文 (Original article) 論

日本の森林域における梅雨期の降水成分 - 1990年代における降水成分の全国分布と年変動-

高橋 正通^{1)*}·加藤 正樹¹⁾·石塚 和裕²⁾

Precipitation chemistry of the Japanese forest area during the rainy season - Distributions and changes in precipitation chemistry during the 1990s -

TAKAHASHI Masamichi^{1)*}, KATO Masaki¹⁾ and ISHIZUKA Kazuhiro²⁾

Abstract

The Forestry Agency of Japan conducted a program to monitor forest damage caused by acid rain and air pollution from the year 1990 to 1999. In this monitoring program, bulk precipitation was collected during the middle ten days of the rainy season throughout Japan to analyze chemical constituents. The mean pH of the precipitation was acidic and was rising slightly. Electric conductivity was highest in 1994, when the lowest precipitation was recorded during the 1990s, and then decreased gradually. Most of the elements also had the highest concentrations in 1994. There are significant correlations between most element concentrations. The concentrations of NH_4^+ , nss-Ca²⁺, NO₃⁻, and nss-SO₄²⁻ gradually decreased from 1994 to 1998. The NO_3^2 / nss- $SO_4^{2^2}$ ratio was also decreasing, which suggests that contribution of nitrate to precipitation acidity was increasing. The loads of these elements were mostly dependent on the amount of precipitation rather than the concentrations. The geographical distributions of the amount of precipitation were usually high in western Japan and low in northern Honshu and Hokkaido Islands. However, the distributions of element concentrations in the precipitation changed year by year. Acidic precipitation was widely found in the mountainous area. The area with high concentrations of NH_{4+}^{+} NO₃, and $nss-SO_4^{2}$ in the precipitation, originating from anthropogenic gaseous pollution, exhibited similar distribution patterns with several ten-thousands km² or larger. However, high concentrations of sea salt elements like Na⁺ and Cl⁻ were limited in the coastal areas.

Key words: acid rain, air pollution, rainfall, monitoring, sea salts

要旨

林野庁は酸性雨等の環境汚染が森林に与える影響を早期発見するため酸性雨等森林衰退モニタリ ング事業を行った。その事業から、1990~1999年の10年間にわたる梅雨期10日間の降水成分の 年変動および国内分布について解析した。1990年代の降水 pH は常に酸性であったが、経年的に緩 やかな上昇傾向が見られた。電気伝導度(EC)は、調査期間の降水量が最小であった 1994年が最 も高く、それ以降、緩やかに低下する傾向が見られた。成分濃度は 1994 年に最大値を示したもの が多く、この年以降、NH₄⁺、nss-Ca²⁺、NO₃⁻、nss-SO₄²⁻ 濃度は減少傾向を示した。NO₃⁻/nss-SO₄²⁻ 当量比は上昇傾向にあり、硫酸に対して硝酸の割合が増加した。また各成分濃度は互いに正の有意 な相関関係が見られるものが多かった。負荷量は成分濃度より降水量に依存し、全国的に降水量の 多かった 1993 年、1995 年に多く、少なかった 1994 年に最小であった。観測期間中の降水量は西 日本で多く、東北北部〜北海道で少なかった。酸性の降水は各地の山間地でも広く観察された。ま た EC は降水量の少ない地域で高い傾向があった。一方、降水成分の濃度や負荷量の分布は毎年異 なっていたが、成分によっては特定の分布傾向が認められた。人為起源の汚染ガス成分に由来する NH₄⁺、NO₃⁻、nss-SO₄²⁻は、高濃度に分布する地域がほぼ重なっており、数万 km² 以上の広がりを もつことが多かった。一方、海塩成分である Na⁺と Cl⁻が高濃度になる地点は沿岸部に散在していた。

キーワード:降雨、酸性雨、大気汚染、モニタリング、海塩成分

原稿受付:平成16年7月22日 Received July 22, 2004 原稿受理:平成1 * 森林総合研究所立地環境研究領域 〒 305-8687 茨城県つくば市松の里1 原稿受理:平成16年12月16日 Accepted Dec. 16, 2004

Department of Forest Site Environment, Forestry and Forest Products Research Institute (FFPRI), 1 Matsunosato, Tsukuba, Ibaraki, 305-8687, Japan; e-mail: masamiti@ffpri.affrc.go.jp

¹⁾森林総合研究所立地環境研究領域 Department of Forest Site Environment, Forestry and Forest Products Research Institute (FFPRI)

²⁾森林総合研究所企画調整部 Research Planning and Coordination Division, Forestry and Forest Products Research Institute (FFPRI)

はじめに

1970年代以降、欧米において酸性雨等による湖沼の 酸性化や森林衰退が問題となった。欧州共同体(EC) と国連欧州経済委員会(UNECE)は森林モニタリン グプログラムを実施し、現在も森林の状態を継続して 監視している (Forest Intensive Monitoring Coordinating) Institute, 2003)。またアメリカ合衆国においても、環 境保護局が Acid Rain Program を実施し、1990年代 の降水成分の観測結果を報告している (Environmental Protection Agency, 2001)。我が国においても、都市近郊 のスギ平地林や山岳地帯のモミ、ブナ、ダケカンバ林等 の衰退が確認され、酸性雨や酸性霧などによる環境汚染 の影響が疑われた(例えば、梨本・高橋, 1991;池田ら, 1995; Igawa et al., 2002 など)。このため、森林総合研究 所の本支所により降水成分の通年観測が行われるととも に、林内雨、樹幹流の成分も分析された(松浦, 1992; 真田ら, 1991; Inagaki et al., 1995; 稲垣ら, 1996; 金子, 1997; Yamada et al., 2001; Matsuura et al., 2001; 伊藤 · 加藤,2003;相澤ら,2003;酒井ら,2003;伊藤・加藤, 2004;金子ら,2004;酒井ら,2004;山田ら,2004;相 澤ら,2004)。さらに林野庁により、酸性雨等の環境汚 染が森林に与える影響を早期発見するため、森林の衰退 状況調査「酸性雨等森林衰退モニタリング事業」が平成 2年度から1期を5カ年とし平成11年までの2期にわ たり全国規模で実施された(林野庁 1997, 2003; 佐々木 5,2001)。

同時期に環境庁(省)は都市部と沿岸部や離島など の遠隔地を中心に降水の観測を実施している(環境庁 (省)酸性雨対策検討会, 1994, 1999, 2002, 2004)。環境 庁のモニタリング結果をもとに、原(1997)は日本の 降水の化学性について詳細な解析を行った。また東京の 首都圏および関東周辺では慶應義塾大学理工学部の研究 グループが酸性雨の観測ネットワークを稼働させている (Narita et al., 2001; 慶應義塾大学理工学部環境科学研 究室、2003)。しかし、森林が優占する日本の内陸部に ついては実測データに乏しく(安念ら,1995; 鹿角ら, 1996; 酒井ら, 2003)、主にモデルを利用して降水成分 の状態や汚染物質の輸送過程が推定されてきた(藤田ら、 1994;池田ら、1995)。そのため、山地森林域の降水成 分の実態を広く調査することが求められていた。林野庁 は都道府県の協力を得て、毎年、降水試料が確実に得ら れる梅雨期に全国約200地点で林外雨(露地雨)を採取 し、その成分を分析した。このような全国を網羅する大 規模でかつ一斉に降水を採取するような調査はこれまで 行われたことがなかった。この調査は通年観測ではなく 6月のある一時期にすぎないが、日本全域における降水 成分の実測値やその地理的な分布の特徴、年変動の把握 などが期待された。

林野庁のモニタリングの結果については、第1期、第 2期の報告書(林野庁 1997, 2003)でその概略が説明さ れている。本報告は、その中の降水観測データについて さらに解析を進めたものである。解析にあたっては、全 期間を通じて分析の精度保証を統一して検討し、それを もとに、1)実際の山地における降水成分について 1990 年代の10年間の年変動傾向を知ること、2)降水成分の 全国分布傾向とその変動を把握することを目的とした。

観測地と方法

林野庁による降水の採水および分析は実施マニュアル (林野庁研究普及課,1995)に記載されているが、その 主要な点は以下のようなものである。

調査地の選定

全国を 20km × 20km のメッシュに区分し、メッシュ 中の陸地面積が全体の 4 分の 1 未満の場合や都市域な どを除いた 1,033 の地理区画(国土地理院 5 万分の 1 地 形図に相当)から区画を代表する林分 1 箇所を調査地に 選んだ。その中から、毎年の降水採取区画として全国に 散在するように約 200 区画を選び、5 年間で全区画を網 羅するように計画した。すなわち、1990 ~ 1994 までの 5 年間は毎年降水の採取区画は異なり、5 年で全調査区 画を一巡し、1995 年に再び 1990 年の調査区画に戻り、 1995 ~ 1999 年で 2 巡目の採水を行った。

降水の採取方法

上記で選定した調査地付近において、上方が45度以 上開空している場所(露場)でバルク方式によって降水 を採取した。採取時期は、梅雨期である6月の第3月曜 日から全国一斉に行い、10日間に降った降水を採取し た。なお、ごく一部の調査地では採取時期が1週間以上 ずれた場合があった(有効データの5%)。採取方法は、 直径30cmの漏斗を地上1.3m以上の位置に固定し、捕 集瓶に貯まった降水を回収した。1990年から92年まで の3年間は降水の回収のみであったが、1993年以降は 回収時の採水量から期間降水量を求めた。降水の採水は 都道府県に委託して実施した。

試料の化学分析と方法

降水の pH (水素イオン濃度) はガラス電極法、電気 伝導度 (EC) は電極法で測定した。降水成分のアンモ ニウムイオン (NH₄⁺)、硝酸イオン (NO₃⁻)、塩素イオ ン (CI)、硫酸イオン (SO₄²)、リン酸イオン (PO₄³⁻) 濃度はイオンクロマト法で分析した。カリウムイオ ン (K⁺)、ナトリウムイオン (Na⁺)、カルシウムイオン (Ca²⁺)、マグネシウムイオン (Mg²⁺) 濃度は原子吸光法 で分析した。これらの分析は財団法人林業科学技術振興 所に委託し実施した。

降水成分の品質管理・精度保証

降水の採取時や分析時に生じたと思われる異常データ を除外するため、東アジア酸性雨モニタリングネットワ ーク(EANET)の方法(酸性雨研究センター,2000)を 参考に、下に示した基準でデータの品質管理と精度保証 を行った。この基準は EANET より緩やかであるが、こ れは本研究の目的の一つが降水の全国的な分布傾向を把 握することにあるので、多少イオンバランス等に問題が あっても除外されるデータ数を減らし、その分布を把握 しやすくするためである。降水の成分に関するすべての 解析はこの精度保証が得られたデータのみを用いた。た だし、降水量についてはすべての観測データを用いた。

精度保証は次のように行った。まず初めに降水中にリ ン酸 0.01mg/L以上含まれるデータをすべて除外した。 その後、陽イオンと陰イオンのバランスに関する基準を R1 として、その値を 1)式で計算した。

R1(%) = (陽イオン合計 - 陰イオン合計) ÷ (陽イ オン合計 + 陰イオン合計)×100 …… 1)

ただし、濃度は当量 meq / L であり、陽イオン合計に は水素イオン濃度も含む。

1)式のR1が以下の基準を越えないものを選択した。

陽イオン+ 陰イオン (meq / L)	R1 %
< 0.05	\pm 50
0.05 - 0.1	\pm 25
> 0.1	\pm 15

次に降水成分のイオン組成から電気伝導度(EC)を2)式 で計算した。

EC (計算値 µS / cm) = 349.7 × H⁺ / 1.008 + 80 × SO₄²⁻ /48.03 + 71.5 × NO₃⁻ / 62.01 + 76.3 × Cl⁻ / 35.45 + 73.5 × NH₄⁺ / 18.04 + 50.1 × Na⁺ / 22.99 + 73.5 × K⁺ / 39.10 + 59.8 × Ca²⁺ / 20.04 + 53.3 × Mg²⁺ / 12.16 ……… 2) ただし、それぞれの成分はイオン濃度 (mg/L) である。2) 式のEC(計算値)と実際に測定したECを3)式により比較し、 基準 R2 を越えないものを選んだ。

実測 EC (µS/cm)	R2 %
< 5	\pm 30
5-30	\pm 20
> 30	± 15

以上の R1 と R2 両方の基準を満たす降水試料のみを精度が 保証された有効データとして選択した。ただし EC が 300 μ S/cm を越えるなど極端に成分濃度が高い 3 個のデータは 除外した。

硫酸イオン (SO₄²⁻) とカルシウムイオン (Ca²⁺) は海塩 成分の混入の影響を除去するため、ナトリウム濃度を基 準に海塩成分割合を差し引いた後の非海塩性イオン濃度 (nss-SO₄²⁻ および nss-Ca²⁺) についても検討した。

降水の成分と負荷量の分布

降水成分、負荷量(沈着量)および降水量の分布傾向 を把握するため、各採水地点の値を3段階に区分して 日本地図上に示した。3段階の区分は90年から99年ま での全期間のデータの分位点を参考に第1四分位数(25 パーセンタイル)と第3四分位数(75パーセンタイル) 付近の値で区切った。これにより四分位偏差、すなわち 中央値からプラス・マイナス25%、全体の50%の範囲 幅から外れる地点を強調して描画できる。

降水成分の相関関係

降水中の各成分濃度間の相関関係を調べた。各成分の 分布は歪度が正で高濃度に裾を引く分布であったので、 対数変換後に相関係数を求めた。

結果

降水量と成分濃度の年変動

1993 ~ 99 年の全期間における 10 日間の平均降水 量は 85mm であり、最小は 1994 年の 39 mm、最大は 1993 年の 123 mm であった。全期間の平均降水量に比 べ 1994、1995、1997 年の降水が少なく、1993、1996、 1998 年は降水量の多い年であった(Fig. 3)。

6月下旬10日間における各年の降水 pH の単純平均 は4.71(1991年)~5.18(1999年)の範囲にあり、水 素イオン濃度から求めた pH の平均値は4.55~4.92の 範囲であった(Fig. 1)。降水 pH の平均値は年変動を 示したが、その変化は最大0.30と小さかった。10年間 のモニタリング中は平均 pH 値に大きな変化はなかっ たが、緩やかな上昇傾向が見られ、単回帰では平均年 0.04程度上昇していた。観測された pH の最小値は3.87 ~4.51 であり、この時期 pH4.0以下の強い酸性の雨は ごく希に(1990年1地点、1994年2地点)しか観測さ れなかった。

降水の電気伝導度 (EC)の平均値は 9.6 (1998 年) ~ 25.0 (1994 年) μS / cm 程度であった (Fig.1)。降水量 の少なかった 1994 年が最も高く、それ以降、緩やかに 低下する傾向が見られた。

アンモニウムイオン (NH₄⁺)、硝酸イオン (NO₃⁻)、 非海塩性硫酸イオン (nss-SO₄²⁻) は、全国平均値でみる と NH₄⁺ 濃度は 0.21mg/L(1998 年) ~ 0.69mg/L (1994 年)、NO₃⁻ 濃度は 0.59mg/L (1998 年) ~ 2.20mg/L (1994 年)、nss-SO₄²⁻ 濃度は 0.59mg/L (1998 年) ~ 2.33mg/L (1994 年) の範囲にあった。各種成分濃度も 年変動を示したが、降水量の少なかった 1994 年は多く の成分濃度が 10 年間の最大値を示した (Fig.1)。この年 以降、NH₄⁺、nss-Ca²⁺、NO₃⁻、nss- SO₄⁻²⁻ 濃度は減少傾 向を示した。降水の酸性化に対する硫酸と硝酸の寄与を 推定するパラメータである NO₃⁻/nss-SO₄⁻²⁻ 当量比 (N/S 比)は 1990 年の 0.55 から 1999 年には 0.84 に上昇して おり、特に 1990 年代後半に硫酸の寄与が低下し、硝酸 の寄与が増加していた (Fig.2)。

なお、全期間のpH、EC、および成分濃度の有効デー タについて、その中央値を Appendix として掲載した。 データの分布は歪度が正なので中央値は平均値より小さ いことが多い。

成分負荷量の年変動

降水量と成分濃度の積である負荷量は、濃度よりも 降水量と比例する成分が多く、全国的に雨の多かった 1993 年と 1996 年には、K⁺ や Na⁺、CI を除く成分の負 荷量も大きかった (Fig. 3)。H⁺ 負荷量は降水量の年変動 と同じ傾向を示し、それ以外の多くの成分も降水の変動 傾向に対応していたが、K⁺ 負荷量と降水量との関係は 明瞭でなかった。降水量が最小であった 1994 年の濃度 は K⁺ を除くほとんどの成分で最高濃度となったが、負 荷量は各成分とも最低レベルであり、負荷量を決めるの は濃度よりも降水の量が重要な要因であった。ただし、 1998 年と 1999 年については、1999 年の方が降水量は やや少ないにもかかわらず、負荷量が大きな成分が多か った。

成分濃度間の相互関係

各イオンの濃度には互いに相関が見られた。陽イオ ン同士ではNa⁺、K⁺、Ca²⁺、Mg²⁺は互いにr=0.6以 上の相関をもっていたが、NH₄⁺と他の陽イオン濃度と は関係が見られなかった(Table 1)。陰イオン同士で はSO₄²⁻はCl⁻とNO₃⁻とr=0.5程度の相関が見られ、 NO₃⁻とnss-SO₄²⁻はr=0.61と比較的高い相関が見られ た。しかし、Cl⁻とNO₃⁻との相関関係は認められなか った。陽イオンと陰イオンの関係ではCl⁻とNa⁺、K⁺、 Mg²⁺はr=0.79以上、Ca²⁺ともr=0.53と高く、SO₄²⁻ とはいずれの陽イオンもr=0.3~0.5程度の緩やかな 相関が認められた。一方、NO₃⁻はNH₄⁺と有意な相関 (r=0.71)を示したが、他のイオンとの相関は認められ なかった。プロトンH⁺はNO₃⁻とSO₄²⁻と正の相関を示 し、NH₄⁺を除く陽イオンとは負の相関が認められた。 降水量と成分濃度の全国分布

6月下旬は梅雨期であり前線が本州付近に停滞するため、降水量は一般に西日本で多く、特に九州で多かった (Fig. 4)。関東から東北南部は中程度の降水量であったが、前線から外れる東北北部〜北海道の降水量は常に少なかった。バルク方式の採取では土埃や鳥の糞などの混入による汚染がしばしば起きる。このような場合、リン酸や Ca²⁺ や NH₄⁺ 成分が高濃度になることが多かった。 そのため、降水量が少ない北海道では精度保証の基準から外れることが多く、その内陸部の状態は十分に解析できなかった。

全観測の第1四分位以下にあたる pH4.7 以下の酸性 な降水は、1991年には全国的に広く見られたが、それ 以外の年の分布域は毎年異なっていた。梅雨期の降水は 必ずしも関東や京阪神などの人口が密集する工業地域周 辺が他より酸性なわけではなく、山間地でも各地で酸性 の降水が観察された (Fig. 5)。

20 μS/cm 以上の電気伝導度の高い降水は、1991 年、 1992 年(降水量未測定)や降水量の少なかった 1994 年 には全国各地で観測された。1993 年や 1998 年には降水 量の多かった西日本で EC が比較的小さい傾向が見られ た (Fig. 6)。また北海道ではこの時期の降雨量が少なく EC は高い値であった。

降水成分濃度の分布は毎年異なっていたが、成分によっては特定の分布傾向が認められた。ECの結果からわかるように、一般に成分濃度は降水量の少ない東北〜北海道で高く、降水量の多い西日本で低い傾向が見られた。人為汚染起源の成分といわれるNH₄⁺、NO₃⁻、nss-SO₄²が高濃度に分布する地域は観測年によって異なっており(Fig.7~9)、また、これらの成分が必ずしも大都市や工業地帯が多い地域の周辺にのみ高濃度に分布するとは限らなかった。ただし、それら3成分濃度が高い分布地域はほぼ重なっていた。例えば、高濃度地域は1990年の関東、1992年の東北北部、1993年の関東から東北日本海側にかけての周辺、1996年の北関東から仙台にかけての周辺などに確認できる。

降水中では陽イオンと陰イオンのイオンバランスが取れているので、 NO_3^- や SO_4^{2-} が高い地域は Ca^{2+} や Mg^{2+} 、 K^+ といった陽イオン濃度も全般に高い傾向が見られた。 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 K^+ の分布は似ているが(図省略)、非海塩 生成の nss- Ca^{2+} は 1993 年、1995 年、1997 年などで見 られるように内陸部にも高濃度の地点が分布する傾向 があった (Fig. 10)。主要な海塩成分である Na⁺ (Fig.11) と Cl⁻(図省略)が高濃度な観測地点は内陸部にはあまり 見られず、沿岸部に分布していた。

成分負荷量の全国分布

負荷量は降水量に比例するので、この時期には全般 的に西日本で各種成分の負荷量が多く、東北〜北海道 では少なかった。 $NO_3^- \ge NH_4^+$ 、nss- SO_4^{2-} の負荷量の 分布は似ていた(Fig.12 ~ 14)。ただし、 NO_3^- 負荷量 の分布は NH_4^+ や nss- SO_4^{2-} より本州の中央部に集中し て多い傾向が見られ(1994、1995、1999 など)、一方、 NH_4^+ や nss- SO_4^{2-} は遠隔地でも高濃度の地点がスポット 的に散在していた。 Na^+ (Fig.15) と Cl⁻(図省略)の高 負荷地点は沿岸部に分布する傾向があり、降水量が少な かった北海道の沿岸部でも高い負荷が認められた。 K^+ (図省略)や nss- Ca^{2+} (Fig.16)は高負荷と低負荷の地点 が混在するように分布していた。

考察

降水成分の年変動

1990年代の6月下旬の降水pHは、同時期に行われた環境省(庁)(環境庁酸性雨対策検討会,1994,1999)の酸性雨対策調査による通年観測の結果(4.7~4.9)と比べ大差なかった。降水のpHはわずかではあるが上昇傾向を示すとともに、成分濃度は緩やかな変化傾向が見られた。すなわち、1994年は降水量が38mmと少なく、ECや各種成分濃度は高かったが、その年以降、ECは徐々に低下した。それに対応するように工業、自動車、畜産など人為起源の汚染成分であるNH₄⁺、NO₃⁻、nss-SO₄²⁻やnss-Ca²⁺が低下傾向を示した。一方、海塩成分であ

る Na⁺ や CF も 1994 年から 1997 年まで低下傾向にあ る。そのため、この変動は単に降水量の変動や採取地 の違いによる可能性はあるが、降水量がほぼ同じ 1993、 1996、1998 を比較した場合も、NO₃⁻ や nss- SO₄²⁻ は低 下していた。また、N/S 比から判断すると、特に硫酸 の濃度が大気や降水中で低下した。環境省や慶應義塾大 学のモニタリングでもこの時期の nss- SO₄²⁻ の濃度低下 や N/S 比の増加が報告されているので(環境省酸性雨 対策検討会, 2004; Narita et al., 2001)、この傾向は全 国的なものであったと判断される。

負荷量に関しては、その多少は採取期間の降水量に主 に依存していた。梅雨期とはいえ採水期間の降水の年変 動が大きいため明確な傾向は見いだせなかった。負荷量 には成分濃度より降水量が重要であるので、今回のよう なごく短期間のモニタリング結果をもって負荷量の年変 動を議論するのは適当でないため、これ以上の議論は行 わない。

山地の降水成分濃度の特徴

今回の結果と都市域の調査結果を比較する。環境省 の調査によると、人口が密集し工業活動も活発な大都 市(武蔵野市、東京江東区、北九州、名古屋)ではnss-SO₄²、NO₃、NH₄⁺などの汚染成分濃度は高い(環境省 酸性雨対策検討会,2004)。首都圏のモニタリングによ ると、1990年代の平均 pH は 4.56 (範囲 4.23 ~ 4.76) であり、NH₄⁺、NO₃⁻および SO₄²⁻の平均濃度は、それ ぞれ 42.1 μeg / L、31.5 μeg / L および 47.9 μeg / L であ った (Narita et al. 2000)。これらの通年の平均値に比 べると、山地を中心とした6月の結果(中央値)はpH が 4.9 と高く、 NH_4^+ は 16.1 μ eq / L (0.29 mg / L)、 $NO_3^$ $lt 14.0 \mu eq / L (0.87 mg / L), SO_4^{2-} lt 28.1 \mu eq / L (1.35)$ mg/L)とかなり低い(Appendix)。一般に雨の多い時期 は成分濃度が低い傾向があるが(環境省酸性雨対策検討 会,2004)、工業地帯を含む大都市圏に比べると山地の 降水成分は全般的に清浄のようである。ただし、地方都 市を含んだ都市地域と田園地域との比較では、nss-SO42-やNO₃、NH₄⁺沈着量は大差なく、都市で発生した汚染 物質が周辺の田園域まで移流・拡散していることが示唆 されている(環境省酸性雨対策検討会,2004)。次節で は全国の降水成分の分布傾向から汚染物質の広がりを検 討する。

降水成分の分布

林野庁のモニタリングは短期間の観測結果とはいえ、 全国規模で降水を一斉に調査しており、山間地を含め降 水成分がどのように分布しているかを実測した貴重なデ ータといえる。この観測によると、降水成分濃度の分布 は毎年異なるが、ある程度の範囲で比較的類似した濃度 の降雨があることがわかる。その範囲は、例えば 1992 年の NO₃⁻の東北北部や 1996 年の Na⁺の九州南部の 例のように数県程度(数万 km²)の場合や、1991 年の nss- SO₄²⁻の近畿以西や 1993 年の NH₄⁺の関東から東北 日本海側にかけてのように長さ 1000km 程の広い範囲に わたる場合があった。特に NH₄⁺や NO₃⁻、SO₄⁻² などの 汚染成分は比較的分布が明瞭であり、このことは、ある 地点での観測結果がある程度の範囲を広く代表したもの であることを示している。

ガス成分によって発生起源や大気への拡散、降水成 分への寄与の程度が異なるといわれている。例えば、 SO,よりNO,は雨への溶解性が高く、SO,の方が広く 拡散することが知られているが (Seinfeld and Pandis, 1998)、今回は NO₃⁻より SO₄²⁻の方が広く分布するよ うな傾向は見られなかった。また NH₄⁺は工業だけでな く肥料や家畜などに由来する農業起源も多く(Murano et al., 1995)、内陸部でも高濃度の降水が観測されるこ とがあるという(Baba et al., 2001; 伊藤・加藤, 2003; 相澤ら, 2003)。しかし NH₄⁺と SO₄²⁻、NO₃⁻ 濃度は互い に相関が高く(Table 1)、それらは同じような分布を示 した。これら3成分とも規模の大きな排出地域は一致し ており、そこから広がったものと考えられる。このよう に SO₂ や NO_x、NH₃ などのガス状汚染物質は広く内陸 にも拡散し、排出源から離れた山地の森林にも降水中の SO₄²⁻やNO₃⁻、NH₄⁺として広く沈着している実態を示 すことができた。

一方、Na⁺ や Cl⁻ などの海塩成分の高濃度な地点はほ ぼ沿岸部に限られ、内陸部には影響は見られなかった。 負荷量も同様の分布傾向を示した。台風など強風時には ある程度内陸にも到達する可能性はあるが、ガス成分に 比べ海塩成分の飛沫範囲は狭いと考えられる。

以上のような濃度や負荷量分布は毎年大きく異なって おり、気象条件が拡散や負荷に大きく影響するようであ る。そのため短期間の観測から通年の負荷量の多少を類 推する議論などは避けるべきである。

6月下旬の降水観測の位置付け

林野庁の事業では全国同じ時期の降水試料が短期間 に確実に得られる梅雨期を選択した。しかし、冬季と夏 季で卓越する風向きや降水量が異なり降水成分濃度や沈 着量は季節変化するので(真田ら, 1991; 原, 1997; 相 澤ら,2003)、6月の梅雨期の観測結果の位置付けを理 解しておく必要がある。環境省の通年モニタリングに よると、nss-SO₄² 濃度は冬季には日本全域で濃度上昇 がみられ、NO₃やNH₄+濃度もほぼ同様の季節変動傾 向を示す(環境省酸性雨対策検討会, 2004)。また nss-Ca²⁺ 濃度は春季に最大で夏季に最小を示すという。た だし、このような季節変動のピークは日本海側に比べ太 平洋側ではそれほど明瞭ではない。また6月の負荷量は 北海道を除くといずれの成分も他の月より多い。そのた め今回の結果は降水成分濃度としては比較的低く、沈着 量としては多い時期の調査と考えられる。また夏季は南 風が卓越するので、汚染物質は主に国内(太平洋側の大 都市や工業地帯)に起源をもつものと推察される(原、 1997)。ただし今回の結果では、時々 SO₄²⁻ や NO₃-、

NH₄⁺の高濃度分布域が日本海側(1997年、1995年) や北日本(1992年)に出現するが、その起源が国内か どうかはわからない。

降水は10日の一定期間であるため、その間の降雨パ ターンも成分濃度に影響する。1回の降雨の経時的な成 分濃度の変化を調べると、初期降雨は高濃度であるが、 しだいに EC や成分濃度が低下する(安藤ほか,1993)。 6月に雨量の少ない北海道や東北北部では成分濃度が比 較的高かったのに対し、降水量の多い西日本では濃度が 低かったのは、梅雨時の連続降雨による希釈のためと考 えられる。

おわりに

酸性雨の直接影響という意味では、降水のpHや成分 の濃度が問題になるが、長期的な汚染物質の影響とい う観点では負荷量の評価も重要である。日本の降水成分 濃度は欧米先進国のレベルに匹敵しており(原,1997)、 また小さな島国なので人為起源の汚染物質はすぐに山地 森林域に拡散する。さらに安念ら(1995)も観察して いるように、負荷量は降水量の要因が強いので、降水量 の多い山岳地ではたとえ濃度が低くとも年間を通じた負 荷量は少なくない可能性がある。遠隔地や山岳地の観測 は容易でないが、山地森林の負荷量の推定精度を上げる ためには、降水成分の分析以上に山岳地の降水量の実測 や推定精度の向上が重要である。

また、上記のように降水中の成分は季節風や台風な どの気象条件によって影響を受ける。雲の発達様式の 違いによって降水成分が異なることも報告されている (Adachi et al., 2001)。そのため、この調査事業は、梅 雨期という本州付近に位置する停滞前線による降水成分 の結果であり、冬季のように北からの季節風が卓越する ような状況では成分濃度の分布範囲や方向が大きく異な ると予想される。今後は季節毎に濃度分布を明らかにす ることが必要である。

謝辞

本事業を推進された林野庁、同事業の第1期、第2 期検討委員として有益な助言を頂いた相場芳憲氏、大喜 多敏一氏、佐々木恵彦氏、高橋啓二氏、南雲秀次郎氏、 野内勇氏、村野健太郎氏、鈴木清氏、伊豆田猛氏、太田 誠一氏、河野吉久氏、横堀誠氏、藤森隆郎氏、堀田庸氏、 垰田宏氏、加茂皓一氏、赤間亮夫氏に感謝する。またモ ニタリングを長期間実施した林野庁研究普及課および都 道府県の多くの職員の多大な御苦労に敬意を表する。分 布図の作成には垰田宏氏制作のソフト「N3Map」を使 用した。なお、本研究は森林総合研究所交付金プロジェ クト研究(課題番号 200002)「酸性雨等の森林・渓流へ の影響モニタリング」および林野庁森林吸収源計測・活 用体制整備強化事業における森林衰退状況調査によって 実施したものである。

引用文献

- Adachi, M., Hayashi, K., and Dokiya, Y. (2001) Sea ice approach and chemical species in precipitation at Abashiri, Japan. Water, Air, and Soil Pollution, 130, 1655-1660.
- 相澤州平・岡本 透・池田重人 (2003) 東北地方内陸部 森林地帯における降水中の溶存成分濃度の季節変化 および溶存成分負荷量,森林総合研究所研究報告,2, 157-164.
- 相澤州平・池田重人・岡本 透・佐々朋幸・後藤和秋・ 長谷川浩一・森 茂太・鈴木和次郎・大住克博・金 指達郎・中村松三・小野寺弘道・大原偉樹・松岡廣雄・ 齊藤武史・庄司次男・窪野高徳・佐橋憲生・槙原 寛・ 山家敏雄・鈴木祥悟 (2004) 酸性雨等の森林生態系へ の影響モニタリング – 東北地方における降水と森林 の調査–,森林総合研究所研究報告,3,439-476.
- 安藤 信・上田晋之助・北川新太郎・羽谷啓造・松場京 子 (1993) 京都市、徳島市、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 測定例–,日林関西支論,3,99-102.
- 安念 清・大西勝典・藤谷亮一・早狩 進・福崎紀夫・ 佐々木一敏・清水源治・小山 功・久米一成・土器 屋由紀子・丸田恵美子・畠山史郎・村野健太郎 (1995) 日本の山岳地帯における酸性降下物中のイオン種濃 度と降下量,日本化学会誌,1995(11),915-921.
- Baba, M., Suzuki, Y., Sasaki, H., Matano, K., Sugiura, T., and Kobayashi, H. (2001) Nitrogen retention in Japanese cedar stands in northern Honshu, with high nitrogen deposition. Water, Air, and Soil Pollution, 130, 1103-1108
- Environmental Protection Agency (2001) Acid Rain Program: Annual Progress Report 2000. Compliance and Emissions Trends, United States Environmental Protection Agency, Office of Air and Radiation, Clean Air Markets Division 6204N, EPA-430-R-01-008, 150pp.
- Forest Intensive Monitoring Coordinating Institute (2003) Intensive monitoring of forest ecosystems in Europe. Technical Report 2003, W.de Vries, G.J.Reinds, M.Posch, M.J.Sanz, G.H.M.Krause, V.Calatayud, J.P.Renaud, J.L.Dupouey, H.Sterba, E.M.Vel, M.Dobbertin, P.Gundersen, J.C.H.Voogd., EC-UN / ECE, Brussels, Geneva, 154pp.
- 藤田慎一・高橋 章・西宮 昌 (1994) わが国における 酸性雨の実態 – 降水の観測網の構築–,環境科学会 誌,7(2),107-120.
- 原 宏(1997)日本の降水の化学,日本化学会誌,1997 (11),733-748.
- 池田有光・安田龍介・東野晴行・渡辺竜馬・畠山史郎・ 村野健太郎 (1995) 赤城山で発生する酸性霧と大気

汚染の解析 -汚染大気の輸送を中心として-,大気 汚染学会誌,30(2),113-125.

- Igawa, M., Okumura, K., Okochi, H., and Sakurai, N. (2002) Acid fog removes calcium and boron from fir tree: one of the possible causes of forest decline. Journal of Forest Research, 7, 213-215.
- Inagaki, M., Sakai, M., and Ohnuki, Y. (1995) The effects of organic carbon on acid rain in a temperate forest in Japan. Water, Air, and Soil Pollution, 85, 2345-2350.
- 稲垣昌宏・酒井正治・大貫靖浩(1996)九州地方にお ける寡雨年と多雨年の降水中の濃度、フラックス, 日林論,107,153-156.
- 伊藤優子・加藤正樹 (2003) 関東地方の都市近郊平地林 における降水中の成分濃度と負荷量 –森林総合研 究所構内における降水の観測結果–,森林総合研究 所研究報告,2,149-155.
- 伊藤優子・加藤正樹 (2004) 酸性雨等の森林生態系への 影響モニタリング - 森林総合研究所(つくば市) における降水の調査-,森林総合研究所研究報告,3, 267-275.
- 金子真司 (1997) 京都市における降水中のイオン組成, 森林応用研究, 6, 41-44.
- 金子真司・荒木 誠・古澤仁美・後藤義明・服部重昭・ 平野恭弘・井鷺裕司・伊藤宏樹・加茂皓三・清野嘉 之・小林忠一・小南裕志・深山貴文・南部 桂・西 本哲昭・竹内郁雄・玉井幸治・千葉幸弘・鳥居厚志・ 吉岡二郎(2004)酸性雨等の森林生態系への影響モ ニタリング –関西スギ林における酸性降下物–,森 林総合研究所研究報告,3,277-296.
- 環境庁酸性雨対策検討会 (1994) 第 2 次酸性雨対策調査 結果, 80p.
- 環境庁酸性雨対策検討会 (1999) 第3 次酸性雨対策調査 とりまとめ 136p.
- 環境庁酸性雨対策検討会 (2002) 第4 次酸性雨対策調査 取りまとめ, 175p.
- 環境省酸性雨対策検討会 (2004) 酸性雨対策調査総合と りまとめ報告書,432p.
- 慶応義塾大学理工学部環境科学研究室 (2003) 首都圏の 酸性雨 - ネットワーク観測による環境モニタリン グ-,慶應義塾大学出版会,253p.
- 松浦陽次郎 (1992) 樹幹流と土壌の酸性化の実態,森林 立地,34,20-25.
- Matsuura, Y., Sanada, M., Takahashi, M., Sakai, Y., and Tanaka, N. (2001) Long-term monitoring study on rain, throughfall, and stemflow chemistry in evergreen coniferous forests in Hokkaido, northern Japan. Water, Air, and Soil Pollution, 130, 1661-1666.
- Narita, Y., Satoh, K., Hayashi, K., Iwase, T., Tanaka, S., Dokiya, Y., Hosoe, M., and Hayashi, K. (2001) Long term trend of chemical constituents in Tokyo

metropolitan area in Japan. Water, Air, and Soil Pollution, 130, 1649-1654.

- 梨本 真・高橋啓二 (1991) 関東甲信・関西瀬戸内地方 におけるスギの衰退現象,森林立地,32(2),70-78.
- Nurano, K., Hatakeyama, S., Mizoguchi, T., and Kuba, N. (1995) Gridded ammonia emission fluxes in Japan. Water, Air, and Soil Pollution, 85, 1915-1920.
- 林野庁 (1997) 酸性雨等森林被害モニタリング事業報告 (平成2~6年度) 74p.
- 林野庁 (2003) 第2 期酸性雨等森林衰退モニタリング事 業報告書,90p.
- 林野庁研究普及課 (1995) 酸性雨等森林衰退モニタリン グ事業実施マニュアル(1991.4.9 改訂) 1995.4.12 第2期用, 31p.
- 酒井寿夫・森澤 猛・仙石鐵也 (2003) 御岳山における
 7年間の降雨・降雪の pH、EC と溶存成分の特性, 森林立地,45,21-27.
- 酒井寿夫・仙石鐵也・原 光好・森澤 猛・垰田 宏・ 岩本宏二郎・荒井國幸・小澤孝弘 (2004) 酸性雨等 の森林生態系への影響モニタリング - 木曽御岳山 の亜高山針葉樹林における降水の調査-,森林総合 研究所研究報告,3,297-317.
- 真田 勝・太田誠一・大友玲子・真田悦子 (1991) 札幌 近郊におけるトドマツ、エゾマツ人工林の樹幹流・ 林内雨および林外雨について,森林立地,33,8-15.
- 酸性雨研究センター (2000) Technical documents for wet deposition monitoring in East Asia, Quality assurance / Quality control (QA / QC) program for wet deposition monitoring in East Asia. Adopted at: The second interim scientific advisory group meeting of acid deposition monitoring network in East Asia. 29p.
- 佐々木重行・桑原康成・高宮立身・春海賢一・横尾謙一 郎・水久保孝英・前迫俊一・漢那賢作(2001)酸性 雨等森林被害モニタリング第1期における九州地区 の特徴,森林立地,43,45-52.
- Seinfeld, J. H., and Pandis, S. N. (1998) Atmospheric chemistry and physics, from air pollution to climate change, John Wiley & Sons, 1326p.
- 鹿角孝男・薩摩林 光・佐々木一敏・鹿野正明・太田宗康・ 畠山史郎・村野健太郎 (1996) 八方尾根および長野 市における浮遊粒子状物質と酸性降下物の特性,大 気環境学会誌,31,282-291.
- Yamada, T., Yoshinaga, S., Morisada, K., and Hirai, K. (2001) Sulfate and nitrate loads on a forest ecosystem in Kochi in southwest Japan. Water, Air, and Soil Pollution, 130, 1115-1120.
- 山田 毅・森貞和仁・酒井 敦・吉永秀一郎・平井敬三・ 加藤正樹・吉田桂子・岩川雄幸・三浦 覚・稲垣善 之・篠宮佳樹・竹内郁雄・田淵隆一・酒井 武・倉 本惠生・森 茂太・大黒 正・川崎達郎・松村直人・

小谷英司・吉田 実・宮本知子・都築伸行・山田茂 樹・今富裕樹・峰尾一彦・山崎三郎・井上大成・田 端雅進·阿部恭久·弘田孝行·門田晴夫 (2004) 酸 合研究所研究報告, 3, 365-407.

性雨等の森林生態系への影響モニタリング – 四国 ヒノキ林における降水および林分の調査-,森林総

Table 1 降水成 Matrix	发分濃度lt x of corre	間の相関行 slation coe	[列] fficients ar	nong eleme	ent concen	trations.								
	Ηd	logEC	logH	logNa	$\log NH_4$	logK	logCa	logMg	logCl	$\log NO_3$	$\log SO_4$	log nssCa	log nssSO ₄	1
Hq	1.00	-0.21*	-1.00***	0.42^{***}	-0.37***	0.40^{***}	0.43***	0.31^{**}	0.33^{**}	-0.56***	-0.22*	0.37^{***}	-0.37***	
logEC		1.00	0.21^{*}	0.54^{***}	0.24^{*}	0.56***	0.42^{***}	0.57***	0.71^{***}	0.46^{***}	0.76***	0.36^{***}	0.63^{***}	
logH			1.00	-0.42***	0.37^{***}	-0.40***	-0.43***	-0.31**	-0.34**	0.56^{***}	0.22^{*}	-0.37***	0.37***	
logNa				1.00	-0.16	0.67^{***}	0.60^{***}	0.78***	0.88^{***}	-0.11	0.54^{***}	0.46^{***}	0.32^{**}	
$\mathrm{log}\mathrm{NH}_4$					1.00	-0.04	-0.10	0.00	-0.07	0.71^{***}	0.33^{**}	-0.06	0.44^{***}	
logK						1.00	0.60^{***}	0.72***	0.81^{***}	-0.10	0.35^{**}	0.54^{***}	0.15	
logCa							1.00	0.72***	0.53***	0.06	0.43***	0.98***	0.32^{**}	
logMg								1.00	0.79***	0.01	0.51^{***}	0.67***	0.35^{**}	
logCl									1.00	-0.09	0.48^{***}	0.42***	0.24^{*}	
$\log NO_3$										1.00	0.51^{***}	0.09	0.61^{***}	
$\log SO_4$											1.00	0.37^{***}	0.96^{***}	
log nssCa												1.00	0.29^{**}	
$\log nssSO_4$													1.00	
Appendix 199 The	90 年 \sim 1 5 median	999 年の隣 of pH, EC	春水の pH、 X(<i>u</i> S/cm),	EC(μ S/cr and elemen	n)、成分漲 nt concentr	豐度 (mg/I ations (mg	ご) の中央(Σ/L) in th	直と有効デ [、] e precipital	夕数 tions durin	g the 1990	s monitorii	ng periods.		
Year	1990		991	1992	1993	19	94	1995	1996	199		1998	1999	1990-1999
pH*	4.85	4	1.58	4.90	5.03	4.	82	4.93	5.09	5.1	3	5.11	5.07	4.97
EC	13.1	1	15.3	12.5	11.9	15	9.0	15.2	12.1	9.	7	7.5	12.1	12.8
Na^+	0.27	, C	0.19	0.26	0.22	0.	49	0.29	0.31	0.2	7	0.26	0.44	0.29
NH_4^+	0.40	0	0.24	0.22	0.35	0.	48	0.41	0.32	0.2	4	0.16	0.29	0.29
\mathbf{K}^+	0.25	0	0.15	0.18	0.14	0.	23	0.21	0.11	0.1	4	0.11	0.19	0.18
Ca^{2+}	0.06	0	0.20	0.22	0.21	0.	35	0.24	0.21	0.2	1	0.13	0.19	0.20
Mg^{2+}	0.05	0	J.04	0.05	0.05	0.	60	0.05	0.04	0.0	5	0.03	0.05	0.05
CI-	0.74	1	0.52	0.52	0.55	0.	89	0.42	0.42	0.4	7	0.37	0.61	0.54
NO ³⁻	0.84	+	1.06	0.84	0.80	1.	50	1.13	0.72	0.6	3	0.43	1.05	0.87
SO_4^{2-}	1.57	7 1	1.86	1.32	1.56	2.	.03	1.62	1.16	0.0	5	0.62	1.17	1.35
$nssCa^{2+}$	0.07	2 C	0.19	0.20	0.19	0.	32	0.23	0.20	0.1	6	0.11	0.18	0.19
$nssSO_4^{2-}$	1.46	1	1.81	1.21	1.47	1.	84	1.52	1.01	0.8	7	0.52	1.02	1.22
n	96		119	143	103		94	93	129	13	2	98	91	1100

CI-	0.74	0.52	0.52	0.55	0.89	
NO ³⁻	0.84	1.06	0.84	0.80	1.50	
SO_4^{2-}	1.57	1.86	1.32	1.56	2.03	
$nssCa^{2+}$	0.07	0.19	0.20	0.19	0.32	
$nssSO_4^{2-}$	1.46	1.81	1.21	1.47	1.84	
u	98	119	143	103	94	

 $\ensuremath{^{\ast}}\xspace$ pH was calculated from $H^{\ensuremath{^{+}}}\xspace$ concentrations.

- Distributions and changes in precipitation chemistry during the 1990s -

Precipitation chemistry of the Japanese forest area during the rainy season

Bulletin of FFPRI, Vol.4, No.1, 2005



Fig.1. モニタリング期間における降水成分の年変動。平均値と標準偏差 (縦棒)。pH における△は最大値、▽は最小値 Changes in precipitation chemistry during the monitoring period. The mean values and vertical bars (± SD) are shown in the figures. In the figure of pH, triangles indicate maximal values and inverse triangles indicate minimal values.



Fig.2 NO₃^{-/} nss-SO₄²⁻ 比の年変動。平均値と標準偏差 (縦棒)。 Changes in NO₃^{-/} nss-SO₄²⁻ equivalent ratio during the 1990s monitoring periods. The mean values and vertical bars (±SD) are shown in the figures.



Fig. 3 モニタリング期間中における成分負荷量の年変動。平均値と標準偏差 (縦棒)。 Changes in elements loads from the precipitation during the monitoring periods in the 1990s. The mean values and vertical bars (±SD) are shown in the figures.

1990 No measurement







Fig.4 続き





























1991

No measurement

No measurement





1990

No measurement

No measurement





1990

No measurement

No measurement



(次ページに続く)



No measurement

1991

No measurement



(次ページに続く)



No measurement

1991

No measurement



(次ページに続く)

