

埼玉県における酸性降下物調査

水上 和子 高野 利一

要 旨

都市部の浦和、熊谷及び山間部の東秩父（堂平山）において、酸性降下物による環境負荷量及び汚染の地域特性を明らかにする目的で、酸性降下物調査を実施した。

H⁺を除いた各成分の年間降下量は、浦和が最も多く次いで熊谷、東秩父の順であったが、H⁺降下量は山間部にある東秩父の方が熊谷より多かった。環境庁が実施した関東地域の調査結果と比べてみると、関東平野における高濃度地域と同レベルもしくはやや高い値を示していた。

山間部にある東秩父は、大気中の汚染質濃度は都市部よりかなり低いレベルにあるが、夏期におけるSO₄²⁻、NO₃⁻降下量は都市部と同程度もしくはやや多く、汚染質の変質を伴った移流が推測された。

また、Na⁺を指標元素として海塩粒子の寄与率を推定したところ、SO₄²⁻及びCa²⁺降下量への寄与は極めて低く、Cl⁻及びMg²⁺降下量に対しては50%前後と高かった。

1 はじめに

欧米においては湖沼水や土壌の酸性化による魚介類の死滅、森林被害など酸性降下物による生態系の破壊が大きな社会問題となっている。一方、日本各地における調査¹⁾によれば、かなり酸性化した降水が観測されており、短期的・長期的な生態系への影響が懸念されている。

そこで、多くの自治体では、酸性降下物による環境負荷量を明らかにし、長期的な生態系への影響を検討するのに必要な基礎的データをを得ることを目的として年間を通した降下量調査に取り組み始めた。埼玉県においても、酸性降下物汚染の広域化という観点から県南及び県北の都市域である浦和、熊谷及び山間部にある東秩父（堂平山）において年間を通した降下量調査を実施している。今回、昭和60・61年度の調査結果について、汚染の状況及びその汚染の地域特性等を若干検討したので報告する。

2 調査方法

2・1 調査地点及び調査期間

調査は図1に示す浦和（埼玉県公害センター）、熊谷（熊谷市役所）、東秩父（堂平山）の3地点で行った。浦和は都心（千代田を中心とする）から北西方向

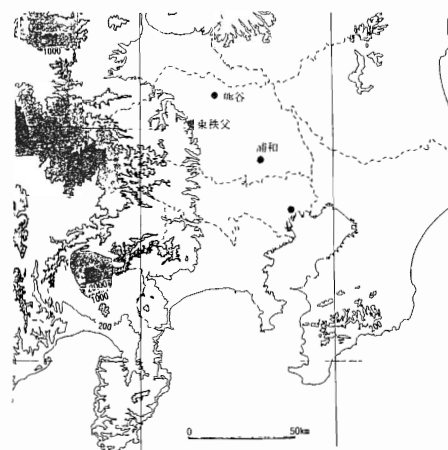


図1 調査地点

約25kmに位置し、調査地点の周辺は住宅、学校の多い住宅地域にあり、熊谷は都心から北西方向約65kmに位置し、調査地点の周辺は商業地域である。また、東秩父は都心から西北西約65kmに位置し、堂平山山頂付近標高840mにあり、埼玉県大気汚染常時監視バックグラウンド測定局である。

調査期間は昭和60年4月から昭和62年3月までの2年間である。

2・2 採取方法及び分析方法

降水等の湿性降水物及び粉じん等の乾性降水物を併せて採取するろ過式採取装置²⁾を用いて、1カ月単位で降水物の採取を行った。採取用ロートは口径17cm、高さ25cmのガラス製である。

メンブランフィルター(0.8 μ m)でろ過したろ液について、pHはガラス電極法、ECは導電率計による方法、SO₄²⁻、NO₃⁻、Cl⁻はイオンクロマト法、K⁺、Na⁺、Ca²⁺、Mg²⁺は原子吸光光度法、NH₄⁺はインドフェノール法で分析した。

3 結果及び考察

3・1 降水量

各地点の降水量は貯水量をロートの捕集面積で割って求めた値で示した。ろ過式採取装置により求めた降水量と調査地点近くのAMeDASのデータとを比較した例を図2に示す。両者の関係は1:1の対応をしており、このことは他の地点においてもほぼ同様であった。

降水量が最も多いのは山間部にある東秩父であり、逆に少ないのは内陸部にある熊谷であった。調査期間中の平均年間降水量は浦和1477mm、熊谷1107mm、東秩父1539mmと、その比率は熊谷を1とした場合、浦和1.3、東秩父1.4であった。

また、調査期間中の年間降水量は、熊谷気象台観測データで比べてみると昭和55-61年の7年間の平均値よりやや多いかあるいはほぼ平均並という状況であっ

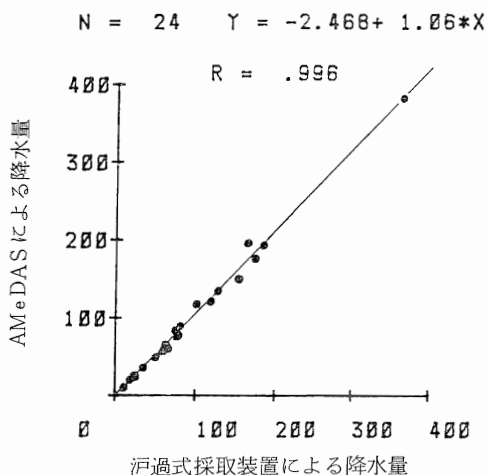


図2 降水量の比較(熊谷)

た。

水溶性成分降下量の季節変化は成分によっては降水量の季節変化と良く似たパターンを示した。そこで、降下量と降水量の関係を明らかにするため、地点別分別に両者の相関関係を検討した。表1に示すようにいずれの地点においても降水量と相関の高い(有意水準1%)成分は、SO₄²⁻、NO₃⁻、H⁺、K⁺であり、降水量と相関のみられた(有意水準5%)成分は、前述の成分のほかCl⁻、NH₄⁺であった。すなわち、ガス状物質に関する成分が降水量の増加に伴い、降下量が増加する傾向であることが認められた。一方、Ca²⁺、Na⁺等土壌・海塩粒子に関する成分は、降水量との関係が明らかでなかった。

降水量と降下量の関係について地域別の特徴を検討した。降水量と降下量の関係の1例を図3に示したが、都市部の浦和に比べ山間部にある東秩父では、同程度の降水量に対して降下量が少ない、すなわち降水成分濃度が低い傾向を示した。

各地域における水溶性成分降下量は降水成分濃度と降水量に大きく支配されるが、基本的には降水量の多い月に降下量も多い傾向であることが言える。

表1 降水量と各成分降下量の相関関係 (N=24)

	H ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Na ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻
浦和	◎	◎	◎	-	-	-	◎	◎	◎
熊谷	◎	◎	◎	-	-	-	◎	◎	○
東秩父	◎	○	◎	-	-	◎	◎	◎	◎

注 ◎ 有意水準 1%で有意
○ 有意水準 5%で有意

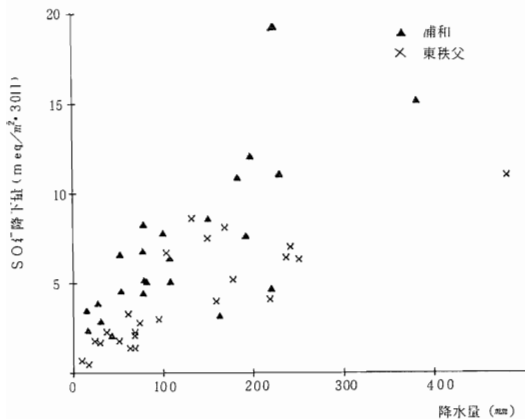


図3 降水量と降下量の関係

3・2 年間降下量

昭和60・61年度の地点別年間降下量を表2に示す。H⁺を除いた各成分降下量は浦和が最も多く、次いで熊谷であった。しかし、H⁺降下量は山間部にある東秩父の方が熊谷より多いのが注目された。そして、地域差の大きい成分は年度により若干異なっているがCa²⁺、Mg²⁺、Cl⁻であり、逆に小さいのはNO₃⁻、K⁺であった。酸性降下物の主要物質であるSO₄²⁻、NO₃⁻の東秩父の降下量を1とすると、SO₄²⁻では浦和1.6、熊谷1.3であるのに対し、NO₃⁻では浦和1.2、熊谷1.1と都市部と山間部との差が小さいのが特徴的であった。

一方、酸性物質を中和する重要な成分として働くCa²⁺³⁾は、東秩父の降下量に比べて浦和2.2倍、熊谷1.7倍と都市部の方が非常に多かった。

関東地方及びその周辺地域において環境庁が実施した昭和59年9月から60年8月までの調査結果⁴⁾と今回の結果を成分別に比べてみた。

環境庁調査によるとH⁺降下量は、関東地域の中央部の都市域やその西側の山間部で約30-44meq/m²・年と最も多かった⁴⁾が、今回の3地域の結果もそれとほぼ同レベルもしくはやや高い値を示した。

また、環境庁調査によると、SO₄²⁻、NO₃⁻降下量は東京湾沿岸部及び関東中央部の都市域にある宇都宮、前橋、熊谷、浦和で多く、SO₄²⁻は約3-5g/m²・年、NO₃⁻は2-3g/m²・年であり、東秩父は日光、中之条、奥多摩、松田等他の山間部よりも多いという結果であった⁴⁾。環境庁調査と今回の結果を比べてみると、ほぼ同レベルであった。しかし、61年度の浦和のNO₃⁻降下量は3.3g/m²・年とやや高い値を示したのが注目された。

以上のことから、浦和、熊谷は関東平野の都市部の中でも酸性降下物の多い地点であり、特に浦和はH⁺、NO₃⁻降下量の多い地点であるといえる。

3・3 各成分降下量の季節変化

降水量及びH⁺、SO₄²⁻、NO₃⁻、Ca²⁺の降下量と季節変化を図4、5に示す。なお期間は昭和60年6月から62年2月までとし、春期は3月-5月、夏期は6月-8月、秋期は9月-11月、冬期は12月-2月と区分した。

降水量はいずれの地点においても夏期に多く、冬期に非常に少ない傾向を示しており、特に60年の夏期は梅雨前線の活動の活発化、台風の通過、雷雨等により降水量が多かった。

H⁺降下量も降水量と同じように夏期に多く冬期に非常に少ない傾向を示していたが、浦和においては秋雨前線の停滞に伴い低pH降水が多く出現したため、61年秋期もH⁺降下量が多くなったものと考えられる。降水量と相関の高かった成分はH⁺と同様に降水量の季節変化と似た傾向を示していた。

表2 各成分の地点別年間降下量

	地点	H ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Na ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	降水量
60年	浦和	4.55	0.88	0.09	0.55	0.90	0.13	3.98	2.72	1.98	1,540
	熊谷	3.28	0.74	0.08	0.35	0.73	0.09	3.17	2.41	1.11	1,167
	東秩父	4.36	0.34	0.07	0.27	0.46	0.07	2.47	2.26	0.79	1,587
61年	浦和	57.3	0.97	0.09	0.60	1.00	0.15	3.99	3.33	2.13	1,414
	熊谷	31.3	0.91	0.06	0.45	0.79	0.11	3.14	2.82	1.32	1,047
	東秩父	39.0	0.72	0.08	0.40	0.42	0.08	2.46	2.71	1.05	1,491

単位 各成分 g/m²・年 但しH⁺はmeq/m²・年
降水量 mm/年

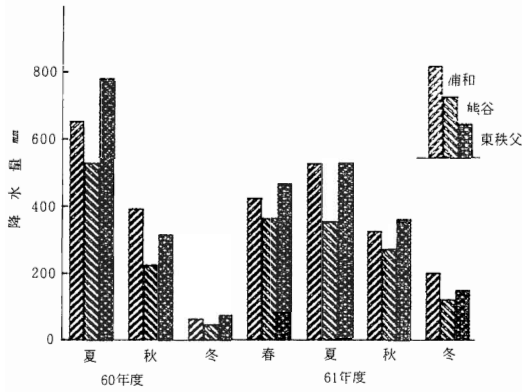


図4 降水量と季節変化

他の季節と異なり夏期において、 SO_4^{2-} 降下量は地域差が非常に小さいこと、 NO_3^- 降下量は山間部の東秩父で最も多く、次いで県北都市部の熊谷であることが注目された。

山間部の東秩父において夏期に SO_4^{2-} 、 NO_3^- 降下量が多かった理由として、一つには降水量が多かったことが考えられる。また、埼玉県大気汚染常時監視測定

結果によれば、東秩父では、 SO_2 等大気汚染質濃度は都市部の1/2-1/5とかなり低いレベルにあるが、Ox濃度の1時間値が0.06ppmを超えた時間数は熊谷より多かった^{5) 6)}。そして、夏期には東南東の風の占める割合が非常に高かった^{5) 6)}。これらのことから SO_2 、 NO_x の移流拡散過程で変質生成された SO_4^{2-} 、 NO_3^- が工業地域・都市域から東秩父へ運ばれてきたのではないかと推測される。

SO_4^{2-} 降下量に比べ NO_3^- 降下量は、前述したように年間値で比べると地域差が小さく、夏期の降下量では山間部の方がやや多い傾向を示した。この理由として、 SO_2 の発生源分布に比べ NO_x の発生源は工場・事業所等に加え自動車の寄与が大きく面的に広がった分布⁷⁾をしていることや、 SO_2 、 NO_x の酸化反応速度及びそのメカニズムの違いが影響しているものと思われる。

今後、酸性降下物による汚染の広がりを把握するには、より人為的活動の受けにくい山岳地での調査が必要であると思われる。

Ca^{2+} 降下量は降水量の季節変化と異なり春期に最

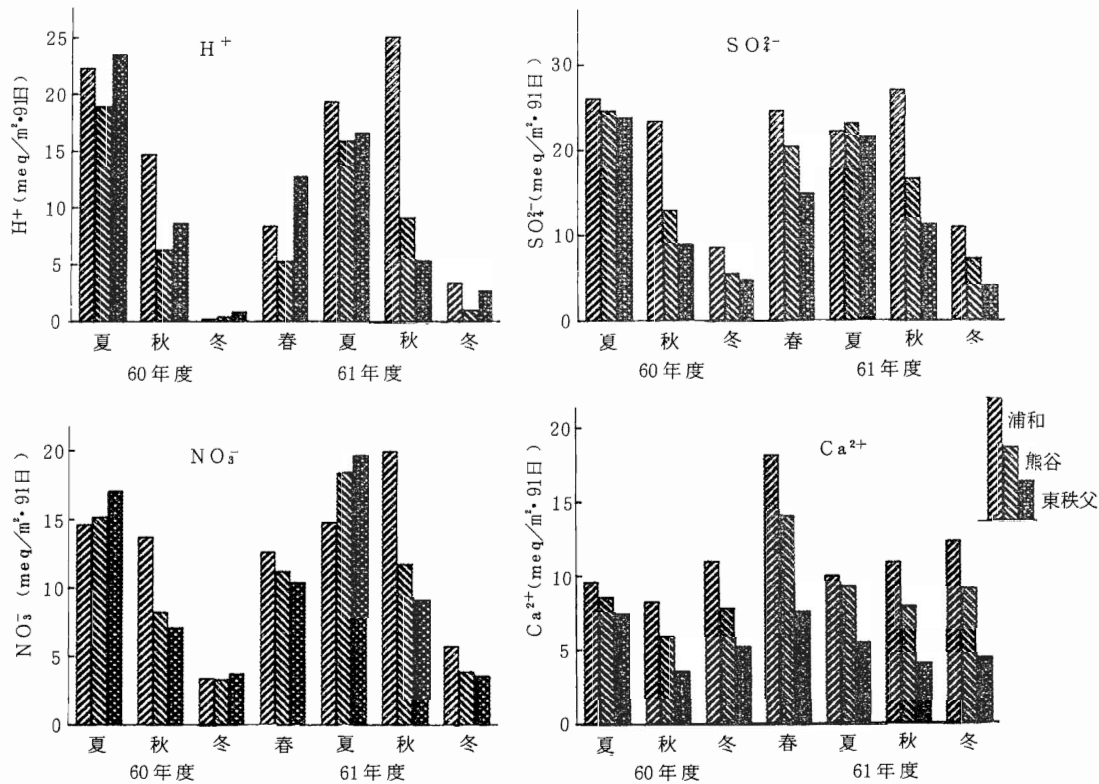


図5 各成分降下量の季節変化

も多く、春期を除いた季節変動は比較的小さい傾向を示した。

春期に多かった理由としては、冬から春にかけて日平均風速3m/s以上の風の強い日が多く⁸⁾、道路タストや土壌粒子の舞い上がりが多いことに加え、中国大陸からの黄砂により大気中のCa²⁺濃度が高くなっている⁹⁾ことが考えられる。また、他の成分に比べCa²⁺降下量は、冬期において降水量が少ないにもかかわらず降下量が多かったが、冬期は季節風が強く⁸⁾道路タスト・土壌粒子の舞い上がりが多かったことによるものと考えられる。

3・4 降水成分濃度及びイオン構成比

降水成分濃度の年度別の加重平均値を表3に示す。但し、これらの値は降水のみによる値でなく非降水時の乾性降下物中の水溶性成分も含めた濃度である。

2年間のpH平均値は浦和4.46、熊谷4.54、東秩父4.57と浦和が他の地点よりやや低い値を示した。

降水成分の地点別の特徴を明らかにするため、陰・陽イオン構成比を検討した。

地点別平均値の陰イオン構成比をみると、NO₃⁻の比率は東秩父>熊谷>浦和の順に小さくなるに対し、Cl⁻の比率はその逆傾向を示しており地域による違いがみられた。

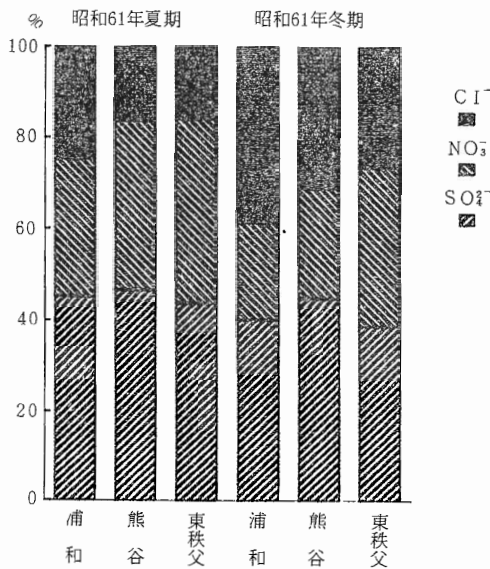


図6 陰イオン構成比

夏期及び冬期の陰イオン構成比を図6に示す。夏期は冬期に比べNO₃⁻の比率が高くCl⁻の比率が低いなど季節による違いがみられ、特に夏期の東秩父は前述したようにNO₃⁻降下量が多かった上にNO₃⁻の比率が高いことが注目された。

一方、地点別平均値の陽イオン構成比をみると、東秩父は浦和、熊谷に比べてH⁺の比率が高く、逆に酸性物質を中和する働きをするCa²⁺の比率が低い傾向であった。

夏期及び冬期の陽イオン構成比を図7に示す。夏期は冬期に比べH⁺、NH₄⁺の比率が高く、Ca²⁺の比率が低い傾向を示すなど季節による違いがみられた。

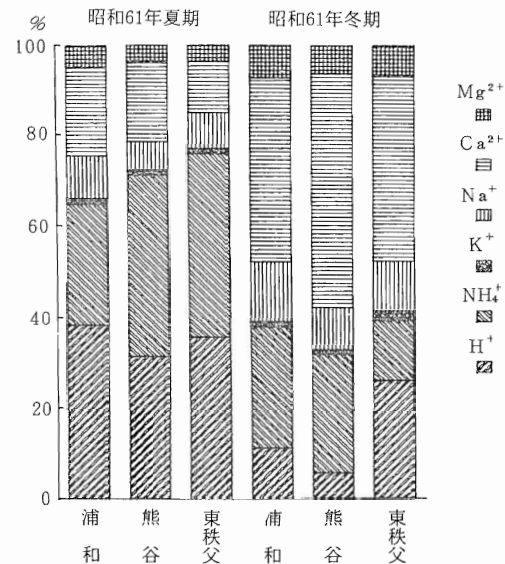


図7 陽イオン構成比

3・5 海塩寄与率の推定

大気中の粉じん及び降水には海塩粒子に由来する成分が含まれており、降下量への寄与が考えられる。そこで、Na⁺を指標元素として各成分降下量に対する海塩粒子の寄与率の推定を試みた。

なお、Na⁺の発生源としては、海塩粒子以外に土壌粒子等の自然発生源や固定・移動発生源等人為的发生源が考えられるが、ここでは降下物中のNa⁺をすべて海塩由来とみなして次式により海塩由来の成分降下量(X_m)を求めた。

表3 降水成分濃度の加重平均値

	地点	pH	EC	NH ₄ ⁺	K ⁺	Na ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻
60	浦和	453	252	0.57	0.06	0.36	0.59	0.09	2.6	1.8	1.3
	熊谷	455	246	0.63	0.07	0.30	0.63	0.08	2.7	2.1	1.0
	東秩父	456	174	0.21	0.04	0.17	0.29	0.04	1.6	1.4	0.5
61	浦和	439	290	0.69	0.06	0.42	0.70	0.11	2.8	2.4	1.5
	熊谷	452	257	0.86	0.06	0.43	0.76	0.10	3.0	2.7	1.3
	東秩父	458	181	0.48	0.06	0.27	0.28	0.06	1.7	1.8	0.7

単位 各成分 mg/l
EC μS/cm

$$X_m = (X/Na^+)_{sea} \times (Na^+)_{rain}$$

(X/Na⁺)_{sea} : Na⁺に対するX成分の海水中の濃度比¹⁰⁾

(Na⁺)_{rain} : 降下物中のNa⁺降下量

各成分降下量中に占める海塩粒子の推定寄与率を表4に示す。SO₄²⁻、Ca²⁺は海塩粒子の寄与率が数%と極めて低く、一方、Cl⁻、Mg²⁺は50%前後と高かった。全降下量から海塩由来分を差し引いたものを地上由来分であると仮定すると、当県におけるSO₄²⁻降下量はそのほとんどが地上由来のものであると言える。

なお、SO₄²⁻について土器屋ら¹¹⁾は、東京・大阪等太平洋側の工業汚染原に近い都市では海塩粒子の寄与を10%以下と推定しており、草野ら¹²⁾も横浜市では3-6%であると推定しているが、当県の調査結果も同様であった。

また、海塩粒子の寄与が大きいと推定されたMg²⁺とCl⁻を比べてみると、Mg²⁺は地域差が小さいのに対し、Cl⁻は浦和<熊谷<東秩父の順に大きくなっており地域による違いがみられた。Cl⁻の海塩寄与は山間部に比べ都市部で小さい、すなわち地上由来の寄与が大きいと推定されたが、都市部ではごみ焼却に伴って排出される塩化水素等人為的発生源の影響があるものと思われる。

3.6 主成分分析

降下量について主成分分析を行い、汚染因子の指標化や地域の汚染の総合的特性を明らかにすることを試みた。9種の水溶性成分降下量(meq/m²・30日)を変量として相関行列から出発して主成分分析を行った。

表4 各成分降下量中に占める海塩粒子の推定寄与率

(%)

	SO ₄ ²⁻	Cl ⁻	Ca ²⁺	K ⁺	Mg ²⁺
浦和	3.6	50.4	2.4	25.1	48.8
熊谷	3.2	59.5	2.1	22.3	48.8
東秩父	3.4	65.9	3.1	17.8	52.4

その結果を表5に、第1主成分(Z₁)と第2主成分(Z₂)に対する各成分の因子負荷量を図8に示す。

第1主成分と第2主成分の固有値はそれぞれ5.92、1.70であり、第2主成分までで85%説明できると考えられた。そして、第1主成分の因子負荷量は各成分とも正の大きな値であり、第1主成分のスコアはいずれの変量が大きくなっても大きくなることから、第1主

表5 主成分分析の結果

	固有ヘクトル		因子負荷量	
	第1主成分	第2主成分	第1主成分	第2主成分
H ⁺	0.300	0.463	0.729	0.603
SO ₄ ²⁻	0.385	0.214	0.938	0.278
NO ₃ ⁻	0.336	0.414	0.817	0.539
Cl ⁻	0.368	-0.247	0.896	-0.322
NH ₄ ⁺	0.336	0.217	0.817	0.283
K ⁺	0.348	0.005	0.846	0.006
Na ⁺	0.323	-0.358	0.787	-0.466
Ca ²⁺	0.224	-0.447	0.545	-0.582
Mg ²⁺	0.353	-0.363	0.860	-0.473
固有値	5.92	1.70		
累積寄与率	65.8%	84.6%		

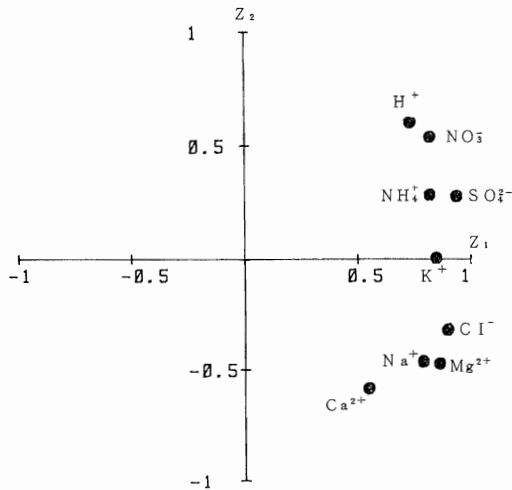


図8 第1主成分と第2主成分に対する因子負荷量

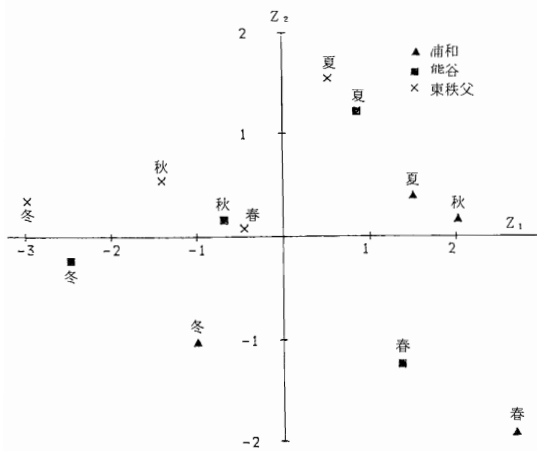


図9 スコア散布図(季節別平均値)

成分は総合的降下量(汚染度)を示す因子と考えられた。また、第2主成分の因子負荷量は H^+ 、 NO_3^- 、 NH_4^+ 、 SO_4^{2-} が正の値で、 Ca^{2+} 、 Na^+ 、 Mg^{2+} 、 Cl^- が負の値であった。2次生成物質等人為的発生源に關係する成分が正の値であり、一方、海塩粒子、土壤粒子及びタスト中の塩基性物質に關係する成分が負の値であることから、第2主成分は降水の発生源寄与を示す因子と考えられた。

月別降下量のスコアを地点別、季節別に平均し、その散布図を図9に示す。

夏期はいずれの地点も総合的降下量が多く、人為的発生源の寄与の割合が高いこと、冬期は総合的降下量が少ないこと、春期の都市部では総合的降下量が多く、土壤粒子等自然的発生源の寄与の割合が高いこと、いずれの季節においても浦和は最も総合的降下量が多いことなどが主成分分析の結果から解釈することができた。

4. まとめ

浦和、熊谷、東秩父における酸性降下物調査を昭和60年4月から昭和62年3月まで2年間実施した結果、次のことがわかった。

- (1) H^+ を除いた各成分の年間降下量は、浦和が最も多く次いで熊谷、東秩父の順であったが、 H^+ 降下量は浦和 $51.4\text{meq}/\text{m}^2 \cdot \text{年}$ 、東秩父 $41.3\text{meq}/\text{m}^2 \cdot \text{年}$ 、熊谷 $32.1\text{meq}/\text{m}^2 \cdot \text{年}$ と山間部にある東秩父の方が熊谷より多かった。
- (2) SO_4^{2-} 降下量は浦和 $4.0\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{年}$ 、熊谷 $3.2\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{年}$ 、東秩父 $2.5\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{年}$ であった。また、 NO_3^- 降下量は浦和 $3.0\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{年}$ 、熊谷 $2.6\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{年}$ 、東秩父 $2.5\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{年}$ と、 SO_4^{2-} に比べ NO_3^- の方が都市部と山間部との差が小さかった。
- (3) 酸性降下物の主要成分について環境庁が実施した関東地域の調査結果⁴⁾と比べてみると、関東平野における高濃度地域と同レベルもしくはやや高い傾向であった。
- (4) SO_4^{2-} 、 NO_3^- 等ガス状物質に關係する成分は、降水量の増加に伴い降下量も増加する傾向を示しており、各成分の降下量は降水量の多い夏期に多い傾向を示した。また、夏期における東秩父の SO_4^{2-} 、 NO_3^- 降下量は、都市部と同程度もしくはやや多く、汚染質の変質を伴った移流が推測される。
- (5) Na^+ を指標元素として海塩粒子の寄与率の推定を行ったところ、 SO_4^{2-} 、 Ca^{2+} は海塩粒子の寄与が極めて低く、 Cl^- 、 Mg^{2+} は50%前後と高かった。
- (6) 各成分降下量に主成分分析を適用したところ、2個の主成分に指標化でき、第1主成分は総合的降下量を示す因子、第2主成分は発生源寄与を示す因子と考えられ、これらを用いて地点別の総合降下量と発生源寄与を評価することができた。

引用文献

- 1) 例えば, 玉置元則, 平木降年: わが国各地における雨水pHの年平均値, 環境技術, **15**, 215-220, 1986.
- 2) 環境庁大気保全局大気規制課: 昭和59年度酸性雨成分分析調査実施細則, 1984.
- 3) 渡辺善徳ら: 横浜市における降水成分の調査研究(第2報), 横浜市公害研究所報, [9], 51-57, 1984.
- 4) 環境庁酸性雨対策検討会大気分科会: 酸性雨対策調査中間報告書, 1987.
- 5) 埼玉県環境部: 大気汚染常時監視測定結果報告書 昭和60年度, 1986.
- 6) 埼玉県環境部: 同 上
昭和61年度, 1987.
- 7) 計量計画研究所: 光化学大気汚染に係る大気汚染物質排出量モデル作成調査(環境庁委託), 1982.
- 8) 熊谷气象台: 埼玉県気象月報, 1985, 1986, 1987.
- 9) 溝畑朗, 真室哲雄: 黄砂エアロゾルに関する二, 三の知見, 大気汚染学会誌, **13**, 289-297, 1978.
- 10) 東京天文台編: 理科年表昭和58年度版, 丸善, 655 pp, 1983.
- 11) 土器屋由紀子, 葛城幸雄: 日本各地の主要化学成分の降下量, 第26回大気汚染学会講演要旨集, 412, 1985.
- 12) 草野一ら: 酸性降水に関する調査結果(第4報), 横浜市公害研究所報, [11], 17-27, 1986.