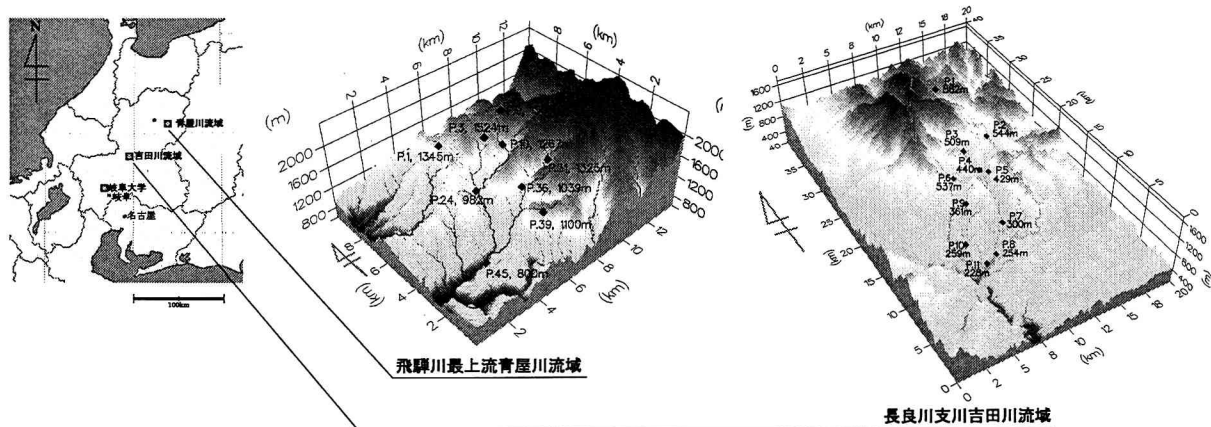


図-4 降水観測地点と測点の配置 (飛騨川最上流青屋川流域, 長良川支川吉田川流域, 岐阜大学キャンパス)

3. 降水量および降水中全窒素負荷量に関する現地観測

3.1 観測サイトと観測期間

降水量の計測および降水中全窒素濃度分析のための降水採取を, 山地森林域である木曽川水系飛騨川最上流青屋川流域, 木曽川水系長良川支川吉田川流域および都市域内に位置する岐阜大学キャンパスにおいて実施した. 図-4に観測場所の位置関係および測点の配置状況を示す.

飛騨川最上流青屋川流域 (約 45km²) は, 乗鞍岳南西山麓に位置する人為的な影響を直接受けることのない山地森林域となっている. 1996 年より 5ヶ年にわたりこの森林域における窒素収支を明らかにするための水文・水質・気象観測を降水量観測や降水採取・降水中全窒素濃度分析と併せて継続的に実施した^{6),7)}.

長良川支川吉田川流域 (約 190km²) は, 山地森林域である青屋川流域と都市域である岐阜市の中間に位置しており, 2000 年 8 月 15 日より 4ヶ月間の連続的な降水量観測および降水採取を行った⁸⁾. ほとんどの測点は森林域で囲まれた集落の中心付近に位置しており, 全体的には森林域と言えるが, 人為的影響も入る場所となっている.

岐阜大学キャンパスは岐阜市北部に位置しており, 観測地点とした岐阜大学流域環境研究センター (2002 年 4 月より, 流域圏科学研究センター) の周辺交通は大学キャンパス内を移動する車両以外にほとんどなく, 局所的に大気を汚染する要因は存在していない. 1999 年より流域環境研究センター棟屋上 (地上 12.6m) において, 降水開始から終了までの降水サンプルと, 降水開始直後 2~3mm の初期降水に分けてサンプルを採取している. また, 2001 年には, 一つの降水過程中に時間的に分割した降水サンプルの採取を実施した.

3.2 レインアウトによる全窒素含有量の観測

図-3に示したように, 降水過程の時間経過とともに, ウォッシュアウトによる全窒素成分はゼロに漸近するため, レインアウト+ウォッシュアウトとして計測される降水中全窒素量が一定になった値をレインアウト全窒素含有量と定義することにした. 具体的には, 降水開始から終了までの 1つの降水を時間経過とともにできる限り多くのサンプルに分割して採取し, それぞれに含まれる降水中全窒素濃度を分析することで, その時間変化を把握した.

図-5 は, こうした方法で採取された雨水の観測結果の一例であり, 降水量 R の時間変化, 積算降水量 R_I に対する雨水中全窒素濃度 C_R および雨水中積算全窒素負荷量 L_{RI} の変化について示してある. これより, 降水量が多くなるにつれ, 雨水中全窒素濃度は減少し, 一定値に漸近する傾向が認められる. また, 積算負荷量の変化についても降水初期において大きく供給され, 降水の継続に伴いその増加量は減りほぼ一定となる. これらのことから, 降水 (雨滴落下) による大気中の汚濁物質の洗い流しというウォッシュアウト現象と落下前の雨滴に最初から存在し, 降水過程の最初から最後までほぼ一様に含まれているレインアウト全窒素をうまく捉えられたといえる. なお, 本論では, 降水中に観測者が待機しながら, 臨機応変に雨水採取ボトルを交換することによって雨水の分割採取を実施した結果を用いて解析している.

こうした手順により一つの降水イベントごとに推定したレインアウト濃度 C_{R-RO} , レインアウト負荷量 L_{R-RO} およびウォッシュアウト負荷量 L_{R-WO} を表-1 に示す. この表では, 観測対象としたそれぞれの降雨イベント (降水開始時刻 t_1 , 降水終了時刻 t_2 , 降水継続時間 $T = t_2 - t_1$) を降水イベント No. によって分類してあり, それぞれのサンプル数 N , 総降水量 R_T , 全窒素負荷量 L_R についても併記してある. この表より, 推定されたレインアウト濃度は各降水イベントごとに大きく異なることがわかる.

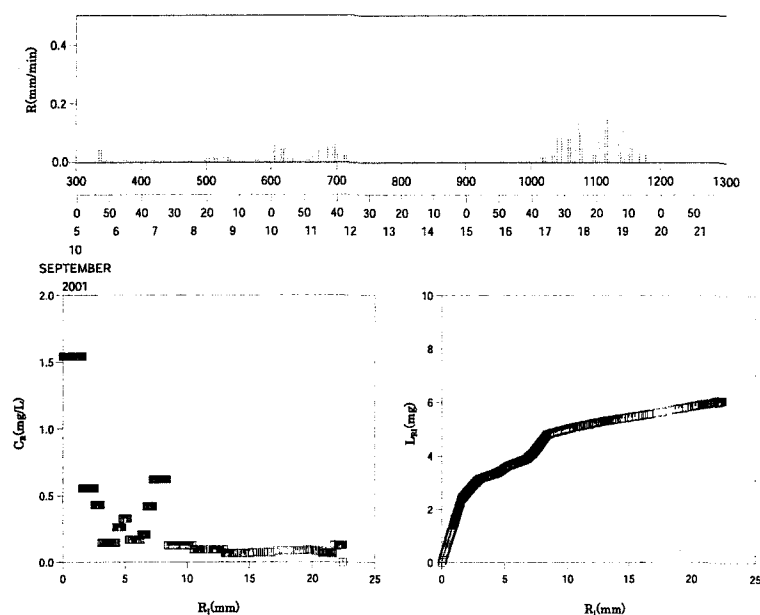


図-5 降水観測結果の一例; 上: ハイエットグラフ (降水量 R の時間変化), 左: 積算降水量 R_I と降水中全窒素濃度 C_R の関係, 右: 積算降水量 R_I と積算降水中全窒素負荷量 L_{RI} の関係

表-1 雨水分割採取より推定されたレインアウトおよびウォッシュアウト全窒素量

No.	t_1	t_2	N	R_T (mm)	T (min)	L_R (mg)	C_{R-RO} (mg/L)	L_{R-RO} (mg)	L_{R-WO} (mg)
2	07/12 (15:01)	07/13 (18:01)	12	24.4	1621	28.828	0.807	12.509	16.319
4	09/06 (22:17)	09/07 (20:55)	14	15.5	368	5.884	0.035	0.782	5.063
5	09/10 (03:59)	09/10 (19:41)	20	22.5	943	6.136	0.067	3.415	2.722
6	09/30 (13:08)	10/01 (19:57)	52	50.9	1250	10.651	0.033	1.715	8.936
7	10/10 (00:58)	10/10 (12:39)	29	52.3	702	8.607	0.040	1.810	6.797
8	10/16 (18:45)	10/17 (22:18)	33	45.4	1654	16.465	0.049	7.117	9.348
9	10/22 (11:20)	10/22 (23:44)	28	144.2	765	18.685	0.015	0.069	18.616
11	11/05 (13:14)	11/06 (05:41)	13	16.6	1169	9.171	0.190	3.160	6.011
13	11/29 (16:54)	11/30 (03:38)	17	19.4	645	22.959	0.651	12.652	10.307
14	12/03 (00:00)	12/03 (07:40)	6	9.7	461	7.244	0.271	2.638	4.606
16	12/13 (01:02)	12/13 (15:00)	23	30.6	839	18.537	0.170	5.405	13.133

4. 降水中全窒素負荷量の推定とその考察

4.1 レインアウト全窒素含有量と降雨パターンとの関係

上述のように、レインアウト含有全窒素は、雨滴の生成時、すなわち雲粒生成の起源としての凝結核中に最初から含まれていたり、雲内部での微水滴成長過程で取り込まれる全窒素成分と解釈される。このため、レインアウト含有全窒素量の降水ごとの違いには、雲粒の発起源や場所の違いが大きく関与しているはずである。表-1に示した各降水イベントに対応する降水発生パターンを天気図などの気象資料を基に調べ、各パターン分類ごとの平均レインアウト濃度を算出した結果を表-2に示す。「局地的上昇気流による豪雨」は夏期の夕立に対応したデータであり、「台風」とともに1ケースしか降水イベントが観測できていないため、考察を差し控える。「海上発生の低気圧および前線」とは、主に秋雨前線やそれに伴う低気圧の活動により発生した降水イベントの集合であり、雨滴の生成・発達が太平洋上で行われることにより、レインアウト時の全窒素含有量が微小になっていると考えられる。一方、「大陸由来の低気圧」は、移動性の低気圧により発生した降水イベントのグループである。ここに分類される全ての降水イベントの起源は中国大陆であり、そこでの大気汚染の影響を受け、高いレインアウト全窒素濃度を示す結果になっている。

4.2 降水中全窒素含有量に関するモデルの適用性

図-6は、飛騨川最上流青屋川流域、長良川支川吉田川流域および岐阜大学キャンパス内における、1ヶ月の単位面積あたりの積算降水中全窒素量に関する観測結果と上述のモデルによる推定結果との比較を示す。全窒素量

表-2 降水発生パターンとレインアウト含有全窒素量との関係

分類	C_{R-RO} (mg/L)	観測降雨数	No.
局地的上昇気流による豪雨	0.807	1	2
台風	0.067	1	5
海上発生の低気圧および前線	0.034	5	4, 6, 7, 8, 9
大陸由来の低気圧	0.323	4	11, 13, 14, 16

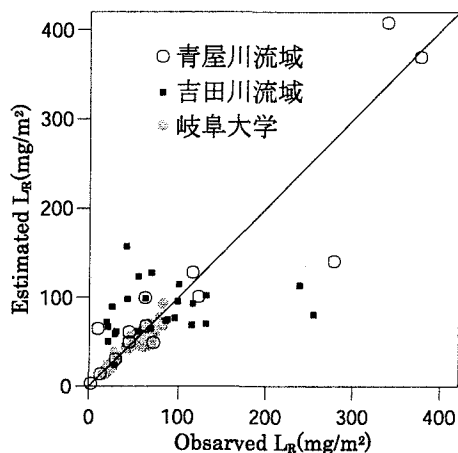


図-6 降水により1ヶ月間・単位面積あたりに供給される全窒素量の観測結果とモデルによる推定結果との比較

L_R の推定では、気象資料から観測対象降水の降水発生パターンを表-2に従って分類し、レインアウト全窒素濃度を表-2に示す平均値として与えることにした。また、降水中全窒素量からレインアウト全窒素量を減じて算出されるウォッシュアウト全窒素量を観測結果として、式(1)および式(2)に適用して、その推定値を算出している。図-6では、全窒素量が大きなケースにおいて若干過小評価となるプロットが見られるが、全体的にはたいへん良好な対応関係が確認できる。このことから、大気・雨水中全窒素動態モデルは、一ヶ月単位や季節ごとなどの比較的長期の時間スケールで大気中全窒素濃度や陸面へ供給される全窒素量の評価を行う場合に良好な推定精度を有すると判断できる。

4.3 降水供給による年間全窒素総量に関する検討

降水量は年ごとや季節によって大きく異なる。大気中全窒素は降水により大きく除去されるため、降水量の違いは降水供給全窒素総量にも影響するといえる。また、窒素酸化物の発生源から近距離にある都市域と遠距離である山地森林域では、大気中全窒素濃度に大きな違いがあると考えられ、観測地点ごとの供給量の変化に関わってくるといえる。数ヶ月から年単位の降水によって陸面へ供給される全窒素総量を把握するためには、長期間しかもできるだけ多地点で連続的なデータを取得する必要がある。しかし、降水サンプルの交換頻度を高く維持しながら山地森林域へ日常的にアクセスすることは大変な労力が必要であり、実際問題として不可能に近い。そこで、数ヶ月間の観測結果より推定された大気・降水中全窒素予測モデルにおけるパラメータを実際に観測を実施していない期間にも適用することにより、年間の大気中全窒素濃度 N_A を推定し、数ヶ月から年単位の降水供給全窒素総量を算出してみた。

図-7は、岐阜大学キャンパス内での大気中全窒素濃度 N_A および降水中全窒素負荷量 L_R の推定結果を示したものであり、大気データとの比較として、観測地点から東南東2.7kmに位置する岐阜市北部大気観測局での窒素酸化物濃度も併記してある。短期的な大気中全窒素濃度の増減は別として、長期的な大気中全窒素濃度のトレンドは良好に再現されていると判断できる。

こうした方法により、観測地点ごとの長期的な降水供給全窒素量を月積算として示したものが図-8である。この図では、1998年～2001年の飛騨川最上流青屋川流域(測点P.45: 青屋)、長良川支川吉田川流域(測点P.1: めいほうスキーセンター)および岐阜大学キャンパスにおける大気中全窒素濃度の推定結果 N_A 、その推定値を1ヶ月平均した値 $\overline{N}_A$ 、1ヶ月間の積算供給全窒素量の推定値 $\overline{N}_R$ 、降水中全窒素濃度 C_{TN-R} の観測結果および自記式雨量計による時間降水量 R を示している。大気中全窒素濃度 $\overline{N}_A$ は、例年どの地点においても冬季は高い傾向を示している。陸面への積算供給全窒素負荷量 $\overline{N}_R$ については、各年、年間を通じてそれほど季節的な変化は見られない

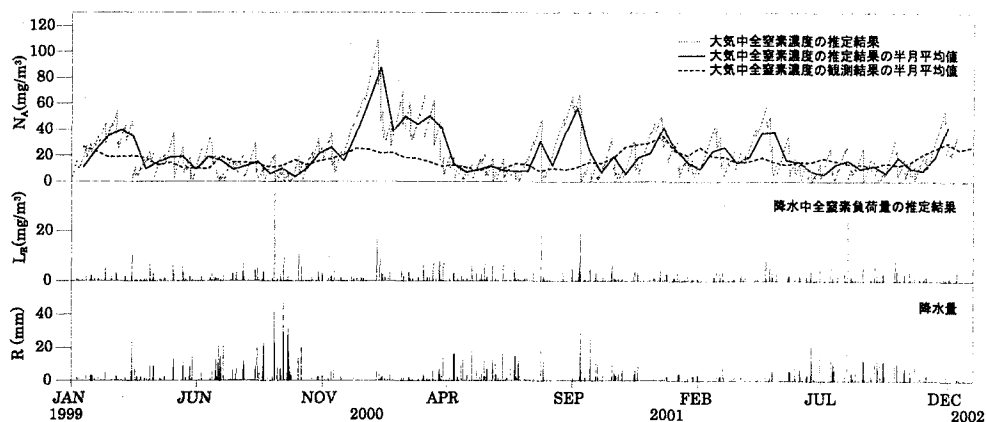


図-7 大気中全窒素濃度 N_A と降水中全窒素負荷量 L_R に関する長期間推定結果

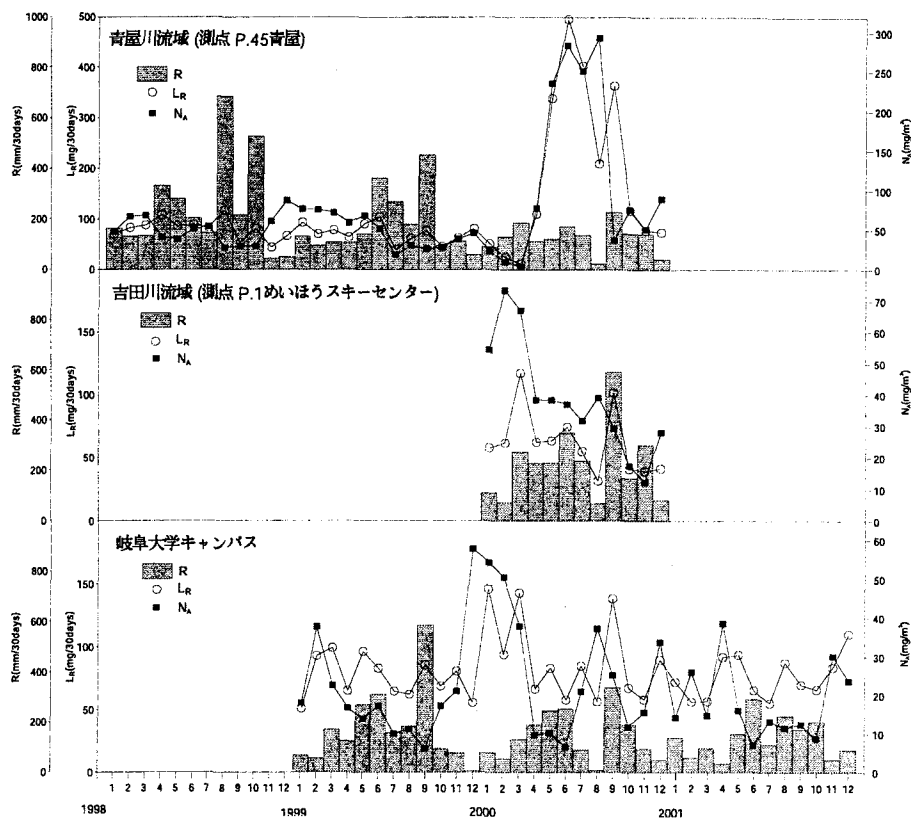


図-8 各観測地点における月積算降水量 R の実測結果と月平均大気中全窒素濃度 $\bar{N}_A$ および月積算降水供給全窒素量 $\bar{L}_R$ の推定結果

が、2000 年に関しては全地点とも大きな変化が見られる。これは、例年と比べ降水量が少ないことや東海豪雨のような記録的な大雨があったためと推測される。また、陸面への窒素供給量と降水量から、降水の少ない傾向のある冬季には高濃度の、また多い傾向のある夏季から秋季にかけては低濃度の雨が降っていると考えられる。

図-7を年単位で積分し、多年にわたる平均値を算出することにより、降水によって陸面に供給される年間の単位面積当たり全窒素供給量を推定した結果を表-3 に示す。また、比較のために、梅本⁹⁾が兵庫県で観測した結果を併せて表記する。これより、本研究で提案する方法により得られた年推定値はほぼ妥当なオーダの数値を示すばかりでなく、これまで全く明らかにされてきていなかったレインアウトとウォッシュアウトそれぞれの負荷量を示すことができていると思われる。また、名古屋などの大都市域から約 200km 離れた青屋川流域でも、岐阜市内に位置する岐阜大学キャンパスの値と大差はなく、大気の移動スケールの大きさから見れば、高々数 100km 程度の流域スケールでは、局所的な違いは生じることはあっても、地域的には大気から陸域への全窒素供給量に大きな相違は表れないと考えられる。

表-3 降水により供給される単位面積当たりの年間全窒素負荷量 (t/km²/y)

著者らの研究	R(mm/y)	L_{R-WO}	L_{R-RO}	L_R	梅本ら ⁹⁾ の研究	L_R
岐阜県山間部 1998 年	2914.55	0.97	0.17	1.14	生野 (山地森林域)1996 年	0.83
岐阜県山間部 1999 年	2114.59	0.87	0.10	0.96	生野 (山地森林域)1997 年	1.30
岐阜県山間部 2000 年	2723.02	0.75	0.13	0.88	生野 (山地森林域)1998 年	0.67
					生野 (山地森林域)1999 年	0.94
平均	2584.05	0.86	0.13	0.99	平均	0.93
岐阜県平野部 1999 年	2116.97	0.91	0.13	1.04	神戸市 (都市域) 1996 年	0.89
岐阜県平野部 2000 年	1736.38	1.09	0.22	1.31	神戸市 (都市域) 1997 年	1.00
岐阜県平野部 2001 年	1633.66	0.91	0.18	1.09	神戸市 (都市域) 1998 年	2.50
					神戸市 (都市域) 1998 年	2.50
平均	1829.00	0.97	0.18	1.15	平均	1.50

5. 結語

以上、本研究では、降水をもたらし雲の生成過程で取り込まれるレインアウト全窒素と大気中での雨滴落下に伴い取り込まれるウォッシュアウト全窒素の両者を現地観測および数値モデル解析から検討し、降水により陸面に供給される全窒素量の推定を試みた。この研究で得られた主要な成果を以下に列挙する。

- 1) レインアウト現象によって雨滴の生成・成長時に雲内部で取り込まれる窒素成分の量とその降雨パターンごとにおける違いについて検討することにより、レインアウト全窒素含有量は季節や雲の生成場所の違いから大きく値が異なることがわかった。
- 2) 降水過程における全窒素量の時間変化式を用いることで、数ヶ月間の観測結果から年間の窒素供給量を推定することが可能となり、山地森林域、都市域における大気・降水中全窒素濃度の相違を評価し、流域への窒素入力現象を把握することができた。
- 3) 山地森林域での年平均全窒素供給量、レインアウト量およびウォッシュアウト量として、それぞれ 0.99, 0.86, 0.13t/km²/y、都市域ではそれぞれ 1.15, 0.97, 0.18t/km²/y という推定結果を得ることができた

最後に、本研究の実施にあたり、国有林内での観測を許可して下さった飛弾森林管理署、私有地内での観測装置設置をご快諾下さった朝日村の地元の皆様、吉田川流域での雨水採取にご協力いただいたいほうスキーセンター、明宝村役場、明宝中学校、明宝小学校、明宝レディース、口明方小学校、八幡小学校、川合小学校の方々、託児保育園アップルの清水博氏、八幡町河鹿井上久雄氏および岐阜市大気観測局での窒素酸化物濃度データを提供して下さった岐阜市衛生部に深謝の意を表す。また、本研究が平成 11～13 年度文部科学省科学研究費補助金・地域連携推進研究 (1) (課題番号 11794029)、平成 11～13 年度文部科学省科学研究費補助金・基盤研究 (B)(2) (課題番号 11490015) および平成 12～13 年度文部科学省科学研究費補助金・基盤研究 (C)(2) (課題番号 80187369) の一部であることを付記し、謝意を表する。

参考文献

- 1) 例えば、環境庁地球環境部：酸性雨-地球環境の行方，中央法規出版，1997，pp. 21-29.
- 2) 片岡正光・竹内浩士：酸性雨と大気汚染，三共出版，1998，pp. 5-9.
- 3) 村野健太郎：酸性雨と酸性霧，裳華房，1993，pp.179.
- 4) 例えば、北田敏廣：酸性物質排出と沈着の予測，身近な地球環境問題－酸性雨を考える－（社団法人日本化学会・酸性雨問題研究会編），コロナ社，1997，pp. 33-44.
- 5) 篠田成郎・都築克紀・山下幸伸・竹下慶・日置琢三・湯浅晶：山地森林域における降水中全窒素負荷量の時間変化特性，第 8 回地球環境シンポジウム論文集，2000，pp. 277-282.
- 6) S. Shinoda, K. Tsuduki, A. Yuasa, Y. Sato and K. Mano: Influence of the vegetation distribution on the mass balance of total nitrogen in a forested mountain watershed, Jour. of Global Environment Eng., Vol. 5, 1999, pp. 127-137.
- 7) 篠田成郎・衣目純・福本圭子・前田敏昭・日置琢三・都築克紀：山地森林流域での全窒素流出過程に及ぼす植生分布の影響評価，京都大学防災研究所年報，No. 44(B-2)，2001，pp. 229-245.
- 8) 篠田成郎・福本圭子・野田幸嗣・亀原裕・湯浅晶・松井康雄：流域環境要因の時系列解析による魚類生態系変化の検討—長良川支川吉田川流域を例として，京都大学防災研究所年報，No. 45(B-2)，2002(印刷中).
- 9) 梅本論・駒井幸雄・井上隆信：都市域，山林域における湿性降下物および全大気降下物による窒素，リンの負荷量，水環境学会誌，Vol. 24，No. 5，2001，pp. 300-307