

The Investigation for the Substances That Cause the Acidification of Precipitation in Japan Sea Side Area

著者	北村 守次
著者別名	Kitamura, M.
journal or publication title	博士学位論文要旨 論文内容の要旨および論文審査結果の要旨 / 金沢大学大学院自然科学研究科
volume	平成10年6月
page range	235-241
year	1998-06-01
URL	http://hdl.handle.net/2297/16150

氏 名	北 村 守 次
生 年 月 日	
本 籍	愛媛県
学 位 の 種 類	博士 (理学)
学 位 記 番 号	博乙第144号
学位授与の日付	平成9年9月30日
学位授与の要件	論文博士 (学位規則第4条第2項)
学位授与の題目	The Investigation for the Substances That Cause the Acidification of Precipitation in Japan Sea Side Area (日本海沿岸地域における降水の酸性化の原因となる物質の挙動に関する研究)
論文審査委員	(主査) 本 浄 高 治 (副査) 上 田 一 正, 板 垣 英 治, 中 西 孝, 小 村 和 久

学位論文要旨

Summary

I clarified the chemical components of precipitation and investigated the origin of the substances that caused the acidification of precipitation in Japan Sea side area based on the results of precipitation measurements in the fields from 1984 to 1993 FY in this study. I investigated the stable isotope ratio of sulfur of sulfate ion in the precipitation for promoting the study mentioned above.

The mean pH values were 4.6 (Kanazawa) - 4.7 (Torigoe) and the concentration of sulfate ion and deposition of it were high in winter in Ishikawa prefecture. The influences by the neighbor sources were little.

In the Japan Sea side area, the pH values of precipitation were lower in winter than in other seasons, and the causable substance seemed to be the sulfuric acid brought by the long-range transportation. It was clarified by the principal component analysis that the component mainly caused the acidification of precipitation was the sulfuric acid, and sulfuric acid was brought by the north-west monsoon in winter.

The results of the study of the stable isotope ratio of sulfur

supported the results mentioned above and suggested that the substances which caused the acidification of precipitation in the Japan Sea side area were brought from North China.

緒 言

近年、日本においても酸性雨による生態系等への影響が大きな問題となっており、日本における実態調査が精力的に行われているが、その酸性化の原因となる物質の挙動に関する研究は、日本海沿岸の降雪地域では、関東地方などに比べてあまり進展していないのが現状である。また、酸性雨問題は、原因となる汚染物質が千kmオーダーで輸送されて来る広域的な事象と、比較的近隣の汚染源による地域的な事象とが複雑に絡みあっており、酸性雨被害を防止するためには、そのメカニズムとそれぞれの寄与をできるだけ定量的に把握して対応していくことが必要である。

一般に、環境問題における汚染の原因物質は多様であり、種々の要因の人為汚染の他に自然由来の物質も複雑に絡み合っている。このため、発生源と汚染地域との間の関係には不明の部分も多く、発生源と地域の汚染状況の関係が100%明らかにされている例はほとんどなく、フィールドにおける調査結果を基にして絡み合った要因を1つ1つ解きほぐすことが最も肝要である。

本研究では、このような観点にたって、10年間にわたる長期間にフィールドで得られた降水成分測定結果を基に、日本海沿岸地域における降水の化学成分の特徴を明らかにし、降水成分測定結果の統計解析と高層ジェット気流の流跡線解析を行うことにより、その酸性化の原因となる物質の起源を究明した。さらに、降水中硫酸イオンの硫黄安定同位体比を測定することにより、その酸性化の原因となる物質の長距離輸送について考察を進め、これらの討論の結果をより強固に裏付けた。

実 験

現在日本で用いられている降水の採取方法及び降水成分の分析項目について、それぞれ得失を検討し、長期的な解析には湿性・乾性一括採取による1週間降水の測定結果を、詳細な解析には湿性・乾性分別採取による湿性沈着物の測定結果をそれぞれ用い、pH、電気伝導率、陰イオン3項目（硫酸、硝酸、塩化物の各イオン）及び陽イオン5項目（アンモニウム、カルシウム、マグネシウム、ナトリウム、

カリウムの各イオン)を測定対象とした。

結果と討論

石川県における降水の現状と長期的変動及び季節変動をみることによって、降水pHの平均値は4.6~4.7であり、硫酸イオンの濃度と沈着量が冬季に高く、長期的には増減傾向はみられないことが明らかになった。また、石川県の都市部を中心とした多地点において降水を測定することによって、pH及び降水成分濃度は、降水毎の変動の方が同一降水における地点毎の変動よりはるかに大きく、降水のpHを左右するのは、地域的な要因以外のものによるところが大きいこと、小さいながらも地域差は認められ、地域の汚染形態を反映した降水成分分布になっていること、などの近隣汚染の影響が明らかになった。pHの地域差をFig.1に示す。

石川県における降水の化学成分を日本海沿岸の他の地域の降水の化学成分の現状と比較検討することにより、石川県の降水にみられた特徴は、すべて日本海沿岸地域に共通にみられることが明らかになった。そして、全国の調査地点におけるpHの頻度分布パターンを分類することにより、日本の降水を概略的に見た場合には、西日本と日本海側では冬季に北西季節風によってもたらされる酸性の汚染物質の影響を、東北日本では冬季に粉じんなど塩基性の汚染物質の影響を受けていること、日本海側に低pHをもたらす原因物質は硫酸イオンであると考えられ、この硫酸イオンは長距離輸送によってもたらされると考えられることが明らかになった。Fig.2に夏季と冬季におけるpH頻度分布パターンの分類結果を示す。

長期間の降水成分の測定結果を統計的に解析し、著者が考案した降水原因の分類法によって分類した降水原因別の検討など気象因子と降水成分との関係を考察することにより、降水の化学成分は海塩由来と考えられる群(ナトリウム、塩化物、マグネシウム、カリウムの各イオン)と人為汚染由来と推定される群(nss-硫酸、硝

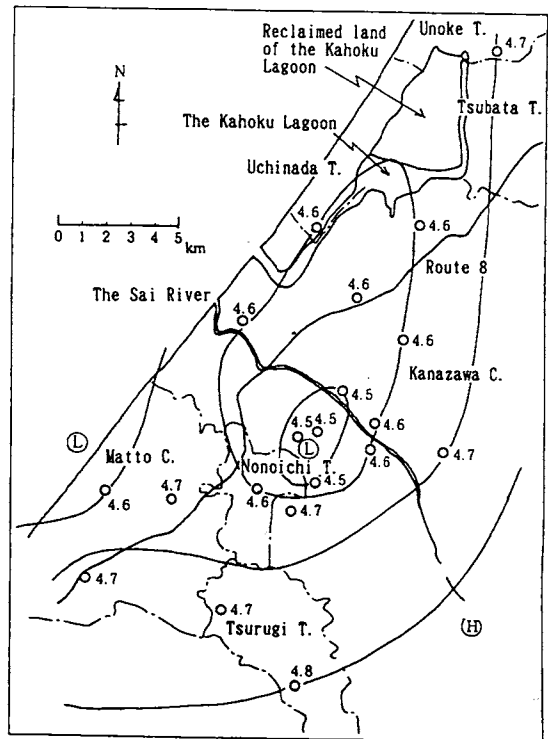
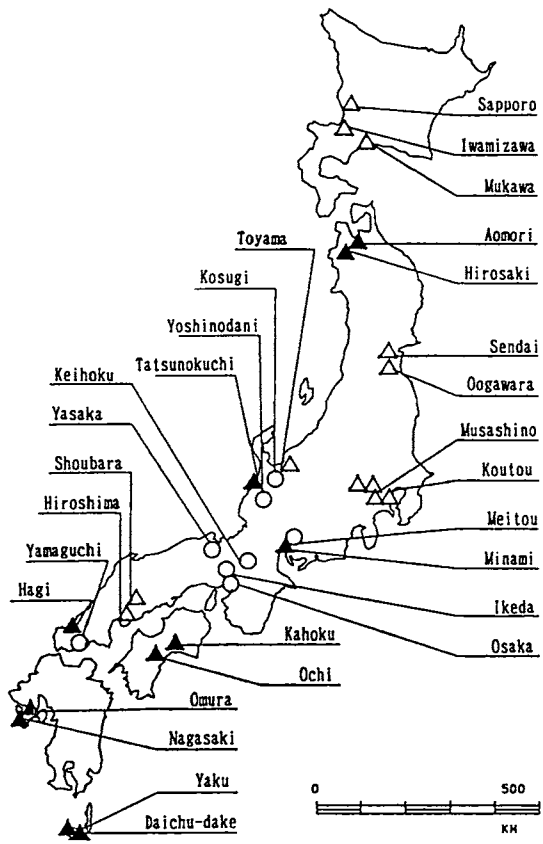


Fig.1 The distribution map of pH values in central Ishikawa area



- : Class A (Same in summer and winter),
- △ : Class B (Lower in summer than in winter),
- △△ : Class C (Two peaks in summer and in winter),
- ▲ : Class D (Lower in winter than in summer)

Fig.2 The pattern of pH histogram in summer and winter over Japan

酸、アンモニウムの各イオン)に分けられるが、nss-硫酸イオンは冬季の西高東低型の気圧配置による降水では海塩由来成分にやや近い挙動を示すことが明らかになり、この傾向は厳冬大雪の1985年度に最も顕著であった。これをFig.3に示す。このことから冬季の非海塩由来硫酸イオンが北西季節風によってもたらされていることが示唆された。

高層ジェット気流の流跡線解析結果を酸性雨解析の分野に初めて適用することによって、中国北部から石川県上空への流跡線を持つ寒帯前線ジェット気流の場合に降水成分濃度、沈着量が増大すること、厳冬大雪の年にはこのジェット気流

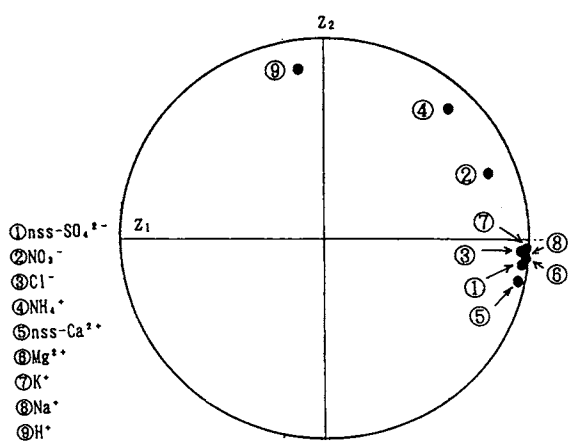


Fig.3 Factor loadings by principal component analysis in FY1985 (event basis, each 1-6mm precipitation, a winter type)

の出現回数が増えることが明らかになり、石川県における降水中の非海塩由来硫酸イオンが中国北部からもたらされている可能性が強いと結論できた。

降水の酸性化の原因物質の長距離輸送による寄与に関する考察を行うため、より直接的な証拠となる可能性があり、地球化学的研究の手段として用いられている、降水中硫酸イオンに含まれる硫黄安定同位体比の測定を酸性雨解析の分野に初めて適用し、それらの結果を中国における石炭燃焼による硫黄の安定同位体比等と比較した。この結果、1) 金沢における1か月毎の硫黄安定同位体比千分偏差 ($\delta^{34}\text{S}$) 値の分布は、ピークが明確ではなく、+1~+13‰の範囲に広がっており、このうち高い側への広がりは主として冬季の季節風によって運ばれて来る海塩の影響によるものと考えられた。2) 金沢における降水中硫酸イオンの $\delta^{34}\text{S}$ 値の季節変化は、冬季に高く夏季に低い傾向を示し、非海塩由来硫酸イオンの $\delta^{34}\text{S}$ 値も同じ傾向を示した。このことは冬季の金沢における降水は、海塩や近隣の大気汚染物質以外の重い同位体比を持つ硫黄を含む発生源の影響を受けていることを示唆していると考えられた。3) 降水中硫酸イオンの非海塩寄与割合と $\delta^{34}\text{S}$ 値の関係をみると、Fig.4に示すように、この両者は良い直線関係を示すが、季節風の影響を強く受ける秋~冬季と、春~夏季では切片が若干異なる値を示し、このことは冬季に重い同位体比を持つ硫黄の影響を

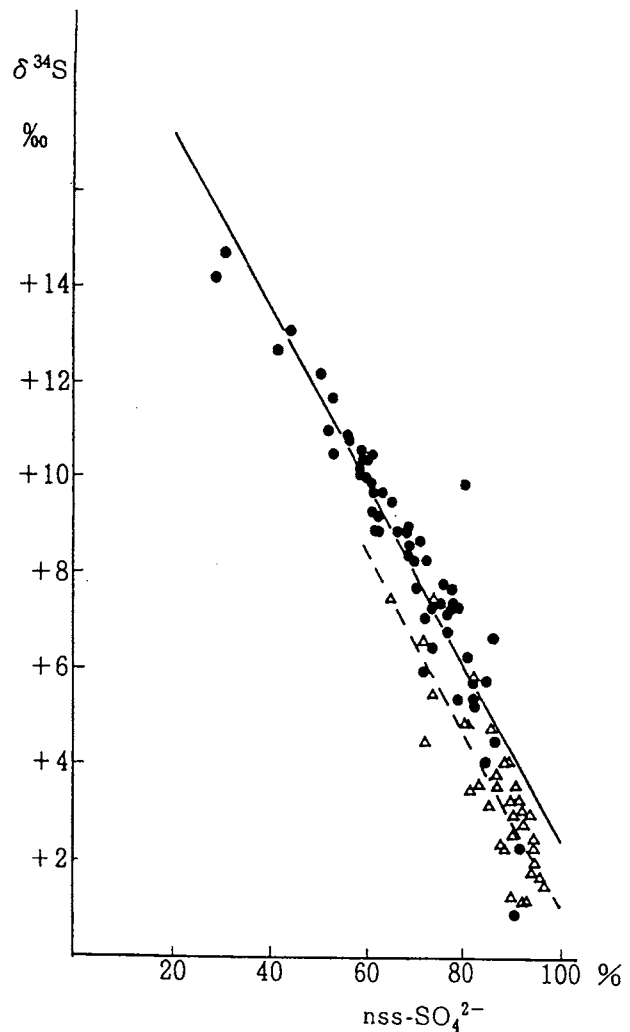


Fig.4 The relation between the percentage of nss-sulfates and $\delta^{34}\text{S}$

(●) Autumn-winter (from November to the early part of March)

$$n=60, y=-0.184x+20.9$$

(△) Spring-summer (from March to September)

$$n=35, y=-0.184x+19.5$$

受けているという2)の事実を裏付けている。4)重い同位体比を持つ硫黄の発生源として中国における石炭の $\delta^{34}\text{S}$ の測定結果を考慮すると、金沢では揚子江以北の中国北部の石炭燃焼による影響を受けている可能性が強いと考えられた。の4点が明らかになった。

結 論

以上のことを総合すると、日本海沿岸地域における降水の酸性化の原因となる物質は、中国北部を中心とした東アジア諸国から冬季の北西季節風によって運ばれて来る硫酸がその主要なものであると結論される。

本研究での討論のうち、日本の他の地域の降水の現状との比較検討や全国の調査地点におけるpHの頻度分布パターン分類、近隣の汚染の寄与に関する考察、10年間の調査結果の統計解析、高層風の流跡線解析からの結果は、いずれもいわゆる状況証拠である。また、直接的な証拠となり得る降水中硫酸イオンの硫黄安定同位体比についても、生物起源の硫黄の挙動に不確定な部分があり、いまのところ決定的な証拠とはなり得ない。しかし、1つひとつは状況証拠ではあっても、いずれの解析結果もすべて同じ結果を示しており、相互に矛盾しないことから、これらのことから導き出された結論は、相当に確度が高い結論であると考えられる。

この研究により、日本海沿岸地域における降水の酸性化の原因となる物質の挙動について、定性的及び定量的な把握ができた。特に日本海沿岸地域における降水の酸性化に関する知見はこれまで少なく、本研究によって主要な要因を解明できたので、今後の酸性雨被害の防止にもおおいに役立つと考えられる。

学位論文審査結果の要旨

本学位論文に関し、平成9年7月1日に第1回学位論文審査委員会を開催し、口頭発表と面接審査を行った。さらに、7月15日に第2回審査委員会を開催し、口頭発表の後に協議した結果、以下のよう
に判定した。

本論文は、日本海沿岸地域における降水の酸性化の原因となる物質の挙動を、長期間にわたるフィールドで得られた降水成分の測定結果を基に明らかにし、それらの統計解析と高層ジェット気流の流跡線解析を行うことにより、その酸性化の原因となる物質の起源を究明し、さらに降水中の硫酸イオンの硫黄の安定同位体比を測定することにより、それらの長距離輸送を確かめたもので、研究成果は以下の通りである。

- 1) 石川県において降水成分を測定し、その結果を統計解析することにより、降水成分の濃度と沈着量が秋から冬季の北西の季節風が強まる時期に高くなること、近隣地域からの影響は小さいこと、冬季の非海塩由来の硫酸イオンが北西の季節風によってもたらされることを明らかにした。
- 2) 石川県と全国の降水成分の状況を比較することにより、石川県における降水の化学成分の特徴は日本海沿岸地域に共通にみられ、日本海沿岸地域では長距離輸送による硫酸イオンの影響を受けていることを明らかにした。
- 3) 高層ジェット気流の流跡線解析結果を酸性雨解析に適用することにより、石川県における降水中の非海塩に由来の硫酸イオンは中国北部からもたらされている可能性が強いことを見出した。
- 4) 降水中の硫酸イオンの硫黄の安定同位体比を分析することにより、石川県における降水が中国の揚子江以北の石炭燃焼によってもたらされる重い同位体比を持つ硫黄の影響を受けていることを明らかにした。

以上のように、本論文は、これまで知見の少なかった日本海沿岸地域における降水の酸性化に関する主要な要因を、10年余りにわたる降水成分の測定解析から解明したもので、今後の酸性雨の被害の防止対策にも大いに役立つと思われ、博士論文に値するものと判定した。