

降水成分の汚染特性について

高野 利一 水上 和子

要 旨

浦和における初期降水について、その成分濃度の季節変化、降水成分と風向の関係及び気象パターンとの関係を検討した。その結果、pH4以下降水の出現は、夏期の北東系風時に多く、北西系風、南系風では夏期でも少なかったこと、春期では北東系風の出現数は多いが低pH降水の出現割合が少なかったことがわかった。

また、Na⁺を除いた各成分濃度は、北東系風時が最も高く、風向による濃度差の大きい成分はSO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺等であった。

浦和における夏期の降水は、本州南沖に停滞する前線や低気圧及び本州付近を通過中の前線や低気圧によりもたらされることが多く、その時のpHは低い場合が多かった。そして、台風型に比べNO₃⁻の占める比率が高くなっていた。

1 はじめに

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て、当所では昭和50年度から降水成分の測定を続けている。筆者らは昭和50年度から55年度までの降水について、その成分濃度の経年変化、水素イオン濃度に影響を及ぼしている成分、降水成分相互の関係、低pH降水の特徴等をすでに報告した^{1) 2)}。また、埼玉県内広域にわたり酸性雨の出現した日について、その気象的特徴を検討した結果についても報告した²⁾。

ここでは、従来の手動採取装置に換え自動採取装置を導入した昭和59年度からの降水成分測定結果について、成分濃度の季節変化、降水成分と風向の関係、気象パターンとpH等との関係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

浦和(埼玉県公害センター)
昭和59年4月-昭和62年3月

2・2 降水の採取及び分析方法

大気降下物自動採取装置(小笠原計器製R-500)を

用いて、降り始めから順次1mm毎に降水を採取した。

測定項目はpH(水素イオン濃度) EC、SO₄²⁻、NO₃⁻、Cl⁻、NH₄⁺、Ca²⁺、Mg²⁺、K⁺、Na⁺の10成分であり、その分析方法を表1に示す。

表1 分析方法

項 目	分 析 方 法
pH	ガラス電極法
EC	導電率計による方法
SO ₄ ²⁻	イオンクロマト法
NO ₃ ⁻	
Cl ⁻	
NH ₄ ⁺	インドフェノール法
Ca ²⁺	原子吸光光度法
Mg ²⁺	
K ⁺	
Na ⁺	

表2 降水成分濃度の平均値

(初期降水 1mm目)

	pH	EC	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	NH ₄ ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	K ⁺	Na ⁺	試料数
59年度	4.19	81.8	9.03	7.23	4.75	3.07	156	0.39	0.22	154	52
60年度	4.10	82.6	7.71	6.99	4.90	2.29	193	0.38	0.29	1.83	57
61年度	3.96	83.5	7.64	7.05	4.71	2.24	1.41	0.32	0.28	1.63	75
平均値	4.06	82.7	8.05	7.08	4.78	2.49	161	0.36	0.27	1.67	184

単位、各成分濃度：μg/ml
E C : μS/cm

3 結果及び考察

3・1 降水成分濃度

初期降水 1mm目の成分濃度の年度別平均値を表2に示した。昭和59年度から61年度まで3年間の平均pHは4.06であった。年度別平均値では61年度が3.96と低く、これは、人体被害が発生した昭和50年度の3.93²⁾に次いで低い値であった。

pHの出現頻度を図1に示す。初期降水 1mm目のpHは3.2-7.0と広い範囲に分布し、pH3.75-4.00の範囲にある降水の出現頻度が最も多かった。2mm目、3mm目は、1mm目と比べて分布の幅が狭くなり、pHの最多出現範囲も中性側になっていた。また、pH4以下の降水の出現割合は、1mm目では35%、2mm目、3mm目では27%、21%であった。以上のことから、降り始めの降水は、pHが低い傾向にあるがその分布範囲は広いと言える。

3・2 降水成分濃度の季節変化

初期降水 1mm目についてその季節変化を検討した。季節別の降水出現回数を図2に、降水成分濃度の季節別平均値を表3に示す。なお、季節の区分は春期を3月-5月、夏期を6月-8月、秋期を9月-11月、冬期を12月-2月とした。各季節における降水回数は年度により少し異なっているが、夏期に多く冬期に少ないという傾向がみられた。また、pH4以下の降水の出現回数は夏期に多い傾向を示しており、昭和61年度の場合、夏期の降水の71%がpH4以下であった。

夏期に濃度が高く冬期に濃度が低い成分は、H⁺、EC、SO₄²⁻、NO₃⁻、及びNH₄⁺であり、これとは逆

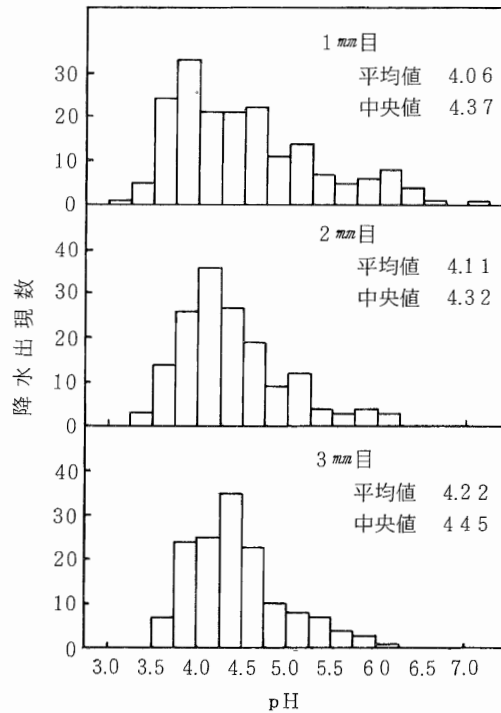


図1 pHの出現分布

に冬期に濃度が高く夏期に低い傾向を示した成分は、Cl⁻、Ca²⁺、Mg²⁺、K⁺及びNa⁺であった。すなわち、2次生成物質等に関する成分の濃度は夏期が高く、海塩粒子、土壌粒子及びダスト中の塩基性物質に関する成分の濃度は冬期に高い傾向を示した。

3・3 降水成分濃度と風向の関係

降水成分濃度は降雨強度を始め種々の気象要因の影響を大きく受けていると考えられる。種々の気象要因

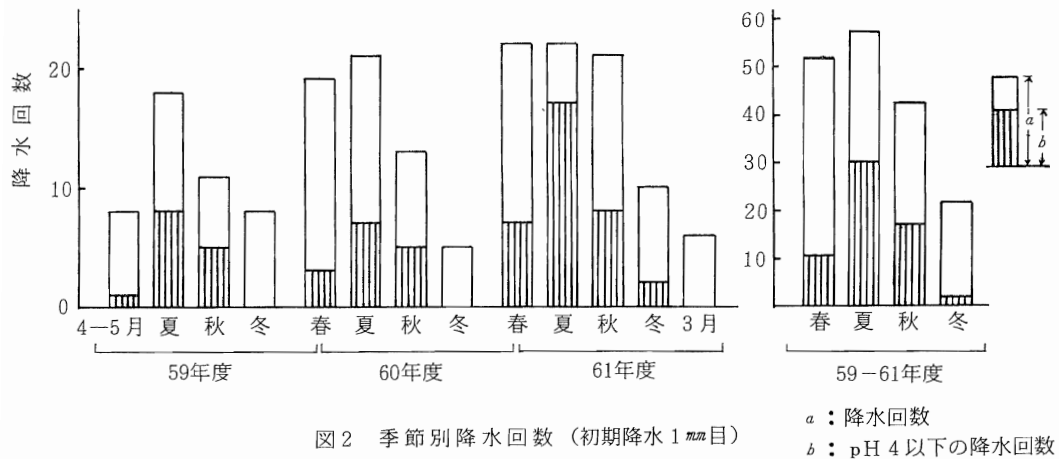


図2 季節別降水回数（初期降水1mm目）

表3 季節別の降水成分濃度

（初期降水1mm目）

	pH	E C	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	NH ₄ ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	K ⁺	Na ⁺	試料数
春 期	4.20	75.4	8.14	6.25	5.51	2.28	2.02	0.45	0.30	2.15	5 5
夏 期	3.90	95.3	9.05	8.16	4.03	3.03	1.07	0.24	0.23	0.87	6 1
秋 期	4.05	79.8	7.49	7.37	4.40	2.33	1.43	0.33	0.25	1.65	4 5
冬 期	4.42	72.6	6.31	5.67	5.75	1.89	2.41	0.51	0.33	2.67	2 3

単位、各成分濃度：μg/ml
E C : μS/cm

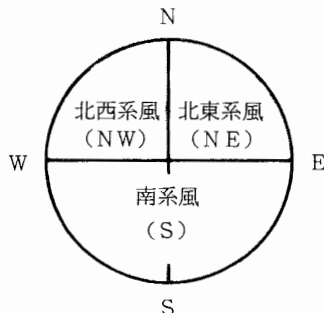


図3 風向の区分

のうち風向について、降水成分濃度との関係を検討した。

雨の降り始めの時刻における地上風を図3に示したように北東系風、北西系風、南系風（南西系風、南東系風の降水回数が少ないため、これらをひとまとめにし南系風とした。）の3種類に区分した。初期降水1mm目は調査期間中184回観測したが、このうち、降水

時の風速が0.4m/s以下のものと降水時間が明確でないものを除いた170回の降水について風向別に区分し、その出現回数を図4に示した。

各風向の降水出現回数は北東系風時に最も多く全体の55%を占めており、次いで北西系風、南系風時であった。また、pH4以下の降水の出現回数も北東系風時に多く、pH4以下降水のうち68%が北東系風時に出現していた。そして、北東系風時における降水の44%がpH4以下であった。

季節別にみると、春期及び夏期では北東系風時の降水が最も多く、次いで南系風時であった。秋期及び冬期では北東系風時及び北西系風時の降水がほぼ同じであった。

pH4以下の降水は夏期の北東系風時に多く出現しており、北西系風、南系風では夏期でも低pH降水の出現割合は少なかった。また、春期は北東系風の出現数が多いが低pH降水の出現割合は少ない等季節による違いが見られた。

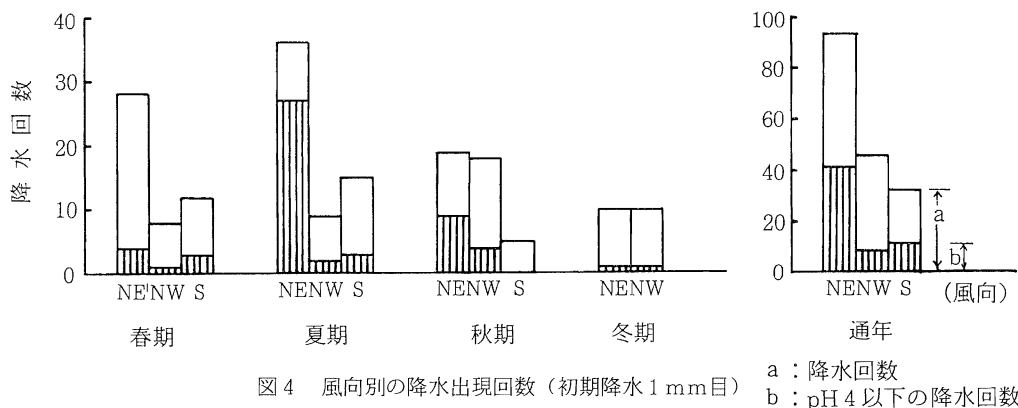


図4 風向別の降水出現回数（初期降水1mm目）
 a：降水回数
 b：pH4以下の降水回数

表4 風向別の降水成分濃度
 （初期降水1mm目）

	pH	EC	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	NH ₄ ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	K ⁺	Na ⁺	試料数
北東系風	3.94	100.3	9.50	8.56	5.14	2.90	1.77	0.38	0.28	1.69	93
北西系風	4.35	61.5	6.44	5.20	4.51	2.07	1.41	0.36	0.24	1.82	45
南系風	4.11	70.2	6.88	6.13	4.38	2.13	1.39	0.31	0.23	1.48	32

単位、各成分濃度：μg/ml
 EC：μS/cm

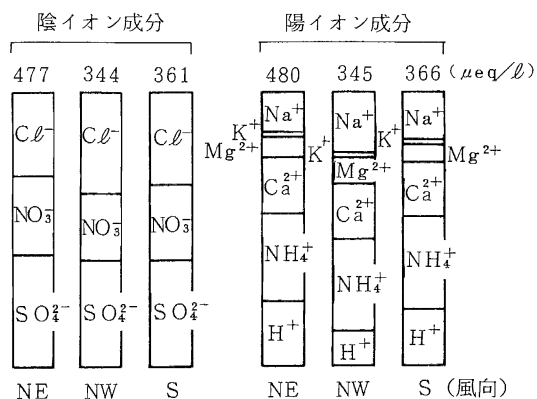


図5 風向別の降水成分のイオン構成比

風向別の降水成分濃度を表4に示した。pHは北東系風時に3.94と最も低く、次いで南系風時の4.11であった。Na⁺を除いた各成分濃度は北東系風時が最も高かった。風向による濃度の差は、SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺等2次生成物質に関する成分で大きく、一方、海塩・土壌粒子等に関する成分では小さいが特徴

的であった。

次に風向別のイオン構成比を図5に示した。北東系風ではNO₃⁻、H⁺の比率がやや高く、北西系風では、Cl⁻、Na⁺の比率が高い等風向による違いがみられた。

以上述べたように、浦和における初期降水は北東系風時に低pH降水が多く出現しており、この傾向は夏期において顕著であり、このことは埼玉県内広域にわたり酸性雨の出現した日の気象条件を検討した結果²⁾と一致していた。しかし、今回は地上風のみであり、上層風については検討していない。酸性雨出現日の地上風と1000m以上の上層風の風向は一致してなく、上層風は南風であることが多く^{2) 3)}、今後、上層風についても同様の解析を行うことが必要である。

3・4 気象パターン別の降水成分濃度

低pH降水の出現しやすい気象パターンを明らかにするため、降水をもたらした気象パターンと降水成分濃度との関係を検討した。本報では低pH降水の出現しやすい夏期の降水を、前線や低気圧の位置、雷雨、台風等降水をもたらした直接的な原因と考えられる気

象条件より、次の5つの気象パターンに区分した。区分に際しては主に9時の時点での天気図⁴⁾等を用いた。

- (A) 本州通過型：本州付近を通過中の前線または低気圧による降水
- (B) 本州南沖型：本州南沖に停滞する前線による降水
- (C) 大気不安定型：雷雨または寒気や暖湿流の流入により大気が不安定となりもたらされた降水
- (D) 気圧の谷型：緩い気圧の谷の通過による降水
- (E) 台風型：台風または台風等の影響により前線の活動が活発になったことによる降水

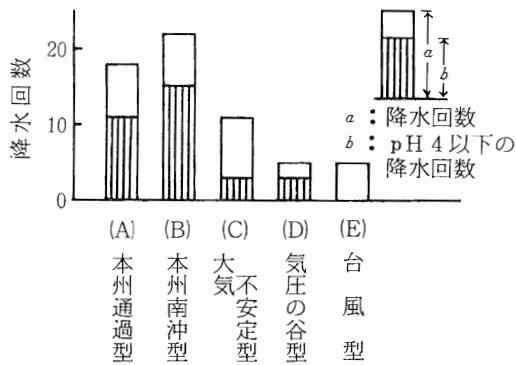


図6 気象パターン別の降水出現数
(初期降水1mm目、夏期)

気象パターン別の降水出現回数を図6に示した。降水出現回数の多いのは本州南沖型であり、全体の36%を占めていた。次いで多いのは本州通過型であり、全体の30%を占めていた。

pH 4 以下の降水出現回数も本州南沖型や本州通過型が多く、台風型では出現していなかった。本州南沖型の降水の68%、本州通過型の降水の60%、気圧の谷型の降水の60%がpH4以下であった。一方、大気不安定型や台風型では低pH降水の出現率は低かった。

以上のことから浦和における夏期の降水は、本州南沖に停滞する前線や低気圧及び本州付近を通過中の前線や低気圧によりもたらされることが多く、その時のpHは低い場合が多いといえる。

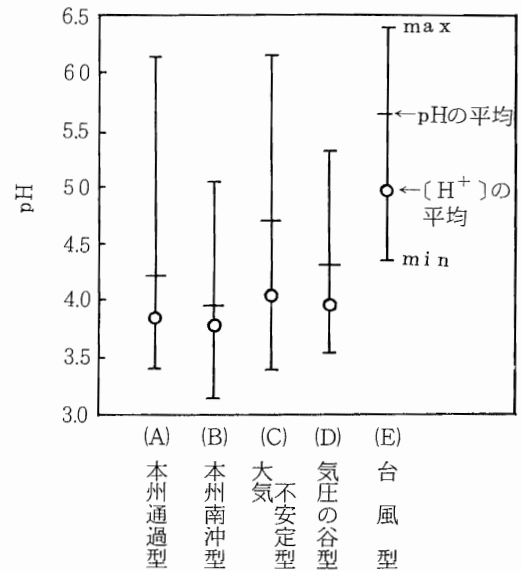


図7 気象パターン別のpH出現範囲

表5 気象パターン別の降水成分濃度

	(初期降水1mm目、夏期)											試料数
	pH	E	C	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	NH ₄ ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	K ⁺	Na ⁺	
(A)本州通過型	385	948	841	783	377	259	082	022	020	084	11	18
(B)本州南沖型	378	1200	1122	1002	489	358	131	029	022	097	11	22
(C)大気不安定型	405	823	853	850	337	354	1.18	022	0.30	0.56	10	11
(D)気圧の谷型	396	810	840	634	384	2.73	077	023	019	117	13	5
(E)台風型	498	330	354	220	282	135	0.96	023	021	091	1.6	5

単位、各成分濃度：μg/ml
E C : μS/cm

次に気象パターン別のpH出現範囲を図7に、降水成分濃度を表5に示した。

台風型を除いた各型のpH平均値はほぼ3.8-4.0の範囲にあり、特に低いのは本州南沖型の3.78であった。一方、台風型ではpHの出現範囲も他の型に比べ中性側に偏っており、その平均値は4.98であった。

SO₄²⁻、NO₃⁻、Cl⁻、NH₄⁺、ECは台風型に比べ他の型の濃度が高く、なかでも本州南沖型が最も高かった。しかし、Na⁺、K⁺は顕著な違いがみられなかった。

前線が本州南沖に停滞している場合の降水の濃度が高い理由としては、このような気象パターンの場合弱い雨が多く1mmに達するまでに時間がかかり、汚染質の取り込みが多かったことが考えられる。また、台風型の濃度の低い理由としては、上層に暖かい湿った南風が入り前線を刺激し強い雨をもたらしており、汚染質の取り込みが少なかったことが考えられる。

各気象パターンのSO₄²⁻とNO₃⁻の濃度比をみると、比の小さいのは大気不安定型、本州南沖型、本州通過型であり、逆に大きいのは台風型である等気象パターンにより違いがみられた。前者ではNO₃⁻、後者ではSO₄²⁻の占める割合が高くなっていたことが特徴的であった。

4 まとめ

浦和における初期降水について、その成分濃度の季節変化、降水成分と風向の関係及び気象パターンとの関係を検討した結果、次のことが明らかになった。

- (1) pH4以下の降水の出現は夏期に多くみられた。そして、夏期に濃度が高く冬期に低い成分は、H⁺、EC、SO₄²⁻、NO₃⁻、及びNH₄⁺であり、逆の傾向を示した成分は、Cl⁻、Ca²⁺、Mg²⁺、K⁺及びNa⁺であった。すなわち、2次生成物質等に関する成分は夏期に高く、海塩粒子、土壌粒子等に関する成分は冬期に高い傾向を示した。
- (2) pH4以下の降水は夏期の北東系風時に多く出現しており、北西系風、南系風では夏期でも低pH降水の出現割合は少なかった。また、春期は北東系風の出現数は多いが低pH降水の出現割合は少なかった。
- (3) 風向別の各成分濃度は、Na⁺以外は北東風時が最も高く、風向による濃度差の大きい成分は、SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺等であった。また、pHは北東系風時が3.94と最も低く、次いで南系風時の4.11であった。

(4) 浦和における夏期の降水は、本州南沖に停滞する前線や低気圧及び本州付近を通過中の前線や低気圧によりもたらされることが多く、その時のpHは低い場合が多かった。

(5) 本州南沖に前線が停滞している場合の降水のpH平均値は3.78と非常に低く、SO₄²⁻、NO₃⁻、Cl⁻、NH₄⁺濃度も台風型に比べ非常に高かった。

(6) SO₄²⁻/NO₃⁻比の小さいのは、大気不安定型、本州南沖型、本州通過型であり、逆に台風型では大きく、気象パターンにより違いがみられた。前者ではNO₃⁻、後者ではSO₄²⁻の占める割合が高くなっていた。

引用文献

- 1) 水上和子・金子安夫：雨水成分調査について（第3報），埼玉県公害センター年報，〔5〕，60～65，1978.
- 2) 水上和子：雨水成分調査について（第4報），埼玉県公害センター年報，〔8〕，60～66，1981.
- 3) 関東地方公害対策推進本部大気汚染部会・一部三県公害防止協議会：昭和60年度湿性大気汚染調査報告書，1986.
- 4) 日本気象協会：気象，1984～1986.
- 5) 熊谷気象台：埼玉県気象月報，1984～1986.