徳山試験地における酸性雨について

- 1993年度の調査結果 -

中井 勇·北川新太郎·秋田 豊·中根勇雄 柴田昌三·安藤 信·川那辺三郎

はじめに

ドイツの黒い森で代表されるように酸性雨による被害は地球環境の悪化を如実に現している。 わが国でも関東平野において酸性雨汚染の進行¹⁾が認められており、近年各地において酸性雨に 対する関心が深まってきている。京都大学演習林では1992年頃から酸性雨の調査に取り組み、徳 山試験地では1993年4月から調査を開始した。その一部は演研報²⁾や学会^{3,4)}等で公表した。

当試験地が所在する山口県徳山市には石油コンビナートの基地があり、発生する酸化物が乾性、あるいは湿性となって降下する地域で、市内から約5kmあまり離れた試験地にもその影響は見逃せない状況にある。試験地内の樹木に塩害が枯損被害が発生していることから考えると、海からの潮風の吹き込みは明らかであり、沿岸に位置するコンビナートからの有害なガスの流入地域といえる。山口県の生協グループ⁶⁾が調査している約1,900箇所に及ぶ資料では山口県の東部、すなわち徳山方面はpH値が低い(酸性度が高い)地域となっている。

本報告は1993年4月から翌年の4月までの全降雨の調査試料を解析し、とりまとめたものである。本論に先立ち、本調査での風向等の資料の提供を受けた本学演習林の中島 皇助手、さらに作図等に協力戴いた山崎理正助手にお礼申し上げる。

調査方法

調査には堀場製作所による酸性雨分取器「レインゴーランドAR-8」を用いた。レインゴーランドの構造は図ー1に示すように、容量 $5\,\mathrm{ml}\,\mathrm{cl}\,\mathrm{mm}$ の降雨が受水できる $7\,\mathrm{dl}\,\mathrm{dl}\,\mathrm{dl}\,\mathrm{dl}$ の $7\,\mathrm{mm}\,\mathrm{cl}\,\mathrm{dl}\,\mathrm{dl}\,\mathrm{dl}\,\mathrm{dl}$ $2\,\mathrm{mm}\,\mathrm{dl}\,\mathrm{dl}\,\mathrm{dl}\,\mathrm{dl}\,\mathrm{dl}$ $2\,\mathrm{mm}\,\mathrm{dl}\,\mathrm{dl}\,\mathrm{dl}\,\mathrm{dl}\,\mathrm{dl}$ $2\,\mathrm{mm}\,\mathrm{dl}\,\mathrm{dl}\,\mathrm{dl}\,\mathrm{dl}\,\mathrm{dl}$ $2\,\mathrm{mm}\,\mathrm{dl}\,$

Isamu Nakai·Sintarou Kitagawa·Yutaka Akita·Isao Nakane·Syozo Shibata·Makoto Anzo and Saburo Kawanabe

On the Acid Rain in Tokuyama Experiment Station of Kyoto University Forest at Yamaguti Pref.

京大演集報 28 '95 19

ライドさせる装置であり、平板の一方に反発バネを固定し、他の一方には突起棒を取り付け、この部分と台部分の突起棒とをトイレットペイパーによって固定するもので、降雨によってトイレットペイパーが破れて受水面が開く構造となっている。

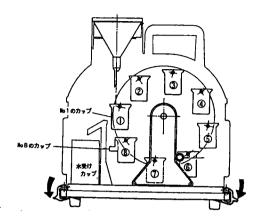


図-1 酸性雨分取器「レンゴーランドAR-8」の構造

観測機器は徳山試験地における通常の気象観測露場で、地上高50cmの専用台に固定設置した。 観測は調査期間を通じて各降雨ごとに行い、1降雨で水受けカップを溢れるような降雨時には途 中で採水観測した後引続き所定の場所にセットした。さらに水受けカップを溢れる時にはこの方 法を繰り返し、可能な限りの試料を収集した。pH(酸性度)やEC(導電率)の測定は堀場製作 所のpHメータ、ECメータ(ツインシリーズ)によった。測定結果の分析に当たっては、特に初 期降雨のpHに注目し、降雨時の天候、降雨速度など酸性雨降下の背景を検討した。

調査結果

1. 全調查結果

本調査は1993年4月22日から1994年4月12日までの期間内で855の試料(観測日数は98日)について行った。全調査のpHとEC(本文中では、単位 μ s/cmを省略する)の関係を図-2に示した。観測値は、おおむねECで0~200、pHで3~7の範囲にあって、両者の関係はECの低い時

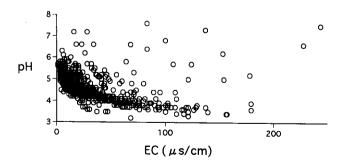


図-2 1年間の全降雨時のECとpHの関係

pHが高く,ECが高かまるに従ってpHが低下する双曲線を示し,中井 2),金子ら $^{3.7}$)や安藤ら 4)が同じ機器を用いて観測した結果と一致した。しかし,ECの高い汚染された雨にも拘らずpHの高い値が見受けられたが,そのばらつきは全体の数%であった。観測値の中でもっともpHの低い値は3.2(1993年9月18日の降り始め)で,高い値は7.6(1994年2月5日)であった。

図-3には全観測値のpHの頻度分布を示しているが、 $4.5\sim5.5$ の範囲に約8割が占め、平均 (加重平均) すると4.85となり、全国の平均値 8 と大差は見られなかった。

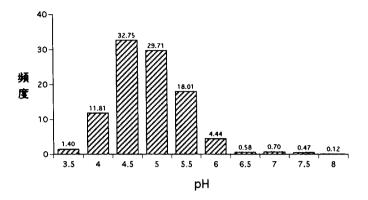


図-3 1年間の全降雨時のpHの頻度分布

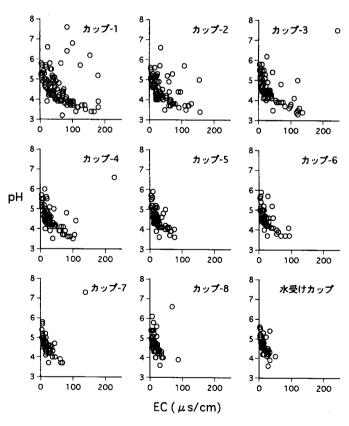


図-4 レインゴーランドのカップごとのpHとECの関係 (1降雨の初期受水カップまでを対象とし、連続雨の観測値は除く)

京大演集報 28 '95 21

採水したカップごとのECとpHの関係についてみると図-4のとおりである。図は1カップから水受けカップまでを順次並べてあるが、降水量が少ない降雨もあるため、カップナンバーが大きくなるほど観測点が少なくなる。それぞれの採水カップにおけるECとpHの関係は、それぞれ双曲線に沿った分布を示しているが、カップナンバーが大きいものほどその形が次第に緩やかになっている。1カップ目では平均のpHは4.75±0.81(最高値は3.2、最低値は7.6)、ECは58.2±43.1を示した。同様に、2カップ目では4.49±0.60(3.4、6.6)、41.7±34.6、3カップ目は4.54±0.69(3.3、7.5)、39.3±40.8、4カップ目は4.54±0.58(6.6、3.5)、33.3±33.7、5カップ目は4.56±0.49(3.6、5.9)、24.3±17.8、6カップ目は4.58±0.48(3.7、5.9)、23.3±1.96、7カップ目は4.62±0.57(3.7、7.3)、21.9±21.0、8カップ目は4.72±0.56(3.2、6.6)、17.9±15.0、水受けカップは4.65±0.43(3.6、5.6)、15.8±10.5、であった。このようにpHは平均で4.5~4.8の範囲にある。1~3カップ目まではECの値に対してpHが異常に高い観測値もみられるが、このような値を除くと4.4~4.5となり、僅かながらカップナンバーが大きくなるほど、言い換えれば1降雨の降水量が多くなるほどpHが高まる傾向がみられ、相対的に降雨初期のpHが低いことが明らかになった。

ECとpHの関係でとりわけ初期降雨での測定値が大きくばらつく原因として、降雨前の天候、すなわち晴天か曇天か、さらに降雨時間や降り始めてから一時的に止み、数時間後に再び降雨(一つのカップに数時間後の雨が混ざる)があるなど複雑な要因が包含されている。従って、単純に解析することは難しい。ただし、5カップ目以後は比較的ECとpHのばらつきは少ない。

2. 要因解析と検討

前項では全調査結果について述べてきたが、この項では酸性雨についてその背景となる要因について検討した。平木ら⁹⁾は「雨水の酸性化は主に燃焼過程などにより人為的に排出された気体状・粒子状の大気汚染物質の雨水への取り込みの過程で起こり、雨水への取り込み過程はレインアウト(雲内除去)が主要なもの」と考えている。このことから平木ら⁹⁾は前線、低気圧など降雨原因別にpH値を比較検討しているが、本報ではより単純に一時雨(小雨)と連続雨(多雨)、降水量とその速度及び観測時の天候などから検討を加えた。

1) 一時雨及び連続降雨とpH. ECとの関係

降雨のECやpHの測定においては、降雨期間が大きな問題となる。すなわち 1 降雨の定義付けが必要である。日本気象協会編 10 によると、1 降雨とは24時間無降雨(あるいは10時間以上と読み変え)であり、レインゴーランドのマニュアル 11 によると、単に降り始めから終わりまでである。また、平木ら 9)は降雨の中断が 6 時間までを連続雨としている。

ここでは1降雨を無降雨時間3時間以内のものを連続雨とし、一時雨は3mm以内としたが、レインゴーランドで採水した量と自記雨量計による降雨量に若干の違いのあることから、転倒マスによる自記記録計に記録された降雨量を基準に全降雨を一時雨と連続雨に区分した。一時雨は14回の降雨の1~4カップの観測値を採用し、連続雨では1降雨で引き続き2~3回観測した中から4回の降雨を採用して検討を加えることにした。観測期間内では連続雨が3日間に及ぶものもあったが、その間に数時間余り降り止んでいることからここでは取り上げなかった。

図-5は一時雨のpHとECの関係を示している。両者の関係からばらつく7測点を除くとECの増加に従ってpHが低下する傾向を示した。除かれた7観測値は2月8日のカップ3と4で記録されたEC 242に対するpH 7.5と 228に対する6.6で,2月2日の3カップ目も同様に83に対する7.6,3月5日の1カップ目も同様に83に対する6.4,1月23日の2カップ目も同様に107に対す

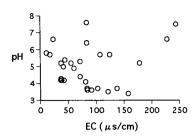


図-5 一時雨(降雨量3mmまでを対象)のpHとECの関係

る5.7, 2月2日の1カップ目も同様に124に対する5.7, 10月30日の1カップ目も同様に178に対する5.2であった。

図-6に示した連続雨では網掛け部分が観測時間帯を示し、矢印部分にその観測結果が示されている。ここで採用したものは連続雨で2回観測した6月25日と4月12日、3回測定した8月2日と8月17日である。

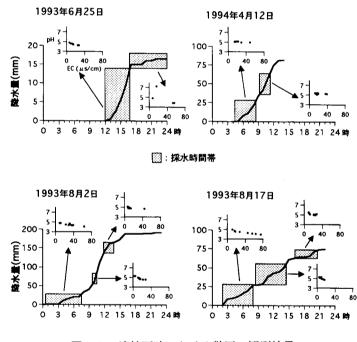


図-6 連続雨時における数回の観測結果

6月25日の降雨は12時頃から始まり、17時頃に一時中断し24時頃まで降っている。前半部分は強い雨、後半部分は弱い雨であった。前半部分におけるpHは $4\sim5$ 程度でECは35までであったが、後半部分では $pH3.5\sim7.2$ で、 $EC10\sim60$ までばらついた。とくに降雨が中断した後の降雨でECが高く、pHの低い値が得られた。1994年 4 月12日の観測における降雨は 4 時頃から降り始めほとんど止むことなく14時頃まで続いた。この間のECは10 ~50 の範囲であったが、pHは 5 前後でばらつきは少なかった。

1降雨で3回連続して観測した8月2日は3時頃から降り始め10時頃からやや強い雨となり, 13時頃から弱い雨となっている。この時のpHとECの関係は降雨初期の1回目の測定ではECは60 京大演集報 28 '95 23

以上の高い値を記録し、pHは $4\sim5$ の範囲であったが、2回目にはECは35以下に低下し、pHは 5 前後となっている。つづく3回目ではECで40以上のやや高い値がみられたがほとんどが20以下で、pHは5 程度であった。8月17日には2時頃から降り出した雨は8時~10時頃まで中断し以後断続的に続いた降雨であった。この降雨は8月2日の場合と異なって比較的弱い雨が連続したケースである。1回目の測定時のECは80から10まで低下し、pHは3~5に上昇し、その範囲が広がり、2、3回目にはpHは5前後、ECはほとんど30以下であった。

以上のようにpHは6月25日に観測した値7.2を除けば全体に4~5内にあり、ECも初期降雨の値を除けば大きな差はない。連続雨であっても間断なく降雨のある場合には両者の関係は一定の傾向を示しているが、6月25日の2回目の観測のように、一時的に降り止み、再び降り始めたときにはpH、ECが極度に高い値を示す場合も観測された。

一般にpH5.6以下を酸性雨と呼んでいるが,観測した値はすべて酸性雨と評価される。その中で一時的降雨や連続雨でも降り始めのpHが高く,降雨時間の経過とともにその値が減衰する 9 傾向とよく符合した。

2) 降雨量の強さ及び量とpH、ECとの関係

前項では一時降雨と連続雨についての数例を検討したが、ここでは降雨の強さ及び量とpH, ECとの関係について検討した。図-7の上段には1降雨時の時間雨量を求めpH及びECとの関係を、下段には1降雨の降水量とpH及びECとの関係を示した。

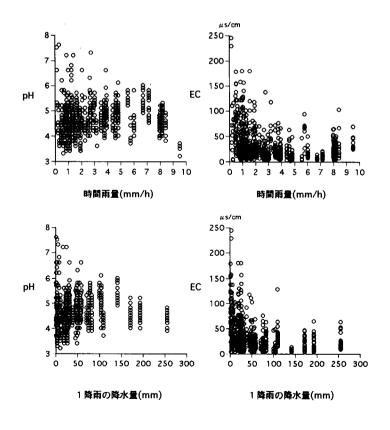


図-7 1降雨時の時間降雨量(上段)と全降雨量におけるpHとECの関係

1時間当りの降水量は1降雨の全降水量を時間数で除した値とした。その結果 2 mm/h以下が全観測の約70% を占め,最大は9.5 mm/hであった。pHは時間雨量の多少に関係なく $3 \sim 8$ の範囲に分散しており,時間当たりの降水量が緩やかな降雨の場合にはpHのばらつきが大きくなる傾向にあった。ECは降雨速度の緩やかな場合にやや高い値を示す傾向が見られるものの,そのばらつきはpHほど大きくなかった。

一方、1降雨の降水量の多少との関係では大きなばらつきを伴い明らかな傾向を見ることはできないが、降水量が少なく、持続時間の短い雨でのpHは $3\sim7.5$ の範囲にばらつき、持続時間の長い雨では $4\sim5$ の狭い範囲であった。また、ECは降水量の増加とともに指数関数的に増加する傾向にあった。

3) 観測時の天候との関係

酸性降下物はその日の天候の状況によって異なることが予想される。そこで、快晴、晴天、曇 天あるいは降霧後の降雨のpHやECの関係について検討した。天候は毎日9時に観測したものを 採用した。従って全日の天候を調べたものでなく、降雨時間帯における天候を示したものではな い。

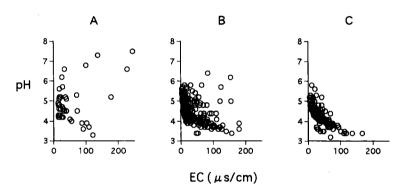


図-8 降雨時の天 (晴れまたは快晴 (A)、曇り (B) および曇りと 降霧 (C)) 時におけるpHとECの関係

図-8Aは快晴と晴れ、Bは曇天、Cは曇天と降霧時におけるpHとECの関係を示している。相対的にpHとECの関係は双曲線に沿って分布するが、快晴や晴れ時にはその形が崩れている。また、曇天時には両者間でばらつきが見られ、汚染度の高い場合にpHが高く観測される場合もあった。しかし、曇天で降霧時にはばらつきが少なく双曲線状に分布している。曇天の場合におけるばらつきについては、降雨途中で晴れ、その後再び降雨があったと考えると、ばらつき部分は晴れの区分に相当するものと考えられる。従って、pHやECのばらつきは快晴や晴れ時に起こる可能性が示唆される。快晴または晴れ時にはガスや塵が空中に上昇して浮遊することが考えられ、曇天時には空中の低い位置に浮遊することから図-8Cにみられる傾向になるのであろう。一方、快晴または晴れ時には降下するイオンの中で、特に導電しやすい金属イオンなどが他のイオンに優先して降下しているのではなかろうか。そのため、ECが高くpHの高いことを示しているのと理解されよう。平木ら⁹⁾は上昇気流の強さが降雨の酸性化を支配していると考えているが、本調査における晴天時の一時雨による場合を上昇気流による雨と解釈すると、弱酸性の雨の降る頻度が他の天候時よりも多く、上述の傾向と若干異なった結果を示した。

さらに、当試験地は海岸から5km余り離れた所にあり、潮風が吹き込み、さきに述べたように

塩害⁶⁾が発生している地域である。従って,酸性雨観測地点に潮風が吹き込む可能性が高い。観測値に潮を含む降雨がある場合,酸度が中和されて中性を示すことが考えられる。そのため風向との関係について調べた。風向,風力観測機器は酸性雨観測地点より約400m離れた尾根筋に設置されているが,おおよその風向を知るためにこの資料を活用した。図-9は風向を4分割し,海岸から潮風が吹き込む南東方向(網かけ部分)とそれ以外の方向に区分し,その場合のpHとECについての2例を示した。

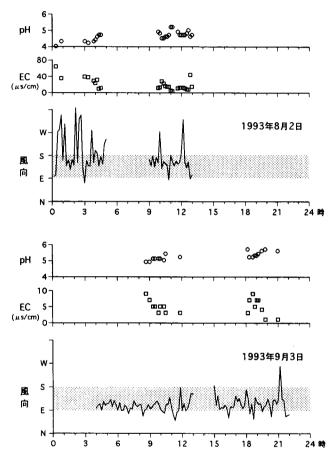


図-9 風向とpHとECの関係

観測時の風向とpH及びECとの関係を,上段には観測地に吹き込む機会の少ない日(8月2日),下段には吹き込みの多い日(9月3日)を採用して検討した。これらの日は両日とも曇天であった。前者ではpHは4~5の範囲にあり,後者では5~6の範囲であった。また,ECは前者で10~80,後者で $2\sim10$ を示し,後者の場合は汚染度の極めて少ないものであった。これらのpHとECの関係は上述のように汚染度の高い雨は酸度が高いという結果と一致している。ただし,風向による違いは明らかではなかった。また,他の風向との関係においても顕著な傾向は見いだせなかった。

汚染地域からの風の吹き込みはpHの高い雨を降らすことが明らかにされている⁸⁾が、試験地が 石油コンビナートに近いことから考えると、風向と同時に風力も併せて解析することが今後の課 題であろう。

4) 試験地における酸性雨の季節変化

1993年4月から1994年4月までの1年間の全降雨のpHやECについて調査,解析してきた結果を踏まえて、大まかに年間の季節変化について検討することにした。図-10A、Bは1降雨ごと

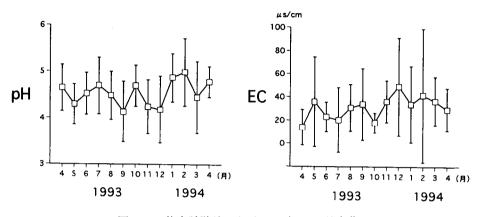


図-10 徳山試験地におけるpHとECの月変化

のpHとEC値を月平均としてその変化を示している(pHの平均値は水素イオン濃度に変換したのち、採水量から集計平均し、これをpH値に換算した $^{11)}$ 。EC値は単純平均値を用いた)。

図-10は観測値の月ごとの平均と標準偏差を求めて示されている。pHとECの関係は反比例,すなわち、ECが高い場合にはpHが低い関係にある。ECでは5, 9, 12, 2月に高く、pHは5, 9, 12, 3月に低い値を示した。両者の関係はほとんど似通っているが、2, 3月においてそのピークにズレが生じている。これはECのばらつきが非常に大きいことによるのかも知れない。

おわりに

酸性雨は地球環境を悪化し、生態系に大きく影響することが知られ、産業の生産過程で発生する有害物質の放出を制限しなくてはならないことが叫ばれている。こうした背景のもとに酸性雨調査が全国組織で続けられ、民間の多くの人達にも浸透してきている。

今回の酸性雨調査は初期降雨に重点を置き、初期降雨の観測できるレインゴーランドによる観測であった。1年間の酸性雨調査結果については上述のように、酸性の強い雨は降雨初期に発生し、しかも曇天時または降霧をともなう時にpHの低い傾向が明らかになった。

現在, 徳山試験地では1降雨単位での酸性雨調査を継続しており, 同時に降水の成分分析が行われている。今後さらに長期にわたる調査が続けられ生物被害なども併せた解析が期待される。

引 用 文 献

- 1) 石 弘之(1992)酸性雨. 242pp 岩波書店 東京
- 2) 中井 勇・北川新太郎・秋田 豊 (1994) 酸性雨調査から、京大演研報 1.69~72.
- 3) 金子隆之・中井 勇・安藤 信(1993) 市販酸性雨分取器を用いた酸性雨の測定-初期降雨のpHの

変化についてー. 日林関西支論 2.57~58.

- 4) 安藤 信・上田晋之助・北川新太郎・羽谷啓造・松場京子 (1994) 京都市, 徳山市, 和歌山県白浜町, 清水町の酸性雨-1993年梅雨期の初期降雨のpH, ECの測定例-. 日林関西支論 3.99~102.
- 5) 川那辺三郎・中島 皇・安藤 信・牧瀬明弘・秋田 豊・山本俊明 (1993) 徳山試験地における 1991年19号台風による林木の被害について (1) -ヒノキ人工林における被害状況-. 京大演集報 **25.** 100~107.
- 6) コープやまぐち (1993) 毎日、読売新聞 (1993,10,26) 及び関連資料
- 7) 金子隆之・山内隆之・北川新太郎・岸本洋士・神垣秀樹・安藤 信・川那辺三郎:同時降雨イベントにおける地域の違いが初期降雨の酸性度に与える影響-京都府南部・北部での酸性雨測定結果. (投稿中)
- 8) 玉置元則・正賀 充・平木隆年(1991) 1 降雨毎に採取した神戸の降雨の化学.日化誌 **6**.930~935.
- 9) 平木隆年・玉置元則・堀口光章・光田 寧 (1989) 雨水の酸性度を決定する要素について京大防災 年報 32. 311~319.
- 10) 日本気象協会編(1990)地上気象観測統計指針 気象庁
- 11) HORIBA:酸性雨分取器「レインゴーランドAR-8」マニュアル