

秋田県の森林地帯における酸性成分の乾性沈着に関する調査研究

児玉 仁 ・ 大畑 博正 ・ 高嶋 司*

要 旨

森林地帯における乾性沈着量の把握を目的として、八森町の森林地帯で、粒子状およびガス状の酸性成分濃度を測定し、インファレンシャル法を用いて乾性沈着量の推定を行った。また、市街地として秋田市についても同様の調査を行い、森林地帯の乾性沈着量との比較を行った。

大気中の硫酸塩および SO_2 の乾性沈着後の形態である SO_4^{2-} の年間乾性沈着量は、八森町では $3.7 \text{ m-mol/m}^2/\text{年}$ 、秋田市では $7.3 \text{ m-mol/m}^2/\text{年}$ と推定された。一方、大気中の硝酸塩および HNO_3 の乾性沈着後の形態である NO_3^- の年間乾性沈着量は、八森町では $6.8 \text{ m-mol/m}^2/\text{年}$ 、秋田市では $25 \text{ m-mol/m}^2/\text{年}$ であった。これら酸性成分のうち、八森町では硫酸塩および HNO_3 ガスとして沈着する割合が大きく、秋田市では SO_2 および HNO_3 ガスとして沈着する割合が大きかった。両地点の年間乾性沈着量に、 HNO_3 ガスが大きく寄与している原因は、 HNO_3 ガスの乾性沈着速度が他の成分に比べ著しく大きいためであると考えられた。さらに、秋田市では、人為的な発生源の影響と考えられる SO_2 ガスの年間乾性沈着量が八森町より約7倍高い値として推定された。

1. はじめに

大気中の粒子状やガス状の酸性成分が土壤に沈着し、土壤中から植物の栄養素(Ca, Mg, K)を溶出させることが知られており¹⁾、その結果、樹木の生長を阻害し、「森林の衰退」を引き起こすと考えられている¹⁾。酸性成分の土壤沈着過程は、大きく2つに分けられる。一つは、降水として沈着するもの、もう一つは大気中の粒子あるいはガスとして直接沈着するものであり、それぞれ「湿性沈着」、「乾性沈着」と呼ばれている¹⁾。

これまで、森林地帯における湿性沈着について数多くの研究が行われてきたが、近年、乾性沈着の影響が無視できないとの指摘があり²⁾、その影響を調べるための調査が行われ始めている²⁴⁾。

本県においても、湿性沈着の観点から森林地帯で、雨、雪および霧に関する酸性雨調査を行ってきたが、乾性沈着に関する調査は行っておらず、その実態を把握できていないのが現状である。そこで、本調査では森林地帯における大気中の粒子状およびガス状の酸性成分として SO_4^{2-} 、 SO_2 、 NO_3^- および HNO_3 の濃度を測定し、森林地帯に沈着する乾性沈着量の推定を行った。また、市街地での乾性沈着量を推定して、

森林地帯での乾性沈着量と比較した。

2. 調査方法

2.1 調査期間および地点

調査は、平成11年6月～平成14年3月の期間に、毎年6月(春期)、8月(夏季)、11月(秋季)、2月(冬季)の1ヶ月間行った。調査地点は、森林地帯としては白神山地の麓にある八森ぶなっこランド(八森町)、市街地としては秋田市の臨海部に位置する秋田県環境センター八橋分室である。八森ぶなっこランドは、白神山地遺産地域の麓に位置し、西側約2 kmに国道101号(交通量: 約3,337 台/日)³⁾があり、海岸までの距離は約3 kmである。秋田県環境センター八橋分室は、国道7号(交通量: 約44,870 台/日)³⁾に面し、海岸までの距離は約5 kmで、周囲には工場事業所が多く、住宅地も隣接している。

2.2 大気中における酸性成分の捕集方法

大気中の粒子状およびガス状の酸性成分は、フィルターパック法⁶⁾(図1)により、NILE社製フィルターホルダーの各ステージ(図1に示すF0, F1, F2, F3)に装着したろ紙に捕集した。各ステージに捕集される成分の性状および捕集対象物質を表1に示す。

* 現秋田地域振興局福祉環境部

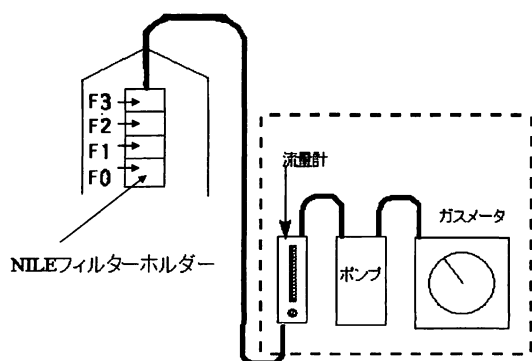


図1 フィルターバック法の装置構成

表1 各ステージに捕集される粒子およびガスとその測定イオン種

ステージ	性状	捕集対象物質	測定イオン種
F0	粒子状	SO ₄ ²⁻ , NO ₃ ⁻ , (Cl ⁻ , NH ₄ ⁺ , Na ⁺ , Ca ²⁺ , Mg ²⁺ , K ⁺)	SO ₄ ²⁻ , NO ₃ ⁻
F1	ガス状	SO ₂ , HNO ₃ , (ミストを含む) (HCl, NH ₃)	SO ₄ ²⁻ , NO ₃ ⁻
F2	ガス状	SO ₂ , (NO _x , HCl)	SO ₄ ²⁻
F3	ガス状	(NH ₃)	

() 内は、ろ紙に捕集されるが本調査では定量しない物質

2.3 大気中の酸性成分の定量

大気中の粒子状およびガスを捕集したステージ F0～F3 のろ紙を水または H₂O₂ に浸し、酸性成分を振とう器を用いて抽出した後、イオンクロマトグラフ (DIONEX 社製 IC-100) で定量した。定量下限値は、SO₄²⁻: 0.05 μg/ml, NO₃⁻: 0.01 μg/ml である。

2.4 乾性沈着量の推定方法

乾性沈着量の推定は、インファレンシャル法^{6,8)}により(1)式⁹⁾を用いて行った。ただし、F2 のろ紙は、NO₂ ガスの一部しか捕集されないため定量性がないといわれている⁹⁾ことから、F2 ろ紙で捕集される NO_x の分については、乾性沈着量の推定計算から除いた。

$$F = C \times Vd \times 0.02592 \quad (1)$$

F: 乾性沈着量 (m-mol/m²/月)C: 大気中のガスまたは粒子状成分の濃度 (μ-mol/m³)

Vd: 沈着速度 (cm/sec)

一般に、沈着速度の算出方法は複雑であると言われている⁶⁾が、野口らは、汎用性を高めるため、

条件カテゴリーを簡便化し、沈着速度の計算を自動化したプログラム¹⁰⁾ (「乾性沈着量推計ファイル (ver.1-1)」) を作成した。本調査では、野口らが作成したプログラムを用い、ガス状の SO₂ および HNO₃ の沈着速度を算出した。粒子状の SO₄²⁻ と NO₃⁻ の沈着速度^{7,11)}については、世界気象機構 (WMO) が示す値を用い、粒子およびガスからなる酸性成分の乾性沈着量の推定を行った。

また、年間の乾性沈着量については、(2)式により推定した。季節の月数は、気温や積雪等の気象状況を考慮し、春期を4月～6月の3ヶ月、夏期を7月と8月の2ヶ月、秋期を9月～11月の3ヶ月、冬期を12月～3月の4ヶ月とした。

年間乾性沈着量 (m-mol/m²/年)

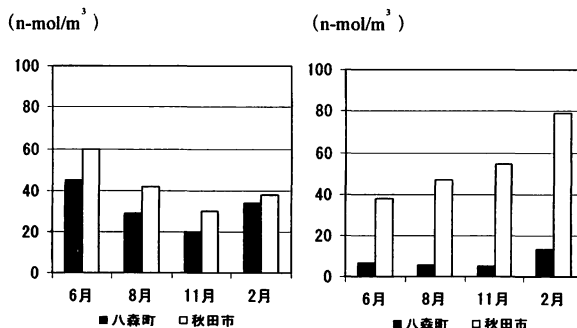
$$= \Sigma [\text{季節の月数(月)} \times F(\text{m-mol/m}^2/\text{月})] \quad (2)$$

3. 調査結果と考察

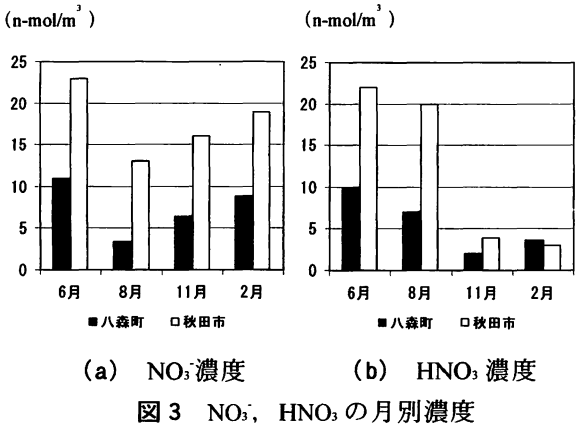
3.1 酸性成分の大気中濃度

SO₄²⁻, SO₂, NO₃ および HNO₃ について、6月、8月、11月、2月の酸性成分濃度を図2および図3に示した。なお、各調査月の酸性成分濃度および年間平均濃度は、それぞれ3年間の平均値である。

SO₄²⁻の年間平均濃度は、八森町が 32 n-mol/m³ で、秋田市が 43 n-mol/m³ であった。両地点における SO₄²⁻濃度の季節変動パターン (図2(a)) は、冬期～春期に比較的高くなる傾向があり、類似していたが、八森町の SO₄²⁻濃度は秋田市と比較して低めに推移していた。SO₂の年間平均濃度は、八森町が 7.7 n-mol/m³, 秋田市が 55 n-mol/m³ であり、八森町は秋田市の約 1/7 であった。SO₂濃度の季節変動パターン (図2(b)) は、両地点とも冬期に顕著な濃度上昇がみられ、八森町では春期～秋期にかけて、季節変動がほとんどないのに対し、秋田市では春期から冬期にかけて濃度が上昇する傾向にあった。

(a) SO₄²⁻濃度 (b) SO₂濃度図2 SO₄²⁻, SO₂の月別濃度

NO₃⁻の年間平均濃度は、八森町が7.5 n-mol/m³、秋田市が19 n-mol/m³であった。NO₃⁻濃度の季節変動パターン(図3(a))は、両地点とも8月(夏期)が最も低く、冬期～春期に高くなる傾向があり類似の挙動を示していたが、八森町の濃度は、秋田市の約1/2で推移していた。HNO₃の年間平均濃度は、八森町が5.7 n-mol/m³、秋田市が12 n-mol/m³であった。春期～秋期の濃度(図3(b))は、八森町が秋田市の約1/2であったが、冬期の濃度は秋田市を上回っていた。しかし、季節変動パターンは両地点とも春期と夏期が高く、秋期と冬期に著しく低くなる傾向があり、類似した挙動を示していた。



3.2 沈着速度の算出および乾性沈着量の推定結果

八森町と秋田市におけるガス状成分のSO₂とHNO₃の沈着速度を表3に示す。八森町および秋田市におけるSO₂の沈着速度は、それぞれ0.25～0.36 cm/sec、0.20～0.46 cm/secの範囲にあり、八森町では夏期に最も大きく、秋田市では春期と冬期に大きくなる特徴を持っていた。また、HNO₃の沈着速度は八森町および秋田市において、それぞれ2.4～5.4 cm/sec、6.3～9.4 cm/secの範囲にあり、両地点とも夏期に最も小さく、冬期～春期にかけて大きくなる傾向があった。両地点のHNO₃の沈着速度は、SO₂の沈着速度に比べ10～30倍ほど大きかった。

表3 SO₂とHNO₃の季節別沈着速度(cm/sec)

	八森町		秋田市	
	SO ₂	HNO ₃	SO ₂	HNO ₃
春期	0.28	3.2	0.46	7.5
夏期	0.36	2.4	0.20	6.3
秋期	0.25	3.7	0.20	7.0
冬期	0.26	5.4	0.40	9.4

世界気象機構(WMO)では、針葉樹における粒子状成分のSO₄²⁻とNO₃⁻の沈着速度を0.3～0.4 cm/sec、裸地における沈着速度を0.1 cm/secと示している¹¹⁾が、本調査では、八森町のSO₄²⁻とNO₃⁻の沈着速度を0.3 cm/sec、秋田市におけるSO₄²⁻とNO₃⁻の沈着速度を0.1 cm/secとして乾性沈着量を推定した。

WMOが示すSO₄²⁻およびNO₃⁻の沈着速度と表3のSO₂およびHNO₃の沈着速度を基に算出した粒子状成分およびガス状成分の乾性沈着量を表4と表5に示す。大気中における酸性成分は、粒子とガスの異なる存在形態をとっているが、乾性沈着量としては粒子とガスの合計量として表すことができる¹⁷⁾。ここでは、大気中の粒子状化合物である硫酸塩と硝酸塩については、SO₄²⁻(p)、NO₃⁻(p)、ガス状のSO₂とHNO₃については、それぞれSO₄²⁻(g)、NO₃⁻(g)と表記した。表4に示す八森町のSO₄²⁻(p+g)の年間乾性沈着量は3.7 m-mol/m²/年で、秋田市の年間乾性沈着量7.3 m-mol/m²/年の約1/2であった。八森町のSO₄²⁻(p)の年間乾性沈着量は、秋田市の約3倍であったが、SO₄²⁻(g)については、秋田市の約1/8であった。このように、秋田市におけるSO₄²⁻(p)の年間乾性沈着量が八森町より少ないにも関わらず、SO₄²⁻(p+g)の年間乾性沈着量が八森町の約2倍であることを考えると、秋田市における年間乾性沈着量に、SO₄²⁻(g)が大きく寄与していることが分かった。

表4 SO₄²⁻(p)およびSO₄²⁻(g)の乾性沈着量

	八森町の沈着量 (m-mol/m ² /月)			秋田市の沈着量 (m-mol/m ² /月)		
	SO ₄ ²⁻ (p)	SO ₄ ²⁻ (g)	SO ₄ ²⁻ (p+g)	SO ₄ ²⁻ (p)	SO ₄ ²⁻ (g)	SO ₄ ²⁻ (p+g)
春期 (4～6月)	0.35	0.048	0.40	0.16	0.45	0.61
夏期 (7月、8月)	0.23	0.054	0.28	0.11	0.24	0.35
秋期 (9～11月)	0.16	0.033	0.19	0.078	0.28	0.36
冬期 (12～3月)	0.26	0.090	0.35	0.098	0.82	0.92
年間*	3.0	0.71	3.7	1.3	6.0	7.3

* (2)式を用いた推定値

八森町と秋田市におけるNO₃⁻(p+g)の年間乾性沈着量(表5)は、それぞれ6.8 m-mol/m²/年、25 m-mol/m²/年であり、八森町は秋田市の約1/4の値として推定された。さらに、両地点における乾性沈着量の構成成分の中でNO₃⁻(g)が約90%以上沈着していることも分かった。また、両地点において推定されたNO₃⁻(g)の乾性沈着量が、他の成分の沈着量と比較して大きい理由は、NO₃⁻(g)の沈着速度が他の成分の沈着速度より著しく大きいことによるものと考えられた。

表5 NO₃⁻(p)およびNO₃⁻(g)の乾性沈着量

	八森町の沈着量 (m-mol/m ² /月)			秋田市の沈着量 (m-mol/m ² /月)		
	NO ₃ ⁻ (p)	NO ₃ ⁻ (g)	NO ₃ ⁻ (p+g)	NO ₃ ⁻ (p)	NO ₃ ⁻ (g)	NO ₃ ⁻ (p+g)
春期 (4～6月)	0.086	0.84	0.93	0.060	4.3	4.4
夏期 (7月,8月)	0.026	0.44	0.47	0.035	3.2	3.2
秋期 (9～11月)	0.051	0.19	0.24	0.041	0.71	0.75
冬期 (12～3月)	0.068	0.52	0.59	0.050	0.74	0.79
年間* (m-mol/m ² /年)	0.74	6.1	6.8	0.57	24	25

* (2)式を用いた推定値

こうしたことから、SO₄²⁻(p+g)およびNO₃⁻(p+g)の年間乾性沈着量において、八森町ではそれぞれSO₄²⁻(p)、NO₃⁻(g)として沈着する割合が大きく、秋田市ではSO₄²⁻(g)およびNO₃⁻(g)として沈着する割合が大きいと推定される。両地点におけるNO₃⁻(g)は、他の成分の沈着速度に比べ著しく大きいことから、年間乾性沈着量への寄与が大きいと考えられる。また、秋田市においてSO₄²⁻(g)濃度が高い原因は、工場やディーゼル車排ガスによる汚染と推察される。

4. まとめ

八森町と秋田市における大気中の酸性成分濃度を測定し、乾性沈着量を推定した結果、八森町におけるSO₄²⁻(p+g)およびNO₃⁻(p+g)の年間乾性沈着量は、それぞれ3.7 m-mol/m²/年、6.8 m-mol/m²/年、秋田市では、それぞれ7.3 m-mol/m²/年、25 m-mol/m²/年と見積もられた。

八森町におけるSO₄²⁻(p+g)の年間乾性沈着量では、SO₄²⁻(p)の寄与が大きく、NO₃⁻(p+g)の年間乾性沈着量では、NO₃⁻(g)の寄与が大きいことが推定された。

一方、秋田市におけるSO₄²⁻(p+g)の年間乾性沈着量では、SO₄²⁻(g)の寄与が大きく、NO₃⁻(p+g)の年間乾性沈着量では、NO₃⁻(g)の寄与が大きいと考えられた。さらに、秋田市におけるSO₄²⁻(g)濃度が八森町の7倍であることから、人為的な発生源の影響が推察された。

謝辞

本報告における酸性成分沈着速度の算出に用いた「乾性沈着量推計ファイル(ver.1-1)」の使用に当たって、快く承諾をくださった北海道環境科学センター野口泉研究員にお礼を申し上げます。

参考文献

- 1) 村野健太郎：酸性雨と酸性霧，pp. 56-73，裳華房，1993.
- 2) 全国環境研協議会酸性雨調査研究部会：第3次酸性雨全国調査報告書(12年度)，全国環境研会誌，27, 68-101, 2002.
- 3) 下原孝章他：代理表面を用いた乾性沈着機構の研究，大気環境学会誌，32, 253-266, 1997.
- 4) 玉置元則：日本の酸性雨調査研究の現状と今後の課題，大気環境学会誌，35(1), A1-11, 2000.
- 5) 秋田県建設交通部道路建設課：平成11年度全国道路交通情勢調査(道路交通センサス)一般交通量調査表，2001.
- 6) 全国環境研協議会酸性雨調査研究部会：第3次酸性雨全国調査報告書(平成11～13年度のまとめ)，全国環境研会誌，28, 165-174, 2003.
- 7) 松本光弘：インファレンシャル法による樹木等への乾性沈着量の評価と樹木衰退の一考察，日本化学会誌，7, 495-505, 1998.
- 8) Hicks B. B. et al.: A preliminary multiple resistance routine for deriving dry deposition velocities from measured quantities, Water Air Soil Pollut., 36, 311-330, 1987.
- 9) 松本光弘：4段ろ紙法による奈良市と大台ヶ原におけるガス成分およびエアロゾルの水溶性イオン成分の挙動，エアロゾル研究，12, 197-208, 1997.
- 10) 北海道環境科学研究センターホームページ：
http://www.hokkaido-ies.go.jp/seisakuka/acid_rain/kanseichinchaku/kanseichinchaku.htm.
- 11) B. B. Hicks: WMO/ ADA Draft.