

【報文】 平成 21～28 年度赤城山における酸性霧測定結果

梅田真希 田子博 齊藤由倫 熊谷貴美代

Acid fog monitoring at Mt. Akagi from 2009 to 2016

Maki UMEDA, Hiroshi TAGO, Yoshinori SAITOH, Kimiyo KUMAGAI

2009～2016 年度における赤城山で採取された霧水の測定結果をとりまとめた。霧の発生率は 14%前後で推移しており、長期的な特徴は見られなかった。硝酸イオンや硫酸イオン濃度は年々減少しており、それに伴って、電気伝導度の減少が見られた。一方、アンモニウムイオン濃度に大きな変化はなく、その結果、霧水 pH は上昇していた。霧水の N/S 比は減少傾向を示しており、霧水の酸性化における硝酸イオンの影響が小さくなっていることが確認された。これらの結果から、とくに地域的な大気汚染が改善されていると推察された。

Key words : 霧水 Fog water, 長期観測 Long-term observation, 硝酸イオン Nitrate, 大気汚染物質 Air Pollutants

1. はじめに

酸性霧とは、大気汚染物質が霧に取り込まれ、霧水が酸性になったものである。霧粒は雨滴と比べて、大気中での滞留時間が長いこと、大気汚染物質を多く吸収し、pH が低くなることが多い。このため、とくに霧の発生しやすい山岳部において植物への影響が大きいと考えられ、20 世紀終わりから 21 世紀初めにかけて丹沢 (Igawa et al. 2002) や六甲山 (藍川、2008)、立山 (渡辺ら、2005) 等において精力的な調査が行われてきた。群馬県も樹木の衰退が指摘された赤城山を中心に榛名山との同時観測 (Tago et al. 2006) 等の調査を行ってきた。

人工酸性霧を用いた実験では、酸性霧は樹木の生育に対して悪影響を及ぼすことが示されている (Shigihara et al. 2008) が、日本のフィールドにおいてその確証を得ることは難しく、少なくとも赤城山においては樹木の衰退との関連は解明されていない。また、近年では赤城山における霧水 pH は 4.0 前後で横ばいである (群馬県、2016) ため、直接的な森林衰退の原因としての酸性霧モニタリング調査はその意義が薄くなっている。このような状況の変化に伴い、群馬県においては多大な労力を要する山岳部における霧の調査は縮小され、現在では赤城山の

みで継続されている。

しかしながら、山地森林生態系への影響という観点から考えると、大気からの窒素分の沈着は森林窒素飽和の重要な要因であると指摘されており (新藤ら、2005)、群馬県内においても同様の指摘がなされている (長谷川と小葉竹、2006、青井、2010)。もちろん、森林窒素飽和の原因は大気沈着だけでなく、植生や土壌 C/N 比なども関連している (田中、2015) と考えられるが、大気沈着がその中心にあるのは間違いないであろう。山地森林地域においては、大気沈着の中でも霧水による生態系への影響が降雨よりも大きな例もみられ (小林ら、1999、Yamaguchi et al. 2015)、森林の生態系の維持に霧水が重要な役割を担っている例 (Johnstone and Dawson, 2010) も報告されている。さらには、福島第一原子力発電所事故に伴う放射性物質の沈着に、霧が重要な役割を果たしているとの指摘 (Hososhima and Kaneyasu, 2015) もある。このように、森林生態系における霧水の影響は決して無視できるものではなく、こうしたことから、山地森林地域への霧水沈着量の評価は重要である。

しかし、実測だけによる霧水沈着量の評価は、山地森林という観測には厳しい条件であること、

地形や森林構造による空間不均一性のため、同じ森林中でも沈着量に偏りが生じ (Ewing et al., 2009)、地域代表性の担保が困難であることなどから、現実的には難しい。そこで、こうした山地森林の霧水沈着量を評価できるモデル式の開発 (Katata, 2014) が期待される。より正確なモデル式にするためには、実測値との比較が不可欠であり、継続的な霧水観測データを提示することはこれに大きく貢献するものである。本報告では、平成 21~28 (2009~2016) 年度の測定結果をとりまとめるとともに、1991~2008 年までの測定結果と併せて、過去 26 年間の長期トレンドについても記述する。

2. 調査方法

2.1. 調査地点および期間

国設赤城測定所敷地内 (群馬県前橋市富士見町赤城山 1-2、標高 1,500m) にて、毎年、積雪の影響がない 5 月初旬から 12 月初旬にかけて調査を行った (表 1)。

2.2. 霧水採取方法

自動霧水捕集装置 (大昌エンジニアリング、DFC-1100) を用い、霧水の捕集 (捕集効率: 霧粒半径 2.5 μm で約 25 %、5 μm で約 40 %) を行った。自動霧水捕集装置の概要を図 1 に示す。センサーが霧を感知すると、霧を含んだ空気をファン (風量: 26 m^3/min) で吸引し、捕集ネットに衝突させることで霧水をボトルに捕集する (田子ら、2001a)。霧の発生から消失までを 1 回と数えるが、発生した間隔が 3 時間未満のものについては 1 回の霧とした。霧が 1 回発生する毎、あるいは霧水が約 100 mL 溜まる毎にボトルに捕集される。捕集ネットの交換や試料の回収は原則として 2 週間に 1 度行った。

2.3. 測定項目・測定方法

pH: ガラス電極法

電気伝導度 (EC): 電気導電率計

イオン (NH_4^+ 、 K^+ 、 Na^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 Cl^-): イオンクロマトグラフ法

3. 結果および考察

3.1. 霧の発生状況概要

霧の発生概要を表 1 に示した。総測定時間は調査期間中に装置が稼働していた時間であり、停電などによる装置の停止時間は除いてある。発生時間は霧が発生していた時間であり、発生時間を総測定時間で割ったものが発生割合である。霧の発生割合は 11.7~16.3% で推移していた。図 2 に 1991~2016 年における霧の発生率

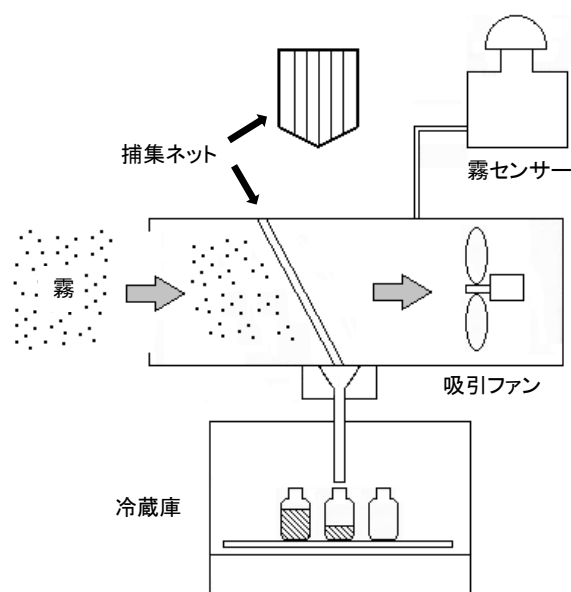


図 1. 自動霧水捕集装置の概要 (土屋ら、1991)

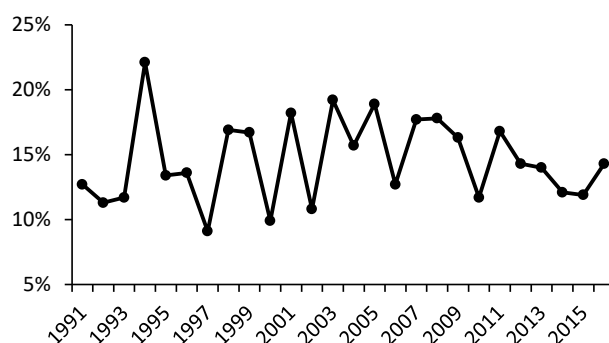


図 2. 霧の発生率経年変化

表 1. 2009~2016 年における霧の発生概要

	2009	2010	2011	2012	2013	2014	2015	2016
調査期間	5.12~12.14	5.10~12.6	5.9~12.5	5.1~12.10	4.30~12.9	5.26~12.1	5.11~12.7	4.25~12.5
総測定時間(A)	4674h 8min	4689h 57min	5026h 20min	5349h 44min	4883h 24min	3948h 57min	5025h 12min	4411h 48min
発生回数	90	93	93	112	76	68	98	117
分析試料数	57	51	54	66	44	36	48	51
発生時間(B)	763h 19min	548h 20min	789h 33min	767h 17min	684h 24min	583h 33min	595h 34min	719h 49min
発生割合 (B/A×100)	16.3%	11.7%	15.7%	14.3%	14.0%	14.8%	11.9%	16.3%

表 2. 2009～2016 年における霧の分析結果

		留水量 (mL)	EC (mS/m)	pH	NH ₄ ⁺ (μeq/L)	K ⁺ (μeq/L)	Na ⁺ (μeq/L)	Ca ²⁺ (μeq/L)	Mg ²⁺ (μeq/L)	SO ₄ ²⁻ (μeq/L)	NO ₃ ⁻ (μeq/L)	Cl ⁻ (μeq/L)
2009	max.	1320	46.6	7.11	1473	66.1	356.7	241.6	85.8	1300	978	370
	min.	33	0.3	3.26	7	0.4	0.3	0.9	0.5	6	3	2
	mean	246	9.5	3.92	226	11.1	31.8	25.6	12.6	168	194	49
2010	max.	781	40.6	6.68	1090	52.4	507.6	276.3	151.7	764	1012	369
	min.	31	0.9	3.25	49	0.6	0.4	0.0	0.0	16	14	4
	mean	196	8.1	4.08	230	10.5	34.3	25.3	12.9	175	166	49
2011	max.	1158	30.9	6.52	1222	152.3	243.5	116.0	55.6	1153	608	280
	min.	36	0.8	3.30	29	0.3	0.7	0.0	0.0	7	15	4
	mean	308	6.5	4.08	161	9.0	25.7	13.9	8.8	118	113	44
2012	max.	1384	55.3	6.71	1923	155.8	278.7	310.3	86.3	1277	1262	321
	min.	32	1.2	3.04	24	0.2	1.9	1.2	1.8	21	22	10
	mean	279	8.1	3.97	175	11.4	41.3	20.6	14.0	135	153	58
2013	max.	1093	27.8	6.60	759	59.0	107.3	120.5	37.6	578	600	137
	min.	34	1.0	3.34	17	1.4	1.8	2.0	1.8	22	12	7
	mean	276	8.2	3.94	170	12.2	29.1	16.7	10.6	147	159	46
2014	max.	1376	45.5	5.99	1103	70.4	177.9	145.7	55.1	991	1085	207
	min.	35	1.6	3.16	31	1.6	2.8	1.8	2.4	32	21	9
	mean	283	6.6	4.09	151	6.9	29.8	18.3	10.5	135	111	43
2015	max.	1523	44.3	6.75	1159	66.4	106.2	133.3	46.4	902	949	140
	min.	30	0.6	3.23	25	1.1	0.6	1.9	1.5	4	5	4
	mean	221	7.3	4.05	171	8.8	21.5	17.4	8.6	137	126	39
2016	max.	1048	18.5	6.67	683	80.4	255.2	109.4	62.9	471	617	274
	min.	32	0.9	3.77	28	0.4	1.1	0.0	0.0	21	6	2
	mean	194	5.6	4.37	187	11.7	26.1	16.8	9.6	117	125	41

を示した。年によってある程度の変動はあるものの、1991 年から概ね同程度の結果が得られ、長期的な特徴は見られなかった。なお、1991～1999 年は別の装置（臼井工業、FWG-800 型）を用いた観測であったが、データの継続性は概ね保たれている（田子ら、2001a）。

霧の発生回数に比べて分析試料数が少ないが、これは霧の発生が短時間だったり、霧の濃度が薄かったりしたことで、霧水の分析に必要な量（30 mL 以上）が捕集できなかった場合があったためである。また、2015 年と 2016 年は装置の霧水採取部分にトラブルが生じ、発生データは取れたが霧水の捕集はできなかったことも測定回数が少ない原因である。

図 3 の月別の発生割合をみると、年によって大きく異なるが 5 月と 11 月の発生率が低く、6 月と 9 月の発生率が比較的高かった。赤城山では 5 月や 11 月は降水量が少なく、6 月と 9 月は梅雨や台風の季節で雨が多い傾向にある。山麓の前橋における降水量や相対湿度と赤城山の霧の発生率は同様の傾向を示していた。2014 年 9 月は他の年より大幅に霧の発生率が低かったが、この月は降水量も極端に少なかった。これらのことから、赤城山の霧の発生は前橋における降水量や相対湿度と密接に関係していると考えられた。

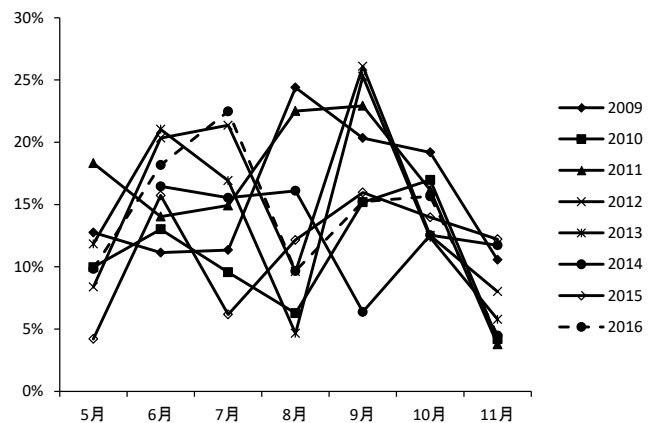


図 3. 霧の月別発生率

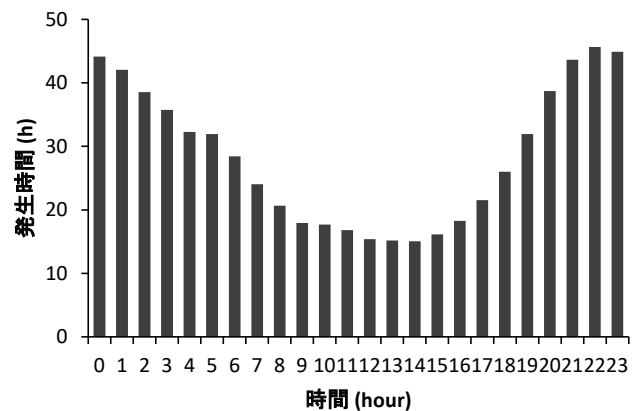


図 4. 霧の時間別発生頻度

図 4 に霧の時間別の発生頻度（8 年間の平均値）を示した。霧は夜間（19 時～朝 6 時）の方が昼間（6 時～18 時）の約 2 倍の時間発生し

ていた。気温が下がる夜間は露点を下回ることが多いため、この結果は妥当であろう。

3.2. 霧水の分析結果

2009～2016年の各成分濃度の最大値、最小値および霧水量で重み付けした年平均値を表2に示した。なお、詳細な結果は章末に付録1～8として記載した。最大値、最小値および平均値は、発生時間や時期、留水量などとの関連は見られなかった。特に時期との関係が見られないということから、2015年、2016年のトラブルでサンプルがなかった影響は、年間代表値について議論する際に無視できる。各年度の平均値を用いて、主要イオン（ NH_4^+ 、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- ）濃度およびECとpHについて、1995～2016年（pHは1991～2016年）における経年変化を図5に示した。長期的にみると、 NH_4^+ 、 SO_4^{2-} および NO_3^- 濃度は減少傾向を示しており、それに伴って電気伝導度の減少も認められた。その中でも NO_3^- の減少幅が大きく、 NH_4^+ は若干の減少に止まっているため、結果としてpHの上昇が見られた。2016年度はECが過去最低、pHは過去最高を示しており、霧水中に取り込まれる大気中の汚染物質が非常に少なかったと考えられる。実際に2016年度のオゾンや $\text{PM}_{2.5}$ などの大気測定結果は特に清浄な値だった（群馬県大気汚染情報）。なお、2000年の急激な SO_4^{2-} 濃度の上昇は三宅島噴火の影響（田子、2001b）であり、2001年にも若干その影響が残っているが、その後は平常値に戻っている。

また、霧水の組成には雨水と同様に、海塩粒子の影響があると考えられている。一般に海岸に近いほど影響が強く、内陸部に行くほど影響を受けにくい傾向があるが、内陸部でも気象条件により影響が出ることがある。そのため、発生源が海塩と人間活動、火山活動にまたがる SO_4^{2-} について解析する際には、海塩粒子の影響を考慮する必要がある。 SO_4^{2-} 濃度に対する海塩粒子の寄与率は、全ての霧水試料の81%が寄与率5%未満であり、大部分の試料において海塩粒子の影響は小さかった。一方、海塩の寄与率が20%以上であったのは、霧水試料の1%にとどまった。一部試料においては海塩粒子の影響を考慮しなければならないが、群馬県において長期的な影響を把握するには海塩粒子

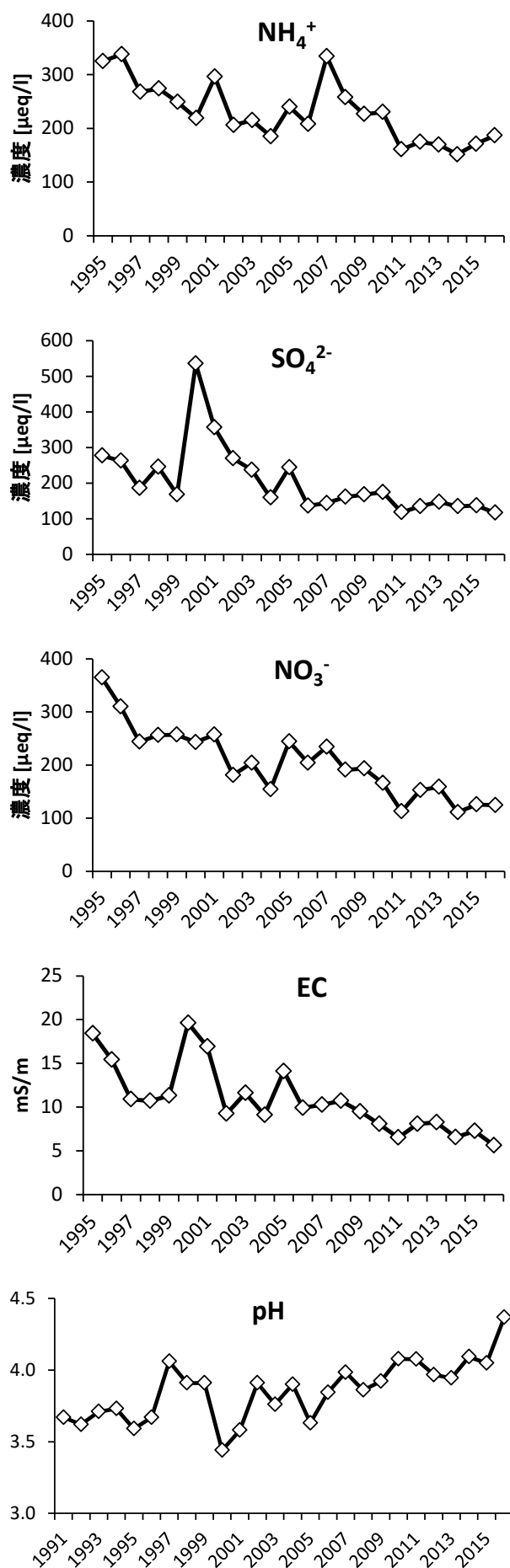


図5. 各成分濃度における経年変化

の影響をそれほど考慮する必要はないであろう。したがって、図 5 において、 SO_4^{2-} 濃度の減少は、人為的な影響が減少したと考えると良いと思われる。

赤城山における霧水の酸性化は硝酸ガスの霧への取り込みが主要因であることが確認されている(田子ら、2004)。2009～2016 年度の赤城山の霧の N/S 比(年間平均値)は 1.3～1.7 であった。環境省が行った赤城山における酸性雨調査結果(2009～2015 年度)では、雨水の N/S 比は 1.3～1.9 と霧と同等であった。同時期の他地域における雨の N/S 比が 0.8～1.4 程度であることから、これより N/S 比が高い赤城山では NO_3^- が降水の酸性化に重要な役割を果たしていることは間違いないだろう。

霧水の N/S 比のランク別出現回数を年度毎にまとめたものが図 6 である。すべての年で 6 割以上が 1 を超えている。その中でも N/S 比が 2 以上の割合に注目してみると、2009～2012 年と比べて、2013～2016 年の N/S 比が 2 以上の割合は半減していた。雨の個別データを見ても N/S 比が 2 以上となる月は減少傾向にある。これらのことから、赤城山で降水の酸性化に対する NO_3^- の寄与率が下がっていることがわかった。

$\text{PM}_{2.5}$ の由来として、 SO_4^{2-} は主として越境汚染、 NO_3^- は地域汚染が考えられている。霧はこれらの粒子が核となって生成することが多い。以上のことから霧水の N/S 比の低下は、より地域汚染の影響が小さくなったためと考えられる。 SO_4^{2-} も濃度の減少が確認された(図 5)が、広域的な汚染が主である SO_4^{2-} は地域汚染の影響が大きい NO_3^- よりも減少幅が小さく、結果として N/S 比が低下したと推察された。

4. 結言

2009 年～2016 年の赤城山における霧の発生割合は 11.7～16.3%であった。年によって変動はあるものの 1991 年から同程度の結果が得られ、霧の発生に長期的な特徴は見られなかった。

赤城山における霧の酸性化の主要因は NO_3^- であったが、 NO_3^- の寄与率は減少傾向にある。これは地域的な大気汚染が改善されたためと考えられる。同様の理由で SO_4^{2-} 濃度も減少して

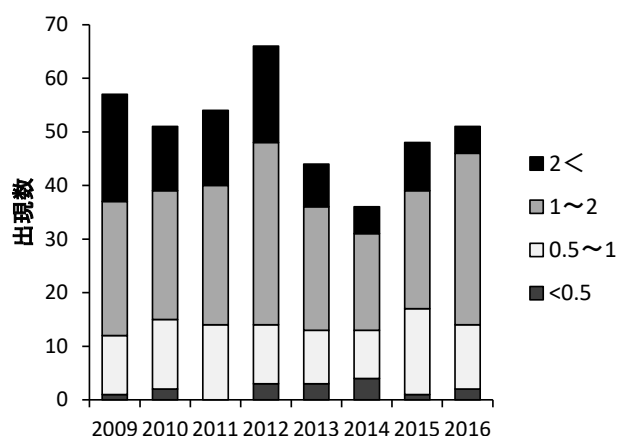


図 6. 霧水中 N/S 比のランク別出現回数

いるが SO_4^{2-} は広域汚染の影響もあるため、 NO_3^- より濃度の低下は小さく、結果として N/S 比が低下していると推察された。

赤城山で稼働している霧水捕集装置は設置から 20 年近くが経過している。部分的ではあるが老朽化は避けられず、3.1 で述べたように、近年では装置に起因する霧水採取ができない状況も頻発するようになった。年々装置の維持が難しくなっているが、霧水の観測は山地森林の生態系に関しての基礎的なデータとなるため、できる限り継続したいと考えている。

文 献

- 藍川昌秀、兵庫県における酸性沈着調査・研究、大気環境学会誌、2008；43：1-8。
- 青井透、人為的な汚濁源のない利根川上流域における窒素汚染、地球環境、2010；15：145-152。
- Ewing H.A., Weathers K. C., Templer P. H., Dawson T. E., Firestone M. K., Elliott A. M. and Boukili V. K. S., Fog water and ecosystem function heterogeneity in a California redwood forest, *Ecosystems*, 2009; 12: 417-433.
- 群馬県、群馬県環境白書、2016、p87。
- 群馬県、群馬県大気汚染情報、<http://gunma-taiki.jp/> (2017 年 8 月)
- 長谷川香織、小葉竹重機、関東平野北西部における森林からの渓流水中硝酸態窒素濃度の地域分布特性、日本森林学会誌、2006；88：534-540。

- Hososhima M. and Kaneyasu N., Altitude-dependent distribution of ambient gamma dose rates in a Mountainous area of Japan caused by Fukushima nuclear accident, *Environ. Sci. Technol.*, 2015; **49**: 3341-3348.
- Igawa M., Matsumura K. and Okochi H., High Frequency and Large Deposition of Acid Fog on High Elevation Forest, *Environ. Sci. Technol.*, 2002; **36**: 1-6.
- Johnston J. A., and Dawson T. E., Climatic context and ecological implications of summer fog decline in the coast redwood region, *Proc. Nat. Academy Sci.*, 2010 ; **107**: 4533-4538.
- 環境省、越境大気汚染・酸性雨対策調査モニタリングデータ、<http://www.env.go.jp/air/acidrain/index.html> (2017年8月)
- Katata G., Fogwater deposition modeling for terrestrial ecosystems: A review of developments and measurements, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 2014; **119**: 8137-8159.
- 気象庁、過去の気象データ、<http://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/index.php> (2017年7月)
- 小林檮樹、中川吉弘、玉置元則、平木隆年、藍川昌秀、正賀充、霧水により森林樹冠にもたらされる酸性沈着の評価、*環境科学会誌*、1999 ; **12**: 399-411.
- Shigihara A., Matsumoto K., Sakurai N., and Igawa M., Growth and physiological responses of beech seedlings to long-term exposure of acid fog, *Sci. Total Environ.*, 2008; **391**: 124-131.
- 新藤純子、木平英一、吉岡崇仁、岡本勝男、川島博之、我が国の窒素負荷量分布と全国渓流水水質の推定、*環境科学会誌*、2006; **18**: 455-463.
- 田子博、安村説夫、大谷仁己、大月邦夫、田向順光、赤杉政則、自動霧水捕集装置の制作とその性能評価、*全国環境研協議会誌*、2001a; **26**: 30-38.
- Tago H., Kimura H., Kozawa K. and Fujie K., Long-Term Observation of Fogwater Composition at two Mountainous Sites in Gunma Prefecture, Japan, *Water, Air, and Soil Pollu.*, 2006; **175**: 375-391.
- 田子博、大谷仁己、嶋田好考、山岳部の霧水に及ぼす三宅島火山の影響、*群馬県衛生環境研究所年報*、2001b ; **33**: 129-134.
- 田子博、茂木貴美代、飯島明宏、今井克江、平成15年度赤城山における酸性霧測定結果、*群馬県衛生環境研究所年報*、2004 ; **36**: 39-44.
- 田中彩友美、利根川水系神流川源流部森林域における窒素飽和、*環境システム研究* (高崎経済大学飯島ゼミナール卒業論文集)、2015 ; **4**: 157-174.
- 土屋哲、中島穂泉、嶋田好孝、林治稔、秋山重太郎、赤城山で捕集された霧水の化学組成(第1報)、*群馬県衛生環境研究所年報*、1992 ; **24**: 91-108.
- 渡辺幸一、名取千晶、朴木英治、立山における霧水の化学成分、*大気環境学会誌*、2005 ; **40** : 122-128.
- Yamaguchi T., Katata G., Noguchi I., Sakai S., Watanabe Y., Uematsu M., Furutani H., Long-term observation of fog chemistry and estimation of fog water and nitrogen input via fog water deposition at a mountainous site in Hokkaido, Japan, *Atmos. Res.*, 2015; **151** (1): 82-92.