

42. 関東地方における酸性降下物の分布特性 及びその輸送メカニズムに関する解析

DISTRIBUTION CHARACTERISTICS AND TRANSPORT MECHANISMS OF ACIDIC OXIDE IN THE KANTO REGION OF JAPAN

鈴木 善晴*・長谷部 正彦*・太田 雅人†

Yoshiharu SUZUKI, Masahiko HASEBE, Masato OHTA

ABSTRACT; The value of acidity in Japan vary widely from the seasons. It is considered that acidic oxide in the Kanto region of Japan is mainly caused by the advection from the East-Asia continent in winter. In summer, it may be caused by the advection from Keihin industrial zone in the southern Kanto region. The present study conducted some investigations, based on station observation datasets, into the characteristics of the spatiotemporal distribution of acidic oxide in the Kanto region. The transport mechanisms of acidic oxide in each season also was investigated through a trajectory analysis. The acidity of precipitation tends to be higher as a whole in summer than in winter in the Kanto region, while the concentration of acid ion increases in winter in a part of the northern Kanto region. The results of the trajectory analysis showed that the source area of sulfur dioxide carried to the Kanto region in winter was likely to be the northern part of China.

KEYWORDS; acidic oxide, acid rain, sulfur dioxide, trajectory analysis, transport mechanism

1. はじめに

1980年代後半から1990年代において、欧米を中心とした大きな環境問題のひとつとして酸性雨の問題が挙げられてきた。先進国の位置する欧州、北米においてその影響は大きく、湖沼の酸性化による魚類の死滅、森林の枯死など、多くの被害が報告された。酸性雨による森林への影響に関しては、ドイツのシュバルツバルト（黒い森）の被害に代表されるように、特にヨーロッパにおいて非常に深刻な問題となっており、北米や中国においても大規模な被害が報告されている¹⁾。

これまで日本においても降水の酸性化が確認されてきたものの、生態系などへの影響は明確に表れてはいない。そして、今日では環境対策も進み、酸性雨の主要な原因物質である硫黄化合物と窒素化合物に関して、日本における排出が大幅に抑制され、酸性雨問題は、問題が顕著だった十数年前と比べ、収束した問題となっている。しかしながら、日本で全く酸性雨が降っていないわけではなく、地域によっては、未だに pH4 程度の酸性雨が観測されている。さらに、近年急速な工業化が進む中国では、年々大量の硫黄化合物が排出されており、大気の流れによって日本へ到達することで、今後、日本における環境酸性化が促進される可能性が考えられる。

そこで本研究では、酸性雨を含む酸性降下物全般に着目し、降水の酸性度や降水中の酸性物質濃度、大気中における酸性雨前駆物質濃度など、大気環境酸性化の要因となる酸性物質の時間的及び空間的な分布特性を明らかにする。また、主要発生源からの酸性物質の放出、移流拡散及び沈着過程に関して、トラジェクトリー解析による検討を行う。

2. 酸性物質が沈着するまでのプロセス

人為的な酸性降下物の発生は、主に石油や石炭を燃焼することで始まる。燃焼に伴って、二酸化硫黄及び窒素酸化物などの物質が大気中に放出される。これらは酸性物質ではないが、気流によって輸送されるとき、光化学反応などの化学過程により硫酸や硝酸に変化し、大気中に酸性物質として存在することになる。これらの酸性物

* 宇都宮大学工学部建設学科 Department of Architecture and Civil Engineering, Utsunomiya University

† 酒田市役所（山形県） Sakata City (Yamagata Prefecture)

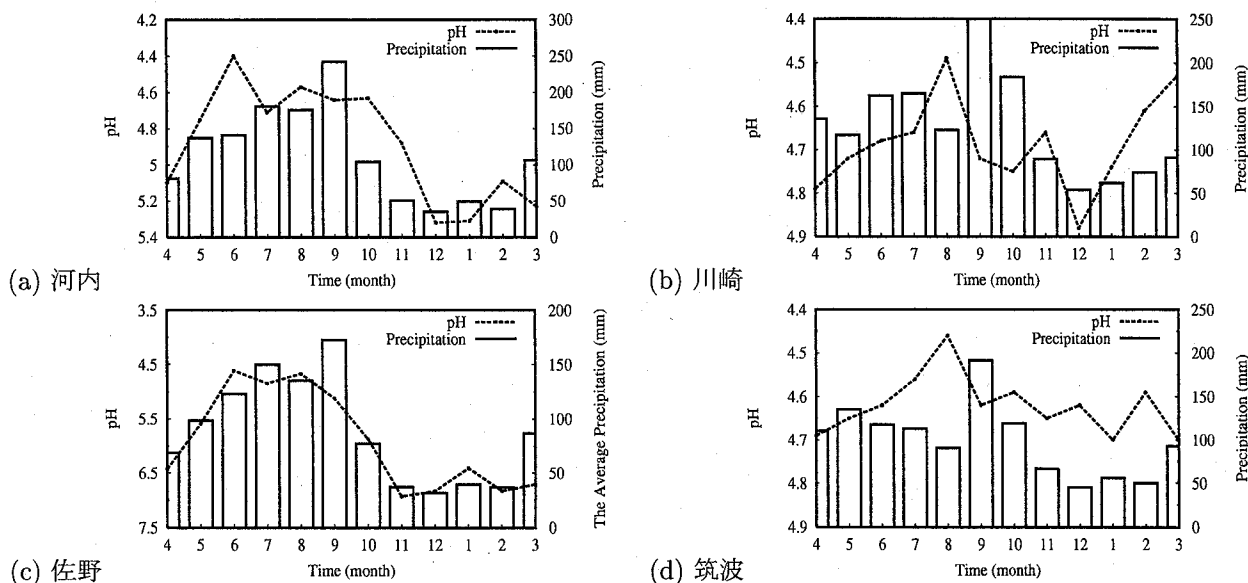


図-1 河内、川崎、佐野、筑波における降水量及び pH の月別平均

質は、大気中に数日間滞留し、最終的に地上に沈着することによって、生活環境を含む生態系を酸性化する。その結果、森林や土壌、湖沼、器物及び建造物などに種々の影響を与える。この「発生」、「放出」から「沈着」、「影響」に至るまでの一連の過程が酸性降下物の現象である。

大気中で生成された硫酸や硝酸は、それぞれ大気中ではそれぞれ微粒子やガスの形で存在しているが、これらの物質が地上に沈着するときの経路は、二つに分類される。一つは、雨や雪、霧などに溶け込んだ状態で地上に到達する湿性沈着である。湿性沈着では、大気中の酸性物質が雲に取り込まれたり（rainout）、降雨の際に雨滴などに取り込まれる（washout）ことによって、最終的に地上に到達する。一般に言われている酸性雨とは、この湿性沈着の代表的なものである。もう一つは、雲や雨などに吸収されずにそのまま落下してくる乾性沈着である。乾性沈着では、大気中でガス状物質は吸着・吸収、粒子状物質は拡散・慣性衝突・重力落下することにより地上に到達する。地表付近の微気象、沈着物質の性質、沈着表面の性質など多くの因子に左右されるため、現象としては湿性沈着よりも複雑であるが、水に取り込まれれば、湿性沈着と同様の影響を与えると考えられる。

3. 分布特性に関するデータ解析

3.1 解析データ

酸性降下物に関して、地表面への沈着過程は湿性沈着と乾性沈着の大きく2つに分別される。本研究では、湿性・乾性両沈着に関して観測値を用いた時系列解析を行い、各要素の地理的・領域的な変動特性を考察する。湿性沈着においては、栃木県酸性降下物量調査²⁾及び環境省酸性雨対策調査³⁾より、降水量や降水 pH、イオン濃度などの月平均実測値データを、乾性沈着においては、国立環境研究所データファイル⁴⁾より、大気中汚染物質濃度及び風向・風速などの時間値データを用いている。解析対象領域は主に栃木県を中心とした関東地方であるが、太平洋側と日本海側での相違を検討するため、日本海側の観測地点として新潟を選定した。

3.2 湿性沈着分野に関する解析

関東地方における湿性沈着の分布特性に関して解析を行う。湿性・乾性両沈着に関する解析対象領域は主に関東地方とし、観測地点は、栃木県からは日光、河内、小山、佐野の4地点、栃木県外からは、筑波、鹿島、川崎を選定した。また、関東地方における解析結果との比較対象として、日本海側の観測地点から新潟を選定した。

解析に用いる観測データは、環境省酸性雨対策調査、栃木県酸性降下物量調査によるものであり、解析対象とした観測期間は、環境省酸性雨対策調査が1998年4月～2003年3月、栃木県酸性降下物量調査が1994年4月～2003年3月である。また、観測値は月単位での平均値となっている。

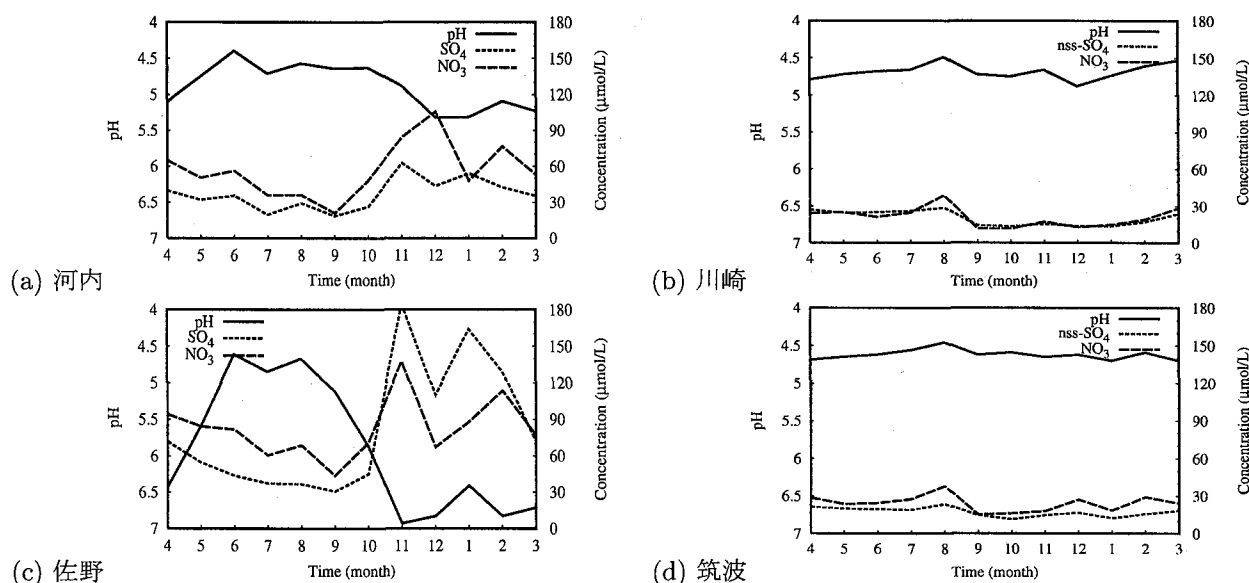


図-2 河内、川崎、佐野、筑波における硫酸イオン濃度及び硝酸イオン濃度と pH の月別平均

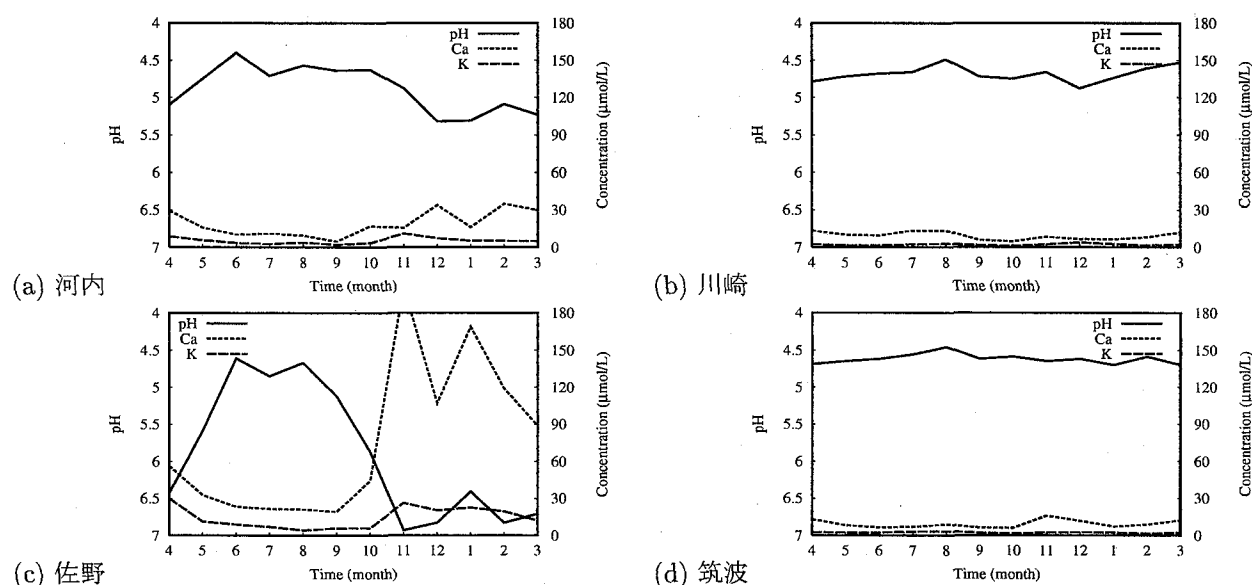


図-3 河内、川崎、佐野、筑波におけるカルシウムイオン濃度及びカリウムイオン濃度と pH の月別平均

図-1 に、河内、川崎、佐野、筑波における降水 pH と降水量の月別平均を示す。これより、pH と降水量の変動に明確な周期性が見られ、夏季多雨及び冬季少雨の変動に伴うようにして、pH は夏季は低く冬季は高くなる傾向を示している。このことから、夏季の降水ほど酸性度が高いと考えられた。

図-2 に上記 4 地点における硫酸イオン (SO_4^{2-})・硝酸イオン (NO_3^-) 濃度と pH の月別平均を示す。図-2 より、川崎・筑波では SO_4^{2-} 、 NO_3^- 濃度及び pH の変動に目立つ特性は見られないが、河内・佐野においては両イオン濃度と pH の変動周期が逆になっている傾向が見られる。降水中の SO_4^{2-} 及び NO_3^- が高濃度になれば当然酸性度は上昇するため、河内において、本来なら両イオン濃度が高まっている秋季から冬季にかけて pH は低下するはずである。このような傾向は栃木県内の他の観測地点でも見られ、原因として、降水酸性化を抑制するアルカリ性イオン濃度が上昇したためと考えられた。そこで、図-3 にカルシウムイオン (Ca^{2+})・カリウムイオン (K^+) 濃度と pH の月別平均を示す。 Ca^{2+} 及び K^+ は降水中の主要アルカリ性イオンである。図-3 より、川崎・筑波では両イオン濃度に大きな変動はなく 1 年を通して低濃度であるが、河内・佐野においては、冬季に Ca^{2+} 濃度が上昇し、それに伴って降水酸性度が低下していることが確認できる。このことから、栃木県内において冬季に Ca^{2+} 濃度が上昇し、降水の中和化が生じていると考えられた。

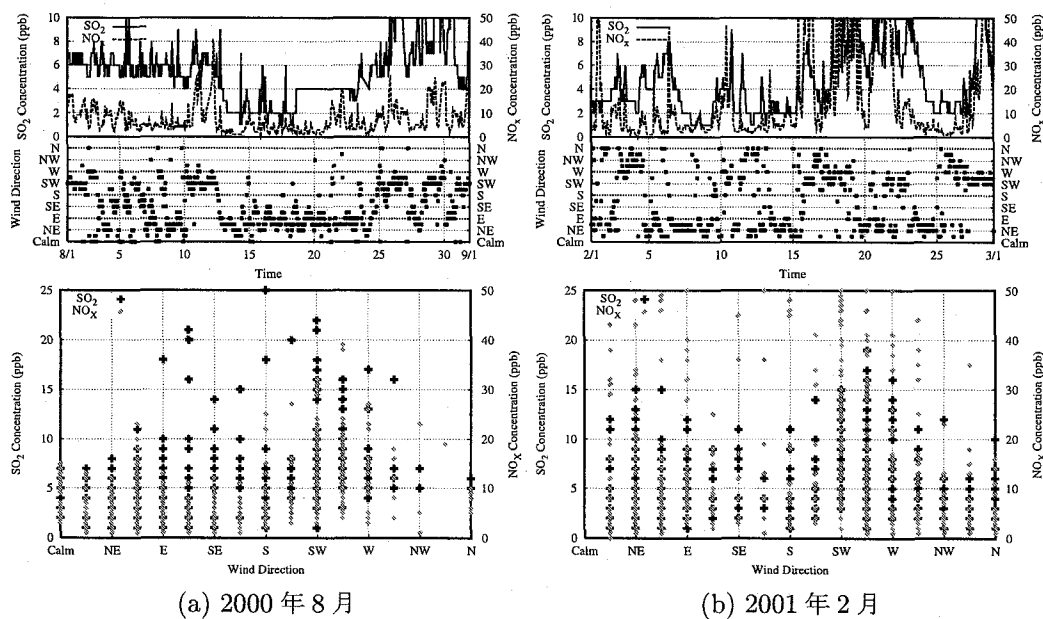


図-4 筑波における二酸化硫黄・窒素酸化物の大気中濃度と風向の変動

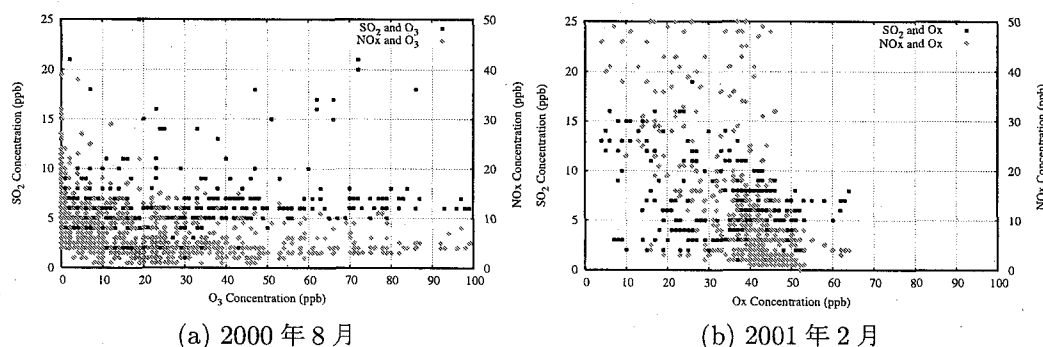


図-5 筑波における二酸化硫黄・窒素酸化物濃度とオゾン・光化学オキシダント濃度との関係

3.3 乾性沈着分野に関する解析

酸性雨の主要前駆物質である二酸化硫黄 (SO_2) 及び窒素酸化物 (NO_x) に関して、大気中濃度及び風向データを用いた時系列解析を行う。解析に用いる観測データは、大気環境時間値データファイルによるものであり、解析対象とした観測期間は2000年4月1日～2001年3月31日である。ここで、湿性沈着に関するデータ（環境省酸性雨対策調査及び栃木県酸性降下物量調査）は月単位での平均値であったが、乾性沈着に関するデータにおいては1時間単位での観測となっている。

図-4に、2000年8月及び2001年2月の筑波における二酸化硫黄・窒素酸化物の大気中濃度と風向との変動関係を示す。この図より、両物質に関して、8月と比べて2月の方が高い濃度を示していることが確認できる。さらに、1年を通した関係を見ても、全体的に夏季よりも冬季にやや高濃度を示す傾向が見られた。また、風向に着目すると、主に南西の風向のときに濃度が上昇する傾向が見られる。これに関しては、筑波の南西には東京などの都市域が位置しており、川崎などでは1年を通して SO_2 及び NO_x が高濃度を示していることから、この地域が酸性物質の主要発生源となっており、北東方向への移流によって酸性物質が輸送されている可能性が高いと考えられた。

ここで、 SO_2 及び NO_x が夏季と比較して冬季に高濃度を示す傾向が見られたことに関連して、両物質と大気中で酸化反応を起こすオゾン (O_3) との比較を行う。

図-5に、2000年8月及び2001年2月の筑波における SO_2 ・ NO_x 濃度と O_3 ・光化学オキシダント (Ox) 濃度との関係を示す。図-5において、8月の散布群は横に平たく下方に位置しているが、2月は散布群が縦に長くなり、さらに左方に移動していることが確認できる。

これはつまり、夏季は SO_2 ・ NO_x 濃度は低く O_3 ・ Ox 濃度は高いが、冬季は逆に SO_2 ・ NO_x 濃度は上昇し O_3 ・

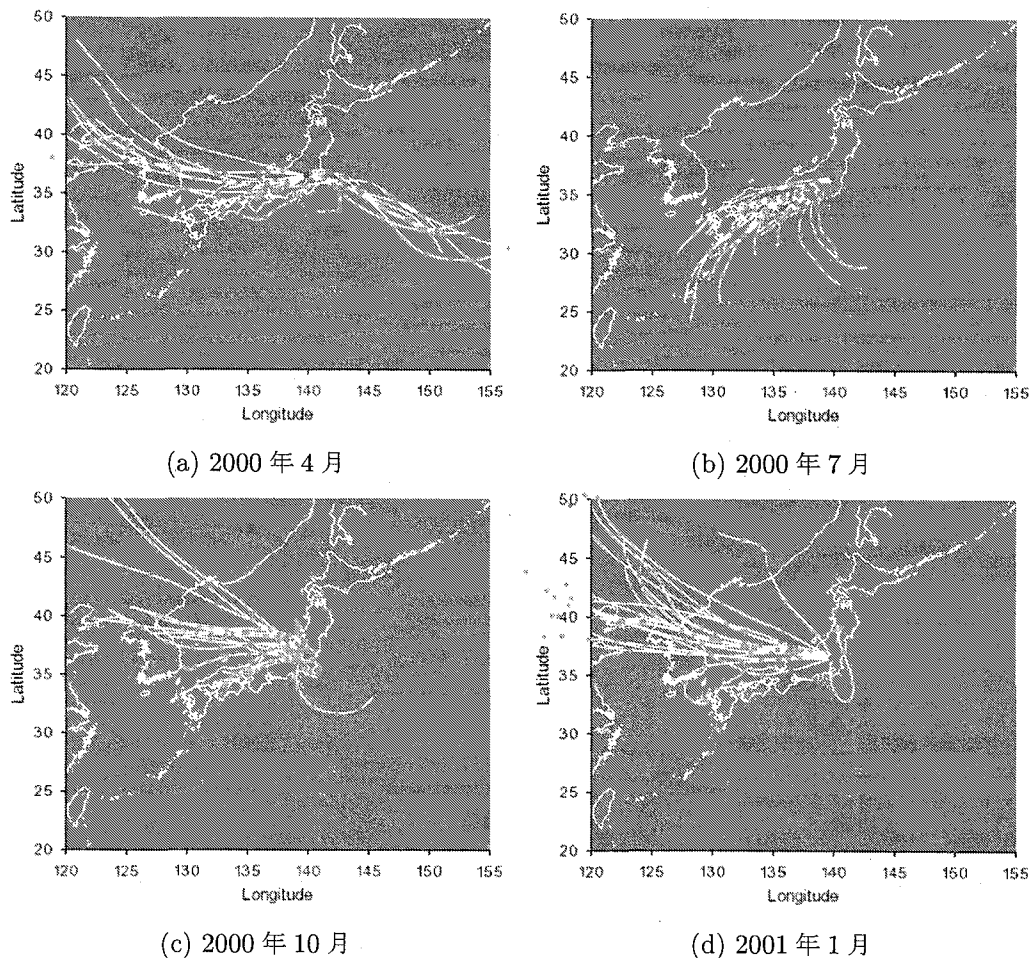


図-6 2000 年 4 月・7 月・10 月及び 2001 年 1 月における宇都宮からの後方トラジェクトリー

O_x 濃度は低下するというを示している。このことから、 $O_3 \cdot O_x$ の生成及び $SO_2 \cdot NO_x$ との酸化反応に関して、活性度に季節による差が生じると考えられる。夏季は $O_3 \cdot O_x$ の生成が活性化することで大気中濃度が上昇し、それによって酸化反応も促進され多くの $SO_2 \cdot NO_x$ が硫酸・硝酸粒子に変化するため、大気中 SO_2 及び NO_x 濃度は低下する。しかし、冬季は $O_3 \cdot O_x$ 生成の活性度が低いため、大気中濃度は夏季と比べて低下し、逆に酸化反応が抑制されることで $SO_2 \cdot NO_x$ 濃度は夏季よりも上昇する。乾性沈着分野における $SO_2 \cdot NO_x$ と $O_3 \cdot O_x$ に関して、このような季節的な関連性が生じていると考えられる。また、夏季に酸化反応の活性化によって大気中の硫酸・硝酸粒子が増加することが、湿性沈着分野における夏季の降水酸性度の上昇に起因していると考えられる。

4. METEX によるトラジェクトリー解析

CGER によって開発された気象データの解析プログラム METEX (Meteorological Data Explorer) を用いて後方トラジェクトリー解析を行う。気象データは、NCEP の $2.5^\circ \times 2.5^\circ$ 全球時間値データを用い、関東地方からは宇都宮、日本海側からは新潟をそれぞれ解析対象地点に選定した。解析期間は 2000 年 4 月～2001 年 3 月とし、各月 10 日 0:00～19 日 12:00 まで、12 時間ごとの算出を行う。

図-6 に、2000 年 4 月、7 月、10 月及び 2001 年 1 月の宇都宮上空 1000m を起点とした 48 時間後方トラジェクトリーを示す。トラジェクトリーの算出時間は 48 時間であり、例えば、2000 年 4 月 15 日 AM12:00 の宇都宮上空 1000m を起点とした算出においては、トラジェクトリーは 4 月 13 日 AM12:00 まで遡って算出されることになる。

年間のトラジェクトリーを算出した結果、宇都宮に到達するトラジェクトリーは表-1 に示すように季節によって大きく 3 通りに分類された。また、新潟においても同様の移流パターンが確認されている。ここで、夏季に着目すると、表-1 より大気は主に南方向から移流する傾向にある。また、乾性沈着分野に関する解析より、川崎で

表-1 トラジェクトリー解析から得られた宇都宮に到達する移流の月ごとの移流方向

4月	5月	6月	7月	8月	9月		
Ⅲ型			Ⅰ型				
10月	11月	12月	1月	2月	3月		
Ⅱ型							

Ⅰ型	主に南方向からの移流パターン
Ⅱ型	主に西方向からの移流パターン
Ⅲ型	Ⅰ・Ⅱ型以外の移流パターン

は年間を通して大気中 $\text{SO}_2 \cdot \text{NO}_x$ 濃度が高く、筑波では風向が南西方向のときに高濃度を示す傾向にあることから、東京都市域が酸性雨前駆物質の主要発生源となっており、夏季の北東方向への移流によって北関東へ輸送され、降水酸性化に影響を及ぼしていると考えられた。

また、主に西方向からの移流パターンにある冬季に関しては、中国からの酸性物質の長距離輸送が予想される。この移流パターンに関しては、夏季と比べてトラジェクトリーが長く、それだけ風速が大きいことを意味している。したがって、物質が輸送される距離も長くなるため、中国から放出された酸性物質が、日本海を越えて日本へ到達することが可能となる。ここで、日本からのトラジェクトリーが到達している領域と SO_2 の排出が著しい地域を検討すると、主に北京、天津、河北、遼寧、山東という5つの行政区が位置する領域が当てはまり、この領域が主要な発生源であると推測された。

5. まとめ

本研究では、関東地方における酸性降下物に関して、データ解析及びトラジェクトリー解析により時空間分布特性とそのメカニズムの検討を行った。湿性沈着に関して、全体的に関東地方では夏季に降水酸性度が高く冬季に低いという傾向が見られ、冬季と比べて降水量の多い夏季は、降水酸性化による土壌や生態系へ及ぼす影響がより大きいと考えられた。降水中的酸性・アルカリ性イオン濃度に関して、栃木県内においては冬季に降水酸性度は大幅に低下しているが、酸性イオン濃度は上昇しており、降水酸性度と酸性イオン濃度の間に反比例関係が見られた。この原因としては、酸性化を抑制するアルカリ性イオンも冬季に濃度が高まっているため、酸性イオン濃度の上昇との相殺以上に降水の中和化が進んだものと見られた。

乾性沈着に関して、大気中 SO_2 濃度の変動を見ると、川崎では年間を通じて高い数値を示していることが示され、 SO_2 濃度の変動と風向との関係より、川崎を含む東京都市域を発生源とした SO_2 が、風に乗って輸送されることで北関東に到達していると推測された。また、大気中 NO_x 濃度に関して、冬季に濃度が上昇する傾向が見られた。これは大気中のオゾンとの酸化反応が関連していると考えられ、夏季は酸化反応によって大気中の硫酸・硝酸粒子が増加し、結果的として湿性分野における夏季の降水酸性度の上昇につながったと考えられる。

また、冬季における中国からの酸性物質の長距離輸送に関して、トラジェクトリー解析の結果からその発生源が推定された。日本からのトラジェクトリーが到達している領域と SO_2 の排出が著しい地域を検討したところ、主に北京、天津、河北、遼寧、山東という5つの行政区が主要な発生源であると考えられる。

今後はさらに輸送・拡散モデルを用いた数値シミュレーションにより、中国からの酸性物質がどのような経路を通過してどの程度関東地方まで到達しているのかについて解析を行う予定である。

参考文献

- 1) 「酸性雨」編集委員会：酸性雨－複合作用と生態系に与える影響－，博友社，pp.18-26，pp.51-69，1996。
- 2) 栃木県大気環境部：酸性降下物量調査結果，1999～2002年度。
- 3) 財団法人 日本環境衛生センター，酸性雨研究センター：環境省酸性雨対策調査総合とりまとめデータ，2004。
- 4) 財団法人 環境情報普及センター：環境データベースファイル，1999年度～2003年度。