

# 福岡市における初期降雨中のイオン成分と微量金属元素による 大気汚染物質の長距離輸送の評価

島田友梨・中島亜矢子・山崎誠・池田嘉子

福岡市保健環境研究所環境科学課

## Evaluation of Long-range Transport of Air Pollutants with Ionic Compounds and Trace Metals in Initial Precipitations Collected in Fukuoka City

Yuri SHIMADA, Ayako NAKASHIMA, Makoto YAMASAKI and Yoshiko IKEDA

Environmental Science Division, Fukuoka City Institute for Hygiene and the Environment

### Summary

To evaluate the influence by the long-range transportation of anthropogenic pollutants for precipitations, we collected the initial precipitations at our institute from May 2007 to May 2008. From the concentrations of water soluble ionic components, metal components and the lead isotope ratio, we evaluated the effect based on the backward trajectory analysis. As a result, from December to May, we measured high concentrate sulfate and trace metal components which are Mn, V, Ba, Pb in the rain. Those are contaminant by human activity, which contains air mass transported via the central part of China and the Korean Peninsula. We could not estimate the sources of the lead at the initial precipitation because the lead isotope ratio varied widely. Consequently, we cleared that the rain takes contaminant by human activity which was transported from the central part of China and the Korean Peninsula from December to May.

**Key Words** : 初期降雨 initial precipitation, 長距離輸送 long-range transport, 後方流跡線 backward trajectory, 微量金属 trace metal, 鉛同位対比 lead isotope ratio

### 1 はじめに

福岡市は市域面積約 340km<sup>2</sup>, 北は玄界灘に臨み, 海の中道と糸島半島が抱く博多湾に面しており, 背後は背振, 三郡, 犬鳴山系に囲まれた半月型の福岡平野に位置している. 福岡管区気象台 ([http://www.fukuoka-jma.go.jp/fukuoka/yoho/tenki\\_hanasi.html](http://www.fukuoka-jma.go.jp/fukuoka/yoho/tenki_hanasi.html))によると, 気候は比較的温暖で, 雲量の季節変化は夏と冬に多くなる日本海型気候, 降水量の季節変化は夏に多く冬に少ない太平洋型気候という特徴がある. また, 朝鮮海峡と対馬海峡を挟んだすぐ北西には朝鮮半島が, 黄海を挟んで中国大陆があり, 福岡市は大陸の影響を非常に受けやすい位置にある.

中国や朝鮮半島の国々を含む東アジア地域は, 近年の急速な経済発展・産業開発により膨大な大気汚染物質が大気

中に排出されている. 特に, 中国では, エネルギーの大部分を石炭に頼っているため, 二酸化硫黄 (以下, SO<sub>2</sub> という) の排出量が非常に大きい. 今後も中国では経済発展が続いていくと考えられるため, 東アジア地域の SO<sub>2</sub> 発生量は, 増大することが予測されている<sup>1)</sup>.

近年, 東アジア地域からの長距離輸送現象の解析を目的として, 微量金属元素を調査対象とした人為汚染物質の研究が行われるようになってきた<sup>2)</sup>. しかしながら, 長距離輸送の影響を 1 回の降り始めの雨 (以下, 初期降雨という) 毎に評価する試みは行われていない. 初期降雨は大気中の浮遊粒子を洗い落としてくるため, それ以降の雨に比べて溶存成分が多く, 影響も大きくなると考えられる.

そこで本研究では, 2007 年 5 月から 1 年間, 福岡市における 1 降雨毎の初期降雨を採取し, 採取した降雨中のイ

オン濃度, 金属元素濃度および鉛同位体比に, 後方流跡線解析を適用し, 降雨中成分に対する人為汚染物質の長距離輸送による影響を評価した. また, 汚染物質を取り込んだ雨の影響についても考察した.

## 2 実験方法

### 2.1 観測地点

観測地点は Fig.1 に示す保健環境研究所(北緯 33 度 59 分, 東経 130 度 36 分)の 3 階屋外広場である. 本研究所は福岡県福岡市に位置し, 福岡市の中心地である天神からは西に約 3km である. 用途区分は商業地域であり, 周辺には大規模商業施設と公共施設, 住宅地がある. 博多湾のすぐ傍に立地し, 朝鮮半島のある北西からの海風が吹きやすい環境にある.

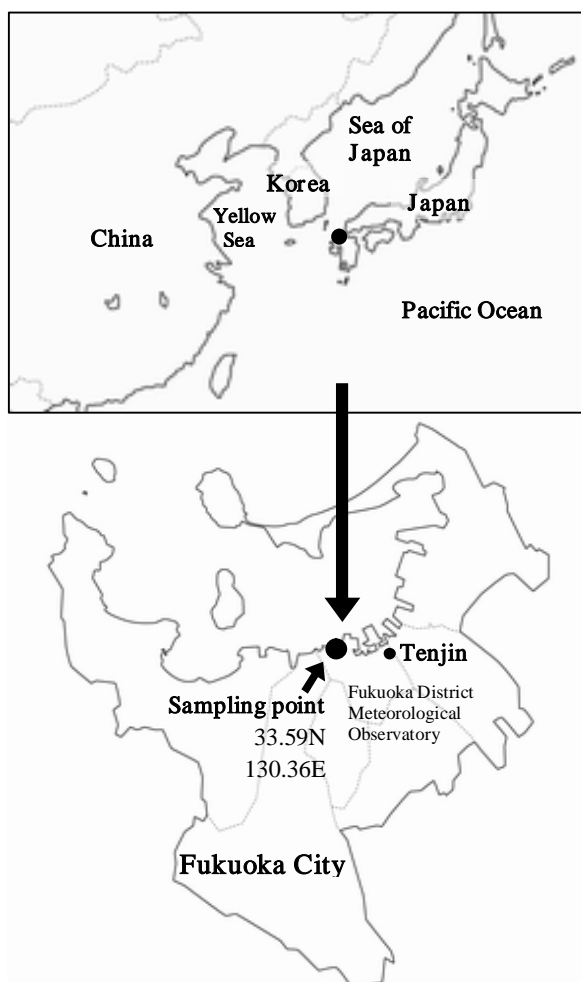


Fig. 1 Map of sampling point

### 2.2 サンプリング

降雨試料の採取は wetonly タイプの初期降雨自動採取装置(小笠原計器製作所製 US-300 型)を用いた. この装置は, 降水の有無を付属の感雨機が感知し, 捕集口の開閉で降水のみを捕集する降水時開放型で, 降雨 1mm 毎に最大 5mm 目の降雨までそれぞれ約 100mL 採取できる. 調査期間は 2007 年 5 月~2008 年 5 月の間で, 63 回の降雨を捉えることができた. なお, 本報告では, 降り始め 1mm 目の降雨について検討した.

### 2.3 分析方法

#### 2.3.1 イオン成分

イオン成分の化学分析は「湿性沈着モニタリング手引き書<sup>3)</sup>」に準じ, 採取した降雨試料のうち約 15mL を孔径 0.20 $\mu$ m のメンブランフィルター(ADVANTEC 社製 DISMIC®-25HP PTFE0.20 $\mu$ m)でろ過し, イオンクロマトグラフ装置(Dionex 社製 DX-120)を用いて陰イオン( $\text{Cl}^-$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ )および陽イオン( $\text{Na}^+$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{NH}_4^+$ )を分析した. なお  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$  については,  $\text{Na}^+$  濃度を基準として海塩由来の濃度を差し引いた非海塩性(nss-)イオン濃度を用いた. また水素イオン濃度を求めるために pH をガラス電極法で測定した.

#### 2.3.2 金属成分

金属成分の測定は, あらかじめ 1mol/L の硝酸に 1 昼夜つけ込んだ後, イオン交換水で十分洗浄した 50mL 容ポリプロピレン容器に 30mL 分取し, 0.1mol/L となるよう硝酸(和光純薬株製, 超微量分析用)0.3mL を添加後, 冷蔵保存した.

保存後の試料は, 誘導結合型プラズマ質量分析計(以下, ICP-MS という)により, 金属元素を一斉分析した. ICP-MS 装置は Agilent 社製の 1200 を用い, 分析元素は Al, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Ga, As, Se, Ag, Cd, Ba および Pb の 16 元素である. Pb については同位体別の定量も行った. 統計処理にあたっては, 定量下限値未満の値については, 定量下限値の 2 分の 1 とした.

### 2.4 後方流跡線解析

後方流跡線は, 米国海洋大気局(NOAA)が開発した流跡線解析プログラム HYSPLIT を用いて計算した(<http://www.arl.noaa.gov/ready/open/hysplit4.html>). 計算は起点高度 500m から 3 日間さかのぼる条件で行った. 降雨のあった日に対応するように, 開始時刻は雨が降り始めた時刻に近い 1 時間単位の時刻とし, 降り始めの時刻は, 本研究所の屋上における 10 分毎の気象観測データにより決定した.

## 2.5 気象データ

降水や煙霧の観測記録は、気象庁の気象統計情報HPを参照した。

(<http://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/index.php>)

## 3 結果および考察

### 3.1 イオン成分の挙動

#### 3.1.1 イオンバランス

Fig.2 に陰イオンおよび陽イオンのイオンバランスを示した。回帰直線の傾きは 1.01 で、陰イオンと陽イオンは、ほぼバランスがとれていた。

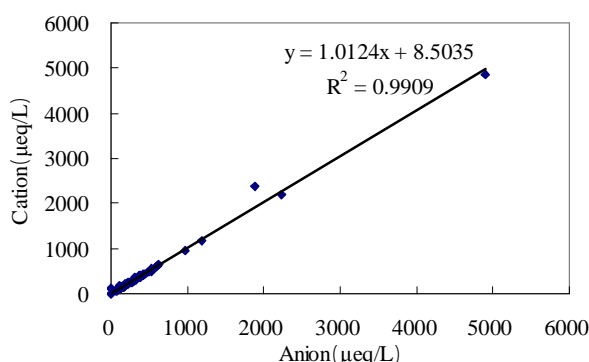


Fig.2. Correlation chart between total anion and total cation equivalent concentration in initial precipitations collected in Fukuoka City from May 2007 to May 2008.

#### 3.1.2 海塩の影響

Fig.3 に  $\text{Na}^+$  および  $\text{Cl}^-$  当量濃度の相関散布図を示した。イオン成分の当量濃度の総和に占める  $\text{Na}^+$  および  $\text{Cl}^-$  当量濃度の和の割合は、3.3 ~ 65.8%，平均 23.3% であり、海塩の影響は顕著であった。回帰直線の傾きから求めた  $\text{Cl}^-/\text{Na}^+$  比は 1.16 ( $R^2=0.990$ ) で、海塩の組成比 1.17 とほぼ一致しており、海塩の影響が強いことが推定できる。

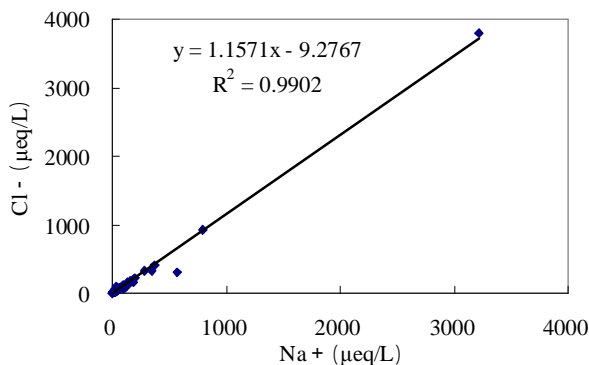


Fig. 3 Correlation chart between equivalent concentration of  $\text{Na}^+$  and  $\text{Cl}^-$  in initial precipitations collected in Fukuoka City from May 2007 to May 2008.

#### 3.1.3 イオン成分濃度

Table 1 にイオン成分濃度の最大値，最小値，平均値を示した。本研究では，市内の早良区曲淵において，1週間単位で降雨を採取してイオン濃度を測定しているが，本調査と同期間におけるこの値を Table 2 に示した。Table 1 と Table 2 の値を比較すると，特に， $\text{nss-SO}_4^{2-}$  の最大値については，初期降雨で 51mg/L，週単位の降雨で 25mg/L と，初期降雨は週単位の降雨よりも高濃度を示した。他のイオン成分でも初期降雨におけるイオン成分の濃度は週単位の降雨に比べてはるかに高いことが確認できた。

Table 1 Ion concentrations and pH values of initial precipitations.

Elements	unit: mg/L		
	Max.	Min.	Ave.
$\text{nss-SO}_4^{2-}$	51.1	1.0	7.3
$\text{NO}_3^-$	42.4	0.9	5.2
$\text{nss-Ca}^{2+}$	24.3	0.1	1.7
$\text{Na}^+$	74.0	0.1	3.4
$\text{Cl}^-$	134	0.2	5.7
$\text{nss-Mg}^{2+}$	1.1	0.0	0.1
pH	7.71	3.58	4.54

Table 2 Ion concentrations and pH values of total precipitations.

Elements	unit: mg/L		
	Max.	Min.	Ave.
$\text{nss-SO}_4^{2-}$	25.2	0.3	3.6
$\text{NO}_3^-$	23.5	0.2	0.2
$\text{nss-Ca}^{2+}$	6.8	0.0	0.4
$\text{Na}^+$	18.8	0.1	2.2
$\text{Cl}^-$	29.0	0.1	3.6
$\text{nss-Mg}^{2+}$	0.2	0.0	0.0
pH	6.76	3.56	4.60

### 3.2 金属成分の挙動

#### 3.2.1 金属元素濃度

Table 3 に金属 16 元素濃度の最大値，最小値，平均値および水質汚濁に係る基準値等を示した。公用水域において，人の健康の保護に関する環境基準，地下水の水質汚濁に係る環境基準および土壌の汚染に係る環境基準が Cd，Pb，As，Se について設けられている。また，生活環境の保全に関する環境基準が Zn について，人の健康の保護に関する指針値が Mn について設けられている。雨水についての基準は設けられていないため，これらの基準値を汚染の目安とした。

Pb 濃度は，平均値が 15.5 $\mu\text{g/L}$  で環境基準値 10 $\mu\text{g/L}$  を超過しており，最大値は 100 $\mu\text{g/L}$  に達した。Zn も同様に

平均値が 46.8μg/L で環境基準値を超過し，最大値は 210μg/L に達した．また Mn, As および Se では，最大値で環境基準値および指針値を超過しており，本市における初期降雨では，水質汚濁に関する基準値および指針値を超過する場合があることが分かった．

大気エアロゾルにおけるこれら金属元素の主たる発生源は，Al および Ba は土壌，V および Ni は石油燃焼，Mn は鉄鋼工業，Cu, Zn, Cd および Pb は廃棄物焼却や鉄鋼工業とされている<sup>3)</sup>．

Table 3 Metal concentrations of initial precipitations collected in Fukuoka City from May 2007 to May 2008

Elements	unit: μg/L			
	Max.	Min.	Ave.	Standard Value Guideline Value
Al	3000	<10	216	-
V	9.9	<0.50	1.0	-
Cr	7.8	<0.50	0.9	50 <sup>a)</sup>
Mn	220	<5.0	19.7	200 <sup>c)</sup>
Fe	4200	<5.0	281	-
Co	3.6	<0.50	0.2	-
Ni	9.2	<1.0	4.1	-
Cu	17	<5.0	3.2	-
Zn	210	<5.0	46.8	30/20/10 <sup>b)</sup>
Ga	8.8	<0.50	1.0	-
As	11	<1.0	1.5	10 <sup>a), d), e)</sup>
Se	52	<1.0	3.2	10 <sup>a), d), e)</sup>
Ag	4.9	<1.0	0.5	-
Cd	2.8	<0.50	0.3	10 <sup>a), d), e)</sup>
Ba	84	<0.50	6.9	-
Pb	100	<1.0	15.5	10 <sup>a), d), e)</sup>

- a) Environmental water quality standards for human health
- b) Environmental water quality standards for conservation of the living environment
- c) Environmental water quality guidelines for human health
- d) Environmental quality standards for groundwater
- e) Environment quality standards for soil

Table 4 Correlation diagram of metal concentration in initial precipitations

	Al	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	As	Se	Ag	Cd	Ba	Pb
Al	1															
V	0.85**	1														
Cr	0.68**	0.76**	1													
Mn	0.89**	<b>0.95**</b>	0.78**	1												
Fe	0.96**	0.94**	0.76**	0.95**	1											
Co	0.78**	0.94**	0.76**	0.93**	0.93**	1										
Ni	0.36**	0.36**	0.30*	0.34**	0.35**	0.30*	1									
Cu	0.55**	0.75**	0.50**	0.69**	0.60**	0.59**	0.35**	1								
Zn	0.58**	0.58**	0.32*	0.60**	0.50**	0.39**	0.29*	0.67**	1							
Ga	0.86**	0.96**	0.78**	0.95**	0.93**	0.90**	0.32*	0.74**	0.60**	1						
As	0.57**	0.59**	0.37**	0.62**	0.52**	0.43**	0.20	0.71**	0.79**	0.65**	1					
Se	0.32**	0.36**	0.18	0.41**	0.28*	0.30*	0.10	0.35**	0.68**	0.37**	0.38**	1				
Ag	0.01	-0.05	0.18	-0.05	-0.03	-0.07	0.10	-0.21	0.10	-0.07	-0.10	0.07	1			
Cd	0.48**	0.57**	0.37**	0.56**	0.46**	0.39**	0.17	0.75**	0.76**	0.65**	0.96**	0.33**	-0.13	1		
Ba	0.97**	<b>0.91**</b>	0.73**	<b>0.93**</b>	0.96**	0.84**	0.35**	0.65**	0.59**	0.95**	0.60**	0.38**	-0.05	0.55**	1	
Pb	0.64**	0.68**	0.52**	0.68**	0.60**	0.49**	0.24	0.78**	0.78**	0.75**	0.90**	0.41**	-0.10	<b>0.90**</b>	0.71**	1

\*: p < 0.05  
 \*\*: p < 0.01

また，近年 Ba および Cu の発生源としてブレーキパッドが注目されている<sup>3)</sup>．測定した金属元素濃度の相関表を Table4 に示した．主たる発生源が人為起源と考えられる元素 (V, Ni, Mn, Cu, Zn, Cd, Pb, Ba) のうち V - Mn,

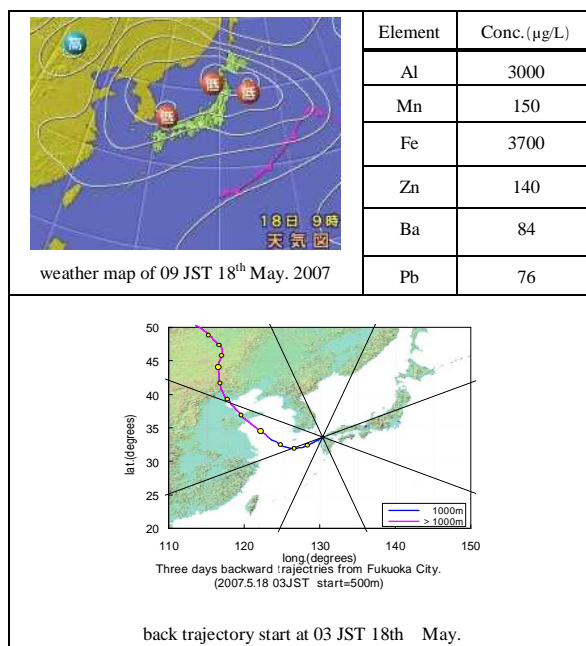


Fig.4 Weather map, metal concentrations of initial precipitation and backward trajectory in 18<sup>th</sup> May, 2007

V - Ba, Mn - Ba, Cd - Pb の相関は 0.90 以上で，これらの金属元素相互の関連が強いことが示唆された．この結果は文献<sup>2)</sup>と同様であった．nss- SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> と Pb の相関係数は 0.55 で全体として正の相関を示し，nss- SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> が高濃度の時には Pb 濃度も高い傾向にある．さらに，Mn, V でも同様に高濃度になり，Pb, Mn, V, nss- SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> において関連が示唆された．

### 3.2.2 金属元素の高濃度事例 1：黄砂飛来時（2007年5月18日12時～20時の降雨）

Al が最高濃度 3000μg/L を示し，Fe, Zn, Pb その他の金属元素でも平均値を大きく上回る濃度を示した．5月18

日は8時過ぎから19時まで黄砂が観測された。この日、12時過ぎから雨が降り始め、終日断続的にしゅう雨が観測されたため、黄砂観測時の気塊を取り込んだ雨が降ったと考えられる。それぞれの降雨時の後方流跡線は全て山東省および河北省などの中国中部を經由していた (Fig.4)。

3.2.3 金属元素の高濃度事例2：煙霧観測時 (2007年12月28日14時～12月30日12時の降雨)

非海塩  $\text{SO}_4^{2-}$  が最高濃度 51.1mg/L を示し  $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{Mg}^{2+}$  などその他のイオン成分、Mn、Zn、Ba、Pbなどの金属元素でも高濃度を示した。この間29日6時30分から8時40分までと12時30分から16時まで煙霧が観測された。12月28日14時から雨が降り始め、30日12時に降雨が1mmに達するまでに断続的な降雨が観測されたため、煙霧観測時の気塊を取り込んだ雨が降ったと考えられる。それぞれの降雨時の後方流跡線は主に山東省および河北省などの中国中部を經由していた (Fig.5)。

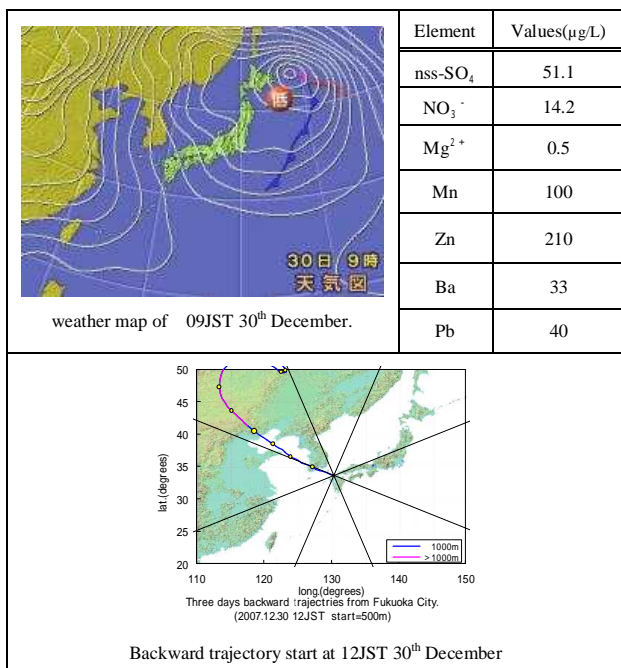


Fig.5 Weather map, metal concentrations of initial precipitation and back trajectory in 30<sup>th</sup> December 2007

### 3.3 後方流跡線および測定成分濃度

#### 3.3.1 後方流跡線のパターン

試料を採取した63降雨について、気象庁の気象観測データを元に、雨が降り始めてから1mmに達するまでの断続的な降雨それぞれについて後方流跡線解析を行った。そのうち1mmに達するまでの流跡線が大きく変動しない44降雨について考察した。

Fig.6～8に、流跡線のパターンに多いものを示した。雨が降り始めた時の気塊は、6～11月は中国南部を經由、太平洋を經由もしくは日本近傍で停滞するケースが多く、12月から5月は中国中部、韓国および東ロシアを經由して輸

送されるケースが多かった。これは、降雨時に限らない通常の後方流跡線のパターンと同様の傾向であった。

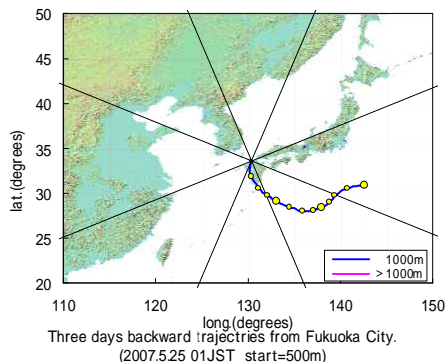


Fig.6 Backward trajectory via the Pacific Ocean

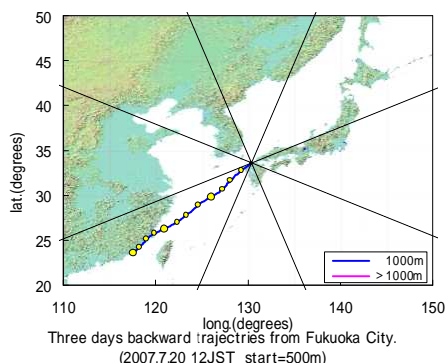


Fig.7 Backward trajectory via the South China

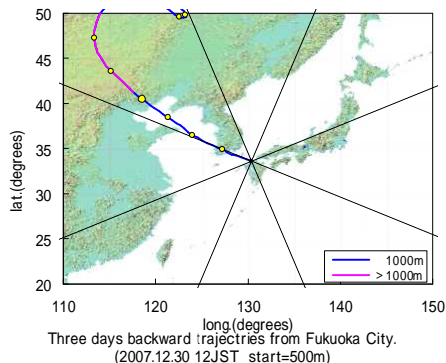


Fig.8 Backward trajectory via the Central China and Korea

#### 3.3.2 後方流跡線と各種成分濃度

NASAの地球観測衛星 Aura に搭載された Ozone Monitoring Instrument(OMI)で得られた、アジアにおける  $\text{NO}_2$  の対流圏垂直カラム密度の分布図によると ([http://www.temis.nl/airpollution/no2col/no2regioomimonth\\_col3.php](http://www.temis.nl/airpollution/no2col/no2regioomimonth_col3.php))、夏は  $\text{NO}_2$  高濃度地域が非常に狭い地域に限定されているのに対し、冬から春先にかけては中国中部および韓国全体に高濃度地域が広がっている。OMIで得られた分布図の夏の代表的な例として、Fig.9に2007年6月の分布図を示した。同様に、冬から春先の代表的な例として



Fig.10 に 2007 年 12 月の分布図を示した .

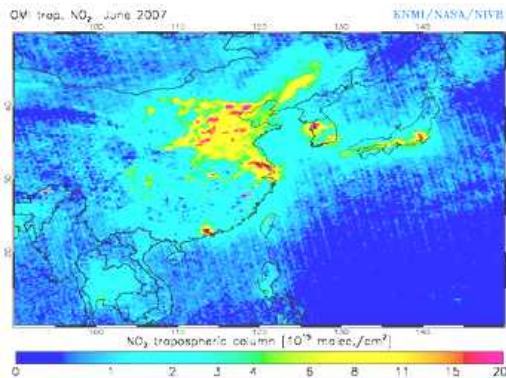


Fig.9 NO<sub>2</sub> tropospheric column in Jun. 2007 by OMI

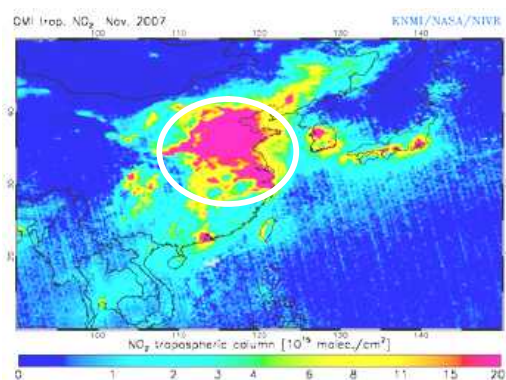


Fig.10 NO<sub>2</sub> tropospheric column in Dec. 2007 by OMI

中国環境保護部が毎日公表している大気汚染指数 ( Air Pollution Index ; 以下, API という) の 2007 年の値も同様の地域において冬場高くなるという結果を示している<sup>4)</sup> . 従って, 冬から春先に中国中部および韓国全体を經由して来たときの気塊にはその他の人為起源の大気汚染物質も高濃度に含んでいると考えられる . そこで, Fig.10 で示された地域のうち, 白い円で囲んだ高濃度地域および韓国全体を China & Korea , ロシア東部を Russia , 日本国内全体を Japan , その他の地域を Others と定義し, 雨が降り始めてから 1mm に達するまでの断続的な降雨それぞれについて概ね同一方向の流跡線を示した 44 降雨について, 近年大気汚染物質の長距離輸送の指標となりうると言われている硫酸イオン濃度 ( nss- SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> ) を, 流跡線通過地域別および 3.3.1 で示した時期別に平均濃度を求めた . その結果を Fig.11 および 12 に示す . どちらの期間でも China および Korea を經由したときに濃度が最も高くなったが, 12 ~ 5 月では 6 ~ 11 月よりも明らかに高濃度であった .

また, 金属元素濃度で相関を示した人為発生由来といわれる Mn , V , Ba , Pb でも, 同様の結果が得られた .

このことから, 大陸由来の気塊とともに, 大気汚染物質が長距離輸送されていることが考えられた .

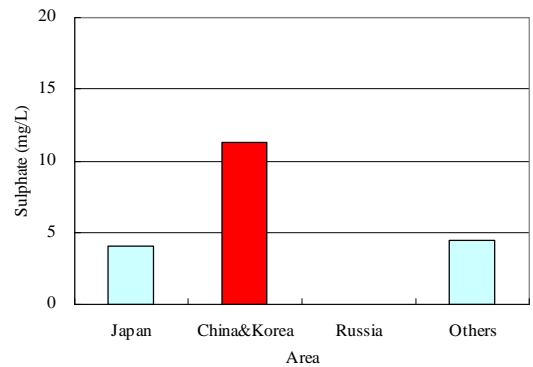


Fig.11 Sulfate and passage area from June to November.

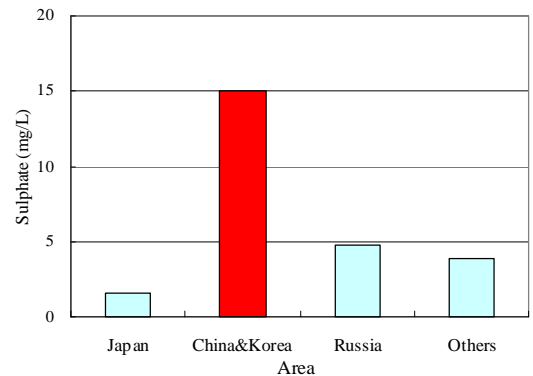


Fig.12 Sulfate and passage area from December to May.

### 3.4 金属元素濃度比

金属元素濃度比は, 気象条件に左右されることの少ない指標として用いられるようになってきた<sup>2)</sup> . 本研究では, 各金属元素濃度比のうち Pb/Zn が興味深い結果を示した .

#### 3.4.1 Pb/Zn

鉛と亜鉛の濃度比を文献値<sup>5-7)</sup> とともに Table4 に示した .

Table5 Comparison of variations of Pb/Zn .

Area	Mukai et al. <sup>5)</sup> (1994)	Mukai et al. <sup>6)</sup> (1999)	Marumoto et al. <sup>7)</sup> (2001)	This report (2008)
Central China, Korea	1	0.7-1.32	0.55	0.50
North China, Far east Russia	0.6	-	-	0.23
Japan	0.5	0.36	0.20	0.26

この比は, 大陸由来の気塊が日本国内の気塊かで異なることが知られている<sup>6)</sup> . 表のように, 日本国内の気塊の場合, 比は 0.26 と低く, 反対に中部中国および韓国由来の気塊の場合, 0.50 と高かった . 文献値と比較すると, 2000

年以前の文献値よりは全体的に低い傾向があるが、2001年の丸本ら<sup>7)</sup>の文献値とはよく一致している。鉛濃度の減少は日置ら<sup>2)</sup>の示唆するように、有鉛ガソリンの使用廃止措置等によるものと考えられる。また、年代が異なっても日本由来の気塊と比較して中国中部、朝鮮半島由来の気塊では比は約2倍となっている。したがって、Pb/Znは長距離輸送と地域汚染の指標として有効であることが示唆された。

### 3.4.2 鉛同位体比

向井ら<sup>6)</sup>は、1990年と1992年に北海道から島根県に至る24地点で降雪試料を採取し、鉛同位対比を測定した結果、降雪中の鉛同位対比は鉛の起源の地域性を示す良い指標であり、流跡線解析による起源測定の結果<sup>207</sup>Pb/<sup>206</sup>Pbおよび<sup>208</sup>Pb/<sup>206</sup>Pbは日本が最も低く、極東ロシア、ロシア(中国国境)、北部中国及び韓国・中国中部の順に高くなっていることを明らかにしている。

また、日置ら<sup>2)</sup>は、気塊が中国中部や朝鮮半島を経由するときに弥栄で高い鉛同位体比が観測され、八幡では地域汚染の影響で鉛同位体比が低くなる傾向を示した。出現範囲は向井らの結果とは若干異なっているが、1991年有鉛ガソリンの廃止の影響で鉛同位対比が低下していると考え、同様の結果といえる。

本研究所における鉛同位対比の散布図をFig.11に示す。文献値の領域付近に入るものは少なく、全体的にバラツキも大きかったため、鉛同位対比を用いての明確な起源の推定は困難であった。

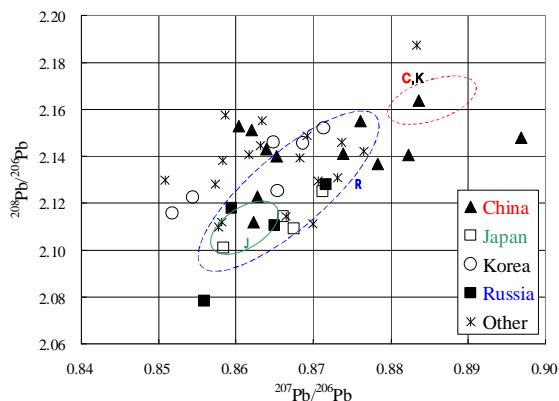


Fig.11 Relationship between <sup>207</sup>Pb/<sup>206</sup>Pb and <sup>208</sup>Pb/<sup>206</sup>Pb in precipitations collected in Fukuoka City From May 2007 to May 2008. Ellipses show the range of ratio classified by area which is shown by Mukai<sup>6)</sup>.

### 3.5 雨水が及ぼす影響について

福岡市は水資源に乏しいため、水源の確保に古くから取り組んできたが、増大する人口に追いつかず昭和53-54年および平成6-7年に200日を超える制限給水を経験した。そのため市民の節水意識も高く、雨水の利用なども盛んで

ある。今回測定されたような高濃度の重金属が含まれていると農作物や雨水利用に対する不安材料になる可能性がある。その影響を推察した。

#### 3.5.1 農作物への影響

農作物への影響として葉物のほうれんそうを対象とした。今回の調査での鉛の最高濃度100μg/Lの雨が1mm降り、可食重量100gのほうれんそうが30cm間隔で植え付けられていると仮定した。30cm平方に降った雨に含まれる鉛が全て蓄積したと仮定した場合、鉛濃度は下記の式より0.09mg/kgとなる。

$$\text{降雨の水量} : 30(\text{cm}) \times 30(\text{cm}) \times 0.1(\text{cm}) / 1000 = 0.09(\text{L})$$

$$\text{鉛降下量} : 100(\mu\text{g/L}) \times 0.09(\text{L}) = 9(\mu\text{g})$$

$$\text{ほうれんそう中濃度} : 9(\mu\text{g}) / 100(\text{g}) = 0.09(\mu\text{g/g}) = 0.09(\text{mg/kg})$$

この値は、ほうれんそうの鉛残留基準5mg/kgと比較して極めて低濃度である。さらに実際は引き続き雨で流され、表面に蓄積することは考えられないので、重金属類が高濃度に蓄積することはないと言える。今後はさらに土壤からの影響についても検討していく。

#### 3.5.2 雨水貯留への影響

初期降雨が高濃度であっても引き続き雨は濃度が低下するため、雨全体を貯留した場合はTable12に示したイオン成分の濃度と同様に重金属類濃度も減少し散水等に利用するには問題はないが、少雨傾向の時期は高濃度の雨ばかり貯留されることになるため、初期降雨は排除する工夫が望ましい。屋根に降った雨を貯留するシステムの中には、初期降雨で洗い流されるごみだけを別に溜めて貯留タンクに入れられないように工夫されたものがあるが、このようなものは正しくメンテナンスをすれば重金属等の汚染物質を排除する目的にも有用であると思われる。

## 4 まとめ

本研究所の初期降雨中のイオン種濃度、金属成分濃度、鉛同位体比を測定した結果を後方流跡線とあわせて解析したところ、以下のような結論を得た。

- (1) 陰イオンと陽イオンのバランスはほぼとれていた。
- (2) イオン成分の当量濃度の総和に占めるNa<sup>+</sup>およびCl<sup>-</sup>当量濃度の和の割合は、3.3~65.8%、平均23.3%であり、海塩の影響は顕著であった。
- (3) 主たる発生源が人為起源と考えられる元素のうちV-Mn、V-Ba、Mn-Ba、Cd-Pbの相関が非常に良く、これらの金属元素相互の関連が強いことが示唆された。

- (4) 雨が降り始めた時の気塊は、6～11月は中国南部を經由、太平洋を經由もしくは日本近傍で停滞するケースが多く、12月から5月は中国中部、韓国および東ロシアを經由して輸送されるケースが多かった。
- (5) 12～5月では、6～11月よりも中国および朝鮮半島を經由した場合、硫酸イオン濃度は高濃度になった。人為発生源といわれる Mn, V, Pb でも、同様の結果が得られたことから、大陸由来の気塊とともに、大気汚染物質が長距離輸送されていることが考えられた。
- (6) 日本国内の気団の場合、Pb/Zn は 0.26 と低く、反対に中部中国および韓国からの気塊の場合は 0.50 と高かった。したがって、Pb/Zn は長距離輸送と地域汚染の指標として有効であることが示唆できた。
- (7) 本市における鉛同位体比は、文献値の領域付近に入るものも少なく、全体的にバラツキも大きかったため、鉛同位対比を用いての明確な起源の推定は困難であった。
- (8) 初期降雨に重金属類が多く含まれていても路地野菜等に高濃度に蓄積することはなく、雨水利用についても適切に行えば問題はない。

## 文献

- 1) Z.Klimont, J.Cofala, W.Schopp, M.Amann, D.G.Streets, Y.Ichikawa, S.Fujita: Projections of SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub>, NH<sub>3</sub> and VOC Emissions in East Asia up to 2030, Water Air and Soil Pollution, 130, 193-198, 2001
- 2) 日置正, 中西貞博, 向井人史, 村野健太郎: 降雨中微量金属元素濃度比と鉛同位対比による長距離輸送と地域汚染の解析, 大気環境学会誌, 43(2), 100-111, 2008
- 3) 環境庁大気規制課: 湿性沈着モニタリング手引き書, 1998
- 4) 杉本伸夫: 大気汚染指数 API から見た中国の大気環境の変化, 大気環境学会誌, 43(5), 295-300, 2008
- 5) Mukai, H., Tanaka, A. and Fujii, T.: Lead Isotope ratios of airborne particulate matter as tracers of long-range transport of air pollutants around Japan, J. Geophys. Res., 99, 1064-1071, 1994
- 6) 向井人史, 田中敦, 藤井敏博: 降雪中の鉛同位対比と汚染の長距離輸送との関係, 大気環境学会誌, 34(2), 86-102, 1999
- 7) 丸本孝治, 坂田昌弘, 吉村友宏, 奥村稔: 大気・降水中の水銀の発生源評価, 電力中央研究所報告, 10, 2001

## 要約

降雨中成分に対する人為汚染物質の長距離輸送の影響を評価することを目的として、本研究所において 2007 年 5 月から 1 年間、降り始めの雨を採取した。降雨中のイオン濃度、金属元素濃度の測定結果および鉛同位体比に後方流跡線解析を適用して評価した。その結果、12 月から 5 月にかけて、中国中部や朝鮮半島を經由して来た気塊による降雨では、人為発生源といわれる硫酸イオン、微量金属元素 Mn, V, Ba, Pb が高濃度で観測された。また、このとき Pb/Zn も高くなることが分かった。鉛同位対比は文献値の領域に入るものは少なく、全体的にバラツキも多かったため、降り始めの雨における鉛の起源の明確な推定は困難であった。以上のことから、12 月から春先の 5 月にかけての期間、主に中国中部および朝鮮半島由来の人為汚染物質が長距離輸送されて本市の雨に取り込まれていることが明らかになった。