

愛知県稲武町における酸性雨モニタリング(II)

一起源と化学組成

竹中千里¹・鈴木道代²・山口法雄³・今泉保次³・只木良也^{2,3}

要 旨

1993年より1995年まで愛知県稲武町名古屋大学附属演習林庁舎付近で実施した酸性雨モニタリングにおいて採取した試料のうち、林外雨のpHが最低値から最高値までの各pH値を持つ29採取日について、林外雨、スギ林内雨、スギ樹幹流、タケ樹幹流の化学組成の特徴と低pH降雨時の気象条件をまとめた。化学組成の特徴は、林外雨のpHとの関係およびナトリウムあるいは塩素に対する比で解析した。まず、低pH林外雨では溶存化学成分濃度が高く、特に硝酸・硫酸イオン濃度が高いことが特徴的であり、高pH林外雨ではそれらが低い傾向があった。それに対しスギ林の林内雨では林外雨のpHが高くても溶存成分濃度が高い試料が多く、それらは乾性降水物として林冠に付着していた成分の寄与が大きいことが示された。また、試料中の各陽イオン濃度をナトリウムイオン濃度に対する比で見た場合、タケの樹幹流においてカリウムの比が高く、タケから選択的にカリウムが溶脱していることが明らかとなった。また、塩化物イオンにも選択的な溶脱が認められ、塩化カリウムとしての溶脱が示唆された。カルシウムは乾性降水物としての寄与が大きいと同時に、低pH降雨では、タケにおいて中和成分として溶脱していることが明らかとなった。一方スギでは、樹幹においてアンモニウムやカリウム、硝酸イオンの取り込みが起こっており、樹皮上に生育する苔・地衣類などによる摂取が一因ではないかと推察された。また稲武町では、夏季の大気の状態が不安定な時の局所的な降雨現象において、酸性度が高くなることが、本観測データから示唆された。また、このような酸性雨に含まれる大気汚染物質は、名古屋都市域および伊勢湾・三河湾岸の工業地帯を起源とし、輸送されてきたものと考えられる。

キーワード：酸性雨、林外雨、林内雨、スギ樹幹流、タケ樹幹流

I. はじめに

日本における酸性雨研究は1970年代から本格的に始まり、1980年代には環境庁によって

¹名古屋大学農学部森林環境資源学研究室

Laboratory of Forest Environment and Resources, School of Agricultural Sciences, Nagoya University, Nagoya 464-01, Japan.

²名古屋大学農学部森林生態生理学研究室

Laboratory of Forest Ecology and Physiology, School of Agricultural Sciences, Nagoya University, Nagoya 464-01, Japan.

³名古屋大学農学部附属演習林

University Forest, School of Agricultural Sciences, Nagoya University, Inabu 441-25, Japan.

(受理：1996年11月20日)

全国的なモニタリング体制が確立し、都市域については数多くのデータが蓄積されつつある（玉置・小山，1991）。酸性雨の原因となる窒素酸化物や硫黄酸化物のような酸性物質の排出源は、工場や火力発電所のような固定発生源と自動車の排気ガスのような移動発生源とに分けられ、主に都市域に集中している。しかしながら、近年では大陸由来の酸性物質の寄与もあり（大泉・福崎，1993），酸性雨問題は広域化の傾向にある。都市から離れた森林地帯もその例外ではない。残念なことに日本の森林域における酸性雨調査については、欧米に大きく遅れをとっているのが現状である。全国大学演習林協議会が1993年から実施している「森林地域における地球環境モニタリング」では、森林域での酸性雨の実態が全国規模で調査されつつあり、今後日本における酸性雨の森林生態系への影響予測や対策立案に、重要なデータを提供するものと期待されている。このプロジェクトの一環として愛知県稲武町の名古屋大学附属演習林周辺で継続して行っている酸性雨モニタリングでは、前報（竹中ら，1995）で報告したように、降雨のpHの平均値は5.3程度であるものの、pH 3レベルの酸性度の高い降雨が観測されており、その汚染物質の起源が興味ある問題となっている。

林内雨、樹幹流の化学特性については、様々な樹種について報告されており、樹種特性があることが明らかになっている（佐々ら，1991；真田ら，1991, 1992；塚原，1994）。しかしながら、これまでの報告は多数の試料についての平均値で議論しており、個々の降雨の特徴と森林内での降雨の化学成分の変化を詳細に見た報告は少ない。そこで本研究では、林外雨のpHによる林内雨や樹幹流の化学組成の変化を、個々の降雨現象の特徴を詳細に見ると同時に、各化学成分の相対比を解析することによって、樹種特性として解明することを試みた。

II. 試料および分析方法

試料を採取した地点は、愛知県北設楽郡稲武町の名古屋大学附属稲武演習林庁舎敷地内（海拔高：520 m）とその周辺に位置しており、その詳細および試料採取方法は前報（竹中ら，1995）に示した通りである。

前報でpHおよび電気伝導度について報告した試料の中から、林外雨のpHが最低値から最高値にいたるまでの各pH値を持つ試料から29採取日を選び、その日に採取した林外雨、スギ林内雨、スギ樹幹流、タケ樹幹流の試料について化学分析および解析を行った。分析に用いた試料のpH、電気伝導度、および前回の採取日からの降水量と日数を表-1にまとめて示す。試料の番号は、林外雨のpHの低い順に付した。

図-1は分析に用いた29採取日の各試料のpHを番号順にプロットしたものである。この図で示すように、林外雨のpHが3.88から6.05まで単調に変化する試料において、スギ樹幹流は林外雨のpHに関わらず平均3.6程度であり、また林内雨とタケ樹幹流のpHはばらつきを持った値を示している。また、前報でも論じたように、林外雨のpHが4.8よりも低い時に林内雨のpHが林外雨よりも高くなる、すなわち緩衝作用が起こることがこの図からも明らかである。

これらの試料について、陽イオン・陰イオン成分をイオンクロマト法（島津パーソナルイオンアナライザPIA-1000）で分析した。

表-1. 化学組成の解析に用いた試料

| Sample No. | 採取年月日 | 林外雨 | | スギ林内雨 | | スギ樹幹流 | | タケ樹幹流 | | 降雨量 (mm) | 回収までの日数(day) |
|------------|-------------|------|------------|-------|------------|-------|------------|-------|------------|----------|--------------|
| | | pH | EC (μS/cm) | pH | EC (μS/cm) | pH | EC (μS/cm) | pH | EC (μS/cm) | | |
| 1 | 1994年7月30日 | 3.88 | 64.7 | 4.02 | 62.1 | * | * | 3.84 | 99.1 | 16 | 3 |
| 2 | 1994年8月25日 | 3.89 | 33.6 | 3.97 | 46.7 | 3.36 | 116.4 | 3.78 | 42.0 | 21 | 5 |
| 3 | 1994年7月16日 | 4.12 | 40.9 | 4.38 | 43.5 | 3.39 | 189.3 | 4.17 | 44.8 | 35 | 7 |
| 4 | 1994年7月18日 | 4.16 | 25.2 | 4.35 | 23.0 | 3.63 | 110.2 | 4.44 | 21.3 | 40 | 0 |
| 5 | 1994年7月9日 | 4.42 | 19.4 | 4.64 | 34.0 | 3.85 | 97.6 | 4.39 | 40.2 | 8 | 20 |
| 6 | 1994年4月7日 | 4.45 | 29.8 | 4.24 | 44.7 | 3.54 | 48.0 | 5.18 | 7.6 | 12 | 6 |
| 7 | 1993年12月22日 | 4.46 | 27.3 | 4.42 | 40.1 | 3.35 | 185.1 | * | * | 25 | 2 |
| 8 | 1994年10月19日 | 4.52 | 21.0 | 4.14 | 38.5 | 3.86 | 26.5 | 4.09 | 52.4 | 7 | 21 |
| 9 | 1994年7月27日 | 4.56 | 20.3 | 4.65 | 16.3 | 3.66 | 89.4 | 4.64 | 18.4 | 29 | 8 |
| 10 | 1994年2月1日 | 4.61 | 18.7 | 5.03 | 4.9 | 3.20 | 301.0 | 4.40 | 52.9 | 21 | 13 |
| 11 | 1995年7月20日 | 4.72 | 12.1 | 5.02 | 8.1 | 3.86 | 72.6 | 4.61 | 20.2 | 74 | 3 |
| 12 | 1994年4月18日 | 4.79 | 19.7 | 4.40 | 35.2 | 3.42 | 197.5 | 5.22 | 40.8 | 6 | 6 |
| 13 | 1995年5月11日 | 4.90 | 5.5 | 4.61 | 8.4 | 3.40 | 89.6 | 4.71 | 12.0 | 106 | 8 |
| 14 | 1994年3月8日 | 4.93 | 23.8 | 4.84 | 18.7 | 3.55 | 130.5 | 5.43 | 15.1 | 46 | 17 |
| 15 | 1994年11月17日 | 5.07 | 6.1 | 4.46 | 22.5 | 3.22 | 202.2 | 4.44 | 25.6 | 8 | 27 |
| 16 | 1993年12月7日 | 5.07 | 18.2 | 4.19 | 54.3 | 3.20 | 252.0 | 4.50 | 46.0 | 16 | 19 |
| 17 | 1994年2月21日 | 5.17 | 12.8 | 4.39 | 31.7 | 3.23 | 266.0 | 4.56 | 31.8 | 19 | 20 |
| 18 | 1994年9月27日 | 5.20 | 3.6 | 4.65 | 11.9 | 3.52 | 65.5 | 4.43 | 13.9 | 136 | 10 |
| 19 | 1994年3月23日 | 5.26 | 8.7 | 4.28 | 35.9 | 3.41 | 161.4 | 4.87 | 28.3 | 27 | 15 |
| 20 | 1994年6月25日 | 5.35 | 3.2 | 5.28 | 4.2 | 3.66 | 81.7 | 4.83 | 13.0 | 131 | 7 |
| 21 | 1995年6月14日 | 5.47 | 12.2 | 4.85 | 18.5 | 3.75 | 75.4 | 4.85 | 15.0 | 51 | 10 |
| 22 | 1994年6月13日 | 5.61 | 2.8 | 5.02 | 7.3 | 3.66 | 106.3 | 4.84 | 36.8 | 16 | 0 |
| 23 | 1995年7月4日 | 5.62 | 2.6 | 5.06 | 4.5 | 4.00 | 38.6 | 5.22 | 5.6 | 81 | 8 |
| 24 | 1994年9月16日 | 5.63 | 4.3 | 4.37 | 14.4 | 3.51 | 77.9 | 4.55 | 14.7 | 113 | 16 |
| 25 | 1993年12月14日 | 5.76 | 14.6 | 5.5 | 20.2 | 3.61 | 103.5 | * | * | 32 | 11 |
| 26 | 1994年8月19日 | 5.90 | 14.7 | 4.95 | 26.6 | 3.67 | 135.5 | 4.62 | 25.7 | 78 | 19 |
| 27 | 1995年7月12日 | 5.98 | 7.5 | 4.69 | 11.5 | 3.77 | 70.6 | 5.60 | 10.1 | 70 | 4 |
| 28 | 1993年12月20日 | 6.03 | 4.8 | 5.39 | 10.4 | 3.29 | 166.0 | * | * | 12 | 6 |
| 29 | 1994年5月11日 | 6.05 | 3.9 | 5.49 | 21.6 | 3.63 | 105.3 | 6.82 | 15.8 | 35 | 12 |

* : 回収できなかった試料

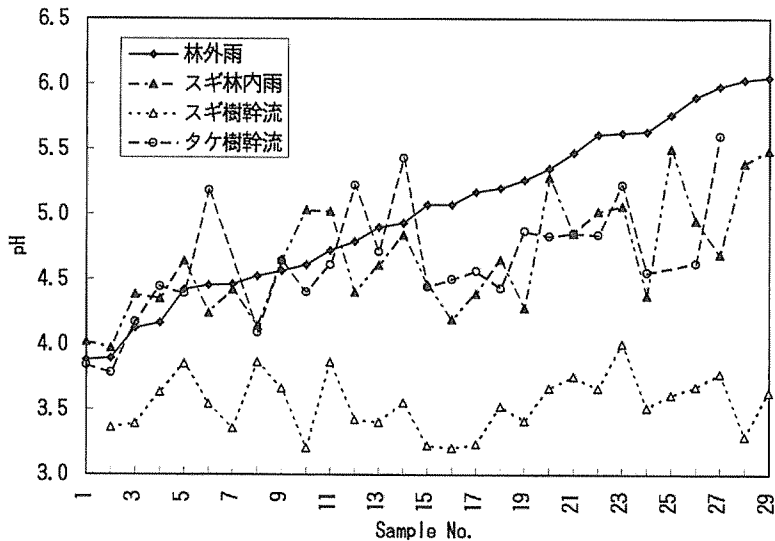


図-1. 解析に用いた林外雨, スギ林内雨, スギ樹幹流, タケ樹幹流の pH

III. 結果と考察

1. 試料中の化学組成

図-2 から図-5 に、全試料の化学組成を陽イオン(a)、陰イオン(b)別に示す。図-2 は林外雨の化学組成を示している。試料番号が大きくなるにつれ、すなわち pH が高くなるにつれ、溶存化学成分濃度が下がる傾向が認められた。しかしながら、試料 12, 14, 16, 17 のように pH が 5 近辺において溶存化学成分濃度が高い試料が存在する。このような試料の特徴として、陽イオン中でアンモニウムイオンの濃度が高いことが挙げられる。これらの試料は、表-1 で示した採取容器回収までの日数が長く、乾性降下物の寄与が大きいことが原因と考えられる。

一般に、溶存している総陽イオン量と総陰イオン量は 1:1 にバランスがとれているはずである。ところが、図-2 のデータの(a)と(b)を比較すると pH の低い試料では陰イオンが多く、pH の高い試料では陽イオンのほうが多い傾向が認められる。このようなイオンバランスのずれは、高 pH 領域では今回測定していない重炭酸イオンの存在が原因であり、また低 pH 領域では pH 測定の誤差が一因であると推測される(酸性雨調査法研究会, 1993)。このような pH の測定に関する困難な点はいくつか指摘されており、測定の際の攪拌状態が異なることなどが誤差原因と考えられている。

林内雨の溶存化学成分濃度は図-3 に示すように、林外雨の pH, すなわち試料番号による傾向は認められず、林外雨よりも全体的にやや上昇していることがわかる。特に陰イオン組成では塩化物イオン、陽イオンではカルシウム、マグネシウム、カリウムの濃度の増加が顕著である。

図-4 と図-2 を比較すると、スギの樹幹流の溶存成分濃度は林外雨よりも数倍以上高くなる試料があり、その組成が大きく変化していることがわかる。特に陰イオン組成では、硫酸イオンの割合が増加し、硝酸イオンが減少している。また、陽イオン組成では、アンモニウムイオンの割合の減少が顕著に認められる。

図-5 では、タケの樹幹流ではスギ樹幹流のような溶存成分の大幅な増加はないものの、林外雨と比べると全体的に濃度は上昇しており、陰イオンでは塩化物イオンの濃度割合が増加し、陽イオンではカリウムイオンの割合が増加していることがわかる。

2. 降水中の化学成分の起源

一般に降水を酸性化する物質は硝酸と硫酸である。しかしながら、降水に含まれる硫酸イオンの起源として、大気汚染物質の SO_x 起源の硫酸イオン以外に、特に海洋に近い地域では、海塩に由来する硫酸イオンが存在するため、その寄与を考慮しなくてはならない。ここでは、試料中のナトリウム濃度から海塩起源と考えられる硫酸イオン濃度を見積もる方法と、ナトリウムイオンに対する塩化物イオンの比の値で評価する方法の二通りの方法で、稲武町(海岸線から 50 km 程離れた所に位置する)の降雨における海塩起源の硫酸イオンの寄与を評価した。

まず、降雨試料に含まれているナトリウムが全て海塩起源と仮定して、海塩由来の硫酸イオン濃度をそれぞれの試料について算出した。その結果、全硫酸イオン濃度に対する海塩起源の硫酸イオンの寄与率は平均値で約 5.4% に相当した。さらに、ナトリウムイオンに対する塩化物イオンの比を図-6 に示した。図-6 に示すように、海水中のこの比の値は 1.17 であり、

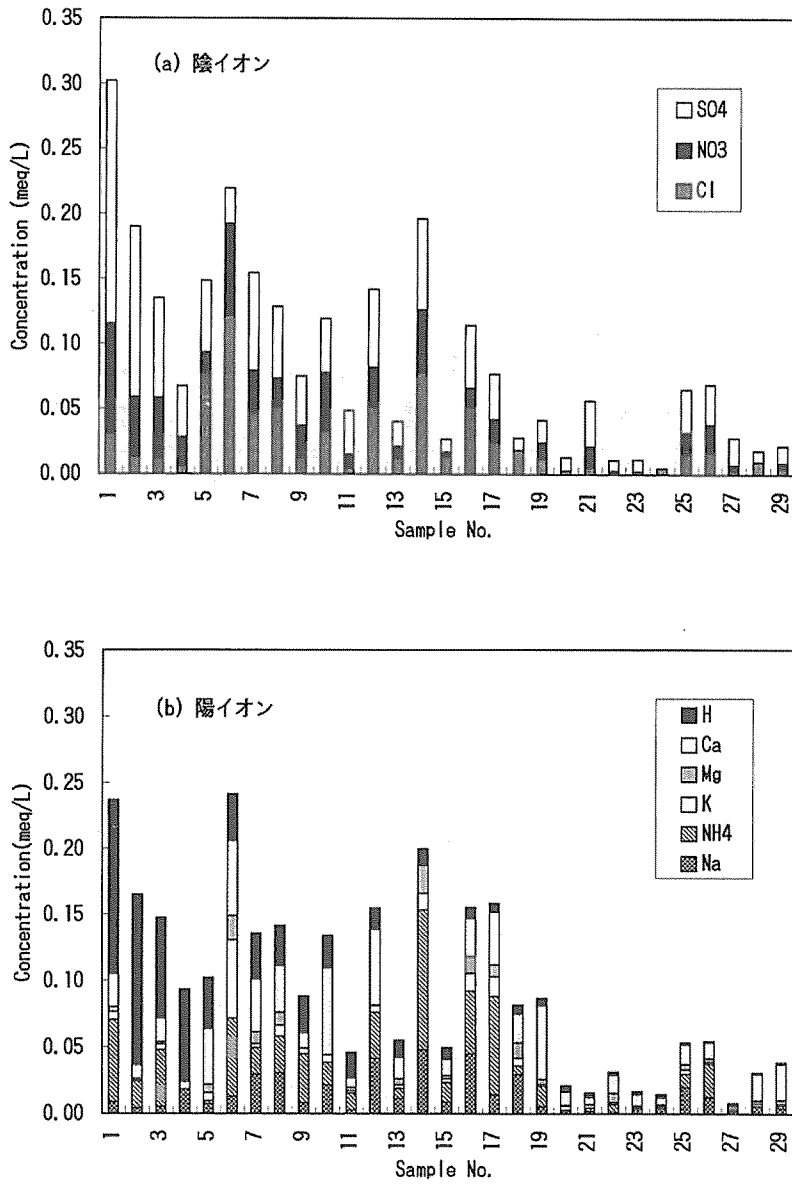


図-2. 林外雨中の化学成分濃度 (a)陰イオン (b)陽イオン

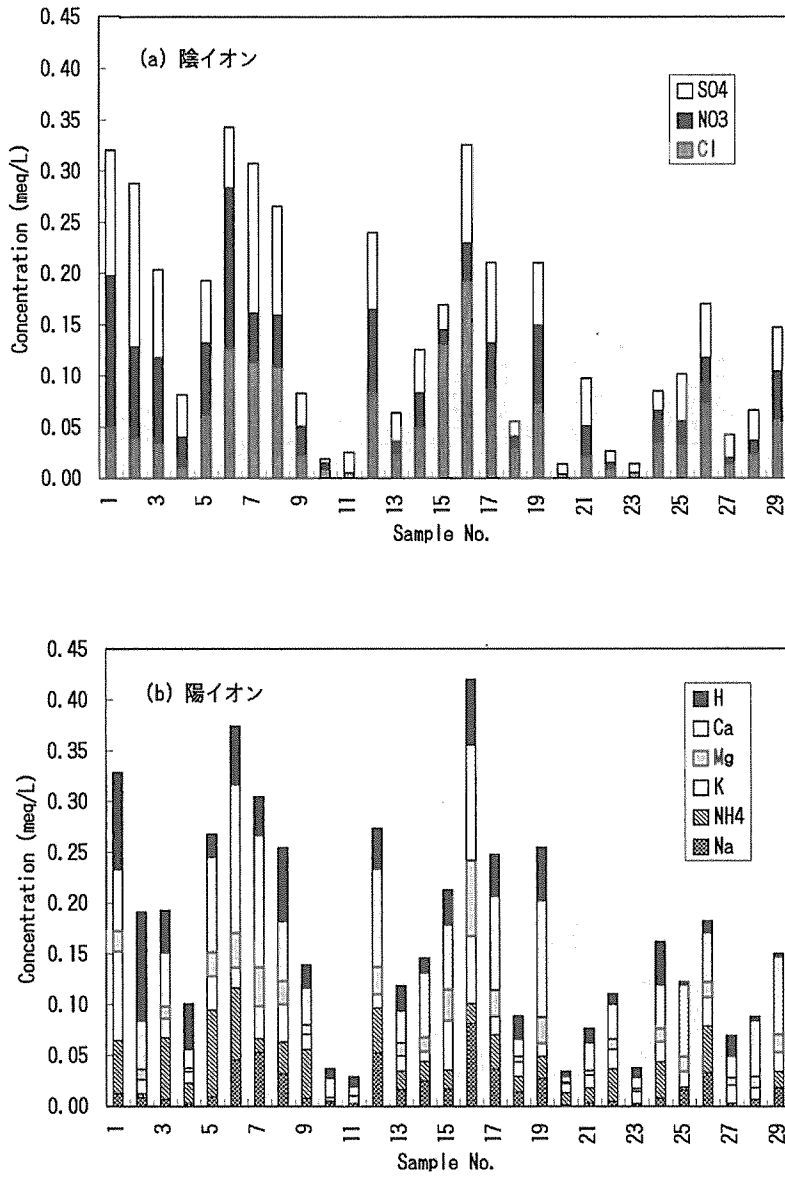


図-3. スギ林内雨中の化学成分濃度 (a)陰イオン (b)陽イオン

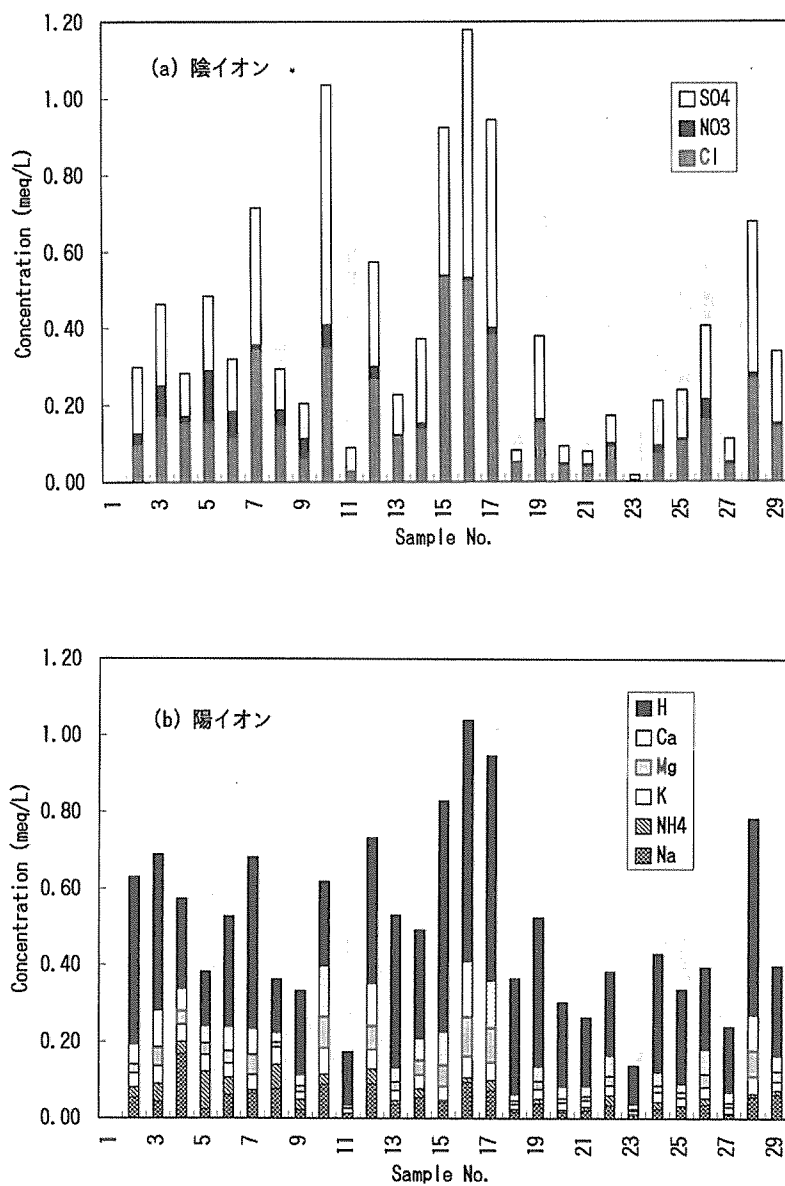


図-4. スギ樹幹流中の化学成分濃度 (a)陰イオン (b)陽イオン

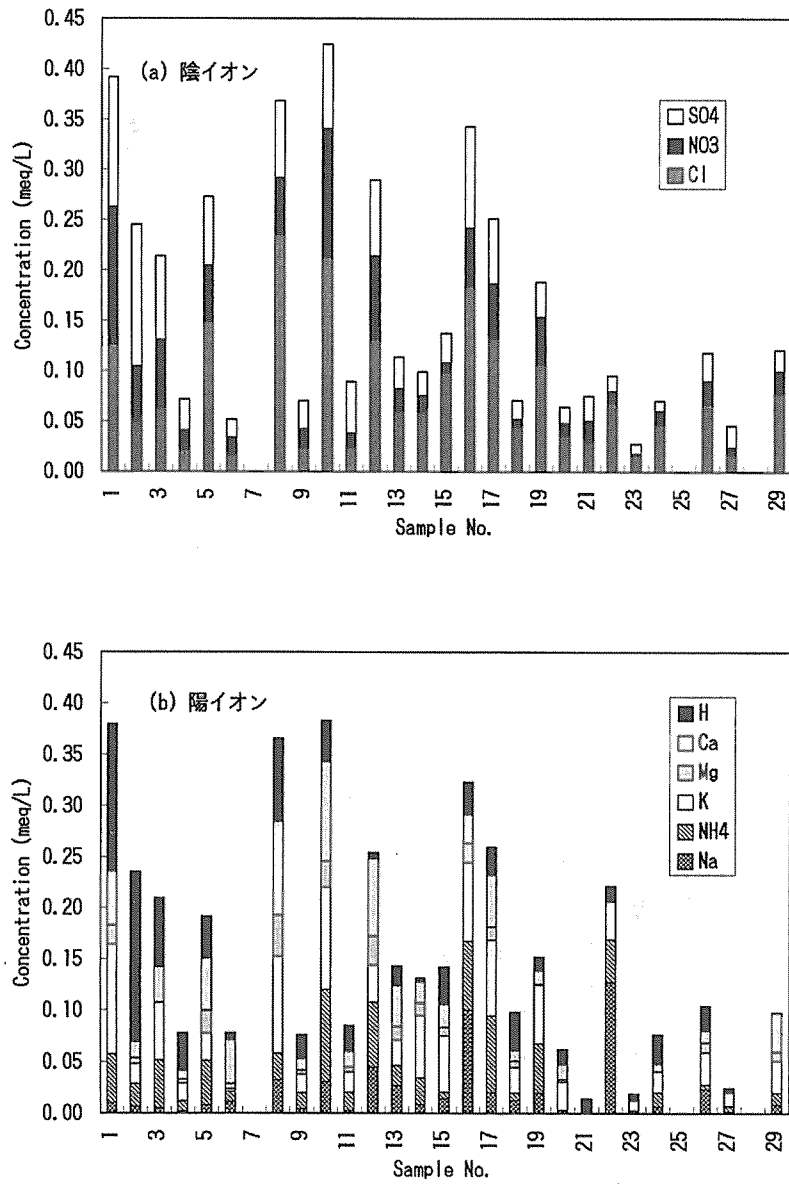


図-5. タケ樹幹流中の化学成分濃度 (a)陰イオン (b)陽イオン

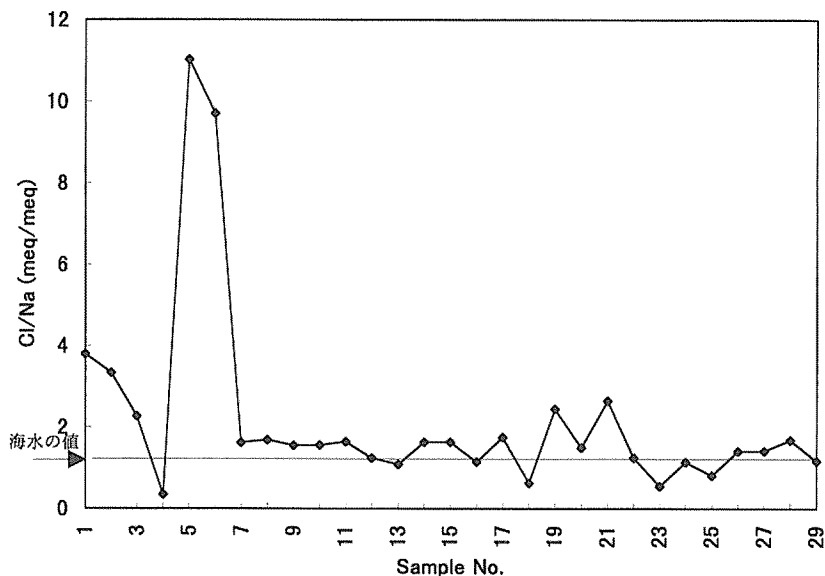


図-6. 林外雨中のナトリウムイオンに対する塩化物イオンの濃度比

稲武の試料の半数以上は海水の値よりも大きく、平均値は2.20であった。玉置ら(1991)によると、海岸線に位置している環境庁第一次酸性雨対策調査の実施地点における降水中のCl/Na比の平均値は1.17であり、海水の値と同じである。一方、山岳域の観測例では、御岳における酸性雨観測のデータ(仙石ら, 1994)からCl/Na比が3.23という値が得られ、乗鞍岳での霧の分析データ(MINAMI and ISHIZAKA, 1996)からは2.0程度の値を求めることができる。このように、海岸線からの距離が遠い地点では、一般的にCl/Na比の値は大きくなっている。先に示したナトリウムを基準とした海塩起源の硫酸の寄与率の結果と、図-6の結果を考え合わせると、稲武の降雨には海塩の影響が小さいと結論づけることができる。従って本報においては、海塩起源の硫酸イオンの寄与を無視することとする。

また図-6では、低pH降雨ではCl/Na比の値が比較的高く、高pH降雨では低い傾向が見られる。このように、降雨のpHによってCl/Na比の値が異なる原因として、燃焼排出物質起源の塩化物イオンの寄与が考えられる(太田, 1990)。すなわち、酸性度の高い汚染された降雨には、汚染物質として硫酸・硝酸と同様に人為起源の塩素も付加しているために、Cl/Na比の値が大きくなったのではないかと推測される。

ここで、降雨中の酸性化が主に硫酸で起こっているのか(硫酸型)あるいは硝酸なのか(硝酸型)を評価するために、 $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ の当量比を計算すると、稲武町の試料では0.48という平均値が得られた。西川らによる東海・近畿・北陸地方での共同調査研究報告(西川ら, 1996)によれば、太平洋側の観測点でのデータでは、1989年から1995年までの $\text{NO}_3^-/\text{nssSO}_4^{2-}$ (nssSO_4^{2-} :非海塩起源の SO_4^{2-})の平均値が0.52(梅雨期)であり、近年増加傾向にあるという結果が得られている。これらのデータは、環境庁第一次酸性雨対策調査(1984~1988)による0.35という平均値(玉置ら, 1991)と比較しても、酸性雨が近年硝酸型になる傾向を明らかに示している。稲武の降雨の値も東海・近畿・北陸地方の値に近く、硝酸型になりつつあることが示唆された。

図-2において、試料 12, 14, 16, 17 は、硝酸や硫酸イオンの濃度が高いにも関わらず、pH 5 程度であり、アンモニウムイオン濃度が高いことが特徴的であった。そこで、硫酸・硝酸イオンの降雨中への溶解における化学形を調べるために、降雨中のアンモニウム・水素イオンの和と硫酸・硝酸イオンの和の関係を図-7 に示す。この図で明らかなように、これらの値の間には、高い相関性が認められた。この結果から、乾性降下物を含む降水中の硫酸・硝酸イオンは、これらのアンモニウム塩エアロゾル、硫酸ミストや硝酸ガスの雨粒への溶解という起源に帰することができる。しかしながら、この回帰式の傾きが 0.76 であることから、カルシウムイオンなどが中和成分として寄与していると考えることができる。

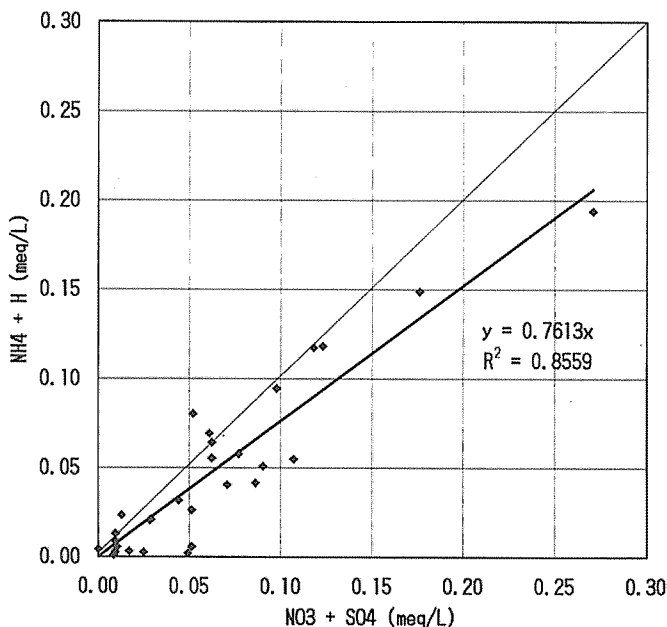


図-7. 林外雨におけるアンモニウムと水素イオン濃度の和と硝酸と硫酸イオンの濃度の和との関係

3. スギ林内雨の化学成分の起源について

閉鎖林の林内雨に含まれる溶存化学成分は、一般に下記のように考えることができる。

$$\begin{aligned} (\text{林内雨中の溶存成分}) &= (\text{林外雨中の溶存成分}) + (\text{樹冠付着乾性降下物}) \\ &+ (\text{樹冠からの溶脱成分}) - (\text{樹冠への取り込み成分}) \end{aligned} \quad (1)$$

ここで、樹冠上にもたらされる乾性降下物はすべて樹冠で捕捉されるものと仮定し、また林外雨に対する乾性降下物の寄与は、採取装置のロウトの直径が 21 cm であることから樹冠における捕捉面積と比較して十分に小さいとみなす。また(1)式で (樹冠への取り込み成分) と示したものは、葉面や樹皮への吸着や吸収で、降雨では洗い流すことができない状態となった成分全てを表す。林内雨と林外雨中の溶存成分の差を陽イオンの総濃度について算出し、試料回収までの日数、すなわち乾性降下物が降下したと考えられる日数との関係を図-8 に示した。この図でわかるように、相関係数 $R=0.55$ 程度の相関性が認められた。従って、降雨が樹冠を通過する際に加わる化学成分において、乾性降下物由来の寄与は大きいけれども、それだけでは説明できないことが明らかである。上記(1)式における樹冠からの溶脱成分や樹

冠に取り込まれる成分を正しく見積もるためには、樹冠上へもたらされる乾性降下物だけを採取し、評価しなくてはならない。乾性降下物の採取方法としては、バケツなどの容器に採取する方法がその簡便さ故に通常用いられているが、この方法では、ガス成分の捕集率が非常に低いことが一般に知られている(酸性雨調査法研究会, 1993)。そこで LINDBERG and LOVETT (1985) は、樹冠への沈着量を測定する方法として、葉表面洗浄法とペトリ皿タイプの代理表面法を比較検討し、また著者らは枝状に作成したテフロンチップ製代理表面による捕集を提案している(竹中・ウィンココ, 1994) が、いずれもモニタリングで使用するには回収方法が煩雑であるため、今後の改良が必要であると思われる。

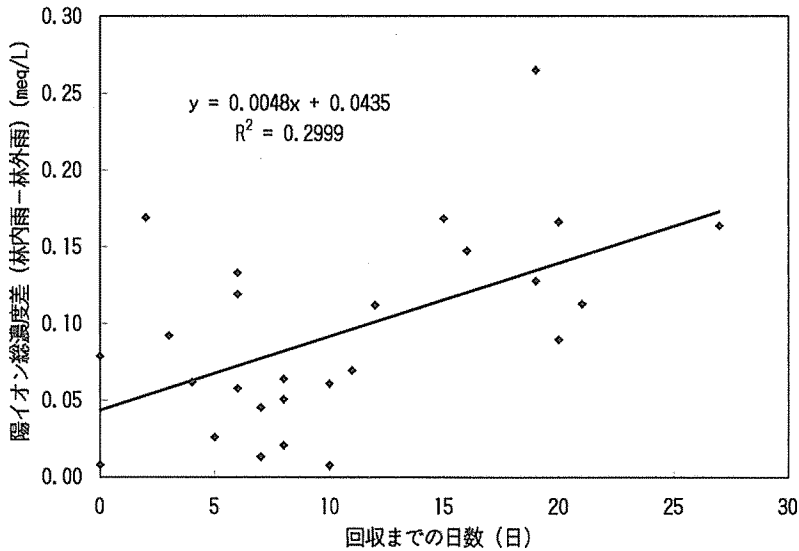


図-8. 全陽イオンの林内雨と林外雨における濃度差と、試料を回収するまでの日数との関係

4. スギ樹幹およびタケ樹幹における化学成分の挙動

樹幹流中の溶存成分の化学組成は、降雨が樹冠で葉に接触し枝・幹を伝って降下してくる間に、付着物質を溶解したり、表面に吸着や吸収されたりして、その組成が変化した結果を示すものである。先に示したように樹冠に付着した乾性降下物の量の林内雨の化学組成への寄与が無視できないことから、樹冠を伝って樹幹流となる際にも付着物質の寄与は大きいと考えられる。樹幹流の化学成分に関与する樹冠の付着物質量は、樹冠の大きさや枝の形状などに依存すると考えられることから、定量的に捉えることが困難である。そこで、陽イオンはナトリウムイオンに対する比、陰イオンは塩化物イオンに対する比をそれぞれ比較することによって、降水がスギ林内、スギ樹幹およびタケ樹幹と接触してくる間におこる化学組成の変化からそれぞれの元素の挙動を考察した。ここで、陽イオンとしてナトリウムイオンを指標とするのは、他陽イオンと比較して、化学的に葉面や樹皮上に吸着しにくく、また植物生理上もあまり重要ではないとされている元素であるからである(山崎ら, 1993)。陰イオンについては、硫酸や硝酸イオンがガス状物質としての動き、すなわち SO_2 や NO_x の付着や脱着、気孔からの取り込みなどが考えられることから、塩化物イオンを指標とした。

図-9 から図-11 は、カリウム、カルシウム、マグネシウムのナトリウムに対する比を試料

番号順に示したものである。すなわち、横軸は林外雨の pH 変化を示していることになる。図-9の K/Na の結果では、ほとんどの試料において比の値がタケ樹幹流>スギ林内雨>スギ樹幹流>林外雨という順になっている。降水が樹冠や樹幹表面と接触して溶かし込んでくる化学成分は、前述のように表面に付着している乾性降下物と葉面や樹皮表面からの溶脱成分である。同時期に採取した試料であれば付着している乾性降下物の化学組成はほぼ同じであると考えられることから、このような試料中の化学組成の大きな変化は、乾性降下物の捕捉効率の違いと樹体からの溶脱の程度の違いに帰することができる。先に示したようにスギ林内雨に含まれる化学成分には乾性降下物由来の部分が大きいと考え、タケ樹幹流の K/Na の比が林内雨の比よりも明らかに高い値を示していることから、タケからのカリウムの溶脱が顕著であると推察することができる。またスギでは、林内雨よりも樹幹流中の比の値が小さい原因としては、樹幹よりも樹冠部すなわち葉面からカリウムの溶脱が大きいこと、あるいは樹皮表面でのカリウムの取り込みが考えられる。このような樹皮表面での取り込みは、アンモニウムイオンにおいても認められた。

図-10 に示した Ca/Na の結果では、林外雨の pH によって試料の化学組成に違いが認められた。すなわち、林外雨の pH が低い場合、比の値の順が、スギ林内雨>タケ樹幹流>林外雨>スギ樹幹流となり、pH の高い場合はスギ林内雨>林外雨>スギ樹幹流>タケ樹幹流となる傾向が示された。林内雨において比の値が林外雨よりも常に高いことは、乾性降下物の寄与が第一の原因であるためと考えることができる。さらに、タケ樹幹流中の Ca/Na 比が林外雨 pH に依存する現象は、低 pH 林外雨に対してカルシウムが中和成分として働いていることが推察される。同様の傾向は Mg/Na でも認められた。また、スギ樹幹流で Ca/Na 比が常に小さいことは、樹皮表面へのカルシウムの吸着現象によるものと捉えることができる。

図-12 と図-13 は、同様に陰イオンについて塩化物イオンに対する比を示したものである。NO₃/Cl、SO₄/Cl いずれにおいても林外雨でそれらの比がもっとも高く、次が林内雨となっている。NO₃/Cl では、特に林外雨 pH が低い試料において林外雨・林内雨での硝酸イオンの割合が高くなっていることがわかる。これは、酸性物質として硝酸が重要な役割を果たしていることを示している。また、スギの樹幹流で硝酸イオンの割合が非常に低くなっていることが明らかである。この結果は、図-2 と図-4 の林外雨と樹幹流の硝酸濃度の変化から見て、樹皮表面に硝酸が取り込まれていることが原因と考えられる。このメカニズムのひとつとして、樹皮表面に生育する苔・地衣類に摂取されることが推察できる。なぜならば、先に述べたようにカリウムやアンモニウムイオンについても同様の傾向が認められ、栄養塩の選択的な摂取と解釈できるからである。

タケの樹幹流では、硝酸・硫酸いずれの比の値も低くなっている。この現象は、図-13 の比の値と図-5 の濃度から判断して、タケへの硝酸・硫酸の取り込みではなく、タケからの塩化物イオンの溶脱に帰することができる。このようなタケの樹幹からの塩化物イオンの溶脱は只木ら (1994) によってすでに指摘されている。上述したようにタケからは陽イオンとしてカリウムイオンの溶脱が顕著であることと考えあわせると、タケから塩化カリウムが溶脱しているのではないかと推察することができる。タケにおけるこの溶脱現象がどのような生理的意味を有するかについては、今後の研究を必要とするところである。

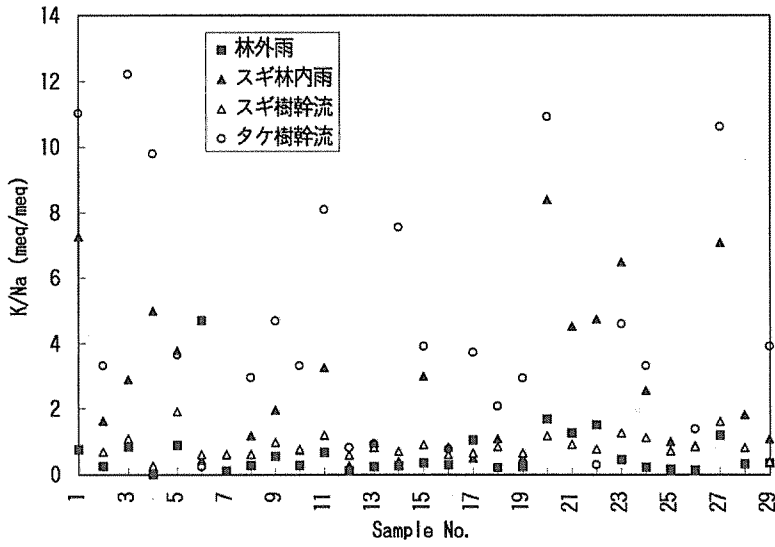


図-9. 各試料中のカリウムイオンとナトリウムイオンの濃度比

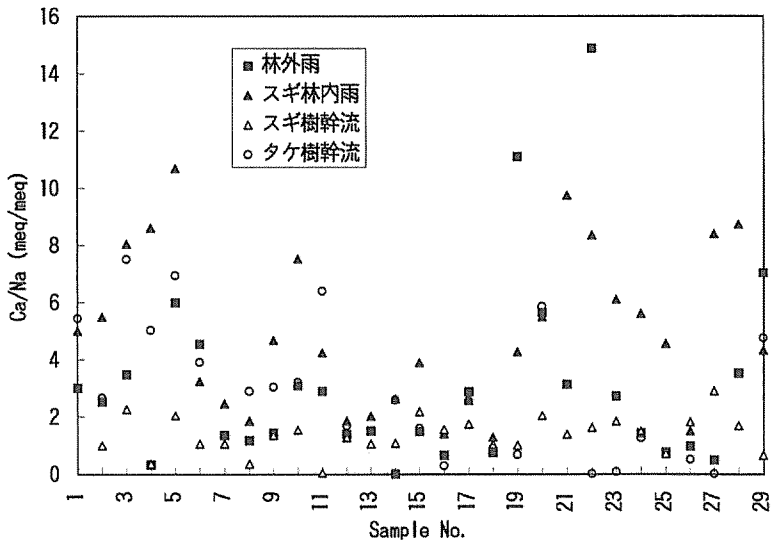


図-10. 各試料中のカルシウムイオンとナトリウムイオンの濃度比

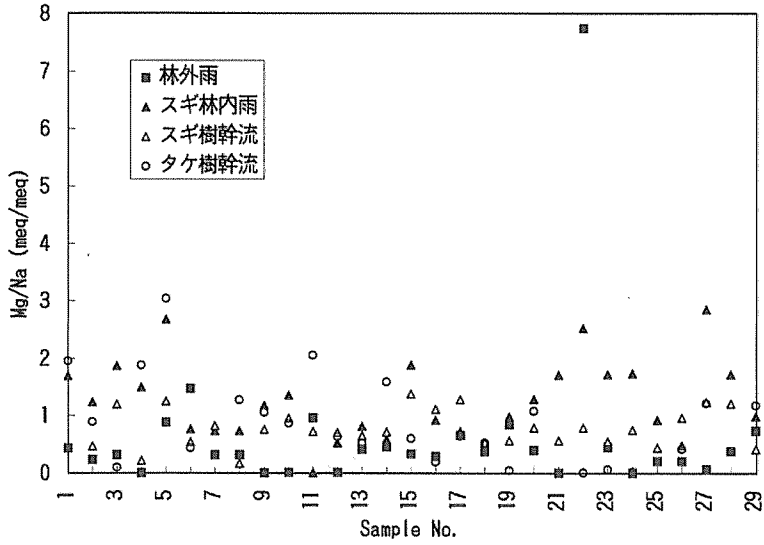


図-11. 各試料中のマグネシウムイオンとナトリウムイオンの濃度比

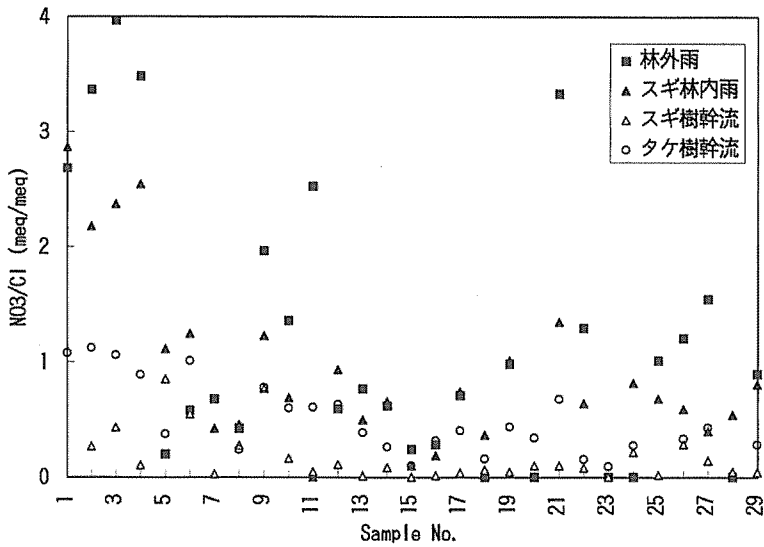


図-12. 各試料中の硝酸イオンと塩化物イオンの濃度比

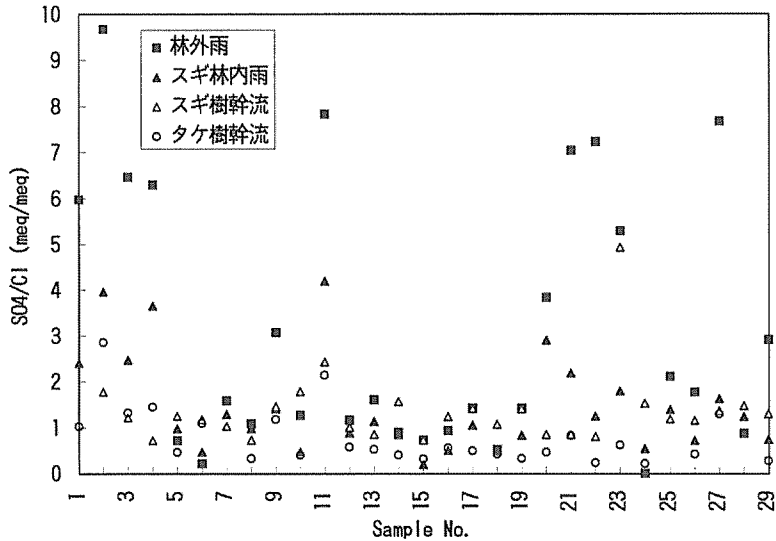


図-13. 各試料中の硫酸イオンと塩化物イオンの濃度比

5. 樹幹流の酸性化について

前報(竹中ら, 1995)において, スギの樹幹流の pH が林外雨の pH に関わらず 3.6 近辺で一定の値をとることを示した。この樹幹流における酸性化の一因として, 乾性降下物として付着している酸性物質が挙げられる。そこで, 林外雨に対して樹幹で加わった硫酸・硝酸イオン濃度と水素イオン濃度を図-14 にプロットした。この図にはタケの樹幹流についても同様にプロットした。その結果, タケの場合は, 硫酸・硝酸イオンの付加量の方が水素イオンに比べて多く, 林外雨に対して樹幹流の pH が下がる原因は, 付着酸性物質の硫酸・硝酸で説明できるのに対し, スギの場合は明らかに樹幹で付加された水素イオンの方が硫酸・硝酸イオンの付加量よりも多く, 樹幹流の酸性化が付着酸性物質では説明できないことが明らかとなった。今回の結果は, これまで報告されているように, 樹幹流には樹種特性があり(佐々ら, 1991), pH を一定にするメカニズムとして有機酸の存在が重要である(金子ら, 1995)という結果を支持するものである。今後は, このような有機酸などが関係する樹幹流の化学特性が, その樹木の生理活性において果たす役割を解明することが重要な課題であると思われる。

6. 稲武町における酸性雨

稲武町における降雨の pH は平均で 5.3 程度であり, 酸性化が深刻化しているという状況ではない。しかしながら, pH 3 レベルの降雨があることも事実である。そこで, どのような気象条件の時に低 pH 降雨が降るかについての知見を得るため, 今回解析に用いた降雨における気象概況と降雨範囲を表-2 にまとめた。表-2 で示すように降雨は, 前線によるもの, 低気圧によるもの, 台風によるもの, 気圧の谷によるもの, および夏の積乱雲によるものとに分類できる。この表から, 愛知県全域ではなく局所的に雨が降った場合に, 低 pH 降雨が降る可能性が高いことがわかる。すなわち, 大気の状態が不安定で局所的に強い上昇気流が起こ

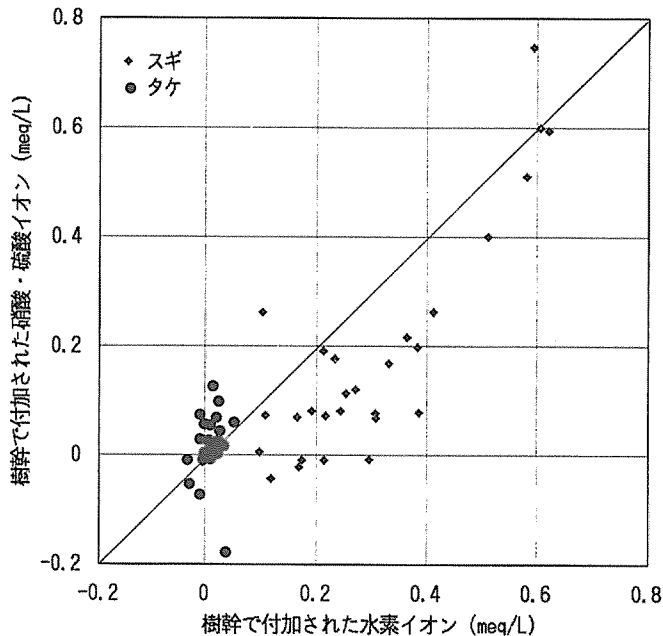


図-14. スギとタケの樹幹で加わった水素イオンと硝酸・硫酸イオンの和との関係

るような条件の時に、汚染物質を効率よく雲の中に取り込むのではないかと推察される。また、低 pH 降雨は夏季に出現しやすい傾向が認められる。この傾向は、日本における酸性雨の一般的な傾向と一致している(玉置・小山, 1991)。さらに、低 pH 降雨の時の主な風向を見ると、南南西の風の場合が多い。大和田(1994)によれば、夏季の典型的な気圧配置下での濃尾平野の風の流れは、日中は伊勢湾・三河湾からの南寄りの海風に占められ(図-15)、夜間になると三河山地では山風になる。大気汚染物質が臨海部の高汚染地域から、開陸風や山谷風の相互作用によって内陸へ輸送されることは、関東平野におけるシミュレーション研究等で明らかにされている(植田, 1989)。従って、図-15 に示したように、稲武町における酸性雨の原因となる汚染物質は、名古屋周辺の都市域および中京工業地帯を供給源として考えることができ、南寄りの海風によって輸送されていることが推測される。

このような気象因子と降水 pH の関係については、これまでに多くの報告がされているが(WOLF *et al.*, 1979; SINGH *et al.*, 1987; 平木ら, 1989)、地域特性が強く普遍的な条件を導き出すことは困難であると思われる。稲武町については、今後モニタリングを継続して行うことにより、低 pH 降雨現象の気象状況の特徴がさらに明確化できるものと考えている。

表-2. 分析試料採取日における愛知県内の気象概況と降雨域および最多風向

| Sample No. | 採取年月日 | 気 象 状 況 | 降雨の状況 (愛知県内) | 風向 (最多) |
|------------|-------------|--|-----------------|------------|
| 1 | 1994年7月30日 | 関東の南海上にある弱い熱帯低気圧により、大気の状態が不安定. | 全域 | NE |
| 2 | 1994年8月25日 | 関東付近に低気圧. | 局所 | SSW |
| 3 | 1994年7月16日 | 太平洋高気圧におおわれて晴れて暑い日. | 局所 | SSW |
| 4 | 1994年8月18日 | 太平洋高気圧におおわれて晴れて暑い日. | 局所 | SSW |
| 5 | 1994年7月9日 | 梅雨前線が東海地方に南下. 停滞. | 全域 | SSW |
| 6 | 1994年4月7日 | 低気圧が九州西海上から本州南岸を通過. | 全域 | SSW |
| 7 | 1993年12月22日 | 寒冷前線通過. | 局所 | SSW |
| 8 | 1994年10月19日 | 気圧の谷の影響. | 局所 | SSW |
| 9 | 1994年7月27日 | 高気圧に覆われて晴れ. 夜山間部で雨. | 局所 | SSW |
| 10 | 1994年2月1日 | 低気圧が日本海を北東進. | 全域 | NNE |
| 11 | 1995年7月20日 | 梅雨前線が本州付近に停滞. | 全域 | S |
| 12 | 1994年4月18日 | 低気圧が四国沖を通過. | 全域 | SSW |
| 13 | 1995年5月11日 | 低気圧が本州を通過. | 全域 | N |
| 14 | 1994年3月8日 | 日本海を北北東に進んだ低気圧から南にのびる前線が東海地方を通過. | 全域 | SSW |
| 15 | 1994年11月17日 | 低気圧が日本海から東北地方を通過. | 全域 | SW |
| 16 | 1994年12月7日 | 低気圧が日本海から三陸沖に進み, 一時雨. | 局所 | N |
| 17 | 1994年2月21日 | 南海上と日本海を低気圧が通過. | 全域 | NNE |
| 18 | 1994年9月27日 | 秋雨前線と台風26号の影響. | 全域 | NNE |
| 19 | 1994年3月23日 | 南海上と日本海を低気圧が北東に通過. | 全域 | SSW |
| 20 | 1995年6月25日 | 前線上の低気圧が南岸を通過. | 全域 | E |
| 21 | 1995年6月14日 | 南海上に前線. 低気圧が通過. | 全域 | NNE |
| 22 | 1994年6月13日 | 南岸の前線上を低気圧が通過. | 全域 | SSW |
| 23 | 1995年7月4日 | 梅雨前線が関東から西日本にかけて停滞. 所々で大雨. | 全域 | NNE |
| 24 | 1994年9月16日 | 前線および大気的不安定により雷を伴った大雨. | 全域 | N |
| 25 | 1993年12月14日 | 南岸沿いを低気圧が通過. | 全域 | NNE |
| 26 | 1994年8月19日 | 上空に寒気が入り不安定な天気となり, 所々で雷雨. | 全域 | SSW |
| 27 | 1995年7月12日 | 太平洋高気圧に覆われた曇りや晴れの天気. 大気の状態が不安定となり, 局所的に雷雨. | 全域 | N |
| 28 | 1993年12月20日 | 南岸沿いを低気圧が通過. | 全域 | SSW |
| 29 | 1994年5月11日 | 低気圧が朝鮮海峡付近から東進し, 四国付近に達し, その後本州の南岸を北東に通過. | 全域 | SSW |

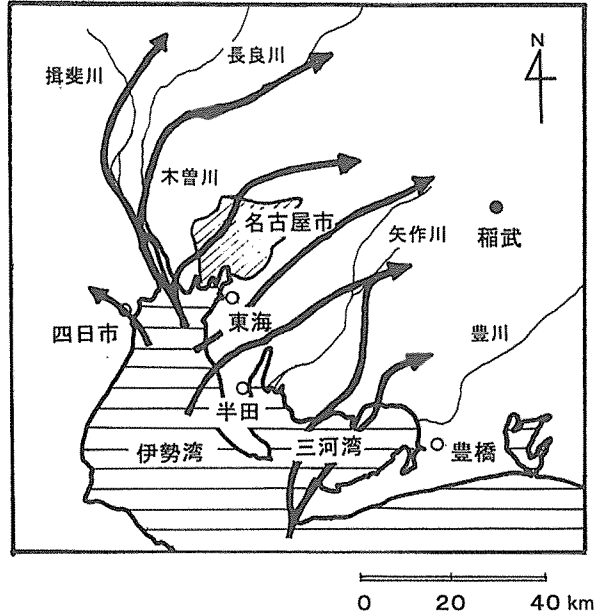


図-15. 濃尾平野における夏季の日中の風向分布 (大和田, 1994)

IV. まとめ

愛知県稲武町における林外雨, スギ林内雨, スギ樹幹流, タケ樹幹流について, その化学組成の特徴を, 林外雨の pH との関係およびナトリウムあるいは塩素に対する比で示した。まず, 低 pH 林外雨では溶存化学成分濃度が高く, 特に硝酸・硫酸イオン濃度が高いことが特徴的であり, 高 pH 林外雨では溶存化学成分濃度が低い傾向があった。それに対しスギ林の林内雨では林外雨の pH が高くて溶存成分濃度が高い試料が多く, それらは乾性降水物として樹冠に付着していた成分の寄与が大きいことが示された。また, 試料中の各陽イオン濃度をナトリウムイオン濃度に対する比で見た場合, タケの樹幹流においてカリウムの比が高く, タケから選択的にカリウムが溶脱していることが明らかとなった。また, 塩化物イオンにも選択的な溶脱が認められ, 塩化カリウムとしての溶脱が示唆された。カルシウムは乾性降水物としての寄与が大きいけれども, 低 pH 降雨では, タケにおいて中和成分として溶脱していることが明らかとなった。一方スギでは, 樹幹においてアンモニウムやカリウム, 硝酸イオンの取り込みが起こっており, 樹皮上に生育する苔・地衣類などによる摂取が一因と推察された。このように樹体表面が降水と接触することによって起こる化学成分の溶脱・取り込みには, 樹木の生理特性のみならず樹体を生息場とするマイクロな生態系と密接に関わっていることが考えられるため, さらに徹視的に酸性雨による林内雨や樹幹流の化学成分の変化を調べていくことが重要である。

稲武町では, 夏季の大気の状態が不安定な時の局所的な降雨現象において, 酸性度が高くなることが, 本観測データから示唆された。また, このような酸性雨に含まれる大気汚染物質は, 名古屋都市域および伊勢湾・三河湾岸の工業地帯を起源とし, 輸送されてきたものと

考えられる。

大気汚染物質の森林生態系への影響には、長期的な蓄積によってもたらされる影響と一時的に高濃度の汚染物が降下する場合の影響とが考えられる。長期的な酸性物質の蓄積による影響予測には、近年、臨界負荷量推定モデルを用いた土壌の酸性化予測がおこなわれており（新藤・袴田, 1996）、酸性物質の年間沈着量が実際のデータとして必要となっている。一方、一時的に高濃度の汚染物負荷に対しては、酸性霧に対するストレスエチレンの発生のように（TAKENAKA *et al.*, 1996）、樹木の生理活性がどのように変化するかについて研究が進められている。現在のところ稲武町では、酸性度の高い降雨が頻度は低いかれども観測されており、さらにSO₂、NO_x、O₃などの大気汚染物質が都市域から輸送され、乾性降下物として常に森林に沈着していることも容易に推測される。今後懸念される長期的・短期的の影響に対して、早期対策が講じることができるよう、今後も稲武町における観測を継続していく。

謝 辞

本モニタリングの実施に当たり、観測地を貸していただき、様々な便宜を図っていただきました稲武町財団法人古橋会の古橋茂人氏、古橋林業研究所の北原宣幸氏に深く感謝いたします。また、青木重昌氏、山田金二氏、原田民子さんには、試料回収等に多大なご協力をいただきました。さらに、観測器材の設置等で大変お世話いただきました名古屋大学農学部附属演習林の柴田教授と肘井助教授に、感謝の意を表します。

引用文献

- 平木隆年・玉置元則・堀口光章（1989）雨水の酸性度を決定する要素について．京都大学防災研年報 32：B-1，311-319.
- 金子真司・荒木 誠・鳥居厚志（1995）スギ樹幹流の有機酸存在の推定．日林関西支論 4：51-52.
- LINDBERG, S. E. and LOVETT, G. M. (1985) Field measurements of particle dry deposition rates to foliage and inert surfaces in a forest canopy. *Environ. Sci. Technol.* 19：238-245.
- MINAMI, Y. and ISHIZAKA, Y. (1996) Evaluation of chemical composition in fog water near the summit of a high mountain in Japan. *Atmospheric Environ.* 30(19)：3363-3376.
- 西川嘉範・田口圭介・藁科宗博・北村守次・永楽通宝・小山善丸（1996）東海・近畿・北陸地方での酸性雨共同調査研究(4) 降水のNO₃/nss-SO₄当量比について．大気環境学会年会講演要旨集 37：305.
- 大泉 毅・福崎紀夫（1993）硫黄同位体比を利用した大気降下物中硫黄の供給源寄与率の推定．大気汚染学会講演要旨集 34：216.
- 太田幸雄（1990）大気エアロゾル．大気の化学．化学総説 10：121-145.
- 大和田道雄（1994）伊勢湾岸の大気環境．219pp．名古屋大学出版会.
- 佐々朋幸・後藤和秋・長谷川浩一・池田重人（1991）盛岡市周辺の代表的森林における林外

- 雨, 林内雨, 樹幹流の酸性度ならびにその溶存成分 — 樹種による樹幹流の pH 固有値 —. 森林立地 **32**: 43-58.
- 真田 勝・太田誠一・大友玲子・真田悦子 (1991) 札幌近郊におけるトドマツ, エゾマツ人工林の樹幹流・林内雨および林外雨について. 森林立地 **33**: 8-15.
- 真田 勝・大友玲子・真田悦子・太田誠一 (1992) 札幌近郊の造林地における林内外雨の樹種特性について. **103** 回日林論: 257-258.
- 酸性雨調査法研究会 (1993) 酸性雨調査法. 401pp.
- 新藤純子・袴田共之 (1996) 酸性物質の土壌影響評価モデルの開発に関する研究. 環境庁地球環境研究総合推進費, 酸性雨 C-3 酸性物質の臨界負荷量に関する研究. 平成 7 年度研究発表会資料 **8**: 1-6.
- 仙石鉄也・原 光好・森澤 猛・石塚和裕 (1994) 亜高山帯針葉樹林における酸性雨の観測と実態 — pH, EC および化学性について —. 森林立地 **36**: 64-72.
- SINGH, B., NOBERT, M. and ZWACK, P. (1987) Rainfall acidity as related to meteorological parameters in northern Quebec. *Atmos. Environ.* **21**: 825-842.
- 只木良也・谷口尚彦・杓名重明 (1994) 林内雨と樹幹流の酸性度とイオン濃度調査 — タケで塩素イオン濃度が高いこと —. 日林中支論 **42**: 121-122.
- 竹中千里・ウィンココ (1994) 林内における乾性沈着物採取法. 大気汚染学会講演要旨集 **35**: 318.
- 竹中千里・鈴木道代・山田金二・今泉保次・青木重昌・只木良也 (1995) 愛知県稲武町における酸性雨モニタリング(I) — pH と電気伝導度 —. 名大演報 **14**: 35-47.
- TAKENAKA, C., YAMADA, T. and IWATA, S. (1996) Ethylene emission from seedlings of Hinoki (*Chamecyparis obtusa*) and Sugi (*Cryptomeria japonica*) under acidic stress. *J. For. Res.* **1**: 183-185.
- 玉置元則・加藤拓紀・関口恭一・北村守次・田口圭介・大原真由美・森 淳子・若松伸司・村野健太郎・大喜多敏一・山中芳夫・原 宏 (1991) 日本の酸性雨の化学. 日本化学会誌 No. **5**: 667-674.
- 玉置元則・小山 功 (1991) 地上から見た日本の酸性雨 — 酸性雨調査・研究で得られた成果と今後の課題 —. 大気汚染学会誌 **26**: 1-22.
- 塚原初男 (1994) 酸性雨・酸性雪・樹幹流の観測方法と観測例. pp. 61-66. 森林地域における地球環境モニタリング第一回研究会資料.
- 植田洋匡 (1989) 大気の変化と酸性雨. 科学 **59**: 610-619.
- WOLFF, G. T., LIOY, P. J. and GOLUB, H. (1979) Acid precipitation in the New York Metropolitan Area, Its relationship to meteorological factors. *Environ. Sci. Technol.* **13**: 209-212.
- 山崎耕宇・杉山達夫・高橋英一・茅野充男・但野利秋・麻生昇平 (1993) 植物栄養・肥料学. 217pp. 朝倉書店.

Acid rain monitoring in Inabu Town, Aichi Prefecture (II)

— Origin and chemical composition —

Chisato TAKENAKA, Michiyo SUZUKI, Norio YAMAGUCHI,
Yasuji IMAIZUMI and Yoshiya TADAKI

The characteristics of the chemical composition of rain water, throughfall and stem flow of Sugi (*Cryptomeria japonica*) and stem flow of Take (*Phyllostachys bambusoides*) were analyzed in 29 samples collected from Inabu Town, Aichi Prefecture, from 1993 to 1995. The weather conditions when acid rain was observed are summarized. The chemical analysis of each sample was performed by choosing the samples by their acidity, analyzing all ions in each sample, and calculating the concentration ratios of each cation to sodium and of each anion to chloride. The dependencies of the ion concentration on the pH of rain water and the variation of concentration ratios of each sample were then discussed. As a result, it was observed that the rain water with high acidity contained chemical components in high concentrations especially nitrate and sulfate, while that with low acidity did not. On the other hand, the ion concentrations in throughfall water did not depend on the acidity of rain water but on the number of days during which the tree crown was exposed to dry deposition. This indicates that the contribution of dry deposition to the chemical composition of throughfall water is significant. The concentration ratios of potassium to sodium in the stem flow of Take suggest the selective leaching of potassium from Take. The same selective leaching from Take was observed for chloride. For a rain with low pH, the acidity seemed to be neutralized by the leaching of calcium ion on the stem of Take. In the case of Sugi, ammonium, potassium and nitrate ions were taken up by the surface of the stem. This suggests their uptake by the other organisms such as lichen or moss living on the stem surface. In the Inabu Town, it is considered that acid rain is most likely to occur in summer and local rainfall. It is also supposed that the air pollutants which cause acid rain in Inabu are probably transported from the urban area of Nagoya City and the industrial area around Ise Bay and Mikawa Bay.

Keywords : acid rain, rain fall, throughfall, stem flow of Sugi, stem flow of Take