

# 酸性雨に関する調査研究

## -Washoutに関する考察-

児玉 仁 井島 辰也\* 久米 均

### 1 はじめに

降雨のpHは、主に非海塩成分（以下、非海塩成分は、『nss-』を前置して表す。）であるnss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、nss-Ca<sup>2+</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>などの影響が大きいとされている<sup>1),2)</sup>。これら成分の取り込まれ方は、局地的な影響が大きいウォッシュアウトと、移流などの広域的な影響によるレインアウトに区別される。ゆえに、酸性雨問題では、測定されたpHに影響を及ぼしているものが、局地的な影響か、あるいは広域的な影響かを把握しておくことが重要である。

前報<sup>3)</sup>では、秋田市中心部に位置し、市街地である中通では、nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、nss-Ca<sup>2+</sup>、nss-Mg<sup>2+</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>がバックグラウンド地である本山（標高約650m）、さらに後背地である仁別に比べて降水中の成分濃度が高く、比較的多くの量が、ウォッシュアウトによる局地的な取り込みがされていると考えられること、また、中通では解析の結果、ウォッシュアウトにより取り込まれる成分の寄与が高いものとして、nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、nss-Ca<sup>2+</sup>および夏期のNH<sub>4</sub><sup>+</sup>であるということを報告した。

本年度は、これらの結果を踏まえ、新たにアンダーセンエアサンプラーを用いて大気中の粉じんを粒径別に採取し、これと降水成分の関係について解析を行ったので報告する。

### 2 調査方法

#### 2.1 調査地点

調査地点を図1に、調査地点の特徴及び調査項目を表1に示した。

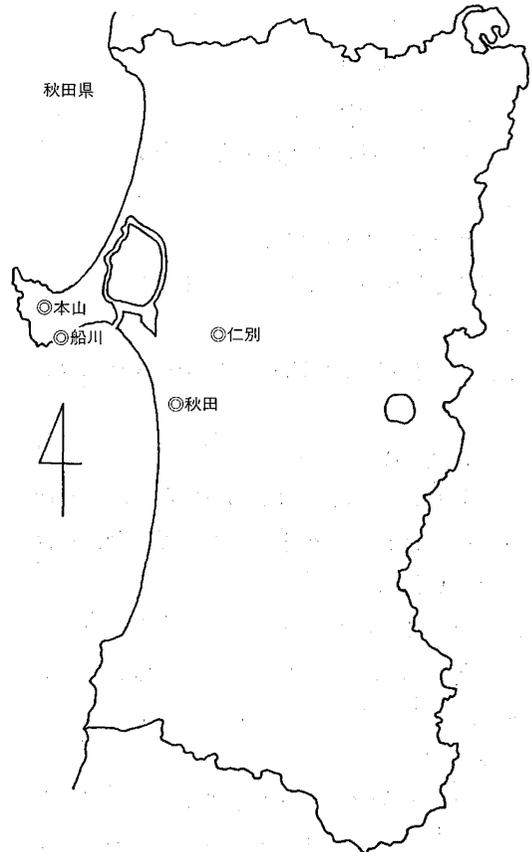


図1 調査地点

\*現本荘保健所

表1 調査地点及び調査項目

地点	設置場所	調査地点の特徴	調査項目	
			降水	アンダーセン
中通	秋田市 秋田保健所屋上	海岸から約5 kmの市街地、標高46 m。	○	○
仁別	秋田市 旭川ダム管理事務所屋上	中通から北東へ約12 kmの近山間部、海岸から約20 km、標高約115 m。	○	○
船川	男鹿市 船川局舎屋上	中通から北西へ約28 km海岸から0.3 km。	○	○
本山	男鹿市 NTT 本山無線中継所地内	中通から北西へ約40 kmの山頂。海岸からの距離約3 km、標高約650 m。	○	

## 2.2 調査期間

### 2.2.1 降雨調査

平成4年5月から平成4年10月の26週を対象とした。

### 2.2.2 粒子状粉じん調査

平成4年10月から平成4年11月の8週を対象とした。

これと合わせ、この期間中の降雨も採取した。

## 2.3 採取方法

原則として月曜日14時から次週月曜日14時までの7日間を1検体とした。採取装置を図2に示した。

### 2.3.1 降雨調査

ろ過式採取器を用い、得られた試料は0.8  $\mu\text{m}$ のメンブランフィルターでろ過したものを検体とした。

### 2.3.2 粒子状粉じん調査

アンダーセンエアースンプラーを用い、11  $\mu\text{m}$ 以上(ステージ0)、2.1  $\mu\text{m}$ 以上~11  $\mu\text{m}$ 未満(ステージ4)、2.1  $\mu\text{m}$ 未満(ステージB F)の3ステージとし、28.3 l/minで大気を

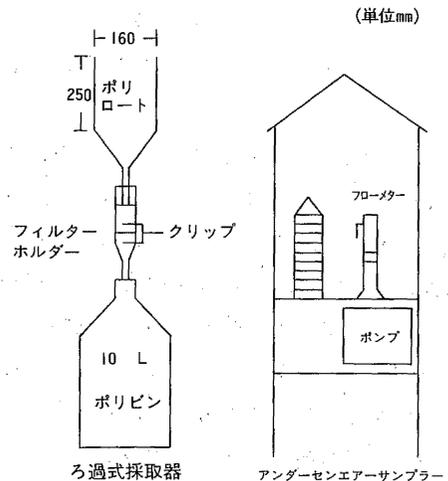


図2 採取装置

吸引した。

捕集ろ紙にはFluoropore-80mm $\phi$ (住友電工製、4フッ化エチレン樹脂製フィルターAF07P)を用いた。試料採取前後のろ紙は、50%-CaCl<sub>2</sub>で調湿済みのデシケータに48時間放置し恒量とした後、粉じん量を測定した。粉じん採取後のろ紙は、5mm幅程度に裁断し、各ステージ毎に50mlの目盛り付き比色試験管に入れた。これにアセトン2mlを加え、

超音波抽出 (10min) した。これに、水 2 ml、4 ml、10ml と段階的に加えながら、更に 3 回抽出を行ったものを試料とした。

## 2. 4 調査項目

### 2. 4. 1 降雨調査

降水量、pH、電気伝導度 (EC)、 $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{Cl}^-$ 、 $\text{Na}^+$ 、 $\text{K}^+$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ 、 $\text{NH}_4^+$

### 2. 4. 2 粒子状粉じん調査

粉じん量、 $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{Cl}^-$ 、 $\text{Na}^+$ 、 $\text{K}^+$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ 、 $\text{NH}_4^+$

## 2. 5 分析方法

分析方法を表 2 に示す。

表 2 分析方法

分析項目	分析方法
pH	JIS K0102.12.1
EC	JIS K0102.13
$\text{SO}_4^{2-}$	イオンクロマト法
$\text{NO}_3^-$	〃
$\text{Cl}^-$	〃
$\text{Na}^+$	〃
$\text{K}^+$	〃
$\text{Ca}^{2+}$	〃
$\text{Mg}^{2+}$	〃
$\text{NH}_4^+$	〃

## 3 調査結果及び考察

### 3.1 降雨調査結果

月別の降水量は、図 3 に示したとおりである。地点別には降水量に多少の差はあるが、月別推移は概ね似通ったパターンを示した。検体毎でも、地点間に多少の差はあるが、週毎の変動は概ね似通った傾向を示した。

月別の平均 pH は、図 4 に示したとおりである。各地点とも、概ね pH 4.5~5.0 の範囲で推移していた。期間平均では、仁別が pH 4.63 と最も低い値を示し、最高は中通の pH 4.85 であ

った。月別の最高は、本山 pH 5.78 (10月) で、最低は、仁別 pH 4.39 (7月) であった。

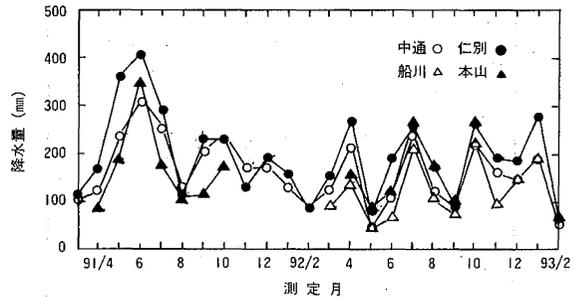


図 3 降水量の推移

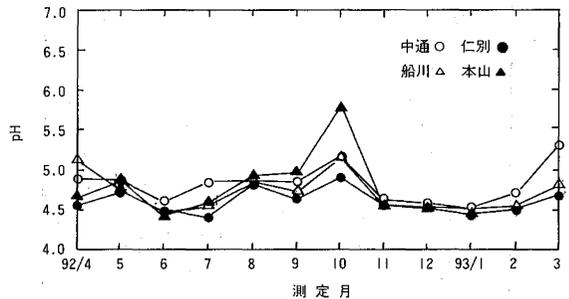


図 4 pH の推移

降水の平均成分濃度は、表 3 に示したとおりである。海塩成分量の指標とされる  $\text{Na}^+$  は、海岸に最も近い船川が高く、 $80.8 \mu\text{eq}/\ell$  ( $1.86 \text{mg}/\ell$ ) と中通 ( $40.5 \mu\text{eq}/\ell$ ) の 2 倍の濃度であった。 $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{Cl}^-$ 、 $\text{K}^+$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Mg}^{2+}$  も海塩の影響を考えると、船川が最も高くなると考えられるが、 $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{Ca}^{2+}$  は中通が最も高い平均値を示した。また、海塩由来の影響が全くない  $\text{NH}_4^+$  も、中通が最も高かった。 $\text{NO}_3^-$  は船川が高かったが、地点間の差

表3 降水中の平均成分濃度

期間 \ 項目		pH	H <sup>+</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Total
		μeq/l	μeq/l	μeq/l	μeq/l	μeq/l	μeq/l	μeq/l	μeq/l	μeq/l	μeq/l	μeq/l
平成3年度	中通S (5月~10月)	5.08	8.3	50.7	12.0	36.3	33.2	1.6	12.8	9.1	34.9	198.7
	仁別S ( " )	4.85	14.1	42.9	12.8	30.8	28.1	1.5	8.2	7.7	22.5	168.6
	本山S ( " )	4.97	10.6	42.6	11.6	43.1	38.6	3.4	9.2	9.3	19.1	187.5
	中通W (11月~12月)	4.88	13.1	113.2	18.6	357.1	317.9	7.8	59.1	74.4	34.7	996.1
	仁別W ( " )	4.52	30.3	91.6	15.8	252.7	221.9	6.1	17.6	49.9	20.8	706.8
	本山W ( " )	4.63	23.7	82.4	15.4	242.4	209.7	6.4	17.7	47.6	21.0	666.3
4年度	中通S (5月~10月)	4.85	14.0	52.6	16.2	45.8	40.5	2.2	15.6	11.0	34.8	232.7
	仁別S ( " )	4.63	23.6	49.3	17.4	54.8	45.6	2.1	7.8	11.8	29.3	241.7
	船川S ( " )	4.74	18.4	51.0	18.9	92.2	80.8	3.3	13.7	20.0	28.1	326.4
	本山S ( " )	4.81	15.5	43.9	15.7	56.0	47.6	4.2	8.4	12.4	24.5	228.3

表4 非海塩粒子の平均濃度

期間 \ 項目		nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	nss-K <sup>+</sup>	nss-Ca <sup>2+</sup>	nss-Mg <sup>2+</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Total
		μeq/l	μeq/l	μeq/l	μeq/l	μeq/l	μeq/l	μeq/l
平成3年度	中通S (5月~10月)	46.7	12.0	0.9	11.3	1.5	34.9	107.3
	仁別S ( " )	39.5	12.8	0.9	7.0	1.3	22.5	83.9
	本山S ( " )	38.0	11.6	2.5	7.5	0.5	19.1	79.1
	中通W (11月~12月)	75.0	18.6	1.1	45.3	1.9	34.7	176.6
	仁別W ( " )	65.0	15.8	1.4	7.9	-	20.8	111.0
	本山W ( " )	57.2	15.4	1.9	8.6	-	21.0	104.1
4年度	中通S (5月~10月)	47.7	16.2	1.4	13.9	1.7	34.8	115.7
	仁別S ( " )	43.8	17.4	1.1	5.9	1.4	29.3	98.9
	船川S ( " )	41.3	18.9	1.6	10.2	1.6	28.1	101.7
	本山S ( " )	38.2	15.7	3.2	6.4	1.5	24.5	89.5

\*-は負の値を示す

は少なかった。全試料による $\text{Na}^+$  ( $\text{mg}/\ell$ ) に対する $\text{Cl}^-$  ( $\text{mg}/\ell$ ) の比は、1.790と海塩の組成比1.798に近いことから、 $\text{Na}^+$ を指標として各成分における非海塩成分量を計算し、表4に示した。中通では、 $\text{nss-SO}_4^{2-}$  ( $47.7\mu\text{eq}/\ell$ )、 $\text{nss-Ca}^{2+}$  ( $13.9\mu\text{eq}/\ell$ )、 $\text{NH}_4^+$  ( $34.8\mu\text{eq}/\ell$ ) が、他の地点と比べ最も高濃度であった。これら非海塩成分の総量は、中通 ( $116\mu\text{eq}/\ell$ ) が最も高く、本山 ( $90\mu\text{eq}/\ell$ ) が最も少なかった。

本調査での、降水中の平均成分濃度を、平成3年度の同時期と比較すると、 $\text{nss-SO}_4^{2-}$ では、中通、本山で、ほぼ同じであったが、仁別では10%ほど高い濃度となっており、 $\text{NO}_3^-$ は、中通、仁別、船川とも30%ほど高い濃度であった。 $\text{nss-Ca}^{2+}$ は、中通で20%ほど高い濃度であったが、逆に仁別、本山では15%ほど低い濃度であった。 $\text{NH}_4^+$ は、中通で同じであったが、仁別、本山で30%ほど高い濃度であった。

### 3.2 ウオッシュアウトに関する考察

非海塩成分の主たる発生源と考えられる『中通』と、中通のバックグラウンド地としての『本山』の平均の非海塩成分濃度を比較すると、表5のようになる。表からわかるように、平成4年度結果も平成3年度と同様、中通の $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 、 $\text{nss-Ca}^{2+}$ 、 $\text{nss-Mg}^{2+}$ 、 $\text{NH}_4^+$ の濃度が、高所である本山よりも高かった。このことから、平成3年度に引き続き中通では、これらの成分の比較的多くの量が、ウオッシュアウトにより取り込まれていることが示唆された。平成3年度と4年度を比較すると、両地点における濃度、中通/本山の比率にそれほど大きな変化はなかった。

前述のように、各地点における降水量には多少の差はあるものの、週毎の変動は似た傾向があり、中通、仁別、船川、本山の測定地点では、同一の雨雲によりもたらされる降雨が多いと考えることができる。ここで、高所である本山では、ウオッシュアウトによる取

表5 中通と本山の比較

イオン項目	時期		夏 期				冬 期			
	項目		平成3年度		平成4年度		平成3年度			
	地点		平均濃度 $\mu\text{eq}/\ell$	濃度比	平均濃度 $\mu\text{eq}/\ell$	濃度比	平均濃度 $\mu\text{eq}/\ell$		濃度比	
	中通	本山	中通 / 本山	中通 / 本山	中通 / 本山	中通 / 本山	中通	本山	中通 / 本山	
$\text{nss-SO}_4^{2-}$	46.7	38.0	1.23	47.7	38.2	1.25	75.0	57.2	1.31	
$\text{NO}_3^-$	12.0	11.6	1.03	16.2	15.7	1.03	18.6	15.4	1.21	
$\text{nss-K}^+$	0.9	2.5	0.36	1.4	3.2	0.44	1.1	1.9	0.58	
$\text{nss-Ca}^{2+}$	11.3	7.2	1.57	13.9	6.4	2.17	45.3	8.6	5.27	
$\text{nss-Mg}^{2+}$	1.5	0.5	3.00	1.7	1.5	1.13	1.9	-	-	
$\text{NH}_4^+$	34.9	19.1	1.83	34.8	24.5	1.42	34.7	21.0	1.65	

り込みが無く、且つ低地である中通（或いは仁別、船川）の降水のレインアウトによる濃度が等しいと仮定すると、中通（或いは仁別、船川）でのウォッシュアウトによる取り込みがない場合には、両地点の降水は全く同じ成分組成をもつことから、各成分濃度における地点間の関係は、傾き； $K=1$ 、相関係数； $r=1$ となる。

そこで、高所である本山をバックグラウンド

として、中通、仁別および船川における降雨中の非海塩成分濃度を検体毎にプロットし、相関散布図を作成した（解析の精度を高めるために、平成3年度のデータと4年度のデータを合わせ、先の解析の再現性を検討した。なお、標準偏差士3σから外れたデータは、異常値として棄却した）。この結果を、表6および図5.1～図5.4に示した。

表6 地点間相関（その1）

季節	イオン項目	年度 地点 係数	平成3年度		平成3年・4年度					
			中通一本山		中通一本山		仁別一本山		船川一本山	
			傾き (K)	相関係数 (r)	傾き (K)	相関係数 (r)	傾き (K)	相関係数 (r)	傾き (K)	相関係数 (r)
夏	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>		0.43	0.60**	0.42	0.73**	0.66	0.88**	0.59	0.90**
	NO <sub>3</sub>		0.94	0.87**	0.92	0.80**	0.98	0.83**	0.80	0.91**
	nss-Ca <sup>2+</sup>		0.24	0.63**	0.39	0.64**	0.82	0.73**	0.75	0.87**
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>		0.27	0.35	0.35	0.48**	0.62	0.65**	0.61	0.75**
冬	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>		0.35	0.36	-	-	-	-	-	-
	NO <sub>3</sub>		1.21	0.83**	-	-	-	-	-	-
	nss-Ca <sup>2+</sup>		0.02	0.66	-	-	-	-	-	-
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>		0.82	0.85**	-	-	-	-	-	-

\*\*は危険率1%で有意

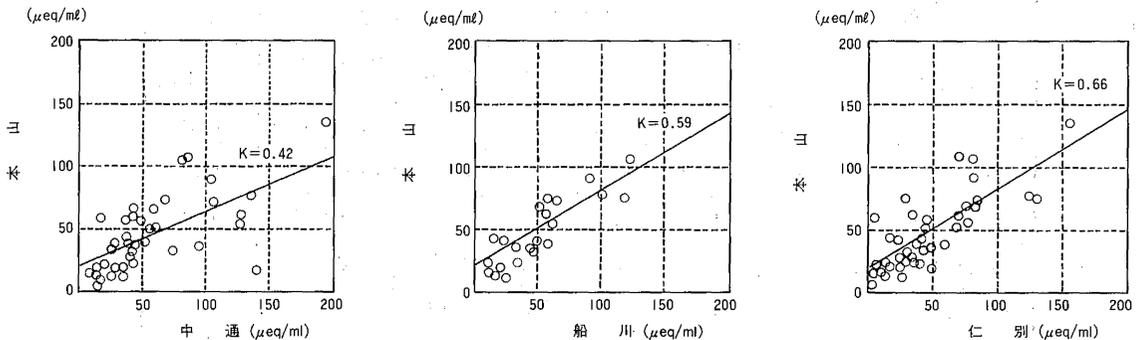


図5.1 nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の相関散布図

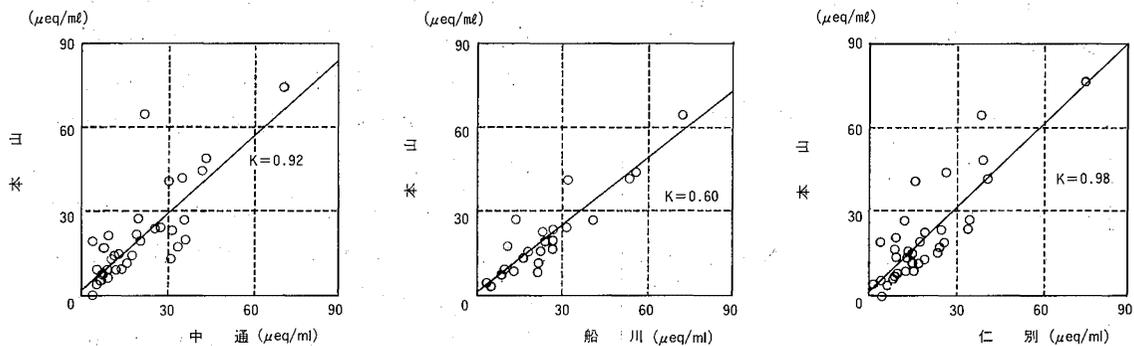


図 5.2  $\text{NO}_3^-$  の相関散布図

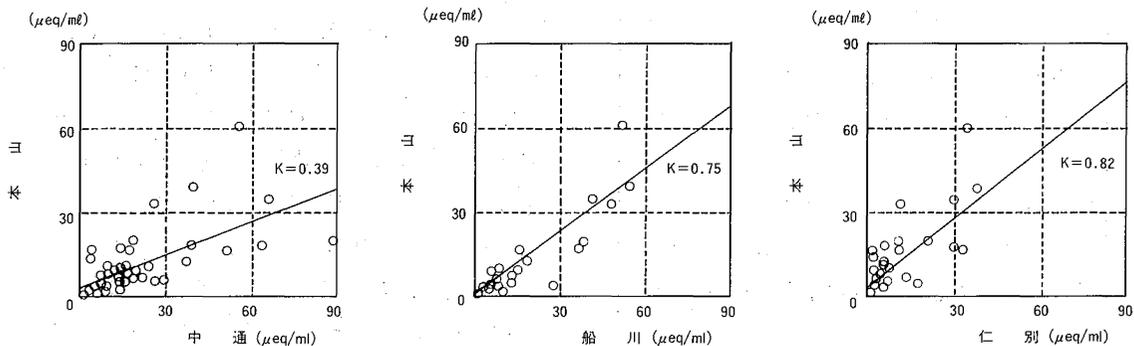


図 5.3  $\text{nss-Ca}^{2+}$  の相関散布図

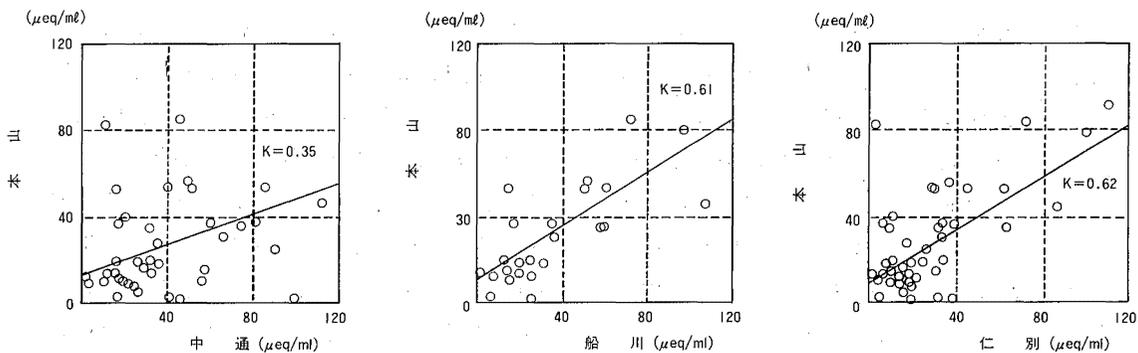


図 5.4  $\text{NH}_4^+$  の相関散布図

相関係数および最小二乗法による傾きKについては、つぎのように考えることができる<sup>3)</sup>。

◎ 相関がある場合

傾きKが1に近いとき

レインアウトにより大部分が取り込まれている

傾きKが1より小さいとき

レインアウトとウォッシュアウトの両方の取り込み方が寄与している。Kが小さいほどウォッシュアウトの寄与が大きい

相関係数rが小さいほどウォッシュアウトによる取り込みの寄与が大きい

◎ 相関がない場合

ウォッシュアウトによる取り込みが大きな寄与をし、局地的な取り込みが起きている

### 3.2.1 地点間相関 (その1)

中通一本山間における、 $\text{NO}_3^-$ は相関がよく ( $r=0.80$ )、傾き ( $K=0.92$ ) が1に近いことからレインアウトの寄与が高いと考えられる。 $\text{nss-SO}_4^{2-}$ は、相関 ( $r=0.73$ ) は比較的良いが、傾き ( $K=0.42$ ) は小さく、ウォッシュアウトによる取り込みの影響が大きいと考えられる。 $\text{nss-Ca}^{2+}$  ( $r=0.64$ ,  $K=0.39$ )、 $\text{NH}_4^+$  ( $r=0.48$ ,  $K=0.35$ ) は相関係数r、傾きKが共に小さいことから、ウォッシュアウトによる影響が大きいと考えられる。

船川一本山間における、 $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{nss-Ca}^{2+}$ 、 $\text{NH}_4^+$ は、図からもわかるように良い相関が認められた。しかし、 $\text{nss-SO}_4^{2-}$ および $\text{NH}_4^+$ は、傾き ( $K=0.59$ および $0.61$ ) が小さく、船川では、上空650m以降に降水中に取り込まれるこれらの量が多く、ウォッシュアウトによる影響が比較的大きいものと考えられる。

仁別一本山間における、 $\text{nss-SO}_4^{2-}$ は相関は高かったが ( $r=0.88$ )、傾き ( $K=0.66$ ) が小さく、ウォッシュアウトによる影響が比較的大きいと考えられた。 $\text{NO}_3^-$ は、相関 ( $r=0.83$ ) が良く、傾き ( $K=0.98$ ) が1に近いことから、レインアウトによる取り込みと考えられた。 $\text{nss-Ca}^{2+}$ は、比較的相関がよく ( $r=0.73$ )、傾き ( $K=0.82$ ) が1に近かった。表4の年平均値から平成3年度、4年度の仁別/本山の値はそれぞれ1.07、1.08であり、さらに、散布図では $30\mu\text{eq/ml}$ 以下と中通、船川に比べ低濃度の分布が多いことから、ウォッシュアウトによる取り込みは小さいと考えられる。 $\text{NH}_4^+$ では、ばらつきが大きく相関が低いことから、ウォッシュアウトによる影響が大きいと考えられる。

3.2.2 地点間相関 (その2)

中通と仁別および船川の降水中の非海塩成分の相関散布図の結果を、図6および表7に示した。両地点とも $\text{nss-SO}_4^{2-}$ は、相関が高く ( $r=0.9$ )、傾き ( $K=0.7$ ) が小さかったことから、中通ではウォッシュアウトにより取り込まれる成分量が、近隣地域である仁別、船川よりも多いと考えられる。 $\text{NO}_3^-$ は、相関が高く ( $r\approx 0.9$ )、傾き ( $K$ ) も1に近いことから、降水成分濃度に地点間の差がないことがわかる。さらに、3.2.1の結果と合わせて考えると、やはりレインアウトによる取り込みと考えることができる。 $\text{nss-Ca}^{2+}$ 、 $\text{NH}_4^+$ は、傾きが小さく相関も低いことから、中通

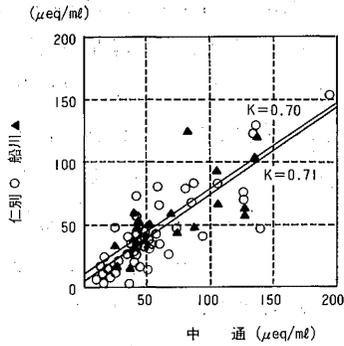


図 6.1 nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の相関散布図

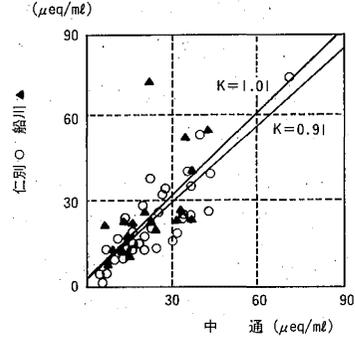


図 6.2 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>の相関散布図

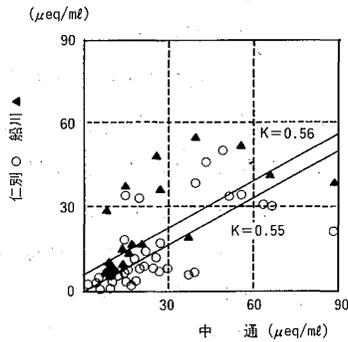


図 6.3 nss-Ca<sup>2+</sup>の相関散布図

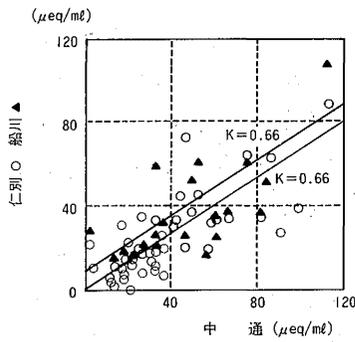


図 6.4 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>の相関散布図

表 7 地点間相関 (その 2)

季節	イオン項目	年度	平成 3 年度		平成 3 年・4 年度			
		地点	中通-仁別		中通-仁別		中通-船川	
		係数	傾き (K)	相関係数 (R)	傾き (K)	相関係数 (R)	傾き (K)	相関係数 (R)
夏 期	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>		0.62	0.83**	0.70	0.90**	0.71	0.90**
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>		1.04	0.95**	0.91	0.88**	1.01	0.86**
	nss-Ca <sup>2+</sup>		0.59	0.82**	0.55	0.82**	0.56	0.68**
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>		0.58	0.83**	0.66	0.84**	0.66	0.80**
冬 季	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>		0.74	0.72	-	-	-	-
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>		0.90	0.94**	-	-	-	-
	nss-Ca <sup>2+</sup>		0.06	0.37	-	-	-	-
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>		0.73	0.85**	-	-	-	-

\*\*は危険率 1% で有意

でのウォッシュアウトにより取り込まれた量は、局地的な影響が大きいと考えられた。ウォッシュアウトによる影響が大きいと思われるこれらの成分のうち、 $\text{nss-SO}_4^{2-}$ は、図からもわかるように相関がよいことから、仁別、船川でウォッシュアウトにより取り込まれた  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ は、中通と同じような挙動を示しているものと考えることができ、中通で発生した  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ が、広範囲に拡散している可能性が考えられる。

以上をまとめると、各地点での降水成分の取り込み方については、表8のようになる。

市街地である中通では、 $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 、 $\text{nss-Ca}^{2+}$ 、 $\text{NH}_4^+$ は、ウォッシュアウトによる取り込みの寄与の大きく、 $\text{NO}_3^-$ はレインアウトによるものと考えられる。一方、仁別、船川では、各成分ともレインアウトによる取り込みの寄与が方が大きいと考えられたが、その中でも  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ および  $\text{NH}_4^+$ は、ウォッシュアウトによる影響が比較的大きいものと考えられた。

### 3.3 粒子状粉じんの調査結果の概要

粒子状粉じんの調査結果は、表9～表12に示したとおりである。期間中の平均粉じん量は中通  $22\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、仁別が  $14\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、船川  $19\mu\text{g}/\text{m}^3$ と中通が最も多く、このうち可溶性成分は、中通  $6.8\mu\text{g}/\text{m}^3$  (31%)、仁別  $5.6\mu\text{g}/\text{m}^3$  (40%)、船川  $8.0\mu\text{g}/\text{m}^3$  (42%)であった。これら可溶性成分のステージ別の平均値はステージ0に5～10%、ステージ4に30～40%、ステージBFに50～55%と微小粒子側に多かった。アンダーセンエアースンプラーで採取される粉じんは  $2\mu\text{m}$ を境にして、 $2\mu\text{m}$ 以上の粗大粒子は、機械的粉砕や自然発生源から生じた粒子、 $2\mu\text{m}$ 以下の微小粒子は、燃焼過程や大気化学反応により生じる二次生成粒子といわれており<sup>9)</sup>、可溶性成分のうち半分以上は微小粒子側に存在していた。

$\text{Cl}^-$  ( $\mu\text{eq}/\ell$ ) /  $\text{Na}^+$  ( $\mu\text{eq}/\ell$ ) の平均は、中通のステージ4で0.86、仁別のステージ0で0.79と海塩の組成比1よりは幾分低かった。ステージ4およびステージBFの  $\text{Na}^+$

表8 各地点における降水成分の取り込まれ方

地点 項目	中 通	仁 別	船 川	中通の近隣地域への影響
$\text{nss-SO}_4^{2-}$	レインアウト ∧ ウォッシュアウト	レインアウト ∨ ウォッシュアウト	レインアウト ∨ ウォッシュアウト	中通で発生する $\text{nss-SO}_4^{2-}$ が、広域的に拡散している可能性がある。
$\text{NO}_3^-$	レインアウト	レインアウト	レインアウト	—
$\text{nss-Ca}^{2+}$	レインアウト ∧ ウォッシュアウト	レインアウト	レインアウト ∨ ウォッシュアウト	局地的な影響と考えられる。
$\text{NH}_4^+$	レインアウト ∧ ウォッシュアウト	レインアウト ∨ ウォッシュアウト	レインアウト ∨ ウォッシュアウト	—

は、二次生成粒子に起因するものも含まれるという報告があるが<sup>45)</sup>、仮にNa<sup>+</sup>を指標とした海塩量から、各ステージ毎に海塩粒子量の含有率を計算すると、ステージ0およびステージ4では、中通ステージ0が70%であった他は、80%をしめていた。ステージBFでは、中通18%、船川16%、仁別14%、ステージBFにおける量は大部分が海塩以外に起因する粒子といえる。

SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>は、ステージBFに最も多く、80%以上が微小粒子であった。NO<sub>3</sub><sup>-</sup>はステージ4に最も多く仁別、船川では90%前後がこのステージにあったが、中通では、ステージ4

に65%、ステージBFに33%で微小粒子側の比率が高かった。門脇ら<sup>6)</sup>の報告に寄れば、粒子状粉じんのNO<sub>3</sub><sup>-</sup>は、微小粒子ではHNO<sub>3</sub>とNH<sub>3</sub>(g)の反応により生じたNH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>が、粗大粒子では、HNO<sub>3</sub>と海塩粒子との反応によるNaNO<sub>3</sub>が存在すると報告されている。このことから、中通ではNH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>が比較的多く存在していると考えられる。Cl<sup>-</sup>、Na<sup>+</sup>、Ca<sup>2+</sup>、Mg<sup>2+</sup>はステージ0とステージ4の粗大粒子側に多く、80%がこのステージに分布していた。K<sup>+</sup>は、ステージBFに多かった。NH<sub>4</sub><sup>+</sup>は95%以上がステージBFに含まれていた。

表9 粉じん調査結果

ステージ	地点名	採取開始	採取終了	粉じん量 μg/m <sup>3</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> ng/m <sup>3</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> ng/m <sup>3</sup>	Cl <sup>-</sup> ng/m <sup>3</sup>	Na <sup>+</sup> ng/m <sup>3</sup>	K <sup>+</sup> ng/m <sup>3</sup>	Ca <sup>2+</sup> ng/m <sup>3</sup>	Mg <sup>2+</sup> ng/m <sup>3</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> ng/m <sup>3</sup>
0	中通	92/09/28	92/10/05	1.2	35.1	35.1	119.9	71.5	6.3	58.9	9.1	4.2
		92/10/05	92/10/12	2.8	18.9	10.5	35.7	30.1	1.4	22.4	3.5	3.5
		92/10/12	92/10/19	2.4	31.5	16.4	24.0	17.8	6.2	54.1	4.1	6.8
		92/10/19	92/10/26	1.5	48.1	12.2	148.0	87.7	7.9	44.6	12.2	1.4
		92/10/26	92/11/02	2.1	89.5	10.5	261.4	170.2	10.5	57.9	19.3	12.3
		92/11/02	92/11/09	2.0	63.6	18.9	216.6	142.7	10.3	60.2	17.2	5.2
		92/11/09	92/11/16	2.6	99.0	23.4	214.2	194.4	12.6	48.6	19.8	3.6
		92/11/16	92/11/24	2.4	123.6	16.8	300.6	195.3	13.7	50.4	19.8	3.1
		平均		2.1	64.6	18.0	167.1	114.8	8.7	49.7	13.2	5.0
	仁別	92/09/28	92/10/05	1.0	16.8	12.6	72.7	56.6	3.5	10.5	6.3	3.5
		92/10/05	92/10/12	0.9	13.4	12.0	42.9	38.0	2.8	9.1	3.5	3.5
		92/10/12	92/10/19	0.4	9.6	8.3	14.5	14.5	4.8	15.2	4.1	2.1
		92/10/19	92/10/26	0.5	23.0	9.3	69.0	43.1	4.3	13.7	7.2	1.4
		92/10/26	92/11/02	0.8	38.6	7.0	151.1	110.7	8.8	15.8	12.3	3.5
		92/11/02	92/11/09	0.8	29.2	10.3	125.4	84.2	5.2	15.5	10.3	3.4
		92/11/09	92/11/16	0.9	30.4	19.7	98.3	123.3	25.0	19.7	8.9	3.6
		92/11/16	92/11/24	0.5	51.9	15.3	143.4	119.0	7.6	12.2	12.2	3.1
		平均		0.7	27.1	11.8	90.6	74.4	7.7	13.9	8.2	3.0
	船川	92/09/28	92/10/05	2.7	39.3	18.2	136.0	95.4	7.7	49.1	11.9	5.6
		92/10/05	92/10/12	3.5	40.6	25.2	160.5	116.3	9.8	38.5	12.6	4.9
		92/10/12	92/10/19	0.6	23.2	15.4	42.1	30.2	4.9	19.7	4.9	4.2
		92/10/19	92/10/26	1.8	43.1	17.4	98.7	81.3	7.0	30.6	11.1	3.5
		92/10/26	92/11/02	0.1	53.2	15.9	239.2	163.0	10.6	26.6	17.7	3.5
		92/11/02	92/11/09	1.8	43.5	13.9	191.3	128.7	8.7	26.1	8.7	3.5
		92/11/09	92/11/16	1.5	59.0	33.0	227.4	164.9	13.9	27.8	15.6	3.5
		92/11/16	92/11/24	2.3	86.4	34.0	365.8	197.6	18.5	32.4	20.1	3.1
		平均		1.8	49.2	21.9	185.6	123.4	10.3	31.4	12.9	4.0

ステージ	地点名	採取開始	採取終了	粉じん量 μg/m <sup>3</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> ng/m <sup>3</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> ng/m <sup>3</sup>	Cl <sup>-</sup> ng/m <sup>3</sup>	Na <sup>+</sup> ng/m <sup>3</sup>	K <sup>+</sup> ng/m <sup>3</sup>	Ca <sup>2+</sup> ng/m <sup>3</sup>	Mg <sup>2+</sup> ng/m <sup>3</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> ng/m <sup>3</sup>
4	中通	92/09/28	92/10/05	2.3	265.7	347.1	883.5	758.7	48.4	110.8	87.6	17.5
		92/10/05	92/10/12	8.2	45.5	56.7	149.8	102.2	9.8	39.2	12.6	5.6
		92/10/12	92/10/19	7.2	214.9	329.3	141.0	182.8	35.6	136.2	30.1	22.6
		92/10/19	92/10/26	6.8	301.8	413.2	1,099.5	758.2	43.8	132.2	91.3	7.0
		92/10/26	92/11/02	7.1	570.3	408.8	1,733.6	1,244.1	64.9	193.0	156.2	31.6
		92/11/02	92/11/09	8.8	426.2	483.0	1,615.6	1,010.6	53.3	154.7	127.2	34.4
		92/11/09	92/11/16	10.8	561.6	716.4	1,573.1	1,200.5	64.8	243.0	149.4	36.0
		92/11/16	92/11/24	9.4	589.0	485.2	1,507.5	1,278.6	74.8	186.2	152.6	45.8
		平均		7.6	375.1	405.3	1,092.3	822.8	49.8	149.8	101.5	25.5
	仁別	92/09/28	92/10/05	6.7	177.6	248.2	724.9	590.0	39.1	37.0	65.0	3.5
		92/10/05	92/10/12	4.9	199.2	366.7	621.4	483.5	50.7	77.4	59.1	9.9
		92/10/12	92/10/19	4.9	113.0	261.1	172.9	150.8	39.3	42.7	24.1	7.6
		92/10/19	92/10/26	4.1	191.2	348.6	765.5	484.5	36.7	52.5	64.0	11.5
		92/10/26	92/11/02	6.3	349.5	402.2	1,431.5	918.6	50.9	89.6	112.4	15.8
		92/11/02	92/11/09	6.2	316.1	420.9	1,185.3	826.3	44.7	85.9	101.4	15.5
		92/11/09	92/11/16	7.7	398.4	709.3	805.8	793.3	53.6	159.0	100.1	23.2
		92/11/16	92/11/24	6.2	379.8	439.3	1,569.6	953.3	45.8	106.8	114.4	24.4
		平均		5.9	267.4	399.4	921.6	655.3	45.1	81.7	80.6	14.1
	船川	92/09/28	92/10/05	8.8	309.9	369.5	1,321.7	985.8	53.3	87.6	110.8	16.1
		92/10/05	92/10/12	7.2	356.0	550.1	1,321.0	988.2	59.6	132.5	113.5	7.7
		92/10/12	92/10/19	5.2	207.8	460.6	276.6	313.1	36.5	70.2	42.1	19.7
		92/10/19	92/10/26	6.4	677.9	1,035.9	1,901.5	858.6	55.6	121.7	111.2	24.3
		92/10/26	92/11/02	8.3	508.5	503.2	1,908.4	1,385.6	67.3	131.1	164.8	28.4
		92/11/02	92/11/09	7.8	454.0	600.1	2,014.1	1,210.6	62.6	125.2	149.6	38.3
		92/11/09	92/11/16	10.4	590.2	888.8	2,034.4	1,360.9	71.2	192.7	171.9	60.8
		92/11/16	92/11/24	9.4	583.5	531.0	2,553.1	1,546.7	80.3	176.0	185.2	43.2
		平均		8.0	463.4	617.0	1,682.0	1,088.8	61.1	130.5	132.0	30.1
BF	中通	92/09/28	92/10/05	2.9	1,181.5	108.0	39.3	147.9	68.7	54.0	15.4	398.3
		92/10/05	92/10/12	10.6	364.0	120.4	42.7	93.8	23.1	26.6	11.2	171.5
		92/10/12	92/10/19	21.7	2,189.1	249.9	37.0	68.5	167.7	78.7	10.3	586.0
		92/10/19	92/10/26	14.6	1,765.0	269.5	93.4	132.2	106.4	61.1	16.5	484.4
		92/10/26	92/11/02	10.6	2,274.1	140.4	38.6	187.8	98.3	66.7	22.8	824.7
		92/11/02	92/11/09	12.3	2,050.4	285.3	46.4	194.2	101.4	55.0	22.3	802.6
		92/11/09	92/11/16	16.7	3,842.8	349.2	54.0	237.6	174.6	73.8	30.6	1,276.1
		92/11/16	92/11/24	12.2	3,088.3	196.8	54.9	177.0	120.5	50.4	21.4	1,031.5
		平均		12.7	2,107.9	214.3	50.7	154.9	107.8	58.1	18.8	701.7
	仁別	92/09/28	92/10/05	7.4	924.8	27.3	14.0	103.5	28.0	11.9	9.8	342.5
		92/10/05	92/10/12	3.9	1,825.5	21.8	15.5	107.0	46.4	26.0	12.7	570.7
		92/10/12	92/10/19	10.4	1,648.0	31.0	12.0	40.6	102.6	22.0	5.5	460.8
		92/10/19	92/10/26	7.0	1,433.2	28.8	20.8	89.8	58.2	20.1	12.2	410.4
		92/10/26	92/11/02	6.2	1,803.8	28.1	26.3	142.3	65.0	21.1	15.8	667.4
		92/11/02	92/11/09	6.3	1,755.6	39.5	18.9	139.1	53.3	18.9	15.5	663.1
		92/11/09	92/11/16	10.2	3,242.7	42.9	23.2	142.9	114.3	37.5	19.7	1,088.0
		92/11/16	92/11/24	8.4	2,885.9	35.1	16.8	146.4	111.3	27.5	19.8	893.8
		平均		7.5	1,954.7	31.9	18.4	114.5	73.1	23.2	14.0	641.2
	船川	92/09/28	92/10/05	9.2	1,164.6	61.0	37.9	138.8	54.0	42.8	15.4	389.1
		92/10/05	92/10/12	8.1	1,796.9	60.3	21.0	179.4	70.1	44.2	22.4	541.0
		92/10/12	92/10/19	14.5	2,377.2	90.6	16.8	68.8	157.3	27.4	7.7	597.5
		92/10/19	92/10/26	8.4	1,669.3	100.8	20.9	102.9	72.3	32.0	12.5	464.4
		92/10/26	92/11/02	7.3	1,952.7	62.0	24.8	166.6	79.7	26.6	19.5	742.4
		92/11/02	92/11/09	7.2	1,758.4	113.1	43.5	175.7	69.6	26.1	19.1	702.7
		92/11/09	92/11/16	12.5	4,051.5	102.4	33.0	194.4	163.2	41.7	27.8	1,225.5
		92/11/16	92/11/24	9.2	3,013.1	72.5	21.6	185.2	115.8	32.4	21.6	970.9
		平均		9.5	2,237.8	82.8	27.4	152.0	98.1	34.1	18.3	709.0

表 10 降水調査結果

地点名	採取開始	採取終了	降水量 mm	pH	EC $\mu\text{S}/\text{cm}$	$\text{SO}_4^{2-}$ mg/ℓ	$\text{NO}_3^-$ mg/ℓ	$\text{Cl}^-$ mg/ℓ	$\text{Na}^+$ mg/ℓ	$\text{K}^+$ mg/ℓ	$\text{Ca}^{2+}$ mg/ℓ	$\text{Mg}^{2+}$ mg/ℓ	$\text{NH}_4^+$ mg/ℓ
中通	92/09/28	92/10/05	16.5	5.43	19.3	2.29	0.95	2.31	1.34	0.11	0.46	0.19	0.60
	92/10/05	92/10/12	23.7	5.46	8.4	1.00	0.42	0.76	0.39	0.03	0.21	0.05	0.25
	92/10/12	92/10/19	0.0										
	92/10/19	92/10/26	40.8	4.99	45.8	2.60	0.58	8.91	5.03	0.31	0.44	0.65	0.33
	92/10/26	92/11/02	52.6	4.53	58.9	3.72	1.24	8.66	5.02	0.27	0.48	0.66	0.66
	92/11/02	92/11/09	35.5	4.48	55.8	3.95	1.66	7.66	4.17	0.27	0.47	0.55	0.70
	92/11/09	92/11/16	47.7	4.71	56.6	3.93	1.03	9.87	5.38	0.29	0.53	0.70	0.59
	92/11/16	92/11/24	51.4	4.72	52.1	3.51	0.83	9.42	5.10	0.28	0.47	0.66	0.54
	平均		268.2	4.71	47.9	3.25	0.99	7.84	4.35	0.25	0.45	0.57	0.54
仁別	92/09/28	92/10/05	17.6	4.91	15.6	1.54	0.80	0.92	0.55	0.07	0.17	0.09	0.16
	92/10/05	92/10/12	28.3	5.24	16.1	0.74	0.25	3.03	1.69	0.07	0.09	0.21	0.03
	92/10/12	92/10/19	3.7	4.52	31.3	2.37	2.01	1.54	1.01	0.23	0.23	0.12	0.49
	92/10/19	92/10/26	40.5	4.79	42.1	2.12	0.54	7.80	4.31	0.21	0.26	0.53	0.12
	92/10/26	92/11/02	52.3	4.58	55.6	3.20	1.05	9.71	5.33	0.29	0.36	0.65	0.35
	92/11/02	92/11/09	46.8	4.42	41.4	2.67	1.36	4.18	2.47	0.18	0.24	0.31	0.35
	92/11/09	92/11/16	55.5	4.55	43.7	2.90	0.93	5.96	3.47	0.22	0.32	0.44	0.35
	92/11/16	92/11/24	70.5	4.60	44.9	2.67	0.79	7.00	3.48	0.21	0.33	0.43	0.34
	平均		315.2	4.62	41.2	2.49	0.88	6.19	3.39	0.20	0.28	0.42	0.28
船川	92/09/28	92/10/05	13.0	5.28	54.7	3.71	1.00	11.21	5.98	0.43	0.54	0.82	1.07
	92/10/05	92/10/12	28.6	5.53	7.6	0.63	0.39	0.95	0.53	0.07	0.22	0.08	0.05
	92/10/12	92/10/19	0.0										
	92/10/19	92/10/26	33.2	4.91	47.6	2.36	0.81	9.37	5.19	0.31	0.32	0.61	0.33
	92/10/26	92/11/02	50.6	4.39	57.7	3.51	1.63	8.24	4.47	0.21	0.35	0.55	0.58
	92/11/02	92/11/09	34.4	4.54	56.7	3.33	0.97	9.47	5.23	0.25	0.34	0.62	0.39
	92/11/09	92/11/16	37.3	4.67	51.0	2.91	1.10	8.92	4.92	0.24	0.41	0.60	0.38
	92/11/16	92/11/24	69.4	4.62	72.7	3.54	1.19	13.45	7.80	0.33	0.43	0.95	0.44
	平均		266.5	4.64	53.8	2.97	1.09	9.35	5.24	0.26	0.37	0.64	0.43
本山	92/09/28	92/10/05	21.1	5.34	30.0	2.14	0.84	4.33	2.43	0.38	0.27	0.32	0.63
	92/10/05	92/10/12	42.2	6.36	13.0	1.33	0.33	1.31	0.88	0.10	0.06	0.08	0.24
	92/10/12	92/10/19	0.0										
	92/10/19	92/10/26	40.5	5.84	36.7	2.90	1.31	6.71	3.72	0.68	0.31	0.52	0.66
	92/10/26	92/11/02	56.1	4.42	50.2	2.89	1.19	7.62	3.67	0.25	0.33	0.48	0.33
	92/11/02	92/11/09	30.6	4.48	56.5	3.55	1.13	9.39	5.11	0.35	0.39	0.65	0.35
	92/11/09	92/11/16	53.5	4.61	47.3	2.90	1.21	7.06	4.12	0.28	0.38	0.55	0.36
	92/11/16	92/11/24	88.2	4.61	51.0	2.59	0.92	9.08	4.87	0.26	0.29	0.63	0.25
	平均		332.1	4.69	42.9	2.63	1.00	6.96	3.77	0.31	0.29	0.49	0.36

表 11 粉じん中の平均成分濃度

地点	ステージ	粉じん量 ng/m <sup>3</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> neq/m <sup>3</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> neq/m <sup>3</sup>	Cl <sup>-</sup> neq/m <sup>3</sup>	Na <sup>+</sup> neq/m <sup>3</sup>	K <sup>+</sup> neq/m <sup>3</sup>	Ca <sup>2+</sup> neq/m <sup>3</sup>	Mg <sup>2+</sup> neq/m <sup>3</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> neq/m <sup>3</sup>	Cl/Na
中通	0	2.1	1.35	0.29	4.71	4.99	0.22	2.49	1.09	0.28	0.94
	4	7.6	7.81	6.54	30.81	35.77	1.27	7.49	8.35	1.42	0.86
	BF	12.7	43.91	3.46	1.43	6.73	2.76	2.91	1.55	38.98	0.21
	TOTAL	22.4	53.08	10.28	36.96	47.50	4.25	12.88	10.99	40.68	0.78
仁別	0	0.7	0.56	0.19	2.56	3.23	0.20	0.70	0.67	0.17	0.79
	4	5.9	5.57	6.44	26.00	28.49	1.15	4.09	6.63	0.78	0.91
	BF	7.5	40.72	0.51	0.52	4.98	1.87	1.16	1.15	35.62	0.10
	TOTAL	14.1	46.86	7.15	29.07	36.70	3.22	5.94	8.46	36.57	0.79
船川	0	1.8	1.03	0.35	5.24	5.37	0.26	1.57	1.06	0.22	0.98
	4	8.0	9.65	9.95	47.45	47.34	1.56	6.53	10.86	1.67	1.00
	BF	9.5	46.62	1.34	0.77	6.61	2.51	1.71	1.51	39.39	0.12
	TOTAL	19.3	57.30	11.64	53.46	59.31	4.34	9.80	13.43	41.28	0.90

表 12 ステージ毎の成分含有率

地点	ステージ	粉じん量 %	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> %	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> %	Cl <sup>-</sup> %	Na <sup>+</sup> %	K <sup>+</sup> %	Ca <sup>2+</sup> %	Mg <sup>2+</sup> %	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> %
中通	0	9.4	2.5	2.8	12.8	10.5	5.2	19.3	9.9	0.7
	4	33.9	14.7	63.6	83.4	75.3	29.9	58.2	76.0	3.5
	BF	56.7	82.7	33.6	3.9	14.2	64.8	22.6	14.1	95.8
	TOTAL	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0
仁別	0	5.0	1.2	2.7	8.8	8.8	6.1	11.7	8.0	0.5
	4	41.8	11.9	90.1	89.4	77.6	35.8	68.8	78.4	2.1
	BF	53.2	86.9	7.2	1.8	13.6	58.1	19.5	13.6	97.4
	TOTAL	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0
船川	0	9.3	1.8	3.0	9.8	9.0	6.1	16.0	7.9	0.5
	4	41.5	16.8	85.5	88.8	79.8	36.0	66.6	80.9	4.1
	BF	49.2	81.4	11.5	1.4	11.1	57.9	17.4	11.2	95.4
	TOTAL	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0

3.4 大気中粉じんと降水成分の関係  
 3.2で述べたように、本調査地点では、同一の雨雲によりもたらされる降雨が多いと考えることができ、ここで本山でのウオッシュア

ウトによる取り込みがないと仮定すると、降雨により高度650m以降で取り込まれる粉じんの量は、(1)式のように考えることができる。

$$\begin{array}{c}
 \boxed{\begin{array}{l} \text{ウォッシュアウトに} \\ \text{よりと取り込まれた} \\ \text{非海塩成分量} \\ (\mu\text{g}/\text{m}^2) \end{array}} = \frac{\boxed{\begin{array}{l} \text{各地点での降水中} \\ \text{の非海塩成分濃度} \\ (\text{mg}/\ell) \end{array}} - \boxed{\begin{array}{l} \text{本山での降水中の} \\ \text{非海塩成分濃度} \\ (\text{mg}/\ell) \end{array}}}{\boxed{\begin{array}{l} \text{成分のグラム当量} \\ (\text{g}/\text{eq}) \end{array}}} \times \boxed{\begin{array}{l} \text{各地点での降水量} \\ (\text{mm}) \end{array}} \times 10^6 \quad (1\text{式})
 \end{array}$$

本山—船川では、海岸からの距離はほぼ等しく、地理的な違いは高度差のみと考えることができるので、観測された粉じん中の成分量と雨水中の成分量の比較が可能であるが、中通、仁別では海塩の量がかつと本山より少ないことから上述の(1式)の値は、海塩にも多く含まれている $\text{SO}_4^{2-}$ や $\text{Ca}^{2+}$ では、負を示す場合が多い。即ち、本山でもウォッシュアウトで取り込まれる量があるため、海塩粒子を含めた比較は困難と考えられる。ここでは、 $\text{Na}^+$ を指標として非海塩成分量を算出し、その主たる発生源と考えられる中通での降水成分と粉じんの量について解析を行った。

中通での、粉じん中の非海塩成分量と、降水中的ウォッシュアウトにより取り込まれた非海塩成分の量(以下、単に『粉じん成分量』および『降水成分量』という)を、図7に示した。 $\text{nss-SO}_4^{2-}$ は、降水成分量とステージBFの粉じん成分量に比例関係が認められることから、ウォッシュアウトによる取り込みが、粉じん成分量と関係することがわかる。 $\text{NO}_3^-$ では、 $0\mu\text{eq}/\text{m}^2$ 付近に集中し、もしくは負の値をとることからウォッシュアウトによる取り込みは少ないものと考えられた。 $\text{nss-Ca}^{2+}$ は、降水成分量が $200\mu\text{eq}$ 付近に集中していることから、ウォッシュアウトにより取り込まれた量は、概ね $200\mu\text{eq}$ と考えられる。そして $200\mu\text{eq}$ 付近のデータについては、ステ

ージ4に含まれる粉じん成分量と降水成分量に比例関係の傾向が認められることから、粉じん成分量が降水成分量に影響を与えていると考えられる。 $\text{NH}_4^+$ については、他の成分にみられるような傾向はなかった。大気中に存在する $\text{NH}_4^+$ は、 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ の塩の形態で存在するといわれており<sup>4)</sup>、当然 $\text{nss-SO}_4^{2-}$ と同じ挙動を取るものと考えられたが、その傾向はみられなかった。これは、 $\text{NH}_4^+(\mu\text{eq}/\text{m}^2)/\text{nss-SO}_4^{2-}(\mu\text{eq}/\text{m}^2)$ が平均約1.4と2にならないことから、 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 以外の $\text{CaSO}_4$ や $\text{Na}_2\text{SO}_4$ など<sup>4)</sup>の粒子状物質の存在が推測できる。

粗大粒子は、降雨に取り込まれ易い<sup>7)</sup>ことから、 $\text{NaNO}_3$ や $\text{nss-Ca}^{2+}$ は、初期降雨に効率的に補集されると考えられる。一方、微小粒子にその大部分が存在する $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NH}_4^+$ は、比較的降雨に補集され難く、後続降雨によってもウォッシュアウトにより補集されるためと考えられる。このことは、 $\text{NO}_3^-$ と $\text{nss-Ca}^{2+}$ は降水量が少なくても、降水に大部分が捕集されるため、降水成分量が一定量に集束すると考えられるが、 $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NH}_4^+$ は降水量と粉じん量の影響が大きいいため、捕捉される量は比較的範囲の広いものと思われる。

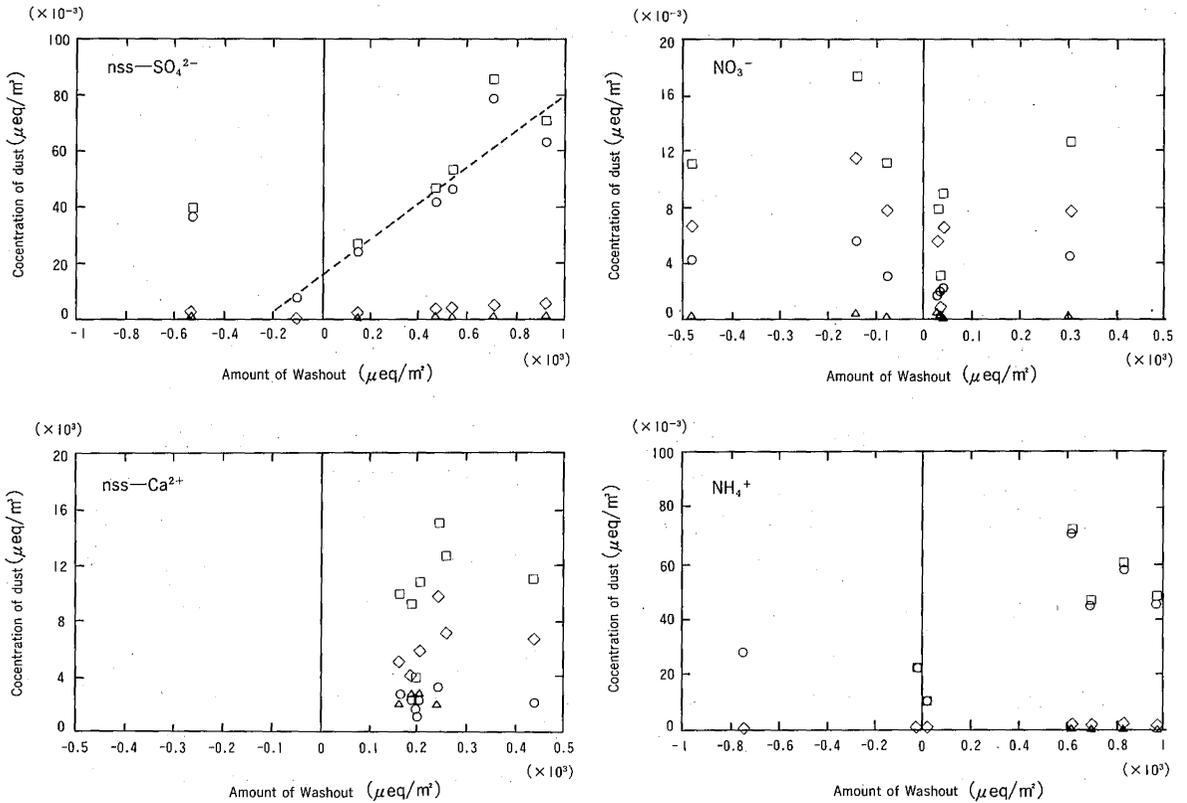


図7 非海塩成分の大気中濃度とウォッシュアウトによる取り込まれ量の関係

△; Stage-0 ◇; Stage-4 ○; Stage-BF □; Total 調査地点: 中通

### まとめ

酸性雨成分の取り込まれ方は、局地的な影響が大きいウォッシュアウトと、移流などの広域的な影響によるレインアウトに区別される。ゆえに、酸性雨問題では、測定されたpHに影響を及ぼしているものが、局地的な影響か広域的な影響かを把握しておくことが重要である。今回、秋田市周辺における降水中成分の取り込まれ方について解析を行った。

- (1) 標高約650mの山頂(本山)をバックグラウンド地とし、そこでの降水成分は全てレインアウトにより取り込まれたものと

仮定し、中通、船川、仁別の各地点での降水成分濃度を解析した結果つぎのような知見が得られた。

- 1) 降雨が同一の雨雲からもたらされることができると考えることができる比較的近隣した地域においては、降水中成分濃度の地点間の相関をみることによって、ウォッシュアウトによる影響の大きさを推察できる。これについては、平成3年度の単年度調査と平成3年及び平成4年度の2年間の調査で同様の結果が得られたことによ

て、解析の手法として有用であると  
考えられた。

- 2) 中通での降水成分の取り込まれ方は、 $\text{NO}_3^-$ はレインアウトにより取り込まれ、 $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 、 $\text{nss-Ca}^{2+}$ 、 $\text{NH}_4^+$ は、ウオッシュアウトとレインアウトによる複合的な取り込まれ方をしており、ウオッシュアウトによる寄与が比較的大きいと考えられた。

船川、仁別の $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NH}_4^+$ および船川の $\text{nss-Ca}^{2+}$ は、ウオッシュアウトとレインアウトによる複合的な取り込まれ方を行っているが、その寄与はレインアウトによるところが大きい。そして、船川、仁別での $\text{nss-SO}_4^{2-}$ は経済活動の活発な中通の影響を受けている可能性が考えられた。これに対し、各地点での $\text{nss-Ca}^{2+}$ および $\text{NH}_4^+$ は、比較的小さい範囲の地域における局地的な影響によるものと考えられた。

- (2) 今回、新たにアンダーセンエアサンプラーを用い粒子状粉じん中と降水中の成分量の関係について解析を行った結果、つぎのような知見が得られた。

1) 中通では、 $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 、 $\text{nss-Ca}^{2+}$ は、大気中の粒子状粉じん濃度とウオッシュアウトにより取り込まれた成分量に比例関係があった。このことから、地表付近の粒子状粉じん中の $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 、 $\text{nss-Ca}^{2+}$ 濃度は、降水水中のその濃度に影響を及ぼしていることが確認された。

- 2)  $\text{NH}_4^+$ は、ウオッシュアウトによる取り込まれ方をしておりと考えられ

たが、地表付近での粉じん中濃度との間に明確な傾向は認められなかった。 $\text{NH}_4^+$ は、大気中で $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 粒子として多く存在するといわれるが、これ以外の状態で存在する $\text{NH}_4^+$ の影響も大きいものと考えられ、粒径を更に細別し(ステージをもっと増やす)、 $\text{NH}_4^+$ の大気中での存在形態を解明する必要があると思われた。

- 3) 降水中の成分量と粒子状粉じん中の成分量の関係については、若干の傾向をみるにとどまったが、今回は、試料数が少ないことや季節的変動に付いては検討しなかったため、今後はこれらを含めより詳細な検討を行ってきたい。

#### 参考文献

- 1) 酸性雨：土壌・植生への影響、環境庁水質保全局土壌農薬課監修 P151、(平成2年5月)
- 2) 酸性雨対策調査報告書、酸性雨対策検討会大気分科会 P49、(平成2年1月)
- 3) 秋田県環境技術センター年報、No.19、71 (1991)
- 4) 松本 光弘ら；田園都市地域におけるエアロゾルの無機イオン成分  
大気汚染学会誌21 (6)、P501~P511、(1986)
- 5) 横浜市環境科学研究所環境研資料No. 107：酸性雨に関する調査報告書、P85
- 6) Kadowaki, s.; Size distribution and chemical composition of atmospheric particulate nitrate in the Nagoya area, Atmos. environ., 11, P 671~675 (1977)
- 7) 鈴木武夫編；大気汚染の機構と解析、1版、産業図書、P136 (1980)