

研究論文

秋田八幡平の霧・雨及び秋田市の降水の化学組成と気象学的条件の関係

小川 信明,* 猪爪 淳子,* 菊地 良栄,* 預 幡 哲也**
岡村 朋子,* 尾 関 徹,*** 梶川 正弘**

Relationships between chemical compositions and meteorological conditions for fog and rain at Hachimantai range, and rain at Akita city in Japan.

Nobuaki OGAWA†, Junko INOTSUME†, Ryoei KIKUCHI†, Tetsuya ADZUHATA††
Tomoko OKAMURA†, Toru OZEKI††† and Masahiro KAJIKAWA††

Abstract

Acid fog and rain samples were collected at Mountain range of Hachimantai and at Akita City in Japan. Various ion concentration of these sample were analyzed using an ion chromatography and pH meter. The NO_3^- concentration of rain at Akita increased gradually year to year. The fog water had a high concentration of various ions compared with the rain. The highest concentration was observed in the weather chart of high pressure on Japan Island. The fog water had a low concentration for various ions in autumn compared with those in spring, so that this result agreed with the fact that the autumn sky is clear and clear in Japan.

Key Words: Acid fog, Acid rain, Chemical composition, meteorological condition

1. 緒言

日本における酸性降水被害は、1973～1975年に関東地方を中心に霧雨による被害が発生して以来、明らかな人的被害は認められてはいない¹⁾。しかし、1983～1987年以来行われている全国調査の結果や最近の第3次調査²⁾の結果をみると、ほぼ全国にわたって平均 pH4 台の降水が観測されている。農業県である秋田では農作物などに対する影響が心配されているが、酸性降水の系統的な研究は少なく、我々のグループ以外にはほとんど見られない。特に、一降水または一日毎のサンプリングの結果はほとんど報告されていない。そこで我々の研究グループでは1993年冬季から秋田県の酸性降水を一日毎にサンプリングし、その化学組成を分析し、降水の酸性化の原因や汚染起源を特定するために化学的、統計的、気象学的な解析を行ってきた³⁾⁴⁾。1994年までの結果から、冬季降水の酸性化の主な原因が nss-SO_4^{2-} (非海塩型硫酸イオン) であることを特定したものの、汚染物質全体の輸送や降水粒子の酸性化機構を十分に解析することはできなかったが、その後も降水の採集を続け、電気伝導度 (EC)、pH 及び主要イオンの月別推移や年別推移の調査を

継続している。

本研究は、汚染物質の輸送と降水の酸性化に関して降水の前段階であり、通常の降水より酸性度が高いと言われている霧(雲)水¹⁾⁵⁾⁶⁾の酸性化要因を解明するため⁷⁾⁸⁾⁹⁾¹⁰⁾、秋田八幡平で1997年8～9月、1998年6～9月、1999年6～9月に採集した降水と霧水、及び秋田市で一日毎に採集した降水の pH、EC、主要イオン濃度を測定し、さらに霧の粒径を求め気象条件との関係を検討することを目的とした。

2. 実験

図1に降水及び霧水の採集場所を、図2には実験手順を示した。降水は秋田市(秋田大学屋上)(39°43'N, 140°08'E, 10m a.s.l.)、秋田八幡平大沼(39°59'N, 140°48'E, 960m a.s.l.)で、内径22.5cmのプラスチック製円筒容器に透明なポリエチレン製の袋を装着した簡易バルクサンプラーで、霧水は秋田八幡平もっこ岳登山口(39°56'N, 140°51'E, 1,465m a.s.l.)で、(株)臼井工業研究所製細線式パッシブ霧水捕集器(FWP-500)で採集した³⁾⁷⁾⁸⁾。

採集したサンプルは、0.45 μm のメンブレンフィルター(ADVANTEC DISMIC-13cp)でろ過後、東亜電波工業(株)製 HM-30S 型 pH メーター、CM-40S 型電導度計により、それぞれ pH と電気伝導度 (EC) を測定した。 H^+ 以外の 5 種類の陽イオン (Na^+ , NH_4^+ , K^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+}) と 3 種類の陰イオン (Cl^- , NO_3^- , SO_4^{2-}) 濃度は、東亜電波工業(株)製 ICA-5000 型イオンクロマトグラフ装置を用いて分析した⁷⁾⁸⁾。

霧粒はツェグーオイルを塗布したスライドガラスを霧の流れにさらす方法によって採取し、ただちに顕微鏡で写真撮影して、試料毎の粒径分布と平均粒径 (\bar{D}) を求めた¹¹⁾。

平成12年11月14日受付

* 秋田大学工学資源学部環境物質工学科

〒010-8502 秋田市手形学園町 1-1

** 秋田大学土木環境工学科

〒010-8502 秋田市手形学園町 1-1

*** 兵庫教育大学自然系化学

〒673-1494 兵庫県加東郡社町下久米 942-1

† Department of Materials-process Engineering & Applied Chemistry for Environments, Faculty of Engineering and Resource Science, Akita University, 1-1, Tegata Gakuen-cho, Akita 010-8502, Japan

†† Department of Civil Engineering, Faculty of Engineering and Resource Science, Akita University 1-1 Tegata Gakuen-cho, Akita 010-8502, Japan

††† Hyogo University of Teacher Education, Yashiro-cho, Kato-gun, Hyogo 673-1494, Japan

3. 結果と考察

3.1 秋田市降水の各種イオンの月平均推移と pH の年間平均推移

図3に1993年4月～1997年12月までの秋田市降水の各種イオンの月別平均推移と1991年～1997年までの pH の年間平均推移と冬季の平均 pH 推移を示した。冬季（1～3月）になると海塩起源の Na^+ 、 Cl^- の濃度（図中の濃い実線と濃く細い点線）

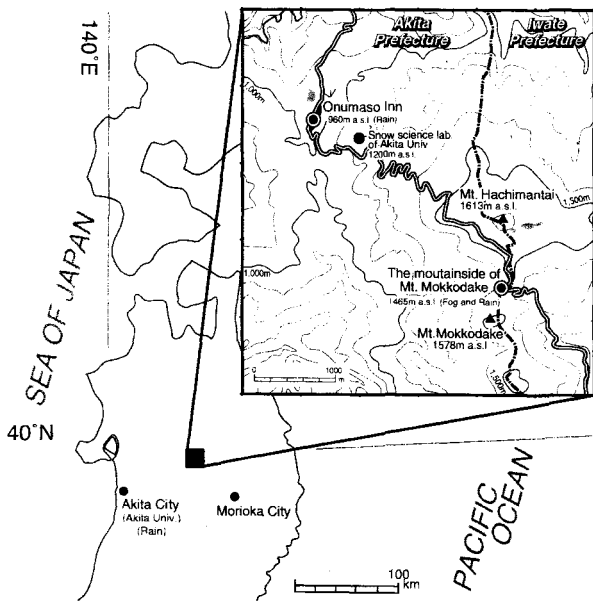


Figure 1 Location of sampling site.

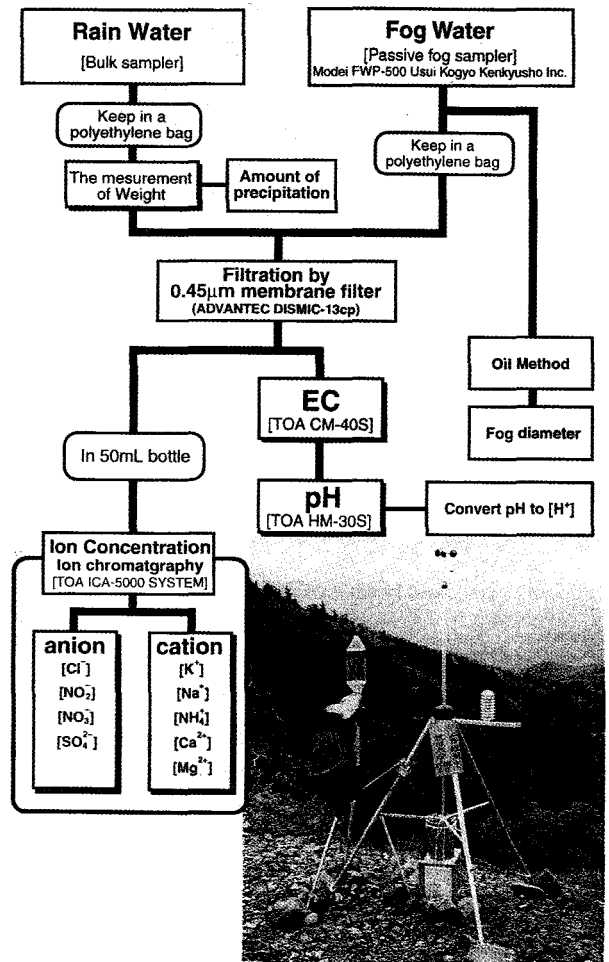


Figure 2 Experimental procedure.

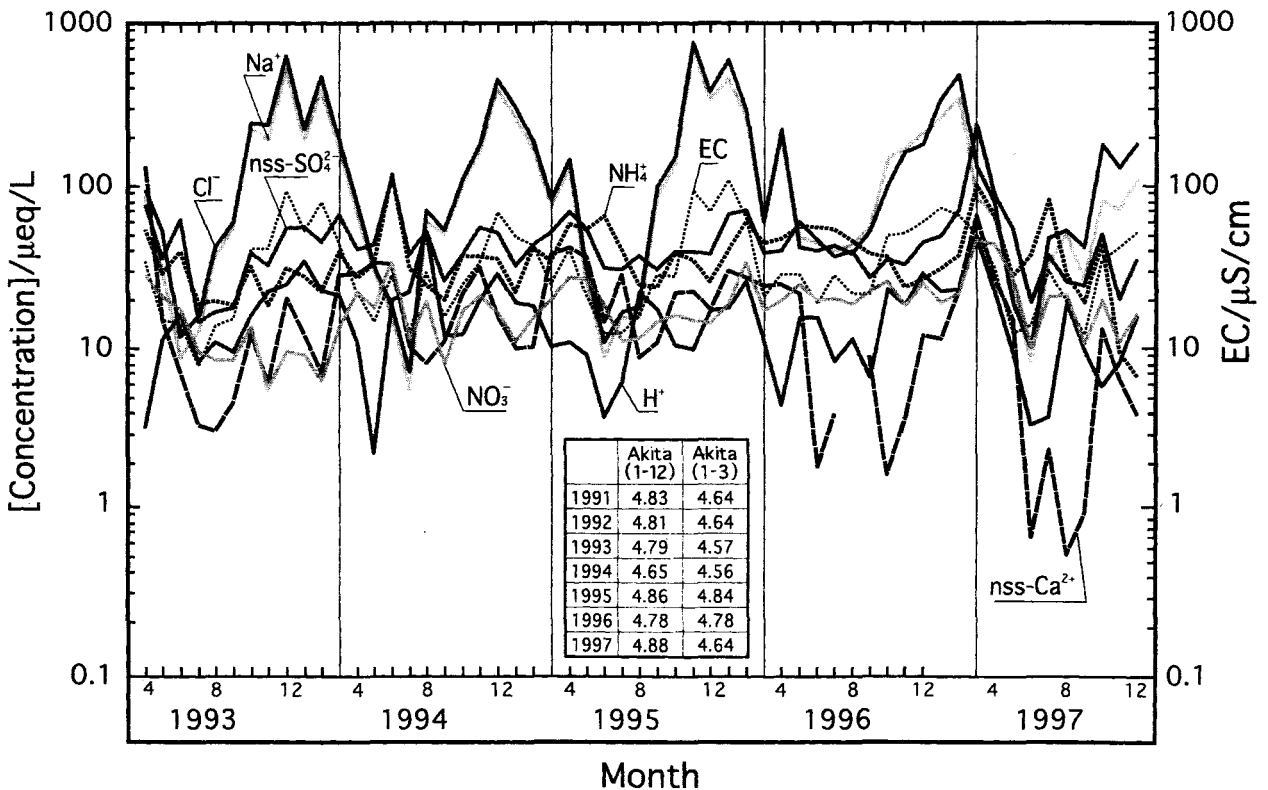


Figure 3 Monthly trends of mean concentration of various ions for 1993 to 1997 in Akita City.

が上昇する傾向にあるが、それにともない nss-SO_4^{2-} の濃度 (図中の濃く太い点線) も上昇する傾向にある。また、年間の平均 pH は1994年を除けば、ほぼ4.8台で推移しているが、冬季になると平均 pH は低くなる傾向があることから、他の日本海側と同様に降水は冬季により酸性化されると考えられる。

図4に1993年から1997年までの秋田市の降水の酸性化成分である nss-SO_4^{2-} と NO_3^- 、中和化成分である NH_4^+ と nss-Ca^{2+} の年間平均濃度の推移を示した。また、図5に濃度比 $[\text{NO}_3^-]/[\text{nss-SO}_4^{2-}]$ と pH の年間平均の推移を示した。両図より1994年までの秋田市では、 $[\text{nss-SO}_4^{2-}]$ が $[\text{NO}_3^-]$ よりずっと高く、降水の酸性化は主に $[\text{nss-SO}_4^{2-}]$ によると考えられるが、近年秋田市では NO_3^- の濃度が増加傾向にあり、降水の酸性化に対する NO_3^- の寄与が高くなってきていることがわかる。この原因としては、自動車等から排出される窒素酸化物の増加の影響が考えられる。このような NO_3^- の増加傾向は、近年山形県米沢市において行われた調査においても同様の傾向を示している¹²⁾。これらの結果から、1994年以降の秋田市の降水は nss-SO_4^{2-} と NO_3^- の両方によって酸性化されていることが考えられる。しかしながら、秋田市の年平均 pH は1994年に nss-SO_4^{2-} が急激に増加したため低下しているが、それを除けばほぼ4.8台で推移している。これは酸性化成分濃度の増加と同時に中和化成分の NH_4^+ の濃度も増加しているためであると考えられる。

3. 2 霧水と降水のイオン濃度及び単純平均 pH と最低 pH の比較

図6に1997年～1999年までの秋田八幡平の霧水と降水及び秋田市の降水のイオン濃度を示し、表1には単純平均 pH と最低 pH を示した。秋田八幡平の霧水が、他の地点の降水に比べて全イオン濃度が極めて高く、また、単純平均 pH と最低 pH が最も低いことから、秋田八幡平の霧水が他の地点の降水よりも著しく酸性化されていることがわかる。ただ、1999年9月25日

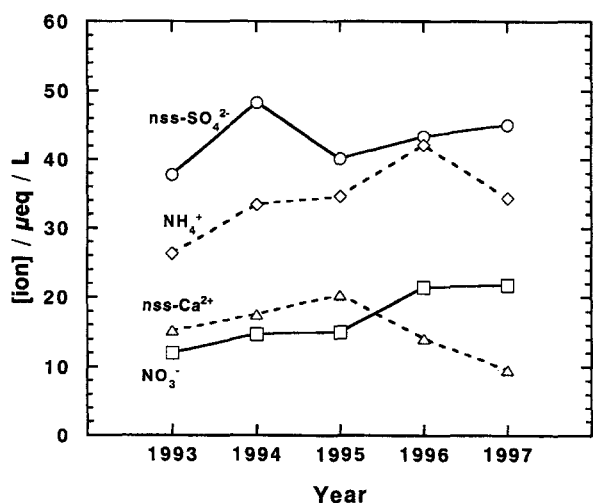


Figure 4 Annual trends of $[\text{nss-SO}_4^{2-}]$, $[\text{NO}_3^-]$, $[\text{NH}_4^+]$ and $[\text{nss-Ca}^{2+}]$ of the precipitation in Akita City from 1993 to 1997.

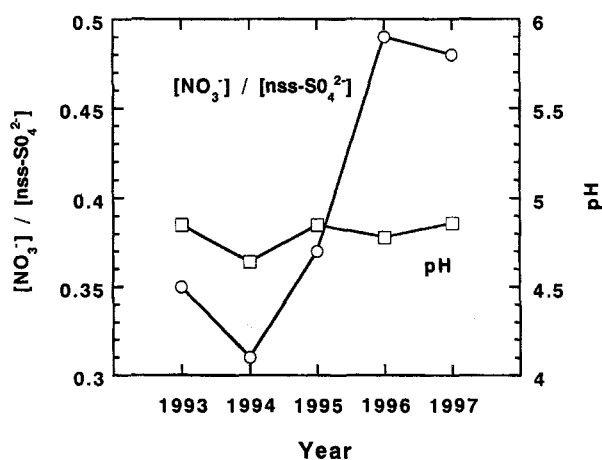


Figure 5 Annual trends of concentration ratio $[\text{NO}_3^-]/[\text{nss-SO}_4^{2-}]$ and pH of the precipitation in Akita City from 1993 to 1997.

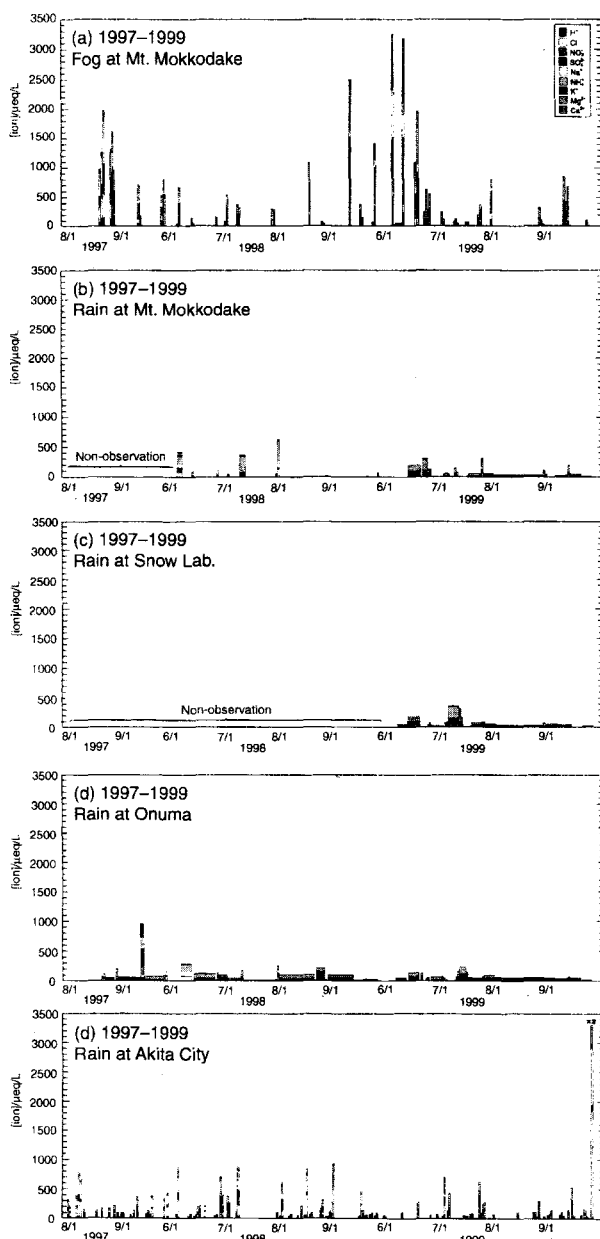


Figure 6 Ion concentrations fog and rain at Hachimantai and rain at Akita City for 1997 to 1999.

Table 1 Mean value of pH and lowest pH at each site.

	Height /m a.s.l.	From August to September in 1997		From June to September in 1998		From June to September in 1999	
		pH	Lowest pH	pH	Lowest pH	pH	Lowest pH
Fog at Mt. Mokkodake	1465	4.07 (n=18)	3.56	4.43 (n=66)	3.61	4.58 (n=53)	3.30
Rain at Mt. Mokkodake		—	—	5.65 (n=24)	5.01	5.47 (n=31)	4.55
Rain at Snow Lab.	1200	—	—	—	—	5.43 (n=29)	4.75
Rain at Onuma	960	4.80 (n=9)	4.31	5.22 (n=22)	4.44	5.30 (n=26)	4.51
Rain at Akita City	10	4.90 (n=22)	4.45	4.97 (n=46)	4.39	4.87 (n=39)	3.65

の秋田市の降水のイオン濃度が大変高くなっているのは、台風18号の風によるものである。

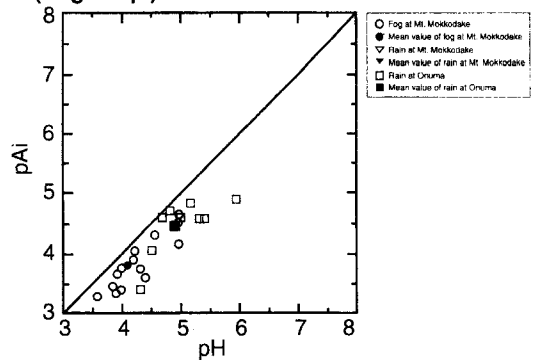
3. 3 酸性化成分と pH の関係

図7に1997年～1999年までの秋田八幡平の霧水と降水及び秋田市の降水の酸性化指標 pAi¹³⁾ と pH の関係を示した。1997年以降単純平均 pH が、1:1の直線から徐々に右にずれてきていることがわかる。これは、霧水及び降水中の中和化成分 (NH₄⁺, nss-Ca²⁺) の濃度の増加によると考えられる。

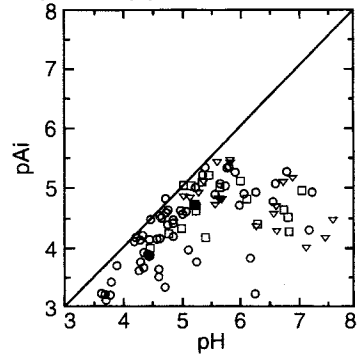
3. 4 天気図パターン毎の各イオン濃度の比較

図8に1998年と1999年及び両年をあわせて、秋田八幡平の霧水における天気図パターン毎の各イオン濃度の平均を示した。秋田八幡平で6～9月に霧がかかる時又は降水のある時の天気図パターンは、梅雨前線型、秋雨前線型、日本海低気圧型、本州上高型の4つに分類できる。1998年と1999年及び両年をあわせた場合でも本州上高型のときに最も各イオン濃度が高く、また、単純平均 pH も最も低い値を示しており、本州上高型のときに霧水が最も酸性化されていることがわかる。また霧の粒径も両年をあわせた場合に最も小さくなっている。この原因としては、本州上高型のときにはもって岳付近の高度1500m 付近では西風が卓越しており、この西風によって汚染物質を多く含む空気塊が輸送され粒径の小さい霧水中に取り込まれたためと考えられる。これは粒径が小さくなるとイオン濃度が高くなる

(a) 1997 (Aug.-Sep.)



(b) 1998 (Jun.-Sep.)



(c) 1999 (Jun.-Sep.)

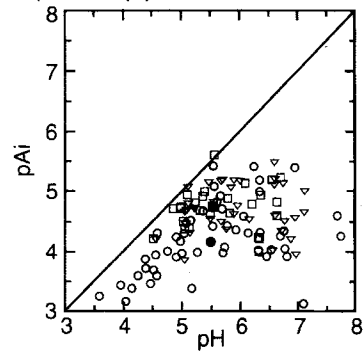


Figure 7 Relationship between pAi and pH.

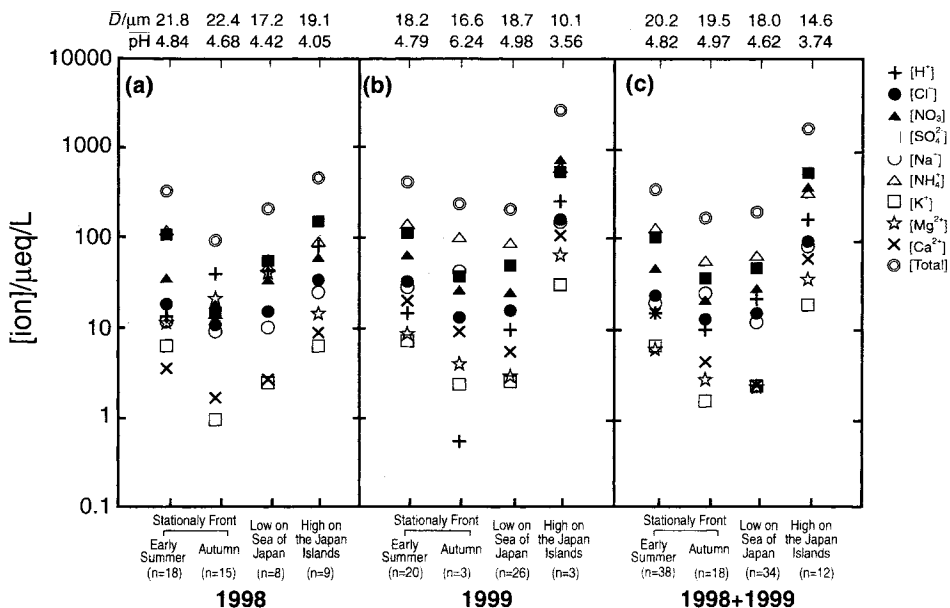


Figure 8 Ion concentration of fog for each weather chart pattern. (a) : 1998, (b) : 1999, (c) : 1998 and 1999.

ためであり、著者らの先の研究で明らかになっている⁷⁾。さらに、梅雨前線型のときよりも秋雨前線型のときに各イオン濃度が低く、単純平均 pH も兩年をあわせた場合に最も高くなっていることがわかる。これは、一般に言われている秋空が春の空よりもきれいであることを化学的に裏付けていると言える。

4. 結論

- 1994年までは、秋田市の降水の酸性化の主な原因は nss-SO_4^{2-} であると考えられていたが、近年では NO_3^- の濃度の増加にともなって、両者によって酸性化していた。
- 秋田八幡平の霧水は降水と比べて全イオン濃度が極めて高く、また、単純平均 pH と最低 pH が最も低いことから降水よりも著しく酸性化されていた。
- 霧水及び降水中の中和化成分の濃度が、年々増加する傾向にあった。
- 天気図パターンによる分類では、本州上高型のときに霧水の各イオン濃度が最も高く、また、単純平均 pH が最も低いことから霧水が最も酸性化されていた。秋雨前線型のときに各イオン濃度が最も低く、また、単純平均 pH が最も高いことから秋空がきれいであることが化学的に裏付けられた。

参考文献

- 村野健太郎：酸性雨と酸性霧，裳華房，(1993)。
- 環境庁：平成11年度環境白書，大蔵省印刷局，403pp. (1999)。
- Ogawa,N., Adzuhata,T., and Kajikawa,M: Chemical characterization of acid snowfall in the coast and inland areas of Akita Prefecture in Japan, *Seppyo*, **60**, (1998), 143-156.
- 小川信明, 菊地良栄, 後藤博, 梶川正弘, 尾関徹：制限斜交回転因子分析法による秋田の降水中の海塩起源汚染物質の評価, *分析化学*, **47**, (1998), 503-511.
- Minami,Y., and Ishizaka,Y: Evaluation of chemical composition in fog water near the summit of a high mountain in Japan, *Atmos. Environ.*, **30**, (1996), 3363-3376.
- Watanabe,K., Ishizaka,Y., and Takenaka,C: Chemical composition of fog water near the summit of Mt. Norikura in Japan, *J. Meteor. Soc. Japan*, **77**, (1999), 997-1006.
- Ogawa,N., Kikuchi,R., Okamura,T., Adzuhata,T., Kajikawa,M., and Ozeki,T: Cloud droplet size dependence of the concentrations of various ions in cloud water at a mountain ridge in northern Japan, *Atmos. Res.*, **51**, (1999), 77-80.
- Ogawa,N., Kikuchi,R., Okamura,T., Kajikawa,M., Adzuhata,T., Iwata,Y., and Ozeki,T: Chemical characterization of acid precipitation and fog of Akita Prefecture in Japan, *Int. J. of Mat. Eng. for Resources*, **7**, (1999), 282-295.
- Ogawa,N., Kikuchi,R., Okamura,T., Inotsume,J., Adzuhata,T., Ozeki,T., and Kajikawa,M: Evaluation of ionic pollutants in cloud droplets at a mountain ridge in northern Japan using constrained oblique rotational factor analysis, *Atmos. Res.*, **54**, (2000), 279-283.
- Adzuhata,T., Inotsume,J., Okamura,T., Kikuchi,R., Ozeki,T., Kajikawa,M and Ogawa,N: Evaluation of ionic pollutants of acid fog and rain using a factor analysis and back trajectories, *Anal. Sci.*, **17**, (2001), 71-76.
- Okita,T: Size distribution of large droplets in precipitating cloud. *Tellus*, **13**, (1961), 509-521.
- 志田惇一, 広瀬慎悟, 吉川律：山形県米沢市における降水中の主要イオンの経年変化, *日本化学会誌*, **6**, (1999), 425-429.
- 原宏：酸性雨－イオン組成を読み解く, *化学と教育*, **47**, (1999), 124-127.