

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

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**

Chemical Components of Airborne Particulate Matter and Acid Deposition in Happoone and Nagano City

Takao KATSUNO*, Hikaru SATSUMABAYASHI*, Kazutoshi SASAKI*,
Masaaki SHIKANO*, Muneyasu OTA*, Shiro HATAKEYAMA**
and Kentaro MURANO**

山岳地域における環境大気中の浮遊粒子状物質 (SPM) と大気降下物の特徴を把握するため、唐松岳八方尾根および長野市において SPM を 1 ヶ月毎に採取し、化学成分濃度を測定し、各種発生源寄与率の推定を行った。また、大気降下物を 1 ヶ月毎に測定し、酸性物質降下量を調査して、渓流水への影響について検討した。

八方尾根における SPM 中の SO_4^{2-} 濃度は春季～夏季に高くなる変化を示した。春季 (3～4 月) には黄砂の影響が見られ、黄砂粒子の濃度は約 $4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ と推定された。調査地点近傍の土壤粒子の寄与は少なかった。大気降下物の pH は平均 5.1 であり、長野市 (平均 5.3) よりもわずかに低く、春季に高くなる傾向があった。 nss-SO_4^{2-} の降下量は長野市の約 2 倍あり、また NO_3^- の降下量も多く、清浄地域と考えられる山岳地域にも多量の酸性物質の降下が認められた。

八方尾根付近の渓流である平川の水質は、pH 7.6、アルカリ度 0.48 meq/l と十分な中和能があったが、梅雨期には希釈効果により一時的にアルカリ度の低下が認められた。 NO_3^- 濃度は融雪期 (3～4 月) に上昇したが、pH の低下は見られなかった。

1. はじめに

大気汚染物質および酸性降下物は、都市部において構造物や文化財に対して悪影響を及ぼし¹⁾、関東平野の杉の衰退²⁾にも関与していることが報告されている。また、山岳地域においても、神奈川県丹沢山系大山のモミの衰退³⁾、福岡県三郡山地のモミ林の衰退⁴⁾等、森林樹木に対する影響が懸念されている。これまでの大気汚染物質の調査は、都市部を重点に実施されて来ており、山岳地域においては酸性霧の調査^{5,6)}は実施されているが、浮遊粒子状物質 (以後 SPM と記す)

および酸性降下物に関する報告例^{7,8)}は少ない。山岳地域では、原因は特定されていないものの実際に樹木の衰退が起こっていること、渓流水のなかにはアルカリ度が低く^{9,10)}、酸性化に対する緩衝能の低いものが存在すること等を考えると、山岳地域における SPM と酸性降下物の性状を把握することは重要である。

広域的な大気汚染および酸性雨をとらえるためには、地域的な影響を受けない清浄地域に測定点を選定する必要性が指摘されており^{11,12)}、本研究においても中部山岳地域の唐松岳中腹に位置する八方尾根において通年観測を行い、若干の興味ある結果が得られたので報

* 長野県衛生公害研究所 〒380 長野市安茂里米村 1978

** 国立環境研究所 〒305 茨城県つくば市小野川 16-2

告したい。調査地点は標高 1850 m の高地にありながら、リフトの通年運行により年間を通じての観測が可能であった。このように山岳地域としては観測に適した条件を備えた八方尾根と、地方都市である長野市において SPM と大気降下物の採取を行い、化学成分の濃度組成および経月変化について比較検討を行った。また、八方尾根とふもとの白馬村で湿性降下物を採取し、ウォッシュアウトの寄与を求めた。さらに八方尾根付近の渓流水に対する酸性降下物の影響についても検討を加えた。

2. 調査方法

2.1 調査地点

長野県北部の北安曇白馬村八方尾根（標高 1850 m）および長野市内の当研究所大気局舎屋上（標高 360 m）において、SPM と大気降下物の採取を行った。採取地点を Fig. 1 に示す。

八方尾根では、コンクリート製の貯水槽上（地上高 1.5 m）に SPM の捕集装置と大気降下物の採取器を設置した。採取地点付近は裸地、草地および低木帯からなり、北東 50 m に村営八方池山荘が存在するが、それ以外に汚染物質の排出源は存在しない。当研究所は長野市市街地の南西部にあり、北および東約 200 m にそれぞれ国道 19 号線と国道 117 号線が走っている。周辺は第 1 種住居専用地域である。調査は 1991 年 1 月から 1992 年 12 月までの 2 年間行った。

また、白馬村のほぼ中心地にある村役場屋上（標高 710 m）および八方尾根において、湿性降下物を 1992 年 7～11 月、1993 年 6～10 月の計 10 ヶ月間採取した。

渓流水の調査は、八方尾根の南部を西から東に流れる清澄な溪流である平川で行った。採水は、国道 147 号線から約 2 km 上流の 100 m 幅の砂防堰堤のある地

点で 1991 年 5 月から 1992 年 4 月まで毎月 1 回行った。採水地点の上流域に人為的な汚染源は存在しない。

2.2 調査方法

1) 浮遊粒子状物質

SPM はサイクロン式ローボリュームエアサンプラーを用い、石英ろ紙に 1 ヶ月毎に採取した。SPM 中の水溶性無機イオン成分の分析は、石英ろ紙の 1/4 を純水 50 ml で超音波抽出し、メンブランフィルター（Millipore Type HA）でろ過後、 Cl^- 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} はイオンクロマト法、 NH_4^+ はインドフェノール法、 Na^+ 、 K^+ 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} は原子吸光法で測定した。金属成分は、石英ろ紙の 1/4 を HF、 HNO_3 、 HClO_4 で処理し、ICP-AES 法で測定した。炭素成分は有機性炭素（OC）と元素炭素（EC）とを区別して測定し、酸素気流中で 350℃、5 分間加熱で出てくる炭素成分を OC、残りの炭素成分で 850℃、3 分間加熱で燃焼する炭素成分を EC とした。

八方尾根における SPM および化学成分濃度は、八方尾根の平均気圧（810 hPa）を用いて 1 気圧の濃度に換算した。

2) 大気降下物

酸性雨ろ過式採取装置を用いて 1 ヶ月毎に大気降下物を採取した。試料の採取は 1～2 週間毎が望ましいが、八方尾根は標高 1850 m の山岳地帯であることから、頻繁な採取が不可能なため 1 ヶ月毎に行った。このため pH、 NO_3^- 、 NH_4^+ 等の一部の化学成分は変質の可能性があったが、夏季でも平均気温が 16℃ と低いため、大きな影響はなかったものと思われる。長野市の採取期間は八方尾根に合わせた。ろ過には 0.8 μm のメンブランフィルターを用いた。ただし、八方尾根では冬季は吹雪と強風のため採取装置を使用できず、1991 年 1～3 月、1991 年 12～92 年 4 月、および 1992 年 11～12 月の期間についてはステンレス製の円筒型降雪サンプラー（ ϕ 150 mm×1.5 m）を使用した。

白馬村役場および八方尾根における湿性降下物は、光進電気製降水サンプラー DRS-150 W 型を用い、夏季から秋季にかけて 1 ヶ月毎に採取した。

無機イオン等の分析方法は酸性雨等調査マニュアル¹³⁾ によった。

3) 渓流水

渓流水は流心で採水し、持ち帰った後ガラス繊維ろ紙（Advantec GS-25）でろ過し、大気降下物と同様の方法で分析した。また、アルカリ度はメチルレッド・ブロムクレゾールグリーン混合指示薬を用い、0.01 M 硫酸で pH 4.8 まで滴定して測定した。

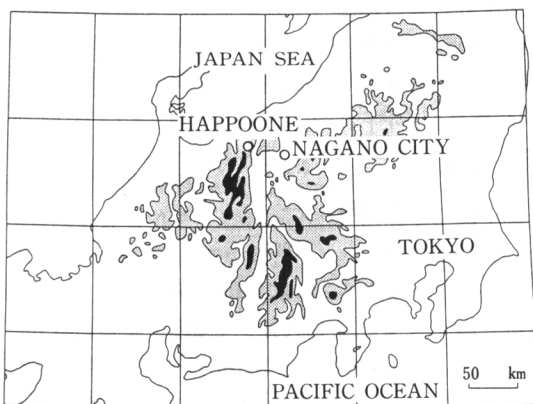


Fig. 1. Location of Happoone and Nagano City.

3. 結果および考察

3.1 浮遊粒子状物質の測定結果

八方尾根および長野市におけるSPMと化学成分の重量濃度をTable 1に、SPM濃度の経月変化をFig. 2に示す。SPM濃度の2年間の平均値(1991~1992年)は八方尾根で $16.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、長野市で $37.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ となり、全国の一般環境大気測定局の年平均値の濃度分布¹⁴⁾と比較すると、八方尾根では6段階評価のうち $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下の最も低い濃度区分に相当した。また、長野市では $31\sim40 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の中央値の濃度区分に相当した。

八方尾根におけるSPM濃度は、春季~夏季に高くなる傾向が観察された。化学成分別の組成では、 SO_4^{2-} が年間を通じて最も濃度が高く、SPMに占める割合は19.8%であった。次いでOC、 NH_4^+ 、EC、 NO_3^- の順に濃度が高かった。一方長野市におけるSPM濃度は、11~3月にかけての冬季に高くなる傾向があり、化学成分別の組成では、EC、OC、 SO_4^{2-} の各割合が16.6~14.1%と高い値を示した。

3.2 Chemical mass balance 法^{15~19)}による

各種発生源寄与率の推定

1) 各種発生源データおよび計算方法

Chemical mass balance 法(以後CMB法と記す)により各種発生源寄与率を計算する場合の発生源粒子の化学成分組成(発生源プロフィール)は、Table 2

Table 1. Average concentrations of chemical components of SPM at Happoone and Nagano City (1991~1992).

Element	Happoone ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	Nagano City ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)
SPM	16.8	37.1
NH_4^+	0.87	1.65
Na^+	0.09	0.27
Mg^{2+}	0.021	0.46
Ca^{2+}	0.10	0.25
SO_4^{2-}	3.23	5.23
NO_3^-	0.27	1.62
Cl^-	0.059	0.45
EC	0.74	6.16
OC	1.40	5.36
Al	0.27	0.57
Ca	0.17	0.42
Fe	0.18	0.43
Mg	0.12	0.14
Mn	0.0058	0.021
Na	0.11	0.37
Pb	0.011	0.038
Zn	0.035	0.11

に示す値を用いた。土壌系粒子は一般に高い寄与率を

Table 2. Concentrations of various elements in the SPM originating from the nine main sources (%).

Element	Kosa soil	Road soil	Happo soil	Spike soil	Marine aerosol	Iron and steel in- dustry	Refuse incin- eration	Plant incin- eration	Auto- mobile
Al	6.14	8.56	0.37	7.04	—	1.0	0.97	—	—
Ca	5.16	3.19	0.27	8.14	1.2	4.5	8.7	0.023	—
Fe	2.84	4.81	6.26	3.88	—	16	1.1	—	0.317
Mg	1.12	0.92	13.5	0.96	3.7	0.085	—	0.004	—
Mn	0.073	0.11	0.103	0.093	—	2.2	0.0094	—	—
Na	1.49	0.77	0.19	1.40	30.6	1.4	10.7	0.029	—
Pb	—	0.017	—	—	—	—	1.1	—	0.0254
Zn	0.182	0.079	0.012	—	—	5.2	4.4	0.004	0.0635
EC	—	2.5	—	—	—	0.5	2.8	7.0	57.1
OC	—	3.8	—	—	—	2.2	1.2	56.3	16.8

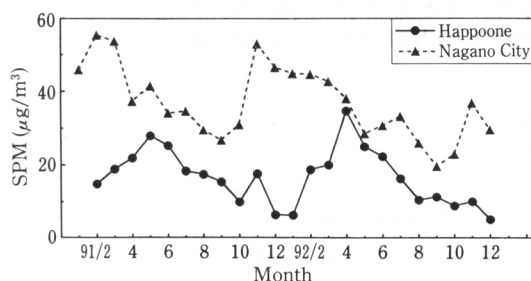


Fig. 2. Monthly variations of SPM at Happoone and Nagano City.

示し、化学成分組成の地域差が大きいことから、発生源として黄砂 (Kosa soil), 道路粉じん (Road soil), 八方尾根土壌 (Happo soil, 八方尾根の SPM についてのみ使用) およびスパイクタイヤ粉じん (Spike soil, 長野市の SPM についてのみ使用) の4種類を用いた。

黄砂の発生源データは、中国土壌の化学組成と日本に飛来した黄砂の化学組成²⁰⁾の平均値を用いた。道路粉じんの発生源データは長野県中野市で実測した値を用いた。八方尾根の観測地点周辺は、カンラン石から成る超塩基性岩地帯であり、化学成分組成が平地の土壌とは異なるため土壌を採取して成分分析を行い、八方尾根土壌の発生源データとして用いた。また、調査期間中の冬季にはスパイクタイヤが使用されていたため、スパイクタイヤ粉じんの発生源データとしてアスファルト舗装の元素含有率²¹⁾を用いた。

このほか地域性のあるものとして植物焼却 (Plant incineration) があり、農業県である本県では、アスパラガス、稲わら等の植物の野焼き²²⁾が各地で行われ、OCの主要な発生源となっている。OCの一部は二次生成粒子であり、指標元素として用いることの問題点が指摘されている¹⁶⁾が、地域性からみて植物焼却の寄与は高いと考えられるので、OCを指標元素としてその寄与率を求めた。植物焼却粒子の発生源データはアスパラガス焼却粒子の実測値²²⁾を用いた。海塩粒子 (Marine aerosol), 鉄鋼業 (Iron and steel industry), 廃棄物焼却 (Refuse incineration) および自動車排出粒子 (Automobile) の各発生源データは文献の値^{16~18)}を用いた。二次生成粒子は SO_4^{2-} , NO_3^- および NH_4^+ の実測値の合計として求めた。

計算は溝畑のCMBモデル計算プログラム¹⁶⁾を用い、有効分散最小自乗法により行った。

2) CMB法による計算結果

CMB法によりSPMの発生源寄与率を求めた結果

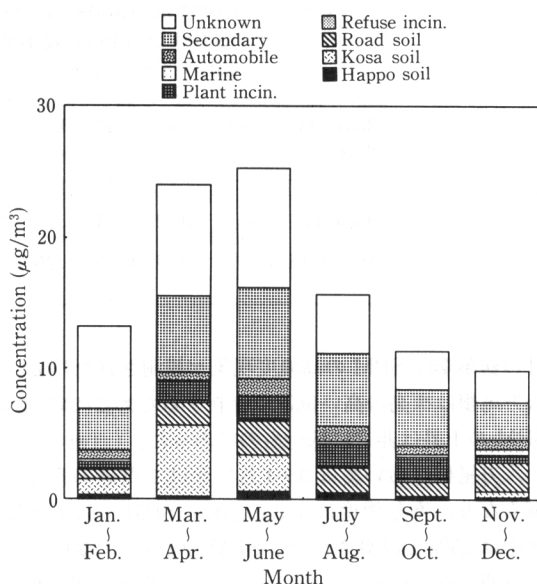


Fig. 3. Concentrations of SPM from the main source components at Happoone.

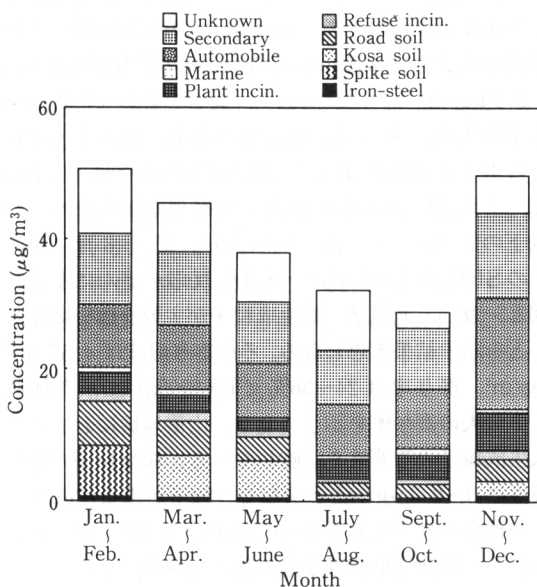


Fig. 4. Concentrations of SPM from the main source components at Nagano City.

を調査地点別の平均濃度として Fig. 3, Fig. 4 に示す。SPMの年間の変動パターンは、八方尾根では上述したように3~6月の春季から初夏にかけて高く、12~1月の冬季に低い変動を示したが、長野市では11~3月の初冬から春季にかけて高い対照的な季節変動を示した。県内の多くの大気汚染測定局においては、11~12

Table 3. Concentrations of chemical components in deposition collected by filterling bulk samplers at Happoone and Nagano City (1991~1992).

Monitoring Site	pH	EC ($\mu\text{S/cm}$)	NH_4^+	K^+	Na^+	Ca^{2+}	Mg^{2+}	SO_4^{2-}	NO_3^-	Cl^-	nss- SO_4^{2-}
Happoone	5.07	10.3	0.14	0.09	0.17	0.16	0.05	1.12	0.49	0.31	1.08
Nagano City	4.98	18.7	0.55	0.20	0.38	0.61	0.05	2.35	1.22	0.79	2.25

月の初冬季に SPM の高濃度現象が観測された²⁴⁾が、八方尾根は標高の高い位置に存在するためこの時期の SPM の上昇は非常に低いものであった。

八方尾根においては3~4月にかけて黄砂の寄与が高くなり、寄与濃度は $4.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、SPM に占める寄与率は23%と計算された。SPM 中の Ca^{2+} 濃度がこの時期に高くなることから、黄砂の影響が予想されていたが、この地点でのその寄与率の高い値はこの予想を支持するものであった。また、この結果は SPM 濃度が低い山岳地域においてはその寄与率が高くなることを示唆するものと考えられる。八方尾根土壌の寄与濃度は $0.2 \sim 0.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、道路粉じんの寄与濃度は $0.5 \sim 2.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ といずれも低く、両者を合わせた寄与率も平均13%であって、都市部の堺市における土壌粒子の寄与率33%¹⁷⁾および富山県山間部の平、立山山麓、宇奈月における土壌粒子の寄与率25%¹⁹⁾の1/2以下の値であった。山岳地域において3~8月にかけての SPM 濃度の上昇は、光化学反応が盛んになる時期と一致し、光化学二次生成粒子が主要な成分になることを示す結果と思われる。その寄与濃度は $4.5 \sim 5.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、寄与率は24~36% (平均29%)で、各種粒子中最大の寄与率を示しており、山岳地域における二次生成粒子の重要性を示唆している。海塩粒子の寄与濃度は $0 \sim 0.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ と少なく、粒子が重量沈降するため標高の高い八方尾根への到達は少なかったと考えられる。各種発生源寄与率の合計は66%であった。

長野市においては3~6月にかけて黄砂の寄与が見られ、その濃度は3~4月に $6.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、5~6月に $5.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、濃度では八方尾根よりもやや高い値を示したが、寄与率は14%と低い値となった。道路粉じんの寄与濃度は $1.8 \sim 6.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲にあったが、スパイクタイヤ粉じんの寄与は1~2月に観察され、その濃度は $7.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ に達した。黄砂、道路粉じんおよびスパイクタイヤ粉じんを合わせた土壌系粒子の寄与率は、1~6月には平均26%であったが、7~12月には平均9%と低い値となった。自動車排出粒

子と光化学二次生成粒子は共に年平均寄与濃度が $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であって、各種粒子中で最も高濃度を示した。光化学二次生成粒子の寄与率は22~32%の範囲にあり、季節変動が少なかった。しかし、光化学二次生成粒子の一部である NO_3^- 濃度は、長野市においては冬季に高く夏季に低い季節変化を示し、夏季には NO_3^- がガス状の HNO_3 として存在する²⁵⁾こと、 NH_4NO_3 の揮散および硫酸ミストによるろ紙上の NO_3^- の揮散が起こること等が夏季に濃度が低くなる原因であると指摘されている。このような NO_3^- 濃度の季節変化が見かけ上夏季の二次生成粒子の寄与率の増加を押さえ、その結果寄与率の季節変動が少なかったものと考えられる。SPM の各種発生源寄与率の合計は83%であった。

3.3 大気降下物

1) 化学成分濃度

降水量で重みづけした各地点の化学成分濃度の年平均値 (1991~1992年) を Table 3 に示す。

pH は八方尾根で5.07、長野市で4.98とほぼ同じであり、第2次酸性雨対策調査²⁶⁾の全地点の平均値4.8よりわずかに高かった。pH の経月変化を Fig. 5 に示す。八方尾根では、春季に pH が高くなる傾向を

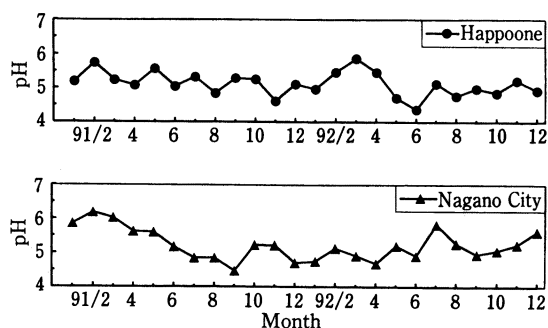


Fig. 5. Monthly variations of the pH of deposition at Happoone and Nagano City.

Table 4. Deposition of chemical components collected by filtering bulk sampler at Happoone and Nagano City (1991~1992).

Monitoring Site	Rainfall (mm/y)	H ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Na ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	nss-SO ₄ ²⁻
Happoone	2970	0.025	0.41	0.28	0.51	0.47	0.14	3.33	1.46	0.93	3.20
Nagano City	880	0.009	0.49	0.18	0.33	0.54	0.05	2.09	1.08	0.70	2.00

示し、化学成分では Ca^{2+} の濃度が高くなった。すでに述べたように、この時期には SPM に占める黄砂の割合が増加するのでその影響を受けたものと考えられる。八方尾根における各化学成分の濃度は、長野市の 1/5~1 倍と低濃度であった。

長野市における 1991 年 2 月の大気降水物の pH は 6.18 と高い値であったが、1 年後の 1992 年 2 月には 5.13 と、約 1.0 低い値を示した。化学成分では Ca^{2+} 濃度が 1.73 mg/l から 0.75 mg/l へと約 1/3 に減少していた。長野市においてスパイクタイヤ使用に伴う粉じんをダストジャー法により測定した結果²⁴⁾によれば、降下ばいじん量 (mg/m²/30 日) は 1988 年 2 月の 34.6 をピークに年々減少し、1991 年 2 月には 26.4、1992 年 2 月には 8.6 と、スパイクタイヤ装着率の減少とともに急激に減少した。SPM も 1991 年 2 月の 55.4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ から 1992 年 2 月の 44.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ へと 20% の減少が観察された。大気降水物中の化学成分の濃度、降下ばいじん量および SPM の減少傾向から見て、1992 年冬季の長野市における大気降水物の pH は、スパイクタイヤ粉じんの影響を受けて高い値を示したものと考えられる。

2) 降水量

化学成分別の降水量を Table 4 に示す。年間降水量は八方尾根で 2970 mm、長野市で 880 mm であって、八方尾根では長野市の 3.4 倍と多く、冬季 (1~3 月) と夏季 (7~9 月) に多い傾向を示した。H⁺ 降水量は八方尾根で 0.025 g/m²/y であり、同時期に関東地方で観測された降水量²⁷⁾ 0.030 g/m²/y に近い値であった。長野市では 0.009 g/m²/y であり、八方尾根の 1/2 以下であった。

長野県では、ろ過式採取法による大気降水物の観測を県内の 20 地点で実施²⁴⁾ しており、全地点の平均値 (以後県平均と記す) と比較すると、八方尾根における SO_4^{2-} 降水量は 3.33 g/m²/y であって、県平均 2.00 g/m²/y の約 1.5 倍と多かった。日本海側の各都市においては、人為起源の SO_4^{2-} 降水量が冬季に増

加することが指摘されており²⁸⁾、八方尾根においても同様の傾向が見られた。また、夏季にも SO_4^{2-} 降水量が増加したが、これは降水量の多いことが原因の一つであると考えられる。 NO_3^- 降水量は 1.46 g/m²/y で県平均 1.06 g/m²/y の約 1.5 倍であり、経月変化が nss- SO_4^{2-} と同様のパターンを示した。 Cl^- と Na^+ 降水量はそれぞれ 0.93、0.51 g/m²/y でいずれも県平均の 2 倍の値であり、日本海由来と考えられる海塩の影響がわずかに観察されたものの、全国の主要都市²⁹⁾ に比較して約 1/6 の少ない量であった。 NH_4^+ と Ca^{2+} 降水量はそれぞれ 0.41、0.47 g/m²/y で長野市とはほぼ同じレベルであった。 Mg^{2+} 降水量は 0.14 g/m²/y と、長野市の約 3 倍にも達したが、これは八方尾根周辺がカンラン石地帯であるため岩石の風化によった生じた土壌粒子が影響したものと考えられる。

海塩成分の保存性の指標として Cl^-/Na^+ 当量比を見ると、八方尾根では 1.18 と海塩の値 1.16 に非常に近似した値であり、ここでの Cl^- はほとんどすべてが海塩由来であったことを示す結果と思われる。一方長野市では 1.38 であり、人為発生源から排出された Cl^- の影響が推察される。

$\text{NO}_3^-/\text{nss-SO}_4^{2-}$ 当量比は八方尾根で 0.35、長野市で 0.42 と中部地方の平均値 0.62²⁹⁾ に比較していずれも低く、降水物の酸性化に関しては SO_4^{2-} の寄与が大きい結果を示すものであった。

3) 降水による大気汚染物質の除去

八方尾根 (標高 1850 m) と白馬村役場屋上 (標高 710 m) において、湿性降水物を降水サンプラーにより 1 ヶ月毎に採取し、標高差を利用して大気中の汚染物質がウォッシュアウトにより取り込まれる過程について検討した。

1992 年 7~11 月および 1993 年 6~10 月の計 10 ヶ月間の化学成分の平均濃度と、ウォッシュアウトの寄与を Table 5 に示す。いずれの化学成分も白馬村役場において八方尾根よりも濃度が高かった。白馬村役場と八方尾根とは水平距離が 5.8 km と近いので、白

Table 5. Concentrations of chemical components in precipitation at Happoone and Hakuba Village, and washout fraction (Jul. ~Nov. 1992, June~Oct. 1993).

Monitoring Site	pH	NH ₄ ⁺	K ⁺	Na ⁺ (mg/l)	Ca ²⁺	Mg ²⁺	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻
Happoone	5.17	0.057	0.015	0.036	0.053	0.009	0.78	0.22	0.093
Hakuba Vil.	4.85	0.273	0.037	0.106	0.083	0.020	1.14	0.67	0.219
Washout(%)		79	59	66	35	54	32	67	58

馬村役場上層の雨水中の成分濃度と八方尾根における雨水中の成分濃度が同じであると仮定し、白馬村役場の降水成分濃度のうちウォッシュアウトの寄与を{(白馬村役場)-(八方尾根)}/(白馬村役場)として算出した。

ウォッシュアウトの寄与は、NH₄⁺が79%と最も高く、K⁺、Na⁺、Mg²⁺、NO₃⁻、Cl⁻が54~67%、Ca²⁺とSO₄²⁻が32~35%であった。SO₄²⁻は約70%がレイアウトの寄与であり、このことは他の化学成分に比較して広域的に輸送されてくる割合が高いことを示していた。

降水のpHは、白馬村役場では八方尾根よりも0.32低い値であった。鹿野ら³¹⁾は、八方尾根とそこから約20 km南の大大町市(標高720 m)において降水成分の濃度を比較し、大大町市では八方尾根よりもpHが0.34高く、白馬村役場とは逆の結果を報告している。大大町市の降水はNH₄⁺濃度が0.92 mg/lと白馬村の3倍以上もあり、ウォッシュアウトの寄与も90%と高い値に見積もられた。SO₄²⁻については白馬村役場と大大町市で濃度およびウォッシュアウトの寄与にはほとんど差がなく、NO₃⁻については濃度は同じであったがウォッシュアウトの寄与は白馬村役場で約20%高く観察された。したがって、大気中のNH₃はウォッシュアウトにより降水に取り込まれ、そのpH値に与える影響が大きいものと考えられる。

3.4 渓流水

平川周辺の地質は花崗岩の地域とカンラン石の地域とが混在している。このため水質は地質の影響を受け、本川は花崗岩地域から流出しておりアルカリ度が0.30 meq/lと比較的低く、一方、左岸から流入する支川はカンラン石地域から流出しておりアルカリ度が0.83 meq/lと、やや高い値であった。調査地点の水質は、年平均值でpH 7.6、アルカリ度0.48 meq/l

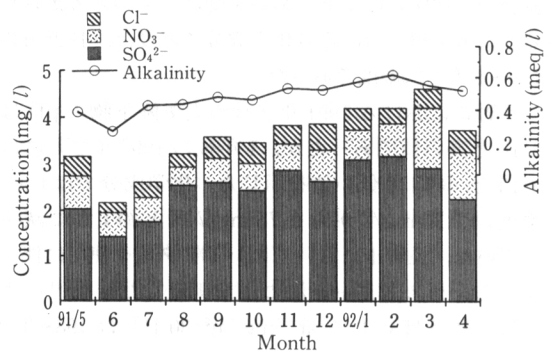


Fig. 6. Monthly changes in water quality of the Hira River.

と、酸性雨に対して充分な中和能³²⁾を有していた。pHが7.6と比較的高い値であったのは、2.99 mg/lと高いMg²⁺濃度に起因するもので、カンラン石の風化によって中和された結果である。水質の経月変化をFig. 6に示す。アルカリ度は夏季に低く冬季に高い季節変化を示した。夏季には降水量が多く、融雪水の流入も加わって河川流量が多かった。このため希釈効果によってアルカリ度が低下したと考えられる。特に6月の採水時には強い降雨があり、希釈効果が顕著であった。

各測定成分のうち、渓流水の濃度が降水中的濃度よりも低かったものはNH₄⁺のみであった。NH₄⁺は土壌に急速に吸着される³³⁾ため、一般に渓流水からはほとんど検出されない。土壌に吸着されたNH₄⁺はNO₃⁻まで酸化されて流出するが、一部は植物による吸収および脱窒によって減少する。

融雪期の3~4月にはNO₃⁻濃度が通常の約2倍に上昇し、pHおよびアルカリ度がわずかに低下する現象が見られた。しかし、pHおよびアルカリ度は年平均值とほぼ同じレベルであったこと、SO₄²⁻濃度は増

加しなかったことから、この時期の水域の酸性化³⁴⁾はごくわずかであり、生態系への影響は無かったものと考えられる。

4. ま と め

清浄地域と考えられる唐松岳八方尾根と、地方都市である長野市において、環境大気中の浮遊粒子状物質 (SPM) および大気降下物の観測を実施した。また、八方尾根付近の渓流水の水質を調査した。調査結果は次のとおりであった。

1) 浮遊粒子状物質について

八方尾根における SPM 濃度は長野市の 1/2 以下であり、春季～夏季に高くなる傾向があった。化学成分では SO_4^{2-} の濃度が最も高かった。春季 (3～4 月) には黄砂の影響が見られ、CMB 法による計算の結果、黄砂粒子の寄与濃度は約 $4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ と推定された。

2) 大気降下物について

八方尾根における大気降下物の pH は平均 5.1 であり、長野市 (平均 5.3) よりもわずかに低く、春季に黄砂の影響を受けて高くなる傾向があった。nss- SO_4^{2-} の降下量は長野市の約 2 倍と多かった。 SO_4^{2-} は約 70% がレインアウトによるものであり、広域的に輸送されてくる割合が高かった。

3) 渓流水について

八方尾根付近の渓流である平川の水質は、pH 7.6、アルカリ度 $0.48 \text{ meq}/\text{l}$ と、酸性降下物に対して十分な中和能を持っていた。 NO_3^- 濃度は融雪期 (3～4 月) に上昇したが、pH の低下は見られなかった。

謝 辞

本研究の一部は環境庁地球環境研究総合推進費と平成 4 年度長野県科学研究費の助成の下に行われた。本研究に当たり、国立環境研究所の横内陽子主任研究員と竹中明夫主任研究員に EC、OC の分析について、西川雅高主任研究員に ICP-AES による金属成分の分析についてご指導、ご協力をいただいた。大阪府立大学の溝畑 朗教授には CMB 法の計算プログラムを提供いただいた。ここに深く感謝します。

また、八方尾根における観測に当たり、観測者と機材の輸送等にご協力いただいた白馬観光開発㈱、八方尾根開発㈱、八方池山荘の皆様にお礼申し上げます。

(受稿 1996.3.22)

文 献

- 1) 古明地哲人, 朝来野国彦, 鎌滝裕輝, 青木一幸: 石像等への酸性雨影響調査(1)―野外観察と反応生

成物の X 線回折一, 東京都環境科学研究所年報, 318～325 (1992).

- 2) 環境庁大気保全局, 環境庁水質保全局, 農林水産省林野庁: 昭和 60 年度関東地方におけるスギ林の衰退と酸性降下物の影響に関する緊急実態調査報告書 (1986).
- 3) 杉本龍志, 相原敬次, 古川昭雄: 森林衰退の現状―丹沢大山モミ林の場合―, 第 30 回大気汚染学会講演要旨集, p. 364 (1989).
- 4) 須田隆一, 杉 泰昭, 宇都宮 彬, 大石興弘, 濱村研吾: 酸性雨等による植物衰退現象の実態/宝満山 (福岡県) のモミ, 資源環境対策, 28, 1344～1348 (1992).
- 5) 村野健太郎: 酸性霧研究の現状, 大気汚染学会誌, 28, 185～199 (1993).
- 6) 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: 赤城山で発生する酸性霧と大気汚染の解析, 同上, 30, 113～125 (1995).
- 7) 宇都宮 彬, 大石興弘, 浜村研吾, 須田隆一, 石橋龍吾, 溝口次夫: 山岳地域自然林の土壌特性と酸性降下物, 同上, 28, 159～167 (1993).
- 8) 林野庁: 酸性雨等森林被害モニタリング事業中間とりまとめ, 官公庁公害専門資料, 29, 29～40 (1994).
- 9) 鹿角孝男, 宮島 勲, 塩澤憲一: 山地における酸性降下物の河川・堆積物への影響について, 環境科学会 1995 年会講演要旨集, pp. 106～107 (1995).
- 10) 安藤春夫, 山崎正夫, 増田京三: 酸性雨の陸水への影響について (その 1), 東京都環境科学研究所年報, 1991-2, 203～207 (1991).
- 11) 向井人史, 安部喜也, 椋 達則, 竹下和男, 福岡常夫, 高橋順一, 溝田真司: バックグラウンド地域における環境汚染物質の長期モニタリング手法の研究 (II)―隠岐島における大気粉じん成分の長期的変動―, 国立公害研究所報告, 123, 7～50 (1989).
- 12) 玉置元則, 小山 功: 地上から見た日本の酸性雨, 大気汚染学会誌, 26, 1～22 (1991).
- 13) 酸性雨調査法研究会編 (環境庁大気保全局大気規制課監修): 酸性雨調査法, 酸性雨等調査マニュアル, ぎょうせい, pp. 337～371 (1993).
- 14) 環境庁大気保全局大気規制課: 平成 3 年度一般環境大気測定局測定結果報告, p. 79 (1993).
- 15) M. S. Miller, S. K. Friendlander and G. M. Hidy: A chemical element balance for the Pasadena

- aerosol, *J. Colloid Interface Sci.*, **39**, 165~176 (1972).
- 16) 浮遊粒子状物質削減手法検討会：浮遊粒子状物質の発生源寄与評価に係るリセプターモデル適用の現状と課題 (1992).
 - 17) 溝畑 朗, 真室哲雄：堺における大気浮遊粒子状物質中の諸元素の発生源の同定 (I), 大気汚染学会誌, **15**, 198~206 (1980).
 - 18) 横浜市公害研究所：浮遊粉じんの発生源推定に関する調査研究報告 (1989).
 - 19) 鳥山成一, 島田博之, 荒川久雄, 高田忠幸, 坂森重治：CMB法による富山県におけるエアロゾルの発生源寄与, 日本化学会誌, 1991, 454~464 (1991).
 - 20) 名古屋大学水圏科学研究所：大気水圏の科学, 黄砂, p. 125 (1991).
 - 21) 環境庁大気保全局：スパイクタイヤによる浮遊粉じん中の各成分濃度等測定法指針, p. 34 (1983).
 - 22) 鹿角孝男, 薩摩林 光, 笹井春雄, 野溝春子, 渡辺哲子：アスパラガスの野焼きにともなう浮遊粒子状物質汚染, 長野県衛生公害研究所報告, **15**, 18~22 (1992).
 - 23) 鹿角孝男, 薩摩林 光, 笹井春雄：アスパラガス中の金属成分とその野焼きによって発生するばいじん中の化学成分, 同上, **16**, 20~22 (1993).
 - 24) 例えば, 長野県生活環境部公害課：平成3年度大気汚染等測定結果 (1992).
 - 25) 佐々木一敏, 栗田秀實, 村野健太郎, 水落元之, 植田洋匡：大気汚染物質の長距離輸送時における硫酸塩, 硝酸塩等の挙動, 大気汚染学会誌, **21**, 216~225 (1986).
 - 26) 環境庁, 酸性雨対策検討会：第2次酸性雨対策調査結果, p. 4 (1994).
 - 27) 関東地方公害対策推進本部大気汚染部会：平成6年度湿性大気汚染調査報告書 (1995).
 - 28) 北村守次, 杉山 実, 大橋哲二, 中井信之：硫黄安定同位体比からみた石川県の降水中硫酸イオンの起源の推定, 地球化学, **27**, 109~118 (1993).
 - 29) 電力中央研究所：酸性雨の実態調査, 電力中央研究所 研究報告, T91019 (1992).
 - 30) 押尾敏夫：全国酸性雨調査(14)ー1991~1993年度調査結果の概要一, 第36回, 大気環境学会講演要旨集, p. 527 (1995).
 - 31) 鹿野正明, 薩摩林 光, 佐々木一敏, 鹿角孝男, 太田宗康, 溝口次夫, 村野健太郎, 向井人史：降水による大気汚染物質の除去, 第32回大気汚染学会講演要旨集, p. 445 (1991).
 - 32) 河合崇欣, 酸性降水物による陸水生態系への影響について, 環境と測定技術, **20**, 56~66 (1993).
 - 33) Suzuki T., Katsuno T. and Yamaura G.: Land application of wastewater using three types of trenches set in lysimeters and its mass balance of nitrogen. *Wat. Res.*, **26**, 1433~1444 (1992).
 - 34) 村野健太郎：酸性雨と酸性霧, 裳華房, p. 91 (1993).

Chemical Components of Airborne Particulate Matter and Acid Deposition in Happoone and Nagano City

Takao KATSUNO*, Hikaru SATSUMABAYASHI*, Kazutoshi SASAKI*,
Masaaki SHIKANO*, Muneyasu OTA*, Shiro HATAKEYAMA**
and Kentaro MURANO**

* Nagano Research Institute for Health and Pollution, 1978, Komemura, Amori, Nagano 380, JAPAN

** National Institute for Environmental Studies, 16-2, Onogawa Tsukuba City, Ibaraki 305, JAPAN

The chemical components of airborne suspended particulate matter (SPM) and deposition were measured in samples collected at monthly intervals both at Happoone in the Karamatsu Mountains of the Japan Alps and in Nagano City. The contributions of several sources to SPM were estimated via the chemical mass balance (CMB) method. The amount of deposition at Happoone was compared with that in Nagano City, and its effects on stream water components was observed.

At Happoone, SO_4^{2-} concentration in the SPM increased from spring to summer. In spring, Kosa aerosol was detected in the SPM and its concentration was estimated to be $4 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Few soil particles generated from the neighboring area were detected in the SPM. The mean pH of deposition at Happoone was 5.1, slightly lower than that (5.3) in Nagano City, and the Happoone value increased during spring. The

deposition rates of nss-SO_4^{2-} and NO_3^- at Happoone were 1.5 times greater than those in Nagano City. These results suggest that greater amounts of acidic substances fell on this mountain region, which had seemed to be a clean area.

The Hira River, a mountain stream near Happoone, had sufficient capacity to neutralize the acid deposition with pH remaining at 7.6 and alkalinity at 0.48 meq/l. However the alkalinity decreased temporarily due to dilution with rainfall during the rainy season. During the snow melt season, the concentration of NO_3^- increased, although pH decline was not observed.

Key words: atmospheric aerosol, acid deposition, CMB method, surface waters