

東京都内における湿性沈着の経年変化

苗村晶彦*, 渡邊善之**, 吉川尚志*

Long term trend in the chemical composition of wet deposition in Metropolitan Tokyo. NAEMURA Akihiko*, WATANABE Yoshinobu** & YOSHIKAWA Shoji* (*Department of General Studies and Liberal Arts, Toita Women's College, 2-21-17 Shiba, Minato-ku, Tokyo, 105-0014 Japan ; **Soso Regional Development Bureau, Fukushima Prefecture, 1-30 Nishikichou, Haramachi-ku, Minamisouma-shi, Fukushima, 975-0031 Japan)

The long term trend in chemical composition of precipitation was examined in three different areas of metropolitan Tokyo from 1992 to 2005. As a result, it was discovered that the NO_3^- quantity was 26.3 meq/m² in the coastal area, 32.6 meq/m² in the hilly area, and 31.0 meq/m² in the mountainous area. The equivalent ratio of non sea-salt sulfate to nitrate in the precipitation was higher in the mountainous area than in the coastal area due to NO_3^- that was transported from the coastal area.

Keywords

acid rain, N/S ratio, long term trend, precipitation, wet deposition

酸性雨, N/S 比, 経年変化, 降水, 湿性沈着

1 はじめに

降水には, さまざまな微量物質が溶け込んでいる。その中には酸性物質も含まれ, 「酸性雨」という環境問題に発展することもある。酸性雨は「雨が酸性になる」と広く知られているが, 辞書には「大気汚染物質の窒素酸化物や硫黄酸化物が溶け込んで降る酸性の雨。水素イオン濃度指数 (pH) が 5.6 以下。土壌・森林・湖沼などに被害を与える。」と記載されている。pH は,

$$\text{pH} = -\log [\text{H}^+]$$

で表記され, 水素イオンの濃度を示す。しかしながら, pH をもとに議論をすると本来の問題の核心を外すことになる。なぜならば, pH は酸と塩基のバランスで成り立っているため, 酸が多くても中和する塩基が多けれ

ば, 水素イオン濃度は低くなるからである。

酸性物質が地上に降下する過程は, 雨, 霧などに溶け込み降水として降下する場合 (湿性沈着) と, 微粒子またはガスとして降下する場合 (乾性沈着) があり, 両者を総称して酸性沈着と呼んでいる。それらの影響は, 大気から地上へ降下した酸性物質の量によって決まるので, 雨の場合ならば, 強い酸性の雨が少し降るよりも, それほど酸性が強くない雨が長く降ったときの方が沈着する酸性物質の量が地上に多くなることもある¹⁾。

関東地方およびその周辺の 25 箇所の観測結果から, 関東地方では窒素の沈着量はその周辺の 1.7 倍に達している²⁾。また, 関東地方の広域 (千曲川の源流域の大弛峠から, 関東山地の南東端の八王子城址まで) の窒素沈着の調査では, 東京の八王子城址で最も高く, 年間の窒素フラックスとしての 34.2 kg/ha と算定された³⁾。しかしながら, こうした調査は限られた期間においての調査であり, 大気からの沈着量の経年変化を把握することは重要である。

そこで, 本研究では, 東京都内の降水による湿性

* 〒 105-0014 東京都港区芝 2-21-17 戸板女子短期大学総合教養センター, E-mail: naemura@toita.ac.jp

** 〒 975-0031 福島県南相馬市原町区錦町 1-30 福島県相双地方振興局



図1 調査地

沈着の経年変化に焦点を当てることを目的とした。そのため、東京都が公表しているデータに着目し⁴⁾、1992年から2005年までの東京都内の沿岸地域、丘陵地域および山間地域における降水中の酸性沈着として重要な物質である NO_3^- や SO_4^{2-} について、経年変化の状況を解析した。

2 調査地およびデータと方法

東京都における降水採取地点は沿岸地域として江東、丘陵地域として多摩、山間地域として檜原を選定した(図1)。具体的な採取地点は、江東は東京都江東区新砂の東京都環境科学研究所6階屋上、多摩は東京都多摩市愛宕の愛宕神社参道側市有地

(多摩一般環境大気測定局)、檜原は東京都西多摩郡檜原村の檜原一般環境大気測定局である²⁾。

データの試料採取法は、降雨時に降り始めから0.5 mm毎に一定量を採取し、その雨を貯留し、月1回収したものをおいている。 NO_3^- と SO_4^{2-} の分析方法はイオンクロマトグラフ法、pHはガラス複合電極法、 Na^+ は原子吸光法で分析している⁴⁾。

3 結果と考察

3・1 江東、多摩および檜原における降水量の結果

東京都が公表しているデータにおいて1992年から2005年までの14年間の年間降水量の結果を図2に

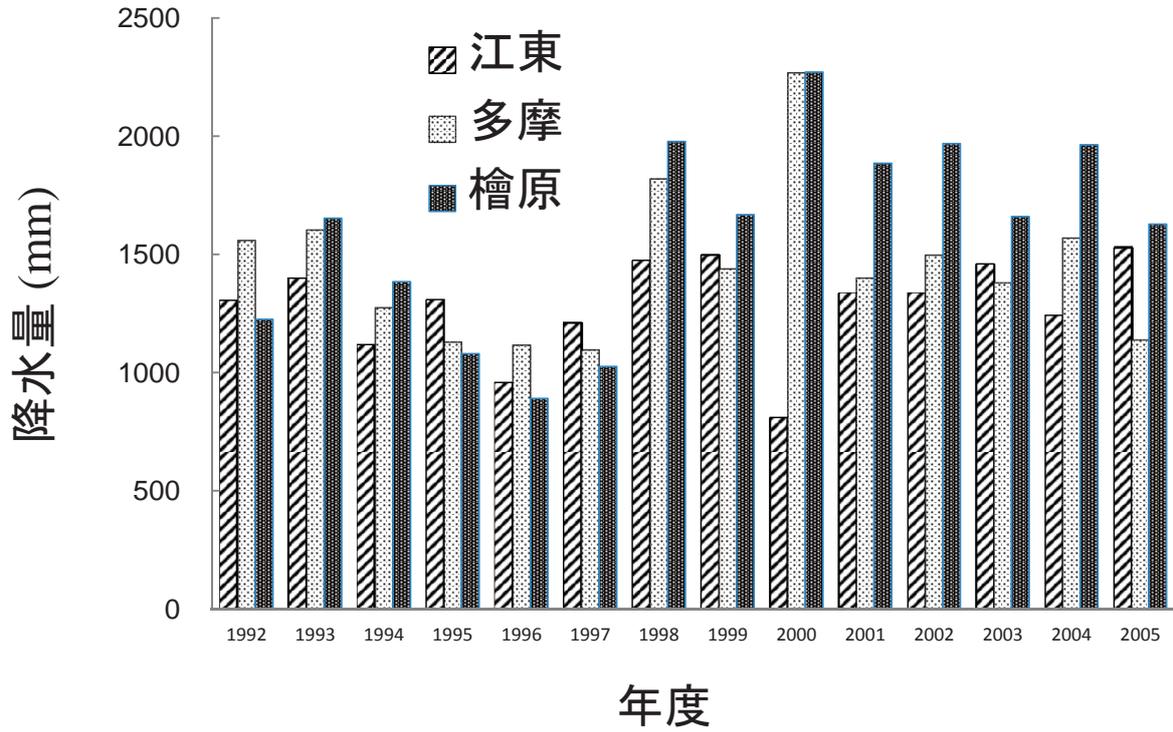


図2 江東，多摩および檜原における年間の降水量（東京都環境科学研究所(2007)）

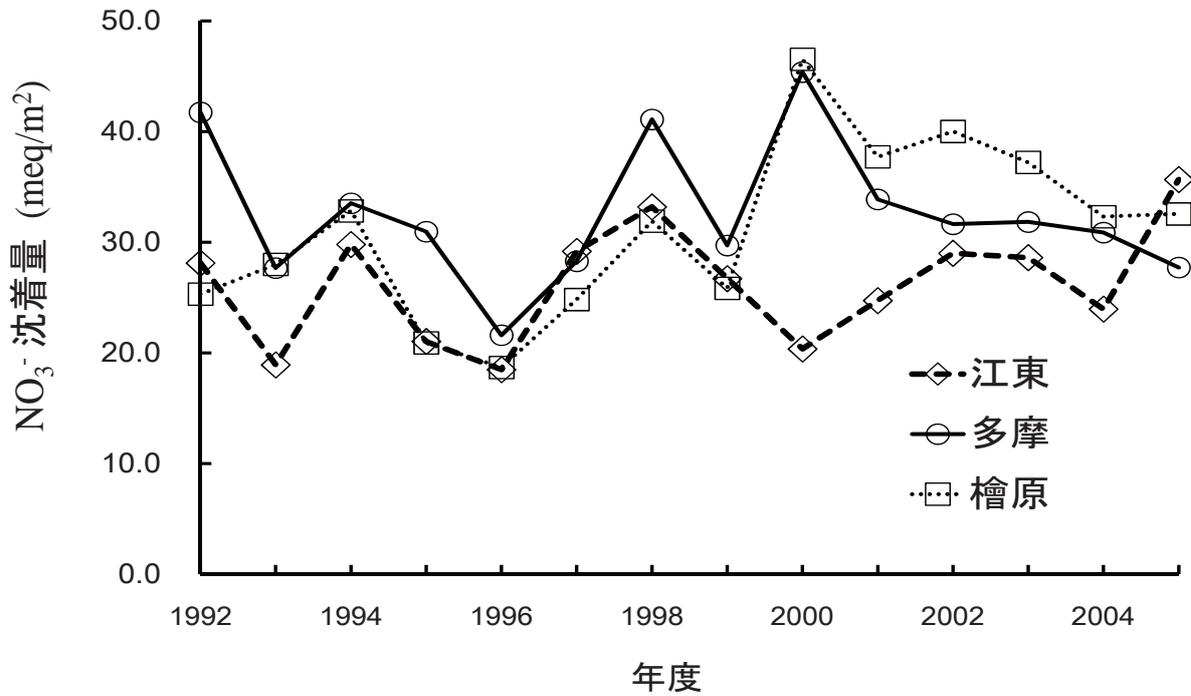


図3 江東，多摩および檜原における降水中のNO₃⁻沈着量

示した。14年間の平均値は江東，多摩，檜原においてそれぞれ1281 mm，1449 mm，1592 mmとなっている。江東において最も少なかった年は2000年の809 mm，最も多かった年は2005年で1525 mmとなっている。多摩において最も少なかった年は1997年の1096 mm，最も多かった年は2000年で2269 mmとなっている。檜原において最も少なかった年は1996年の891 mm，最も多かった年は2000年で2272 mmとなっている。特徴的なのは2000年における降水量で江東では最も少ない年，多摩および檜原では最も多い年になっていることである。多摩と檜原において2000年に降水量が多いのは，特に9月7～19日の期間に多かったことが原因と考えられ，この期間の奥秩父と多摩丘陵の降水量ではそれぞれ183 mm，573 mmであり多摩丘陵においては記録的な降水量を示している⁵⁾。多摩丘陵における1991年から2000年の10年間で旬あたりの降水量の内 (n=360)，300 mm以上の降水量を記録したのは，1991年9月中旬の451 mm，1999年8月中旬の388 mm，2000年9月中旬の448 mmの3ケースのみであり，2000年9月7～19日の期間の降水量が特異的だったことが示されている⁵⁾。多摩と檜原は多摩丘陵近辺に位置するため2000年における多摩と檜原の降水量が多かったのは上記による影響が考えられる。また，この年の江東は最も少ない年間降水量であり，理由については解析中である。

3・2 東京都内における降水中のNO₃⁻

東京都が公表しているデータをもとに算出した年間あたりの降水中のNO₃⁻の沈着量(1992年から2005年まで)の結果を図3に示した。NO₃⁻の沈着量の14年間の年平均値は，江東で26.3 meq/m²，多摩で32.6 meq/m²，檜原で31.0 meq/m²となり，沿岸地域の江東よりも多摩と檜原で1.2倍高かった。14年間の経年変化の傾向としては，降水量が多かった2000年の多摩や檜原においてNO₃⁻が高かった。多摩や檜原に近い多摩丘陵におけるNO₃⁻については1970年代から2000年までに降水中のNO₃⁻が増加したという報告がある⁶⁾。増加傾向にある理由としては，住宅や土地開発と道路網が整備され自動車が増加し

たことなどに因ると考えられている⁶⁾。2000年代においては，多摩丘陵近郊の狛江における調査において降水中のNO₃⁻は減少している傾向にある⁷⁾。これは，地域規模の前駆物質の排出量が減少していることにより，大気中のNO_x濃度が減少していることが原因であることが指摘されている⁷⁾。

また，年間降水量とNO₃⁻沈着量との関係について，各調査地において図4に示した。各調査地において，年間降水量とNO₃⁻沈着量との間の相関関係は江東，多摩および檜原で，それぞれ0.557，0.783および0.856となり，東京都内では，山間地域では特に，年間降水量が高くなるのと比例してNO₃⁻沈着量が高くなることがわかった。

3・3 非海塩硫酸イオンとN/S比

日本は四方を海に囲まれて，主な大都市や工業地域は沿岸部に位置しているため，人為的起源による沈着量の把握には海洋由来成分を的確に推定し，これから非海洋由来成分の量を算出する必要がある。SO₄²⁻は海水にも含まれており，降水は海塩粒子を取り込むのでこれらのイオンの寄与を海塩以外の寄与と区別する必要がある。この方法はいくつかあるが，モニタリングにおいてはNa⁺をすべて海塩由来であると仮定し，さらにNa⁺とSO₄²⁻との割合は海水飛沫の発生から湿性沈着するまでの間，一定と仮定する。海水のイオン濃度比はよく知られているので，以下のように式を見積もることができる⁸⁾。ここで，([SO₄²⁻]/[Na⁺])_{ss}のssは海洋性(seasalt)，nssは非海洋性(non-seasalt)である。また，イオンの海水濃度比の値は，当量基準で0.121である。

$$\begin{aligned} [\text{nss-SO}_4^{2-}] &= [\text{SO}_4^{2-}] - ([\text{SO}_4^{2-}]/[\text{Na}^+])_{\text{ss}} \times [\text{Na}^+] \\ &= [\text{SO}_4^{2-}] - 0.121 [\text{Na}^+] \end{aligned}$$

SO₄²⁻に対するnss-SO₄²⁻の占める割合は，14年間の加重平均において江東で90.8%，多摩で93.6%，檜原で96.0%となった。

また，人為起源の酸性沈着のNO₃⁻とnss-SO₄²⁻について，どちらが酸性沈着に寄与しているかを調べるために，1992年から2005年までの14年間の降水中のNO₃⁻とnss-SO₄²⁻の当量比(N/S比)を図5に示した。14年間のN/S比の平均値は檜原が最も高

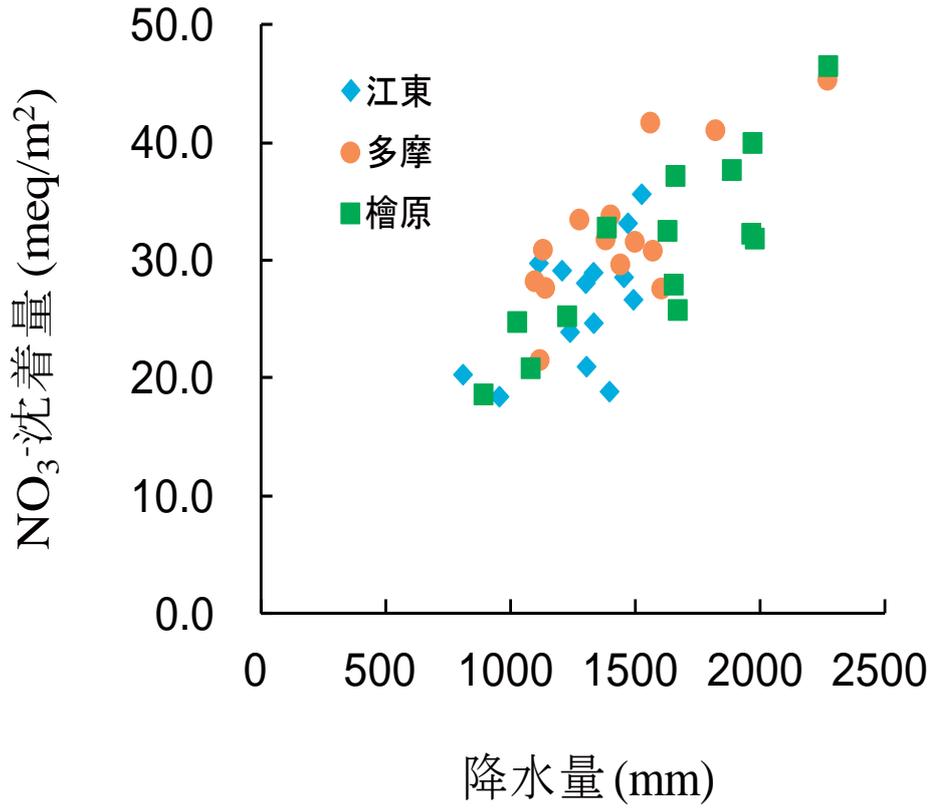


図4 江東，多摩，檜原における年間降水量と NO_3^- 沈着量との関係

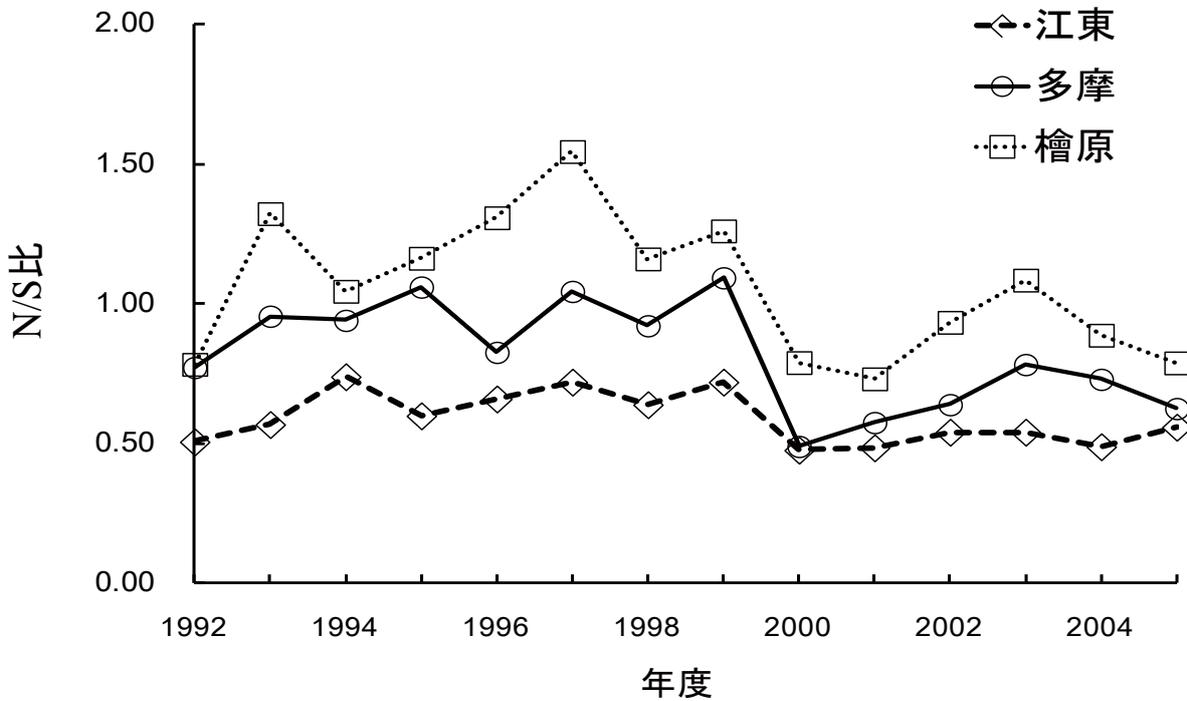


図5 江東，多摩，檜原における降水中のN/S比

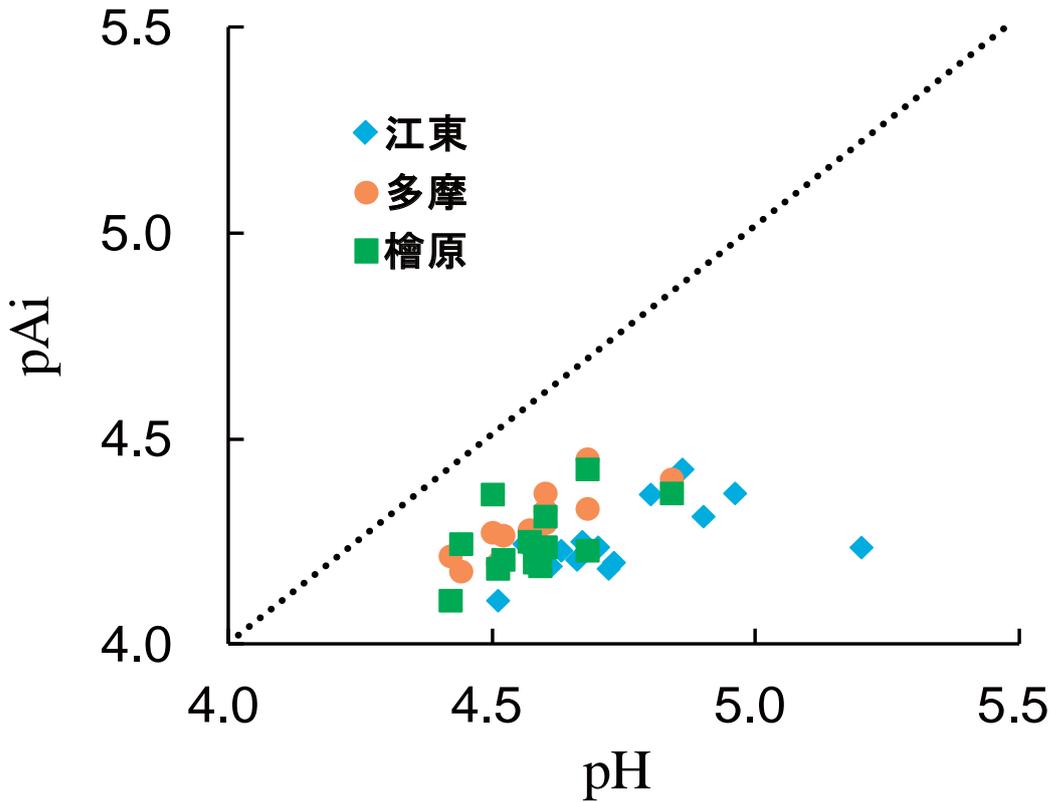


図6 江東，多摩，檜原における降水中の pH と pAi の関係

く1.06となり，次いで多摩が0.82，江東が0.59の順となった．全国平均値は0.35で⁹⁾，首都圏の調査例では0.71となっており¹⁰⁾，今回の結果から相対的に山間地域の檜原の値が特に高いことが示された．山間地域の調査例では，和歌山県田辺市内で0.29という報告例があり¹¹⁾，檜原は移動発生源で生じる硝酸塩由来の物質が多い首都圏の影響を大きく受けることが示された．降水中の酸性沈着は，乾性沈着の影響も大きく影響している場合がある．関東地方においては，高気圧圏下において，東京湾や相模湾と陸地との間で発生する比熱の差および中部山岳地帯に熱的低気圧が形成されることにより，広域的な海風が形成される．この海風は東京湾から浦和，高崎を経て軽井沢まで達する．このため江東を含む沿岸地域で発生した大気汚染物質，特に自動車などの移動発生源の多い首都圏は硝酸塩由来の物質が，海風によって内陸に長距離輸送される¹²⁾．また，同じく高気圧圏下において，中部山岳地帯等で熱的低気圧が形成されることにより，関東圏から福島県海岸域に大気汚染物質が長距離輸送される報告もある¹³⁾．その結果，硝酸塩の降下量は東京や横浜よりも内陸に位置する

深谷や高崎の方が多くなる¹⁴⁾．従って，今回の解析においてもNO₃⁻の降下量が沿岸地域の江東よりも内陸に位置する山間地域の檜原や丘陵地域の多摩のほうが高い為に，N/S比が高くなったと推測される．

なお，多摩において2000年のN/S比が急激に低下しているのは三宅島雄山の噴火の影響が考えられる¹⁵⁾．2000年8月28日午前10時頃から，多摩地域を中心に高濃度のSO₂が観測され，多摩丘陵近辺の八王子市片倉で最高濃度0.935 ppmとなりSO₂濃度が環境基準（1時間値の1日平均値が0.04 ppm以下であり，かつ，1時間値が0.1 ppm以下であることを大幅に越え，局地的に高くなった報告があり¹⁶⁾，多摩で高くなったのはその影響等が考えられる．ただし，それが降水中のSO₄²⁻にどのように反映されているかなど，他地域での動態については今後の検討課題である．

3・4 pH と pAi および降水による森林への影響

pHは，酸とアルカリのバランスで決まるが，酸が多くても中和するアルカリが多ければ，水素イオンは少なくなる．そこで，中和を受けなかったと仮定したとき，

もともとあった酸は、 NO_3^- と nss-SO_4^{2-} の和であり、これを入力酸性度 (Ai) という¹⁷⁾。これに対する、中和を受けた後の酸の濃度は pH として測定される。この両者の対応を考慮して pAi を pH と同様に、その逆数の常用対数をとって、中和を全く受けなかったときに予想される pH に相当する量 pAi を以下の式で定義する¹⁸⁾。

$$\text{pAi} = -\log (2 \times [\text{nss-SO}_4^{2-}] + [\text{NO}_3^-])$$

そこで、降水中の江東、多摩および檜原における pH と pAi の関係を図 6 に示した。点線で示したのは、pH と pAi が 1 対 1 の関係を表している。年平均値の降水中の pH 範囲は江東で 4.5-5.2、多摩と檜原で 4.4-4.8 となり、pAi 範囲は江東で 4.1-4.4、多摩で 4.2-4.5、檜原で 4.3-4.6 となった。いずれの調査地点においても 1 対 1 の直線よりも下部にプロットされ、pAi は pH よりも低い傾向を示した。これは、降水では中和作用が大きく働いていると考えられ、特に江東ではその傾向がより顕著であった。今回の結果は、年平均値からの算定だったために、値の範囲は狭かった。しかし、季節的変動など詳細に解析することにより大都市の沿岸地域、丘陵地域および山間地域における湿性沈着の特色が明らかになるものと推察される。

また、森林においては降水が樹冠を通過する際、溶存陽イオンの増加や有機酸の溶出などによって水質は大きく変化する¹⁶⁾。森林樹冠へ大気エアロゾルなどの沈着の研究において、山間部として奥秩父、都市近郊の丘陵地として多摩丘陵、鎌倉においてスギ樹冠への酸性物質の沈着を定量化することを試みた結果¹⁷⁾、 NO_3^- についてはシミュレーション上奥秩父では吸着、多摩丘陵や鎌倉では溶脱が認められ、過剰の窒素が溶脱している可能性があった。しかもガスやエアロゾルのような乾性沈着も多いことがわかった。1992 年から 2005 年までの東京都内の多摩（丘陵地域）の湿性沈着では、14 年間の硝酸性窒素 (NO_3^- -N) の年間の平均降水量は 5.04 kg/ha、14 年間中の年間平均値の最大値で 2001 年に 8.25 kg/ha となった。この年間の平均値は欧州の森林生態系における窒素飽和となる量 (10 kg/ha/year)¹⁸⁾ の半分に相当する。今後は、湿性沈着のみならず乾性沈着量も見積もって議論することが重要であろう。

参考文献

- 1) 気象庁：大気・海洋環境観測報告，**10**，212-222 (2010)。
- 2) Fukuzaki, N. & Ohizumi, T.: Proceedings of International Congress of Acid Snow and Rain, 217-222 (1997)。
- 3) 苗村晶彦，倉田斉，楊宗興：自然環境科学研究，**23**，1-5 (2010)。
- 4) 東京都環境科学研究所：“地球環境及び浮遊粒子状物質関連データ集（平成 17 年度）”，266 (2007)，（東京都環境科学研究所）。
- 5) 苗村晶彦，吉川哲生，佐藤敬一，土器屋由紀子：日本気象学会雑誌，**39**，121-125 (2003)。
- 6) 土器屋由紀子，小倉紀雄，安富六郎，内川武：“多摩丘陵の自然と研究—フィールドサイエンスへの招待” (2001)，（けやき出版）。
- 7) 藤田慎一，速水洋，高橋章，光瀬彦哲，三浦和彦，出田智義：環境科学会誌，**25**，26-36 (2012)。
- 8) 酸性雨調査法研究会編：“酸性雨調査法” (1993)，（ぎょうせい）。
- 9) 日本化学会編：“陸水の化学” (1992)，（学会出版センター）。
- 10) Narita, Y., Satoh, K., Hayashi, K., Iwase, T., Tanaka, S., Dokiya, Y., Hosoe, M. & Hayashi, K.: Water, Air, and Soil Pollu., **18**，1523-1528 (2001)。
- 11) 苗村晶彦，花光重一郎，中根周歩：環境情報科学論文集，**16**，235-238 (2002)。
- 12) 栗田秀實，植田洋匡：大気汚染学会誌，**21**，428-438 (1986)。
- 13) 渡邊善之，渡邊明：大気環境学会誌，**47**，145-154 (2012)。
- 14) 若松伸司，鶴野伊津志，鈴木睦，小川靖，村野健太郎，昆野信也，古塩英世：国立公害研究所研究報告，**61**，71-81 (1984)。
- 15) 上野広行，小峯美奈子：東京都環境科学研究所年報，**2005**，250-251 (2005)。
- 16) 大気環境学会編：“三宅島噴火と広域大気汚染” (2001)，（大気環境学会）。

- 17) Daum, P.H., Kelly, T.J., Schwartz, S.E. & Newman, L.: *Atmos. Environ.*, **18**, 2671-2684 (1984).
- 18) 原 宏 : 日本化学会誌 , **1997**, 733-748 (1997).
- 19) Arthur, M.A. & Fahey, T.J.: *Can. J. For. Res.*, **23**, 738-742 (1993).
- 20) Naemura, A., Yoshikawa, T., Yoh, M., Ogura, N. & Dokiya, Y.: *Nat. Envir. Sci. Res.*, **20**, 13-17 (2007).
- 21) Wright, R.F., Roelofs, J.G.M., Bredemeier, M., Blanck, K., Boxman, A.W., Emmett, B.A., Gundersen, P., Hultberg, H., Kjønaas, O.J., Moldan, F., Tietema, A., Van Breemen, N. & Van Dijk, H.F.G.: *For. Ecol. Manage.*, **71**, 163-169 (1995).
- (2014年7月7日受付, 2014年11月20日受理)