

# 浦和における降水成分の経年変化 (1975年度－1996年度)

## Twenty two years Deviation of Acidic Substances in Rainwater at Urawa (1975－1996)

丸山由喜雄 水上和子\* 高野利一\*\*

Yukio Maruyama, Kazuko Mizukami, Toshikazu Takano

### 1 はじめに

石油や石炭等の化石燃料の燃焼により発生する硫酸化物や窒素酸化物等によって引き起こされる酸性雨は、生態系や構造物等への影響が懸念されている。

降水の汚染状況の把握及び酸性雨の汚染機構解明の基礎資料を得ることを目的とし、当所では1975年度から降水成分の測定を続けている。ここでは、1975年度－1996年度の降水成分の経年変化を報告する。また降水成分の $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ の当量濃度比（以下N/S比と記す）と窒素酸化物と硫酸化物の排出量と環境濃度についても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

調査地点は埼玉県浦和市の埼玉県公害センターである。

調査期間は1975年度－1996年度である。

#### 2・2 降水の採取方法

1975年度から1983年度は、手動採取装置を用いて降り始めから順次1mm毎に初期降水を採取した<sup>1)</sup>。

1984年度から1996年度は大気降下物採取装置（小笠原計器R-500又はU-400）を用いて、降り始めから順次1mm毎の初期降水と一降水全量を採取した。

### 2・3 分析方法

分析項目と分析方法は表1に示した。

$\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Na}^+$ の測定は、1984年度から行っている。

表1 分析項目と分析方法

項目	分析方法
pH	ガラス電極法
導電率	導電率計
$\text{SO}_4^{2-}$	比濁法, イオンクロマト法
$\text{NO}_3^-$	サリチル酸ナトリウム法, イオンクロマト法
$\text{Cl}^-$	チオシアン酸第二水銀法, イオンクロマト法
$\text{NH}_4^+$	インドフェノール法, イオンクロマト法
$\text{Ca}^{2+}$	原子吸光法, イオンクロマト法
$\text{Mg}^{2+}$	原子吸光法, イオンクロマト法
$\text{K}^+$	原子吸光法, イオンクロマト法
$\text{Na}^+$	原子吸光法, イオンクロマト法

### 3 結果及び考察

#### 3・1 初期降水の経年変化

1975年度から1996年度の初期降水1－3mm目の成分濃度平均値の経年変化を図1に示す。初期1mm目のpHは1975年度と1986年度で特に低く、pH4を下回った。pHは年度によって若干の変動はあるが、初期1mm目で平均4.1前後である。初期1mm目の導電率硫酸イオンと塩素イオン濃度は1992年度までは低下傾向、それ以降は上昇傾向にある。硝酸イオン濃度は年度により変動し概ね横ばいであったが、1993年度以降

\*現：環境生活部大気保全課, \*\*現：企業局行田浄水場

○—1mm目 —△—2mm目 —□—3mm目

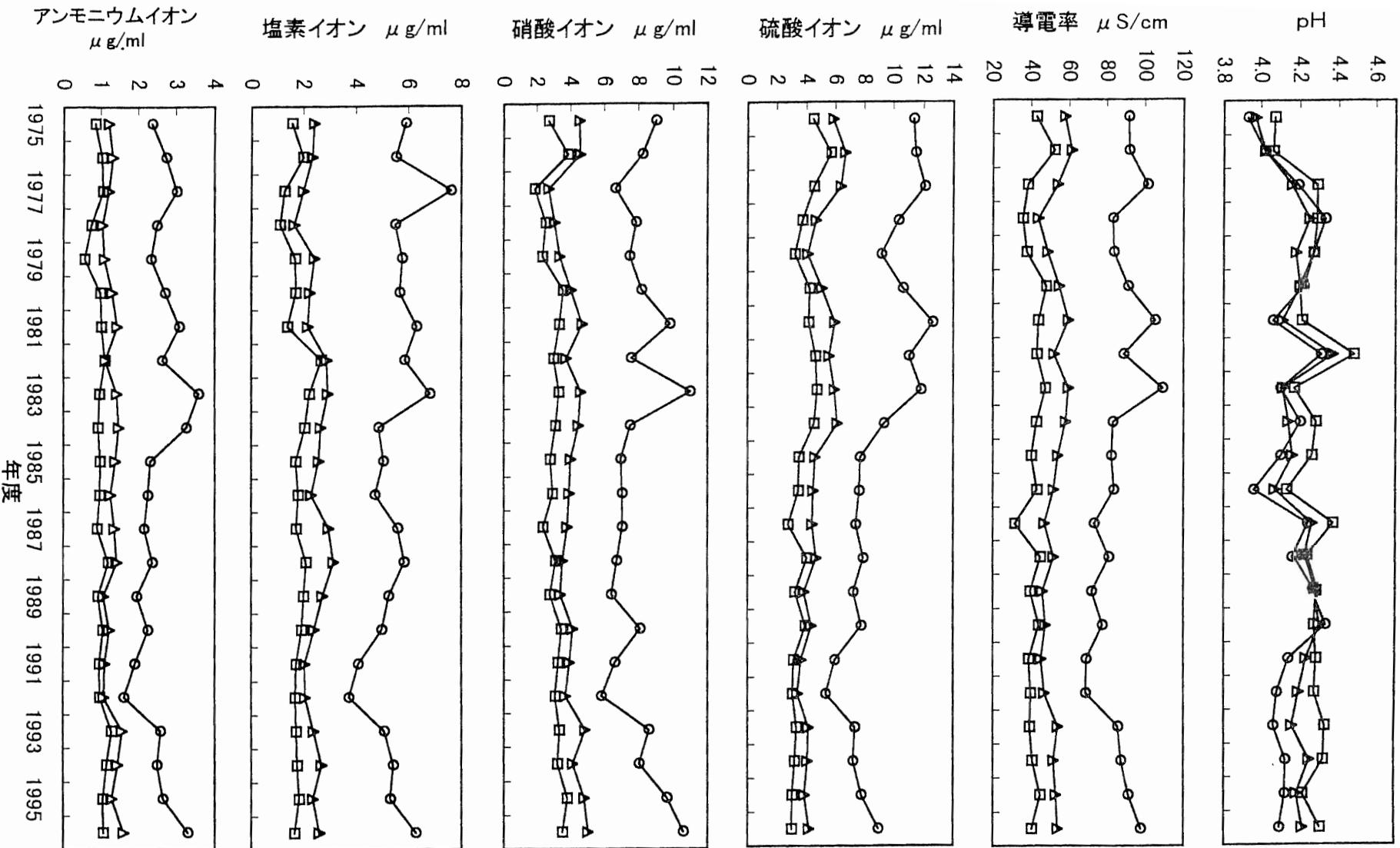


図1 初期降水成分濃度の経年変化

は上昇傾向にある。アンモニウムイオン濃度は1983年度までは上昇傾向にあり、その後1992年度まで低下傾向、そして1993年度以降は上昇傾向にある。初期2-3mm目の各イオン成分濃度は変動が少なく、概ね横ばい傾向であったが、硫酸イオン濃度には低下傾向が見られた。

初期降水成分のN/S比を図2に示す。N/S比は初期1-3mm目の全てで上昇傾向を示した。このことは、酸性度の指標とされているpHは年によって変化があるにもかかわらず、降水の酸性化への寄与割合は、硫黄酸化物から窒素酸化物へと変化しており、今後もそれが続いていく傾向を示している。

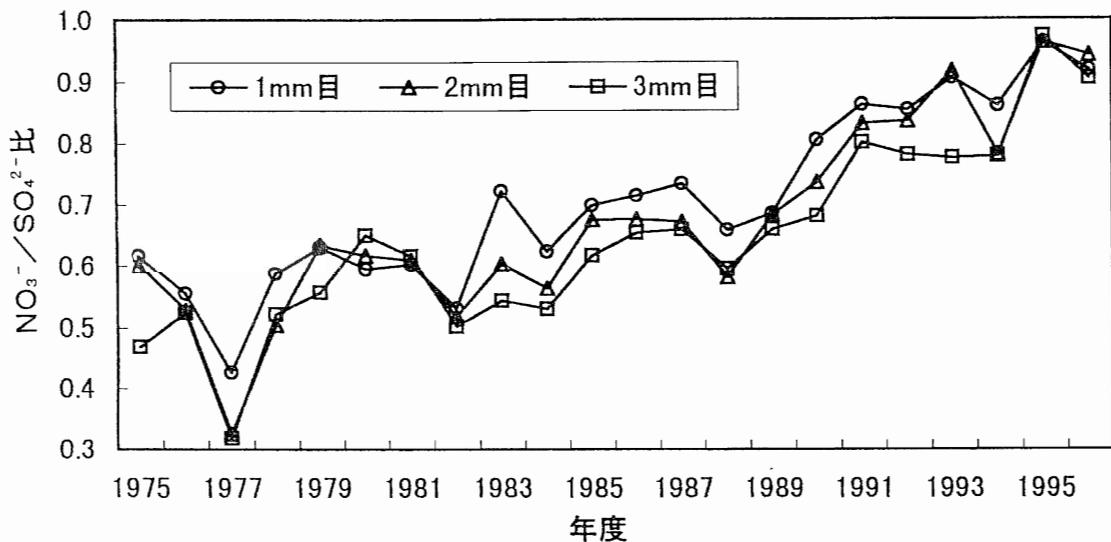


図2 初期降水成分のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>/SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>比の経年変化

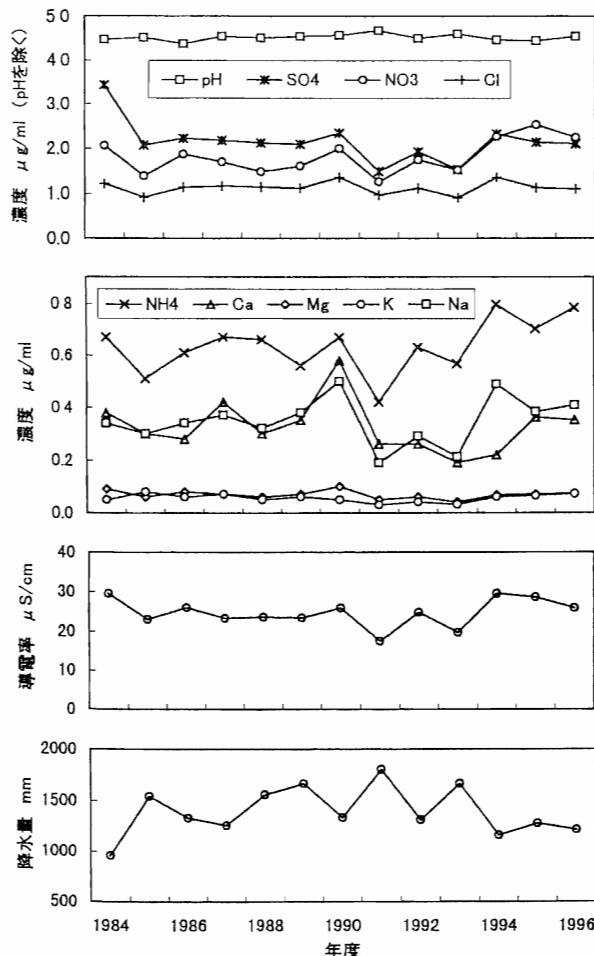


図3 一降水全量の成分濃度と降水量の経年変化

### 3・2 一降水全量の経年変化

一降水全量のイオン成分濃度の平均値と降水量の経年変化を図3に示す。pHは、4.37-4.67の範囲で概ね横ばい傾向で推移しており、最近では4.5前後である。硫酸イオン濃度は1993年度までは減少傾向、その後はやや増加傾向にあるが、調査期間全体で見ると低下傾向にある。硝酸イオン濃度は横ばいから上昇傾向に変化している。塩素イオン濃度の経年変化は小さかった。アンモニウムイオン濃度は年度による変動はあるが、上昇傾向にある。カルシウムイオン、マグネシウムイオン、カリウムイオン、ナトリウムイオン濃度と導電率は、変動はあるが概ね横ばい傾向である。

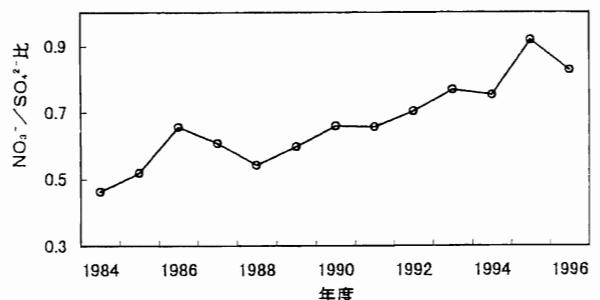


図4 一降水全量成分のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>/SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>比の経年変化

一降水成分のN/S比の経年変化を図4に示した。初期降水のN/S比と同様に、経年変化は上昇傾向が示された。このことから、一降水全量においても酸性化への寄与は、硫酸化物から窒素酸化物への変化していることを示している。

### 3・3 排出量、環境濃度の変化と降水成分の変化について

硫酸化物と窒素酸化物の埼玉県での排出量の経年変化を図5に示す<sup>2-5)</sup>。ここ20年間に於いて高い精度で排出量が計算された年度は、1978年度、1985年度と1990年度の3回しかないが、硫酸化物は減少傾向、窒素酸化物は減少から横ばいの傾向を示している。

二酸化硫黄と二酸化窒素は埼玉県で継続して測定を実施している。これらの一般環境測定局(SO<sub>2</sub>:19

局, NO<sub>2</sub>:10局)の年平均値の経年変化を図6に示す<sup>6)</sup>。二酸化硫黄は低下傾向、二酸化窒素は上昇傾向にあり、最近では横ばいである。

初期降雨及び一降水全量の硫酸イオン濃度が1992年度頃まで低下傾向を示した原因は、SO<sub>x</sub>排出量の減少と、結果としてのSO<sub>2</sub>環境濃度の低下の影響を受けたものと考えられる。

排出量のNO<sub>x</sub>/SO<sub>x</sub>比と環境濃度のNO<sub>2</sub>/SO<sub>2</sub>比の1975年度-1996年度の経年変化を図7に示す。排出量のNO<sub>x</sub>/SO<sub>x</sub>比と環境濃度のNO<sub>2</sub>/SO<sub>2</sub>比の経年変化は、いずれも上昇している。この傾向は、初期降雨1-3mm目と一降水全量のN/S比の変化と類似している。このことから降水のN/S比は、原因物質の排出量と環境濃度の変化に大きく影響されていると見ることができる。

降水の硝酸イオン濃度は、原因物質の窒素酸化物の排出量と環境濃度が近年横ばい傾向を続けていることから、今後大きくは上昇しないと考えられる。

また埼玉県での1990年度における硫酸化物の排出量は、自動車が約1/2を占めている<sup>5)</sup>。その後その主たる排出源であるディーゼル車の軽油の硫黄分が1992年10月に0.4%から0.2%に変更され、さらに1997年7月からは、0.2%から0.05%に規制されたことにより、硫酸化物排出量の減少が予想され、結果的に環境濃度が低下して降水の硫酸イオンの低下とN/S比の上昇が予想される。

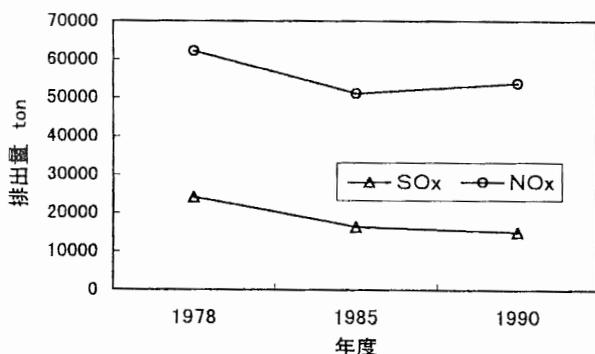


図5 硫酸化物と窒素酸化物の排出量

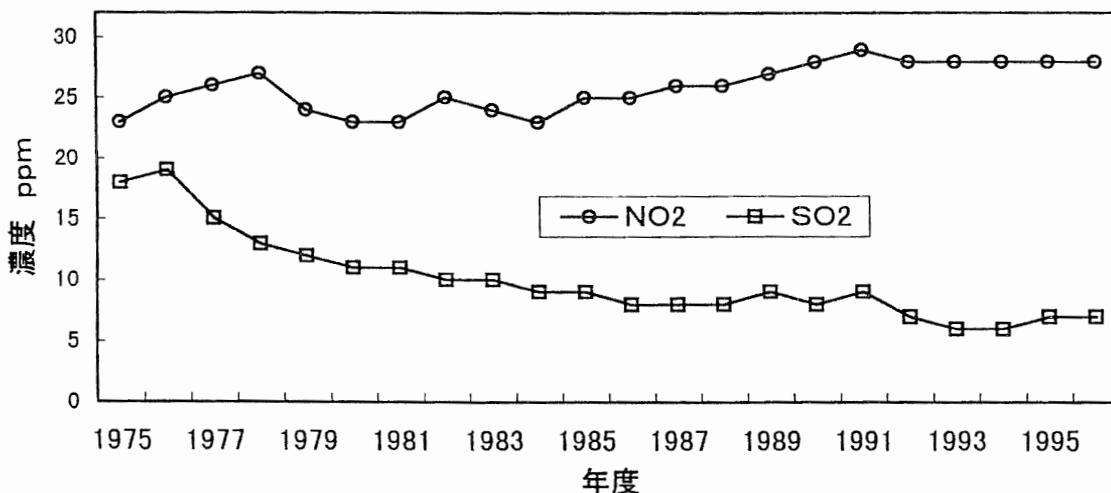


図6 二酸化硫黄と二酸化窒素の経年変化

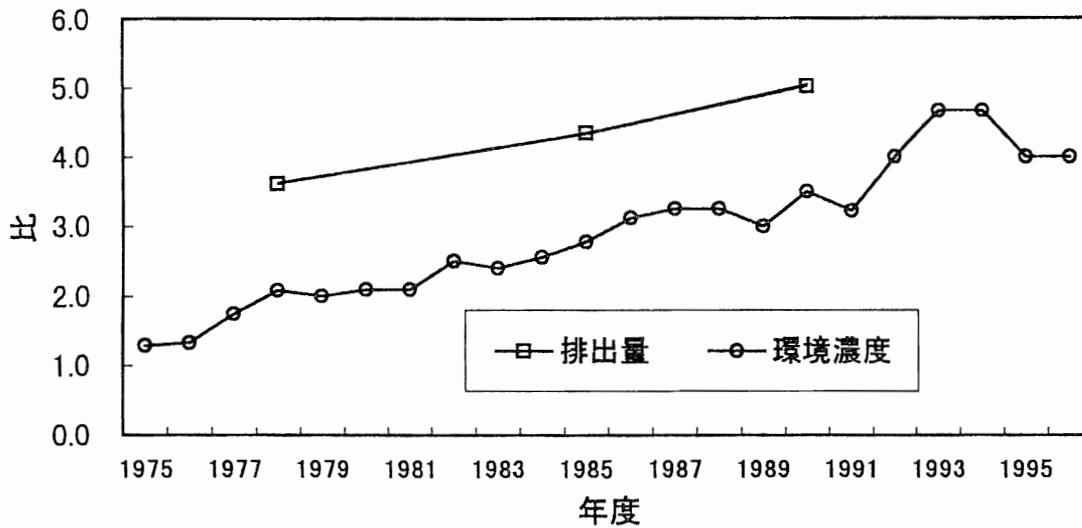


図7 NO<sub>x</sub>/SO<sub>x</sub>比(排出量)とNO<sub>2</sub>/SO<sub>2</sub>比(環境濃度)の経年変化

#### 4 まとめ

初期1mm目pHは年度によって若干の変動はあるが平均4.1前後である初期1mm目の硫酸イオン濃度は1992年度までは低下傾向それ以降は、上昇傾向にあった。初期1mm目の硝酸イオン濃度は、年度により変動し概ね横ばいであったが1993年度以降は上昇傾向にあった。

一降水全量のpHは、4.37-4.67の範囲で推移しており最近では4.5前後である。硫酸イオン濃度は、1993年度までは減少傾向その後はやや増加傾向にあるが調査期間全体で見ると低下傾向にあった。硝酸イオン濃度は、横ばいから上昇傾向に変化していた。

初期降水と一降水全量のN/S比の経年変化は上昇傾向にあった。

硝酸イオンの原因物質としての窒素酸化物は近年横

ばい傾向にあり、硫酸イオンの原因物質としてのディーゼル排ガスの硫黄酸化物は減少が見込まれることにより、今後のN/S比はさらなる上昇が予想される。

#### 文 献

- 1) 大気科, 特殊公害科: 湿性大気汚染調査, 埼玉県公害センター年報, [3], 20-23, 1976.
- 2) 埼玉県環境部: 大気汚染移動発生源調査報告書, 1981.
- 3) 埼玉県環境部: 大気汚染固定発生源実態調査報告書, 1981.
- 4) 埼玉県環境部: 大気環境情報システムの運用に係る報告書, 1988.
- 5) 埼玉県環境部: 大気発生源調査報告書, 1993.
- 6) 埼玉県環境部大気保全課: さいたまの大気環境, 1997.