

# Correlation between Acid Precipitation and its Filter Residue in Kakuma Campus, Kanazawa University, Kanazawa, Japan

メタデータ	言語: jpn 出版者: 公開日: 2017-10-05 キーワード (Ja): キーワード (En): 作成者: メールアドレス: 所属:
URL	<a href="http://hdl.handle.net/2297/29540">http://hdl.handle.net/2297/29540</a>

## 金沢大学角間キャンパスにおける酸性降水特性と残留物質の関係

馬飼野光治・田崎和江

Koji MAKAINO and Kazue TAZAKI : Correlation between Acid Precipitation and its Filter Residue in Kakuma Campus, Kanazawa University, Kanazawa, Japan

**ABSTRACT :** Rain and snow were collected in the Botaic Garden, the Faculty of Science of Kanazawa University from Dec. 8, 1995 to Jan. 15, 1997. pH and Electric Conductivity (EC) of wet precipitations were measured, while recording daily weather condition. After the measurement of both pH and EC value, the collected precipitations were filtrated by  $\phi=0.45\mu\text{m}$  membrane filter. Filtered samples (110 pieces in total) were treated with image scanner, and the filtrates (49 samples in total) were analyzed with ion chromatography (IC). These data were examined mutually, and the property of precipitations was able to recognize from the distribution of daily atmospheric pressure.

**Key words :** Acid precipitation, Electric Conductivity (EC), Filter residue, Ion chromatography (IC), pH.

### はじめに

近年酸性雨の問題は、大気汚染とともに注目され(大喜多 1991)，高度経済成長時の酸性雨人体被害が発生してから様々な対策が、自治体や企業により講じられてきた。また、各地の研究所では、降水の化学成分やpH, ECの測定を行ってきた。初期の頃は全国で統一したデータがなかった(玉置・平木 1986)が、1983~1987年にかけて初めて日本全国で統一的な手法によって一斉調査が行われ(北村 1991)，これにより全国的な比較ができるようになった。一方、近年はこの調査の他、より詳細な地域の特性の重要性が指摘されるようになった。例えば、金沢は年間を通し降水量が多く、冬期にそのピークがあるが、冬期の硫酸イオンの濃度、降水量が大きく、大陸方面からの長距離輸送の影響が大きいことが報告された(北村 1991)。このように日本海側で特徴のある降水の長期的な観測と分析が求められている。また、北陸において高山における降水の酸性度や、非海塩起源のイオン濃度といった研究や測定が行われている(中川ほか 1991; Satake and Yamane 1992)が、いずれも化学成分濃度のみに注目した分析が多い。また、降雪の酸性度(酸性雪)についての知見もまだ少ない。一方、大気中の浮遊粒子や酸性、有害物質の特性については、降水に関するものよりも多数の研究が行われている。しかしこれら大気中のエアロゾルや、鉱物粒子、人工生成物質と降水との相互関係についてはほとんど研究が行われていない。また、気象条件による降水の性質の変化に関する研究も少ない。

本研究では、大規模な工業地帯もなく、大陸からの長距離輸送物質の監視には適した金沢において、降水のpHやECを測定し、さらに化学的性質と固体である降水中の残留物質、気象条件等との関係を明らかにしたので報告する。

### 採取・分析方法

気象の観測および降水の採取は1995年12月より引き続き、金沢大学角間キャンパス内にある理学部付属植物園（石川県金沢市角間町）にて行った。本論文では1995年12月8日の開始時より、1997年1月15日まで（気象観測は1997年2月9日まで）の記録を記載している。

観測と採取は昨年と同一方法で行っている。気温はU字型最高最低温度計を用い、最高気温と最低気温を測定した。当初は植物園実験棟屋上で測定し、1996年5月22日より風通しの良い実験棚にて測定している。降水量（降雨量、降雪量）測定と採取は、全期間屋上で行った。降水量は32cm×42cm×12cmのポリプロピレン製トレイ（以下トレイ）を用い、内目盛を目測により測定した。降雪の場合は雪の状態と融解させた水量ともに測定し、この融解水量を降水量として計算している。積雪深は植物園内の農場の露地に雪尺を立て、毎日午前中に測定した。

降水の採取は一度の降水全体を採取する方法、降水を細分分取する方法の二種類を行った。降水全体採取はトレイをそのまま用いた。降水の細分分取では、降雨は㈱堀場製作所製酸性雨分取器レインゴーランドAR-8を用い、約1mmごとに採取した。降雪は強度に合わせて1～4時間毎にプラスチック瓶を用いて採取した。

採取した降雨は、採取後直ちにpHと導電率（電気伝導度：以下EC）を測定した。降雪は、トレイ、分取ともに常温で融解させ、全量融解後測定している。pHとECの測定には㈱堀場製作所製pH計と導電率計を用いた。

pHとECの測定後トレイで採取した降水の内、500mlを取り分け、孔径が0.45μmのメンブランフィルターで吸引濾過し、フィルター上に残渣（ざんさ：残留物質）を採取した。フィルターはすべて常温で保存し、パソコンを用いて画像処理を行った。画像処理の方法は、同一条件でスキャニングし、画像処理ソフトを用いて色調のヒストグラムを調べ、残渣がない未使用のフィルターを0とし、最も黒色のフィルターサンプルの最も濃い部分を100として、白一黒系の濃淡を数値として表した。また、その内の数サンプルについては残渣を走査型電子顕微鏡観察－エネルギー分散分析（以下SEM観察－EDX分析）により、粒子の形態観察や化学成分分析を行った。電子顕微鏡には日本電子製走査型電子顕微鏡JSM-5200LV、EDX分析にはPhilips社製PV-9755/88型検出器を用いた。濾過した際の一部の濾液サンプルは、イオンクロマト法（以下IC法）による陽イオン分析を行った。分析は東ソー㈱IC-8010型イオンクロマト検出器を用いた。

### 観測および測定結果

#### 1. 観測結果

植物園で観測した気温変化を Fig. 1 に示す。グラフの中の破線は各気温を移動平均したものである。金沢地方気象台の気温と比較してみると、ほぼ同様の変動を示しているが、一年を通じて最高気温はほぼ同程度もしくは高く、最低気温は低い値を示す日が多くあった。これは観測地点が都市部ではなく丘陵山間部にあり、周囲を雑木林に囲まれているために夜間の熱源が少ないことが起因した山間部の特徴を表しているものと考えられる。最高気温が30°C以上の真夏日は44日あり欠測日も含めると50日近くあったと思われる。1996年の冬日（最低気温が0°C未満の日）は52日あり、金沢地方気象台よりも10日以上多かった。また、最高気温が0°C未満の真冬日は1996年2月2日に観測されたが、金沢地方気象台の観測では真冬日はなかった。1996年梅雨期までと1996年12月以降は気温の上下変動が大きかった。7月中旬に急速に気温が上昇し、8月下旬にはやくも秋雨前線と冷涼な大陸性高気圧に覆われて、気温が低下した。盛夏の季節が例年より早く、またはっきりとして突出していることがわかる。1996年の気温は変動の激しい冬期、低温の春期、平年並の夏期、変動の少ない春期、やや暖冬ぎみの冬期全般という傾向であった。

植物園における日毎降水量の変化を Fig. 2 に示す。1996年5月20日、12月5日はトレイ破損等による推定値である。全体的に見ると、冬期間の降水が多いことがわかり、日本海側の気候

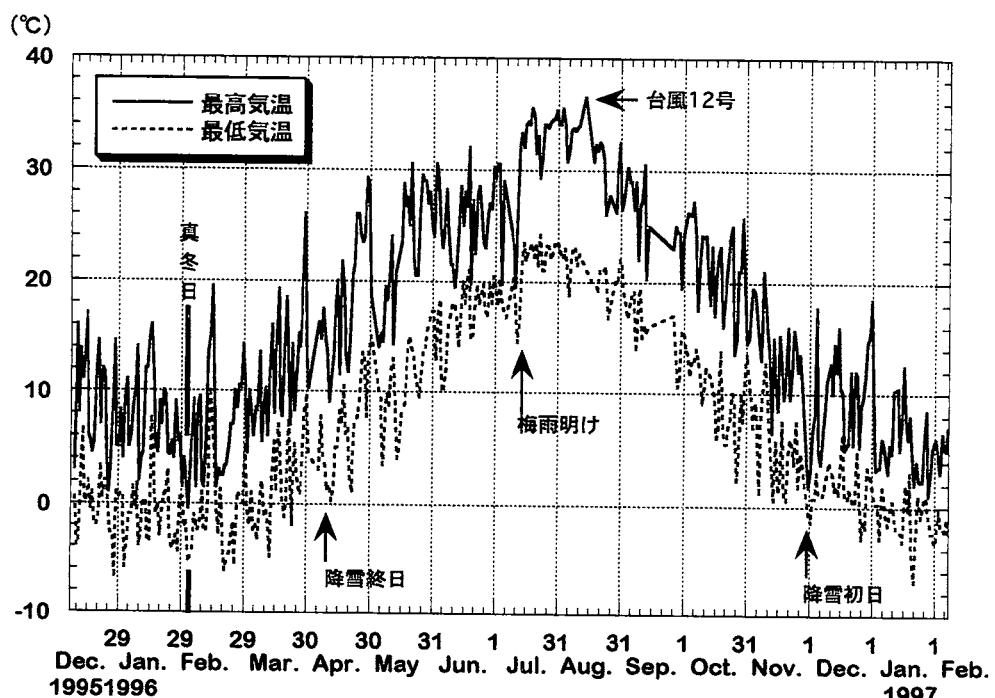


Fig. 1. Weather temperatures in Kakuma Campus, Kanazawa Univ. from Dec. 8, 1995 to Jan. 15, 1997.

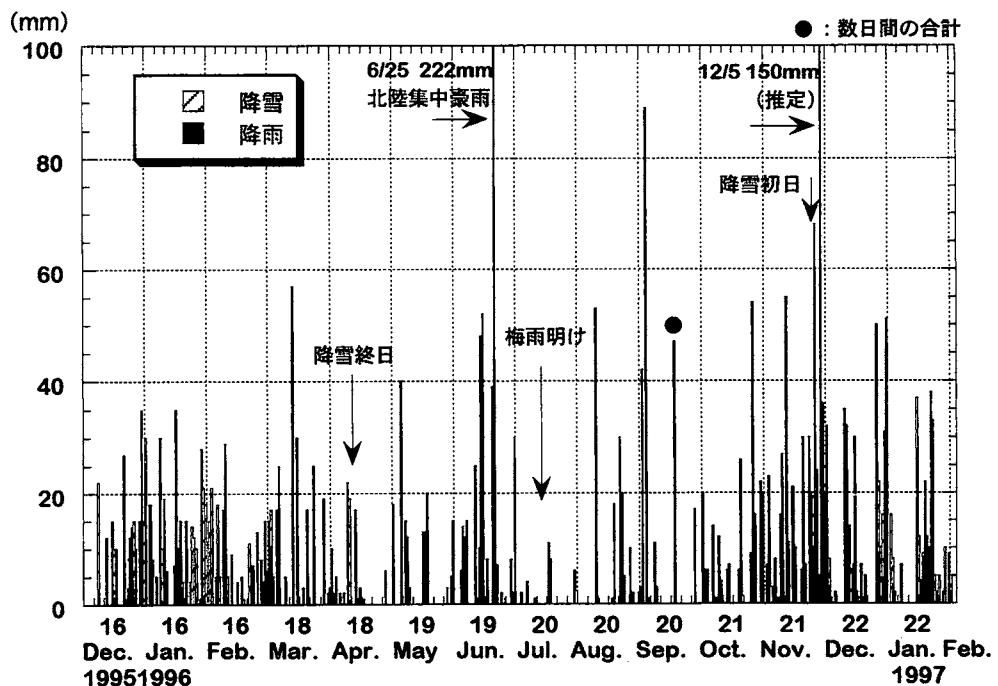


Fig. 2. Amounts of precipitation in Kakuma Campus, Kanazawa Univ. from Dec. 8, 1995 to Jan. 15, 1997.

区分の特徴がよく現れている。しかし、冬期のすべての降水が降雪ではなく、1月中旬には気温が高かったこともあり、1月、12月にはかなりの降雨があった。1995/1996の冬期間の雪の終日は4月12日で、平年よりも15日遅く、1996/1997冬期の雪の初日は11月30日で平年より2日遅かった。日降水量が最も多かったのは、6月25日の222mmであった。この日は梅雨前線の活動が北陸で活発となり、集中豪雨下で市内でも土砂崩れが相次いだ。梅雨期の降水は6月は多かったものの、7月は逆にかなり少なく、平年の4分の1しか降らなかった。冬期は日降水量がそれほど多くはないが、降水日数が多く、夏期や秋期には日降水量が多い日があった。植物園における降水量は、3月と6月、11月、12月は平年値を大きく超過し、4月と7月、10月は平年値を大きく下回った。全年では平年値をやや上回る程度であり、平年並といえる。金沢地方気象台と比較すると、降水量は通年にわたり多かった。市街地から数kmしか離れていないが、本地点は丘陵山間部に位置していることもあり、市街地よりも雨や雪の降りやすい地域であることがわかる。降雪として観測された降水量は、1996年の降水量のうち約16%を占めていた。このうち1月は、降水量は多いが降雪としては少なかったことがうかがえる。また4月は降水量が少なかった上、低温傾向で季節外れの寒気が入ったため、降雪量の割合は大きくなつた。

降雪量と積雪の深さの日変化をFig. 3に示す。降雪、積雪を確認した期間（月）を記した。降雪量が最も多かったのは2月10日の40cmであり、積雪深も同日の51cmが最深であった。また、このグラフから、1995/1996冬期の積雪は長続きせず、積雪があっても急速に融解していること

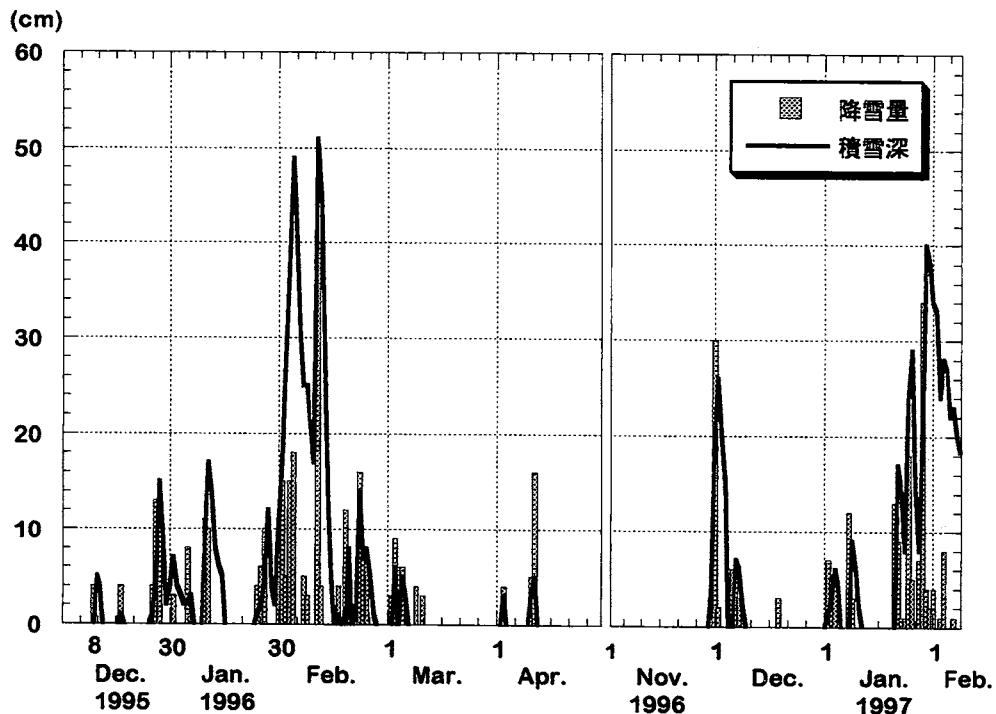


Fig. 3. Amount of snowfall and the depth of snow deposit during the snowfall period from Dec. 8, 1995 to Apr. 1996 and from Nov. 1996 to Jan. 15, 1997.

がわかる。これは、本年の冬期は気温の変動が大きかったことが挙げられる。まとまった降雪の後に暖かい南方の気団が入り込んだことに起因する。1996/1997冬期は11月下旬から12月上旬は、強い寒気のため降雪積雪が多かったが、その後は冬型の天候も続かず、降雪の少ない暖冬傾向が続いている。

## 2. pH と EC 結果

降水のpHを測定した結果(Figs. 4, 5), 全体降水での最低値は5月20日と6月1日の3.5, 細分分取では9月6日の3.4が観測された。最高は全体降水、細分分取含めて4月17日に降った2時間で1mmの一降雨で、pH8.1を示した。大部分の降水は4.0から5.3の間に分布している。一方、ECは多くの降水が1~250 $\mu\text{S}/\text{cm}$ の間で変動していた。ECの最低値は全体降水では6月25日の2 $\mu\text{S}/\text{cm}$ , 細分分取では3月30日, 6月25日の1 $\mu\text{S}/\text{cm}$ であるが、1~数 $\mu\text{S}/\text{cm}$ では誤差範囲と考える。最高は、全体降水では1995年12月21日の360 $\mu\text{S}/\text{cm}$ , 細分分取では2月6日の840 $\mu\text{S}/\text{cm}$ であった。

降水サンプルの内、トレイで採取した一降水または日降水のpHとECの経日変化をFig. 4に示す。まとまった降水の平均的な値で比較するため、グラフには降水量3mm以上の降水をまとめた。これによると、pHは変動が大きく季節的な特徴は見られない。ECは秋期後半から春

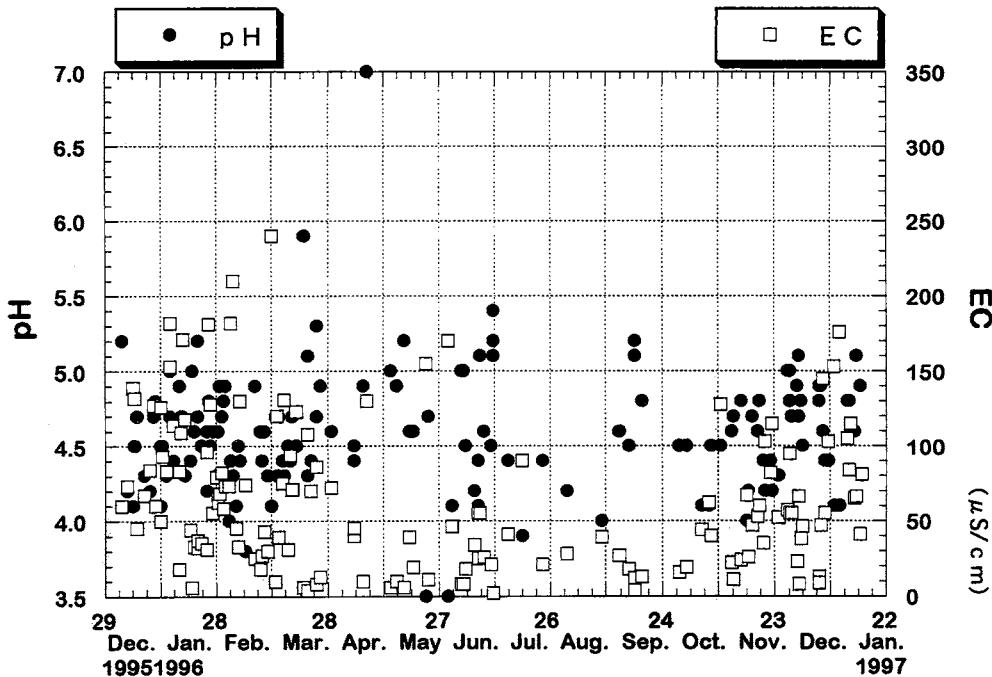


Fig. 4. Daily variation of pH and EC values in Kakuma Campus, Kanazawa Univ.

期前半において高く、夏期には低い傾向があり、pH とは異なり季節的増減が見られる。5月20日と6月1日にはECが高い値となっており、突出したように見られるが、この2つの降雨はともに3mmの降水量であり、初期降雨の特徴が大きく現れた降水と思われる。

細分分取によって測定された降水のpHとECについて、1995/1996冬期、春期、夏期から秋期、冬期(1996 Nov.-Dec.)の4つに分けてFig. 5に示した。細分分取では全体降水よりも広い範囲に分布しており、pH、ECの細かな変化を見ることができる。降雨と降雪の分布は明確であり、降雪がいずれも高EC側に集中している。季節を追って見ると、pHが6以上の降水は春期においてのみ多く見られることから、春期に特徴的な気象である黄砂現象に関連していると考えられる。また梅雨期の降雨は、高pH低ECと溶存成分濃度の少ない降雨の増加傾向が特徴的である。夏期の採取分析では、降水量が少なかったことと、欠測日が多く台風の影響による降水を採取できなかっただため、プロット数が少なく、他の季節ほど特徴を見ることができなかった。

### 3. IC法による陽イオン分析

IC法は無機イオンなどの定性または定量に極めて有用である(酸性雨調査法研究会 1993)。降水の中に含まれているイオンは、 $\text{H}^+$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Ca}^+$ ,  $\text{Mg}^+$ などの陽イオンと、 $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{Cl}^-$ などの陰イオンで9割以上が占められる。 $\text{H}^+$ はpHにより測定されることから、一般にIC法では8項目が測定されている。本研究では49サンプルを分析し、陽イオンの $\text{Na}^+$ ,

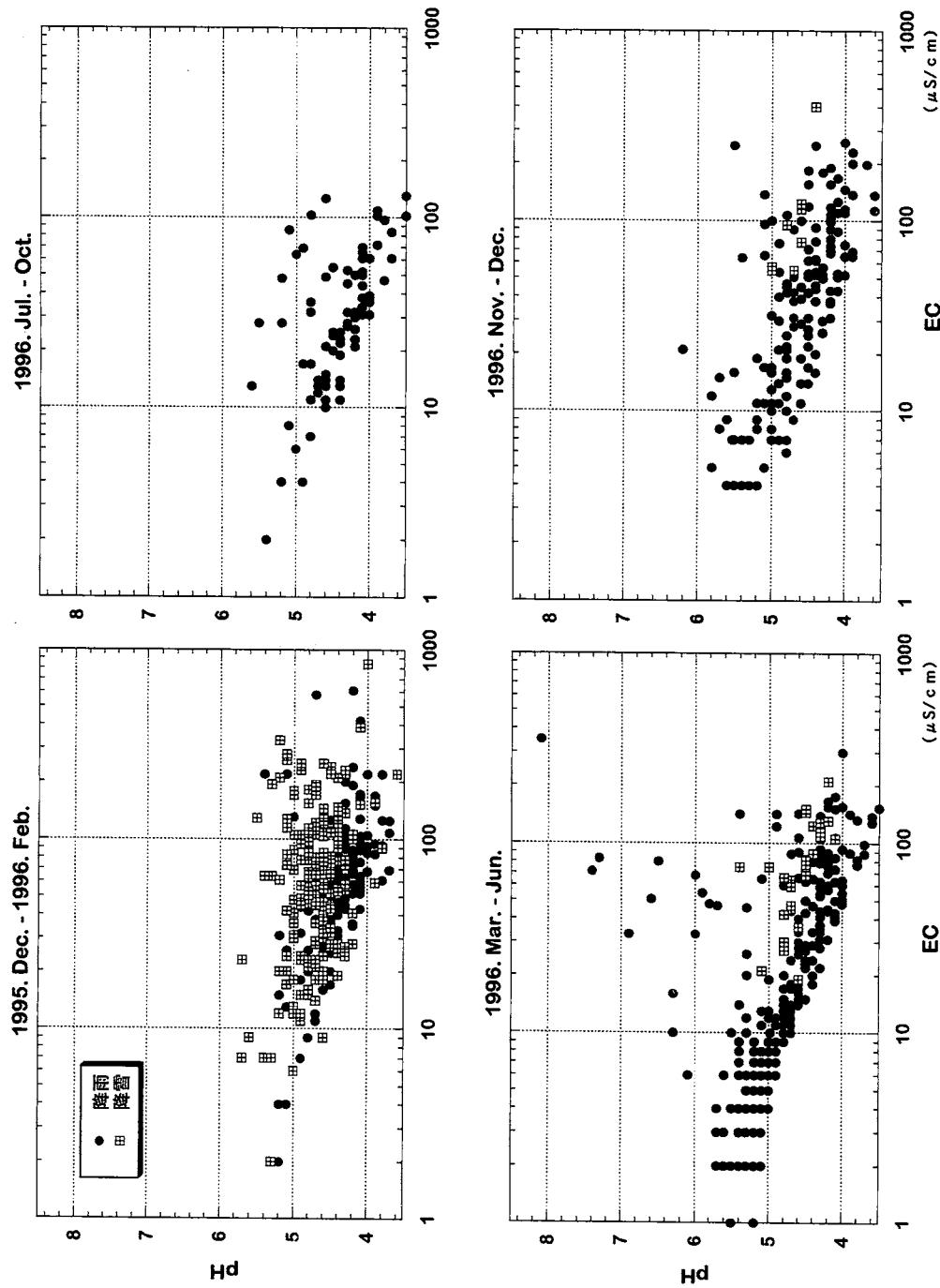


Fig. 5. Relationship between pH and EC of minute samples.

$\text{Mg}^+$ ,  $\text{Ca}^+$ のみの値を得た。IC 分析により得られた結果を月日を追ってグラフで示す (Fig. 6)。それぞれのイオンの最低値はこの機器での検出限界以下であった。最高値は  $\text{Na}^+$  15.0 ppm,  $\text{Mg}^+$  2.4 ppm,  $\text{Ca}^+$  2.7 ppm であり、ともに 2 月 27 日の降雨において記録した。全体を通じて  $\text{Na}^+$  は  $\text{Mg}^+$ ,  $\text{Ca}^+$  の 10 倍近い値を示している。全 49 サンプルの内、半分以上が 1996 年 11 月以降

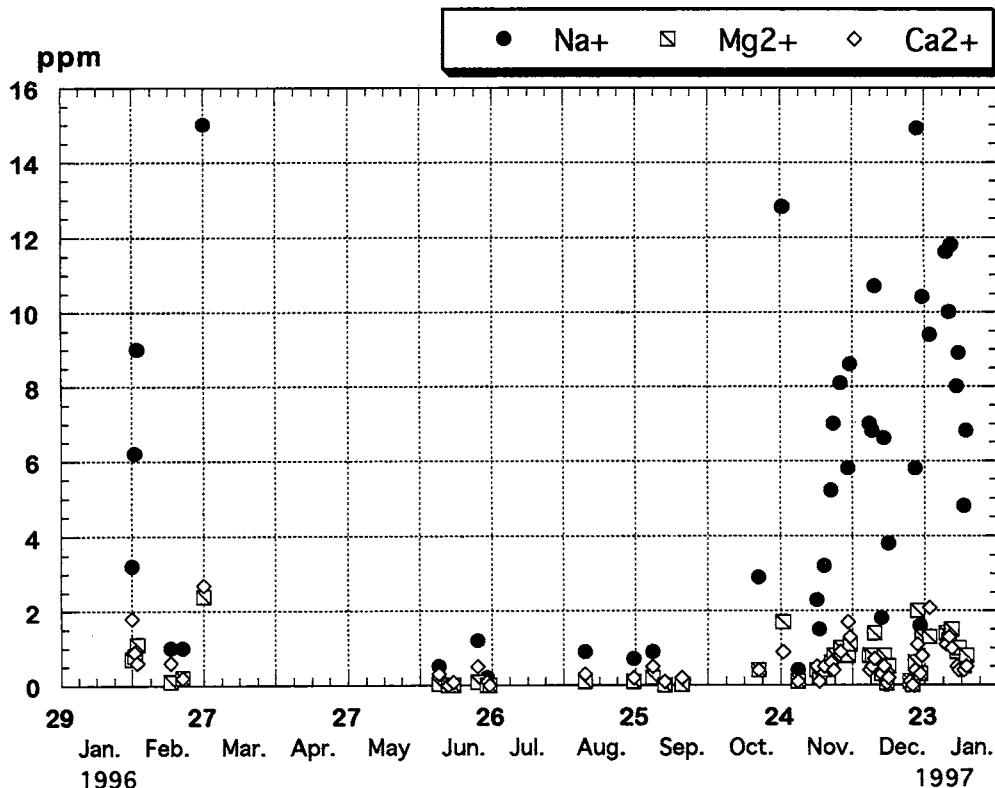


Fig. 6. Daily variation of cation values by IC analyses.

のサンプルであり、測定の季節的偏りがあるが、ECの季節的変動と同様、各イオン濃度は冬期に高く、夏期には非常に低い値を示した。また11月以降はイオン濃度の高い降水が続いているが、12月中旬には一時的に濃度が低い降水が認められた。

#### 4. フィルター濃淡画像解析と電子顕微鏡観察

降水を採取し、濾過した後のフィルター(110サンプル)の残渣について、画像から色調解析をし、その濃淡度を数値として表すことを試みた。有色鉱物と無色鉱物、煤の黒さ等で残渣の濃度と画像濃淡度が比例しない可能性があるが、現段階では目視の観察を数値として表した。大部分のサンプルのフィルターはねずみ色を呈したが、春期においては淡黄褐色に呈するフィルターが幾つか見られた。ここでは褐色系としての画像処理は行わなかった。顕著な季節的変化は見られないが、一段と濃いサンプルは冬期を中心に見られ、色の薄いサンプルは梅雨期や秋雨期に多いように見られる。最も濃いサンプルは、3月1日の降水(No.39)であり、このサンプルの最も濃い部分を100としている。また、最も薄いサンプルは、6月26日の降水(No.67)であった。それぞれのサンプルの平均値をヒストグラムから求めた。各フィルター全体の平均なので、基準としたNo.39の値は96.0である。No.67は3.7であった。季節的な変動というよりも、

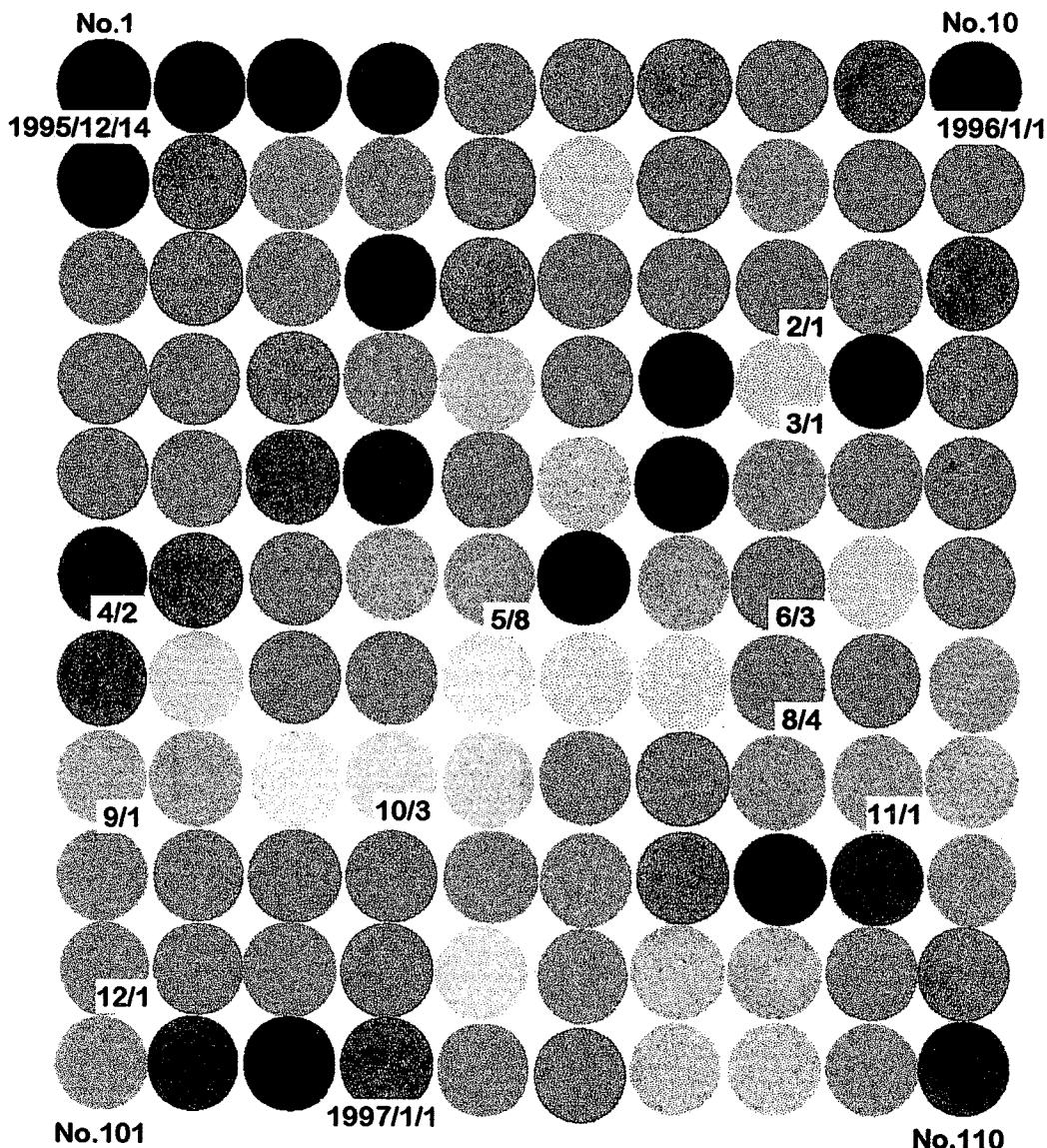


Fig. 7. Scanner images of shades of residue on membrane filter surface from Dec. 14, 1995 to Jan. 9, 1997.

サンプルによっての上下の変動が大きいことがわかった。フィルターの解析後のスキャナー画像を Fig. 7 に示す。

1995/1996冬期のフィルターサンプルの中から、pH と EC、フィルターの濃淡を考慮し、3つのサンプルについて SEM 観察－EDX 分析を行った。Fig. 8 に 3 サンプルの一般的な粒子集合の SEM 写真とそれぞれのサンプルの pH と EC を示す。Fig. 8A は1995年1月15～16日のNo.16の降雨サンプルである。この降雨は降水量35mmで多く、EC が $6\mu\text{S}/\text{cm}$ と非常に低く、pH も5.0と高い。pH-EC グラフでは左上に位置し、フィルターの濃淡も7.4とほとんど降雨汚れがな

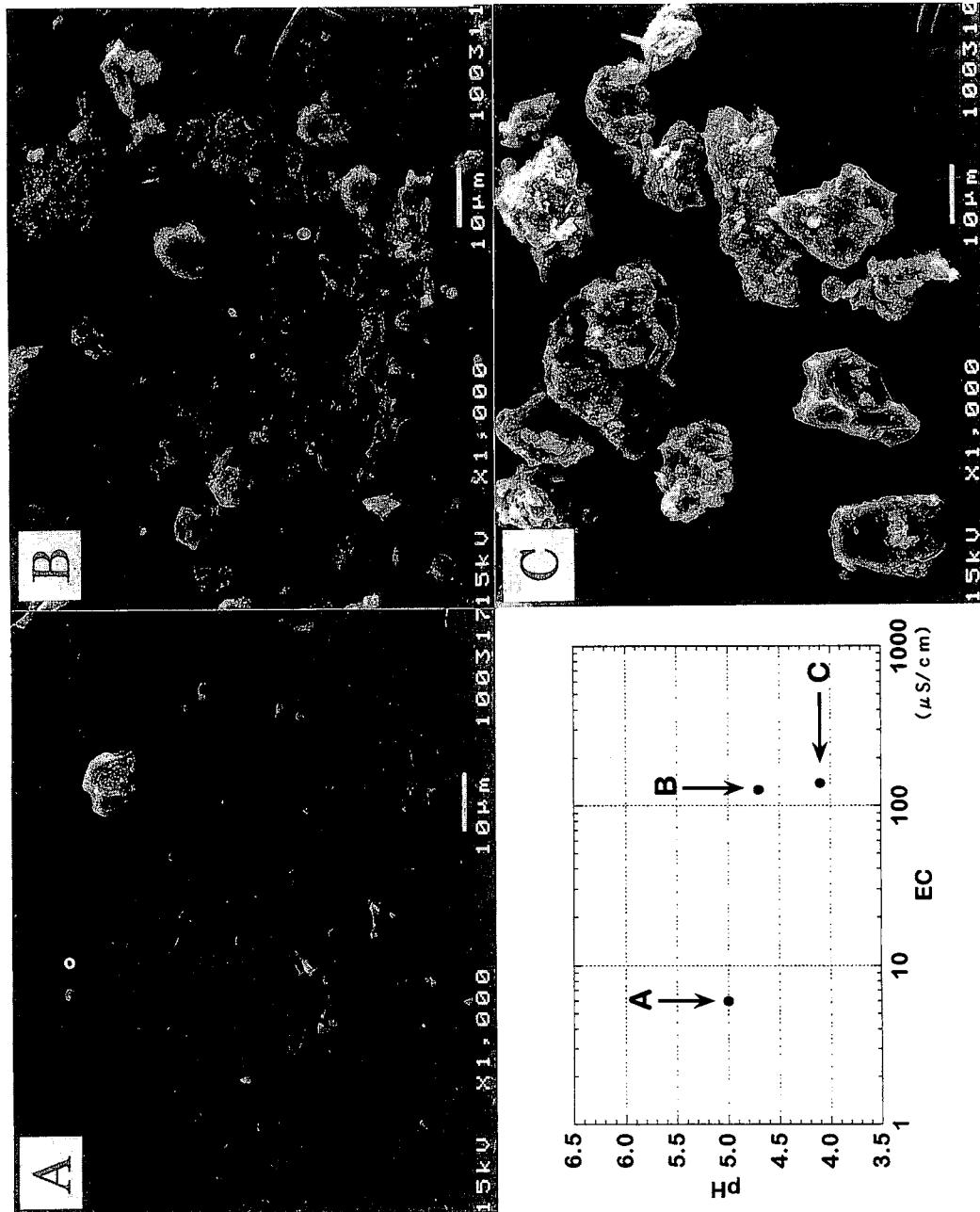


Fig. 8. Scanning electron micrographs of filter residue. (A) : rain sample in Jan. 15-16, 1996. (No.16) (B) : snow sample in Dec. 25-26, 1995. (No.5) (C) : rain sample in Dec. 14-15, 1995. (No.1).

い。Fig. 8Bは1995年12月25～26日のNo.5の降雪サンプルである。この降雪は降水量15mm、雪としては13cmであり、全体が典型的な冬型の気圧配置による降雪であった。pHは4.7とそれ程低くないが、ECは127 $\mu\text{S}/\text{cm}$ と降雪サンプルの中でも高かった。フィルターの濃淡は29.7と平均的な濃度であった。Fig. 8Cは1995年12月14～15日のNo.1の降雨サンプルである。この降雨は降水量15mmでNo.16よりも少ないが、逆にpHが4.1と低くECが139 $\mu\text{S}/\text{cm}$ と高い。またフィル

ターの濃淡度は88.9と非常に濃く、降雨汚れがひどく、No.16と対照的なサンプルである。Fig. 8A (No.16)の降雨には、ほとんど粒子が見当たらず、一つ一つの粒子の粒径が小さいことがわかる。これに対し、Fig. 8B (No.1)では粒子が多く、それぞれが大きいことが確認でき、数十  $\mu\text{m}$  も

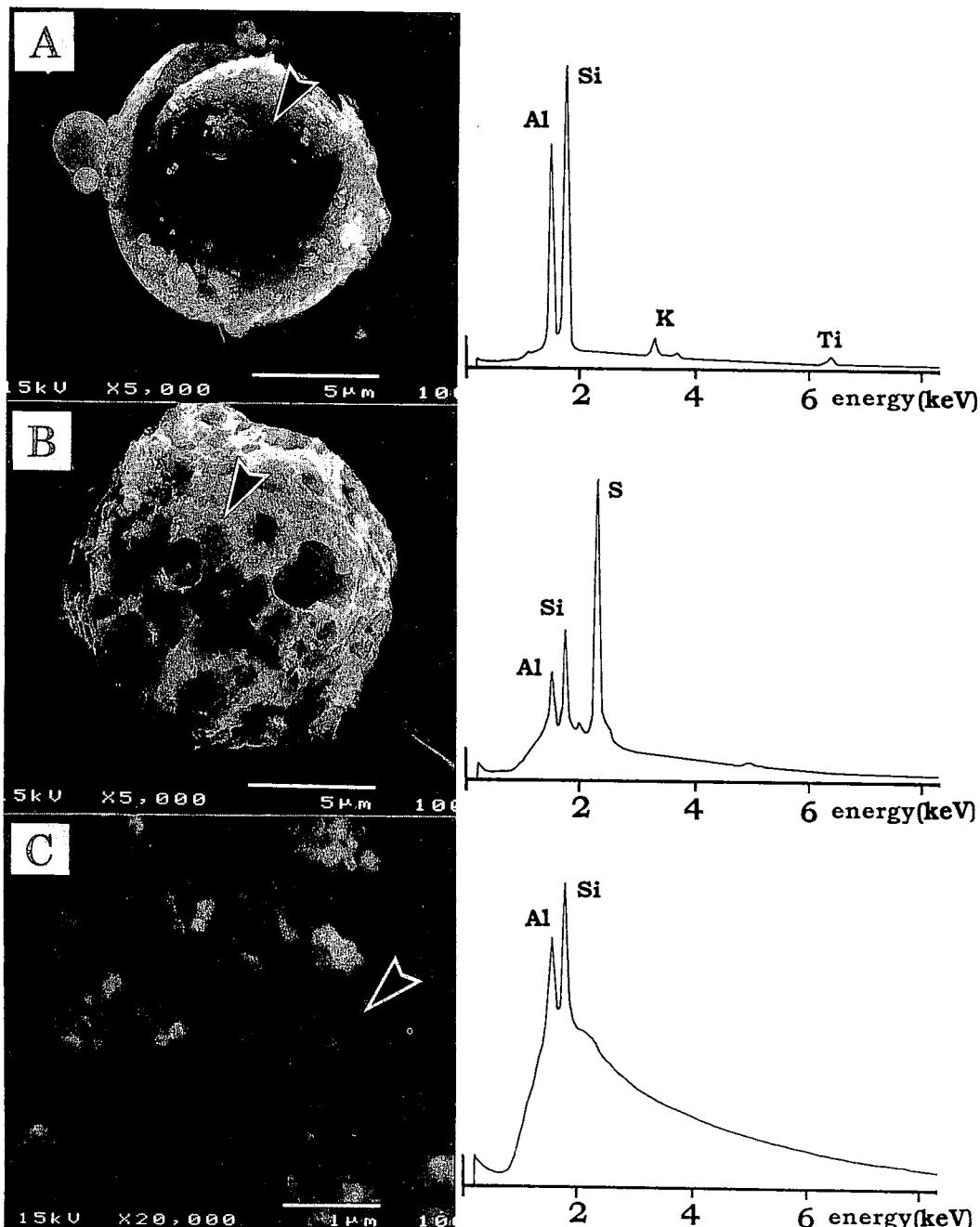


Fig. 9. Scanning electron micrographs and the result of EDX analyses of artificial and combustible ashes. Spherical particles (A), holey particle with sulfur (B), and aggregates of submicrometer particles in snow sample (C).

の粒子も含まれていた。また一つ一つの粒子の表面には更に細かい粒子が付着していることがわかり、様々な粒度の粒子が降水に取り込まれているのは明らかである。Fig. 8C (No. 5) の降雪には、粒子が極端に大きいものは少ないが、降雨のサンプルと異なり、細かく不定形の皮膜状の物質がかなり混入していることがみられる。粒子の大きさは異なるが、どのサンプルとも全体的に珪酸塩鉱物、特に石英、長石類、粘土鉱物類の粒子が大半を占めている。中には鉄鉱物や、ニッケル、チタン、銅、など重金属を含有する粒子も見られるが、数は非常に少ない。また、花粉粒子や珪藻など生物起源の粒子も少量認められる。Fig. 9 は人工生成物または燃焼残留物と思われる特徴的な粒子である。Fig. 9A のような球状粒子は降雨汚れが高いサンプルであれば一般的に見受けられる。しかし Fig. 9B のような多孔質球状粒子は No. 1 のような pH が低く、フィルターの濃度が高いサンプルに多数見受けられた。一方降雪のサンプルでは、Fig. 9C のようにさらに細粒な球状粒子の凝集物が特徴的であった。田崎、野田 (1992) で示された炭素様指紋構造物質と類似しており、これらは炭素粒子と考えられる。

### 考 案

pH-EC 分布とフィルターの画像との三者の関係を Fig. 10 に示す。EC が約  $60\mu\text{S}/\text{cm}$  以上、pH が 4.0 から 4.5 位のあいだに、非常に濃いフィルターが集中している。EC が高いだけではフィルターは濃くなく、また、降雪による降水が集中している部分もそれほど濃くはない。全体的に EC が高く、pH が低くなるにつれ、フィルターが濃くなっていることが明らかである。このことから、pH-EC の分布とフィルターの濃淡は密接に関係していることがわかる。

雑誌気象の天気図速報値を参考に、気象のパターン（降水のパターン）別に分類し、降水量

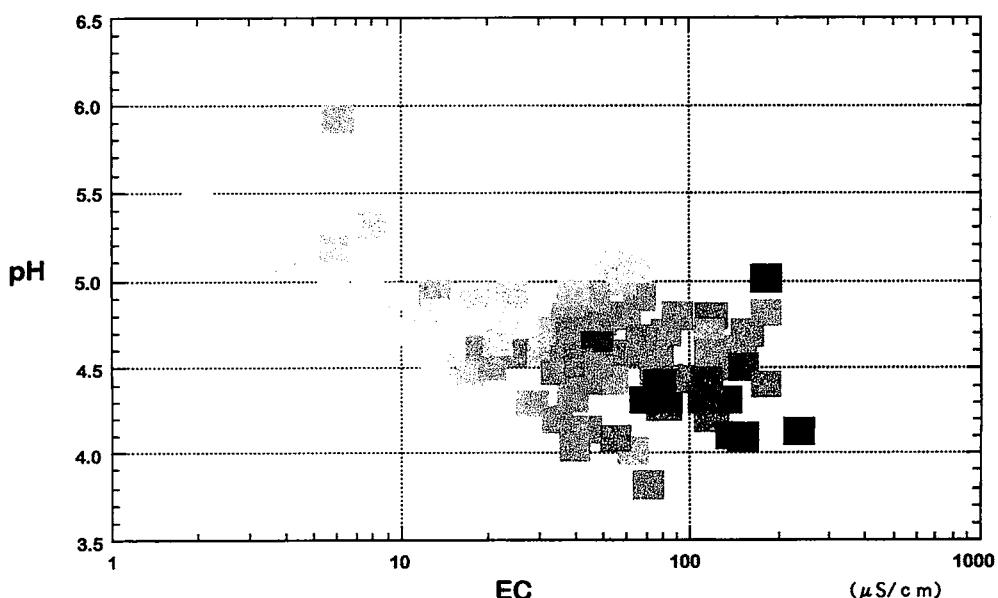


Fig. 10. Relationship between shades of filter residue and pH-EC values.

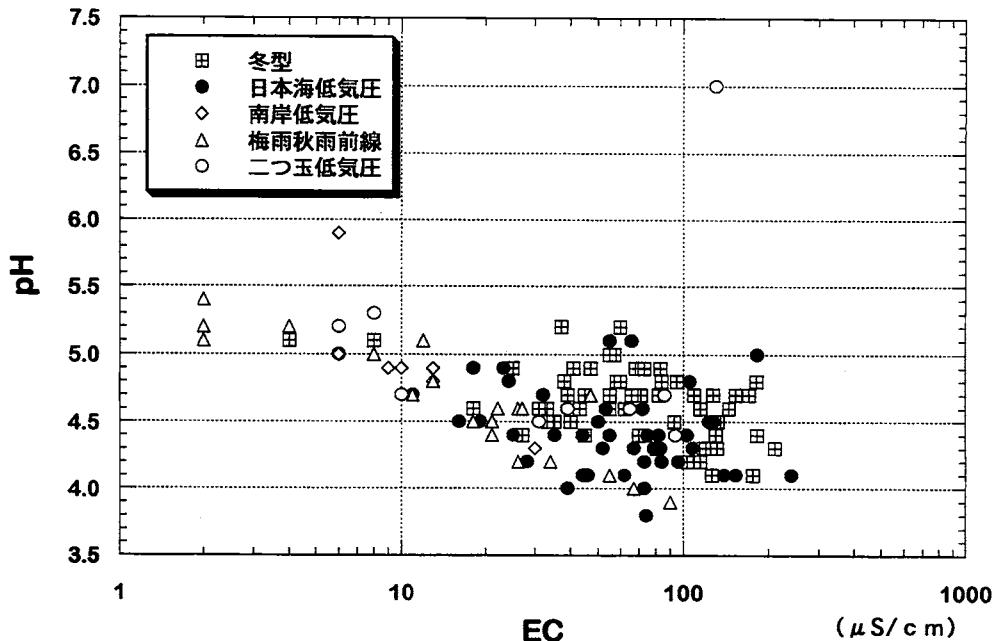


Fig. 11. Relationship between pH and EC values with pattern of precipitation.

3 mm以上の降水のpH, ECと比較したものをFig. 11に示す。これによると、互いに重なりはしているものの、各々の分布の集中している範囲がやや異なる。冬型の降水は、多くが降雪となるため、Fig. 5における降雪のpH-EC分布と同様となっている。その他は、日本海低気圧が比較的高EC側で広い範囲に分布し、様々な濃度の降水がある。ところが南岸低気圧や梅雨秋雨前線による降水は直線的に分布している。これらの分布から、南方湿潤性や停滞前線性の降水では、pH, ECの変動は酸の溶液、すなわちガス状やミスト状溶液の混入度合によるものが大きく、冬型の降水はこれよりも離れた分布域を示すため、陽イオンによるECの増加が示唆される。一方、二つ玉低気圧と呼ばれる、日本海と太平洋に低気圧が存在する場合には、どちらの分布域にも点在する。これは日本海低気圧と南岸低気圧のどちらに強く影響を受けているかが表われているものと思われる。

ECは溶存化学成分の総量指標となるが、分析により得られたイオンが、 $\text{Na}^+$ と $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ であり、陰イオンも得られていないので、分析イオンの合計が降水中の陽イオンの総量と考えるには問題があるが、両者はほぼ正の相関を示している。この3つのイオンとフィルターの濃淡を比較してみた。Fig. 12にサンプル採取順にならべたイオン濃度とフィルター濃淡度のグラフとそのスキャナ画像を示す。IC分析を行ったサンプルが期間の後半に集中しているため、季節的な特徴を考える上ではやや偏ったデータではあるが、冬型の降水が現れ始めた10月の後半からイオン濃度が急増しており、冬期の特性がわかる。イオン濃度とフィルター濃淡度を比べると、フィルターの濃淡度はイオン濃度に相関しているように見える。しかし同程度のフィルター濃淡度であってもイオン濃度の合計が大きく異なるサンプルもある。Fig. 13にはイオン

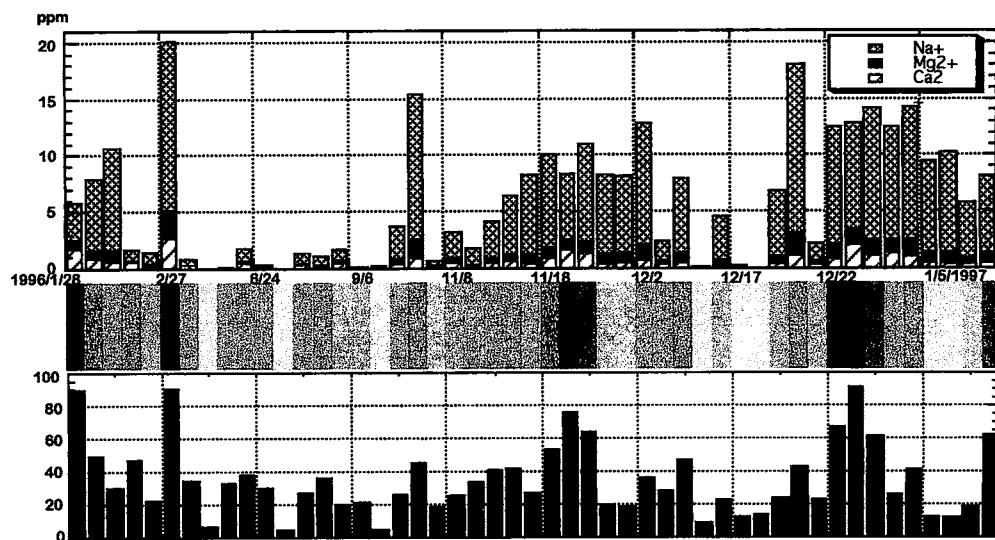


Fig. 12. Comparison between  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Mg}^{2+}$  and  $\text{Ca}^{2+}$  cation densities and shades of filter residue.

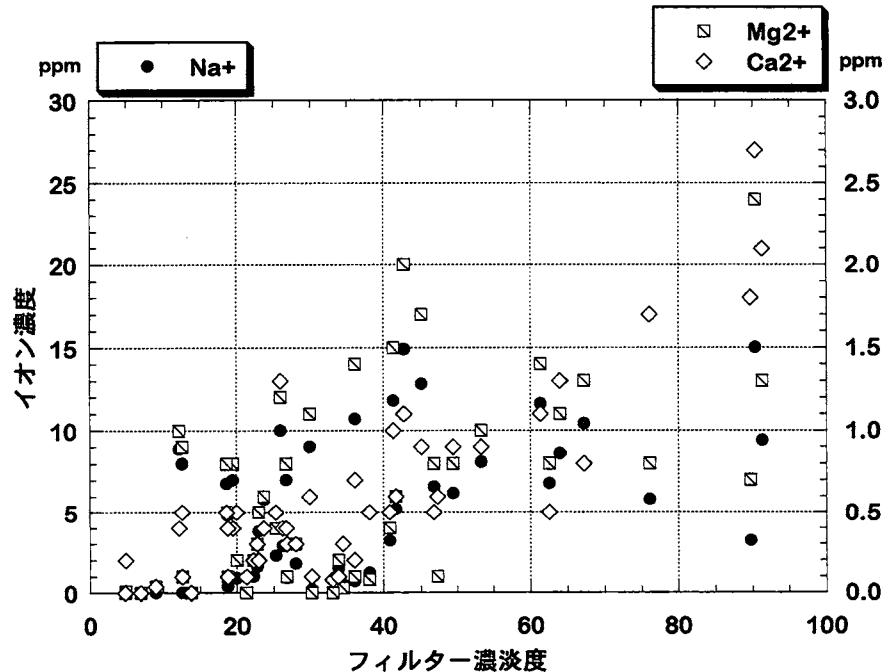


Fig. 13. Relationship between  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Mg}^{2+}$  and  $\text{Ca}^{2+}$  cation densities and shades of filter residue.

濃度とフィルターの濃淡度の関係を示す。このグラフのフィルター濃淡度とイオン濃度の相関から外れた降水は、冬型の降水とよく一致し、ECの高さはこれに起因すると考えられる。冬型の降水は低気圧性の降水ではなく、冷涼気団と温暖な海水温との気温差によって生じた、日本海からの膨大な水蒸気量の発生からもたらされることから、冬型の降水には海水中に含まれるイオンがより多く含まれる。海塩由来成分（塩分）はもともと海水に溶解していたもので、降水を濾過する時点で濾液にほとんどが溶解し流される。このことから冬型の降水では、残渣のフィルターの色と相関せずに異なった分布を示すものと考えられる。

各イオンがどれほど海塩の影響を受けるかを見るため、非海塩成分（non sea salt : nss-）を酸性雨調査法（1993）に基づいて計算した。降水中の  $\text{Na}^+$  成分は、全量が海塩起源のものと考えるのが一般的とされていることから、海水中の  $\text{Mg}/\text{Na}$ ,  $\text{Ca}/\text{Na}$  比を求め、その値を Fig. 14 に示すと、 $\text{Mg}$  イオンのほとんどが海塩由来であることがわかる。nss-濃度が低く、フィルターの濃淡度との相関は見られない。一方、 $\text{Ca}^{2+}$  は海塩成分の影響を除いても、フィルター濃淡度との相関が見られる。このことから、残渣濃度が高くなるほど、必然的に  $\text{Ca}$  濃度も高くなることが関連付けられた。

それぞれの降水の性質とその変化を見るため、降水の細分分取によるデータを用いて検討した。降水は一般的に、初期降水が最もイオン濃度が高く、pH は酸性であり、降水の時間が経過するにつれ EC は低くなる。しかし、降水の中止や降水域の移動の仕方で、一概に同じパターン

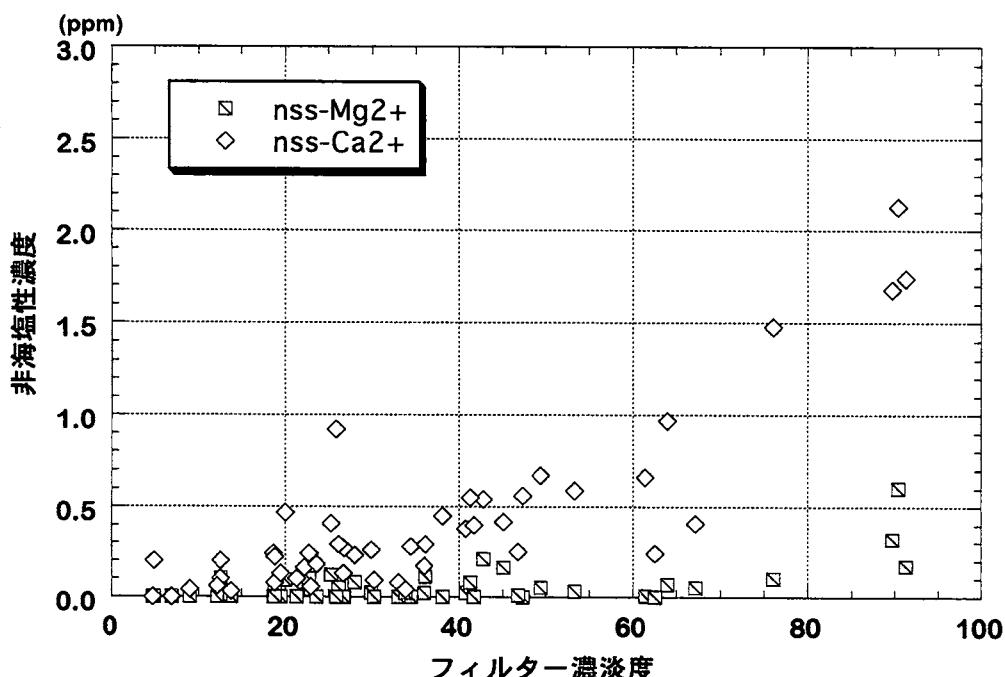


Fig. 14. Relationship between non sea salt cation densities ( $\text{nss-Mg}^{2+}$ ,  $\text{nss-Ca}^{2+}$ ) and shades of filter residue.

が見られるとは限らない。そこで、一降水ごとの pH と EC の変動の検討を行った結果、以下の 4 つのパターンについて特徴づけられた。それぞれのパターンの pH と EC の変動を、Fig. 15 に示す。

I : 1996 年 6 月 24 日から 26 日にかけての梅雨前線活発化によりみられた降水で、グラフには 25 日朝まで記している。この降水の pH, EC は一般的に言われているような変動を示している。時間がたつにつれ、pH 5.3あたりに収束し、EC は低くなる。長時間同様の降水形態が続いたため、このような pH-EC 変化があったと考えられる。

II : 1996 年 1 月 28 日から 2 月 3 日にみられた降水。この降水は日本海低気圧の発達後、冬型に移行して降雪となった。降水の初期は pH が低く EC が高い傾向となっており、初期降雨の影響がでているが、降雪へと変わると pH は高くなるが EC は高いまま推移している。

III : 1996 年 3 月 15 日の降水。この降水は数は少ないが、春期にみられる特徴がある。この降水には黄砂粒子が多く含まれ、淡黄褐色を呈している。初期降雨に特徴があり、pH と EC がともに高い。この pH の高い部分、つまり初期の数 mm の降水が黄砂粒子の影響を受けていると考えられる。後半の降水の pH には影響がないため、一降雨全体では pH はやや高い程度の値にとどまる。このことが、pH の高いアルカリ性の降水は降水量の少ない降水に限られる理由であると考えられる。

IV : 1996 年 3 月 30 日から 31 日の降水。この降水パターンは他とは異なり、降水の途中で pH や EC が急変するというのが特徴的である。この降水では 30 日の午後は pH が高く EC が低かったが、夕方の寒冷前線通過後急変し、低 pH 高 EC へとかわり、そのまま降雨が終了した。この様な降水時には、発達した日本海低気圧には温暖前線と寒冷前線がはっきりしており、この前線の通過時に急変することが多い。

降水のすべてがこのパターンにあてはまるわけではないが、降水の pH-EC やフィルター濃淡度は、気象現象の違いにより変化することが明確であった。pH のみをみると、平木ほか (1989) における降水原因 (気象型) 別に求められた値と似た傾向にあった。冬型の降水は EC が他の降水と比較して EC が高く、日本海を通過する低気圧下ではフィルターの濃度が高いことが多く、その他の南方性気団の降水は残渣も少なく、降雨のよごれがないことが特徴である。冬型の降水における EC の高さは海塩由来の成分が関係していることが大きい。これは金沢が直接日本海に面し、背後に山地があり、海水からの水蒸気が最初に降水となって降下する地域と考えられることから冬期の EC の高い降水は北陸など日本海沿岸の特性であると考えられる。一方南方性の湿潤気団による濃度の低い降雨は冬型の降水とは逆に、発生源の太平洋よりかなり距離があり山地もあることが、金沢付近での濃度の薄い降水の原因と考えられる。また日本海低気圧下では、金沢付近で寒冷前線の通過時非常に風が強く、低気圧の上昇気流と重なり、周囲の塵等を巻き上げていると考えられる。このことが降水中に残渣を多く含み、フィルターの濃淡が高いものが多いことにも影響していると考えられる。SEM 観察によっても、残渣濃度が高い日本海低気圧通過時のサンプルは、かなり巨大な粒子が数多く占めていることから、

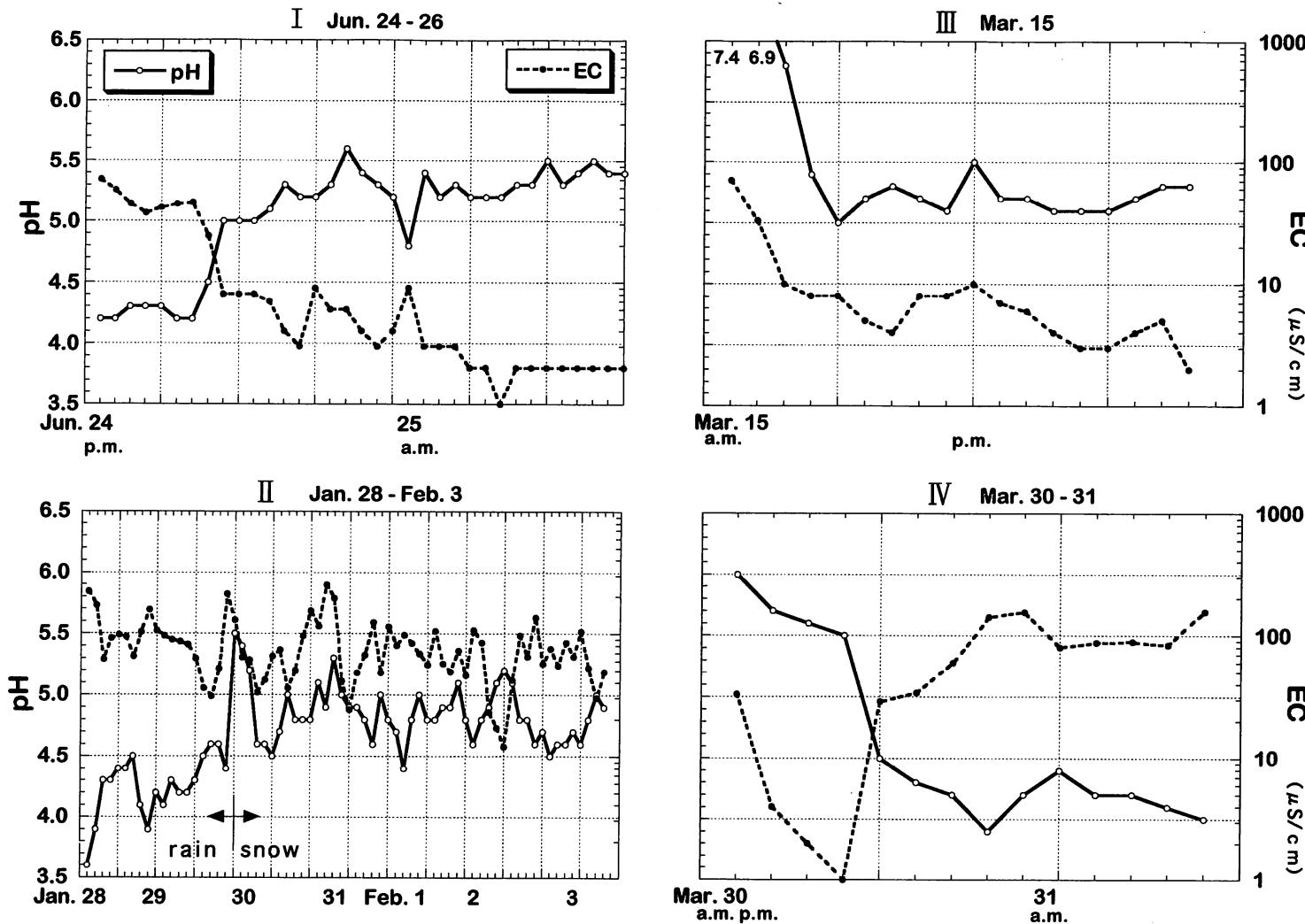


Fig. 15. Typical four types (I ~IV) of pH and EC value within each rain or snow in 1995.

濃淡度の高い残渣は金沢近辺からの物質も多く含まれ、降水の酸性度に影響を与えていていることが示唆される。しかし、細分分取では寒冷前線通過後、大陸から移動してきた気団によって、降水の pH や EC が変化させられており、現段階、本研究においては、どちらの影響が強いかは判断できない。SEM 観察においては燃焼残留物など人為起源の粒子が多数確認されたが、発生源や種類を特定できるまでには至らなかった。大陸からの顕著な輸送物質として、また酸性雨の中和の可能性として注目される黄砂現象時の降水の残渣と溶存化学成分との相互の影響が考えられている (Zhou and Tazaki 1996)。

### ま　と　め

金沢における pH と EC の分布は気象の型に密接に関連していることが確認された。本研究において初めて降水の濾過時の残渣について視覚的な考察が行われた。フィルター上の残渣の濃淡度は低 pH、高 EC 側で特徴づけられる。残渣濃淡度は日本海低気圧下において濃く、南方からの湿潤気団による降水は、残渣、溶存成分ともに少ないことが確認された。濃淡度から比較すると、冬型による降水を除いては、残渣の多いほど降水中の溶解成分の増加が認められ、降水中に含まれた鉱物粒子や人為起源の残留物質からの溶解が示唆された。さらに降水の細分分取からは、金沢における降水の変動に 4 つのパターンが確認された。特に寒冷前線の通過時に pH と EC が急変することと、気団による性質の違いとの間に密接な関係が認められた。

### 謝　　辞

本研究を行うにあたり金沢大学理学部付属植物園の木下栄一郎博士、松崎一典氏には植物園使用に際し、格別なる御協力をいただいた。理学部地球学教室の石渡明助教授にはイオンクロマト分析機器を使用させていただき、4 年の本間芳一君には使用の際御協力いただいた。寅丸敦志助教授ならびに寅丸研究室の中村克氏、伊大知晃氏には、画像処理に際し、御助言、御協力いただいた。そのほか、本研究に携わった方々に感謝の意を表し、ここに深く御礼申し上げる。

### 文　　献

- 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. 京都大学防災研究所年報. No.32B-1 : 311-319.
- 気象庁監修. 天気図日記. 雑誌気象. No.466-477
- 北村守次. 1991. 北陸地区における酸性雨現象の実態. 公害と対策. Vol. 27 No. 2 150-153.
- ・加藤拓紀・関口恭一・田口圭介・玉置元則・大原真由美・森 淳子・村野健太郎・若松伸司・山中芳夫・大喜多敏一・原 宏. 1991. わが国の酸性雨の pH とその頻度分布パターン. 日本化学会誌. No. 6 : 913-919.
- 中川千枝・平井英二・宮崎元一・丁子哲治・橋本和夫. 1991. 白山山頂で採取された酸性雨. 北陸公衛誌. 18(1) : 57-61.
- 大喜多敏一. 1991. 酸性雨. 地学雑誌. 100(6) : 927-936.

- 酸性雨調査法研究会編。1993。酸性雨調査法。ぎょうせい。pp401。
- Satake, H. and Yamane, T. 1992. Deposition of non-sea salt sulfate observed at Toyama facing the Sea of Japan for the period of 1981-1991. Geochemical Journal. Vol. 26 : 299-305.
- 玉置元則・平木隆年。1986。わが国各地における雨水のpHの年平均値(1)。環境技術。Vol. 15 No. 2 : 68-72.
- 田崎和江・島根大学理学部地質学教室環境自主ゼミナール・野田修司。1992。クウェートの油井火災によるとみられるすずの特性。地球科学。Vol. 46 No. 1 : 39-56.
- Zhou, G. and Tazaki, K. 1996. Mineralogical characteristics of aerosols collected at Matsue and Kanazawa - with a special reference to neutralizing effect on acid pollutants. Jour. Geol. Soc. Japan. Vol. 102 787-803.