

DENCHUKEN REVIEW

酸性雨の総合評価

電中研レビュー No.43 2001.2



巻頭言	大阪府立大学教授 池田 有光	2
電中研「酸性雨研究」のあゆみ		4
はじめに	理事 狛江研究所長 福島 充男	6
第1章 酸性雨問題の変遷と当研究所の取り組み		7
1 - 1 酸性雨問題の始まり		9
1 - 2 アジアの酸性雨		12
1 - 3 当研究所の取り組み		15
第2章 酸性物質の広域輸送		19
2 - 1 東アジアの酸性雨の実態		21
2 - 2 長距離輸送モデル研究の現状		26
2 - 3 広域輸送の将来予測		28
第3章 森林生態系における酸の挙動		33
3 - 1 森林への酸の総沈着量		35
3 - 2 土壌 - 植生系における酸の収支		37
3 - 3 臨界負荷量とアルミニウムの化学		40
第4章 山地流域の酸性化予測		45
4 - 1 鉱物風化による酸中和作用の評価手法		47
4 - 2 酸中和作用の流域比較		48
4 - 3 酸性化の長期予測		52
第5章 樹木への影響評価		55
5 - 1 各地の森林衰退状況		57
5 - 2 酸性雨・霧の影響		62
5 - 3 オゾンと二酸化硫黄の単独および複合影響		66
第6章 コンクリート構造物への影響評価		71
6 - 1 コンクリートの劣化要因		73
6 - 2 暴露実験による影響評価		75

第7章 総合評価	81
7 - 1 酸性物質の広域輸送.....	83
7 - 2 酸性物質の環境影響.....	84
7 - 3 今後の課題.....	85
おわりに ===== 理事 我孫子研究所長 加藤 正進	86
引用文献・資料等	87

コラム目次 =====	
1. ミックス・アジア	31
2. 窒素飽和の功罪	44
3. 世界の陸水影響予測モデル	54
4. オゾンのクリティカルレベル	70
5. コンクリートのつらら現象	79

表 紙 =====

「ミズナラ林」(河野吉久, 1993年10月7日撮影)

奥日光・光徳牧場から山王林道を山王峠に向かった林道沿いに静かに広がる。

地球環境保全にむけて



本書のタイトルである「酸性雨の総合評価」には、国境を越えて多くの国々にわたる観測網の充実による気象・大気汚染物質濃度、地域に湿性・乾性沈着する汚染物質の総量等の多くの環境情報の把握、発生源情報、大気汚染物質の動態解析による因果関係の実証、森林生態系・植物・土壌その他の環境影響の評価、さらには将来の展望と提言が含まれている。これらは電力中央研究所の独自のもの、他の研究機関との共同研究による長期間にわたる研究計画と研究の蓄積によって明らかに

されてきた。昨年9月にオーストリアの国際応用システム解析研究所（IIASA）と電力中央研究所による酸性雨に関するワークショップがIIASAで開かれた。その他にも電力中央研究所を中心として国際間の研究者の協力や共同研究がなされているが、これらの努力の積み重ねが総合評価研究の下地になっている。

酸性雨による環境負荷量は工業地域や都市域のいおう酸化物や窒素酸化物による局地大気汚染レベル、温暖化を引き起こす要因の一つである炭酸ガス排出量とも密接に関連している。例えばいおう酸化物と窒素酸化物による局地汚染を抑制することは酸性雨の低減にも通じる。省エネルギーは炭酸ガスの排出抑制、いおう酸化物・窒素酸化物の排出量抑制にも関連する。したがって酸性雨の総合評価を、より広い地球環境を保全するためのエネルギー対策・温暖化等の研究と組み合わせることによって、今後、環境問題解決にむけて、より総合的な取り組みのきっかけとして、これまでの経験と成果が21世紀初頭に相応しい将来の研究の核となることに期待したい。

今日我が国では、生産量・需要量が、前年の同月と比べて伸びたか否かで一喜一憂するがごときニュースがよく報じられている。経済発展と生活の快適性の追求は技術の進歩による効率化を差し引いてもトータルの使用エネルギーの増加を伴うのが従来の経過である。このことを考えると、これまで通り生産量・需要量が常に右肩あがりであるのかどうか考え直す時期に来ているように思われる。使用エネルギーの増加は、化石燃料を主体とする現在のエネルギー源を太陽光等の自然エネルギー源に変えずして、現在の炭酸ガス排出量を1990年と同じレベルに維持することさえ困難であろう。

一方、アジア地域の人口の激増と社会構造の変化が、使用エネルギーの増加を引き起こしている。これらのことを踏まえて、21世紀の地球環境を如何にすれば保全することが出来るか、将来世代に負のつけを回さないで済ませられるか、その総合的対策を明らかにし具体化することが現代人に科された命題である。21世紀の初めにあたり巻頭言を書く機会を与えられ、あらためて問題の重大性をひしひしと感じる次第である。

大阪府立大学大学院工学研究科 教授

池 田 有 光

電中研「酸性雨研究」のあゆみ

西 暦	電 中 研 の 状 況	日 本 の 状 況
1872		岩倉具視遣欧使節団の派遣
1883		アルカリ産業による環境汚染の実態を報告 ケルナーが東京で降水の化学分析
1913		農事試験場が東京などで降水の化学分析
1918		大阪市が降下ばいじんの調査を開始
1935		中央气象台が降水の化学分析を開始
1955		菅原健や三宅泰雄が降水化学の研究を展開
1968		大気汚染防止法の制定
1971		環境庁の発足
1973		関東地方で湿性大気汚染が発現（1975年にも）
1975	酸性雨の植物影響の研究を開始	環境庁が湿性大気汚染調査を開始
1976		気象庁が綾里にバックグラウンド観測所を開設
1978	関東地方や西日本地域で酸性雨の実態調査を開始	
1983		環境庁が第一次酸性雨対策調査を開始
1984	瀬戸内地域で酸性雨の実態調査を実施	
1985		関口恭一らが関東地方でスギ枯れを報告
1986		林野庁・環境庁が緊急調査を実施
1987	通産省からの受託研究を開始	
1988	全国規模で酸性雨の実態調査を開始 降水調査，流域調査，樹木調査，土壌調査を積極的に展開	環境庁が第二次酸性雨対策調査を開始
1989		金沢で環日本海における酸性雨・雪シンポを開催
1990	植物の暴露実験を開始	酸性霧の問題が全国的に広がる
1991	中・韓・台の研究機関と共同研究を開始	全公研が酸性雨モニタリングを開始 環境庁が東アジア酸性雨モニタリングネットワーク（MN）構想を提唱
1992	酸性雨フェーズⅠの取りまとめ	
1993	アイオワ大学との共同研究を開始 箱根において国際ワークショップ（WS）を開催	富山で東アジア酸性雨MN第1回専門家会合を開催 環境庁が第三次酸性雨対策調査を開始
1994	電中研レビュー「酸性雨の影響評価」を刊行	
1995	コンクリート暴露実験を開始 台湾電力会社と共同研究を開始	東京で東アジア酸性雨MN第2回専門家会合を開催
1996	酸性雨フェーズⅡの取りまとめ 東京において国際WSを開催 酸性雨研究グループが日経地球環境賞を受賞 実験林での連続観測を開始	新潟で東アジア酸性雨MN第3回専門家会合を開催
1997	東京において公開セミナーを開催	
1998	IIASAとの共同研究を開始 ラクセンベルクで第1回広域輸送WSを開催	広島で東アジア酸性雨MN第4回専門家会合を開催 新潟に酸性雨研究センターを設立 環境庁が第四次酸性雨対策調査を開始
1999	ラクセンベルクで第2回広域輸送WSを開催	
2000	ラクセンベルクで第3回広域輸送WSを開催し成果を集約	第6回酸性雨国際会議（つくば）
2001	酸性雨フェーズⅢの取りまとめ 電中研レビュー「酸性雨の総合評価」を刊行	

西 暦	ア ジ ア の 状 況	欧 米 の 状 況
1863		英国でアルカリ法が成立
1865		アンガス・スミスがアルカリ監督官に就任
1872		この頃ドイツでリービッヒの指導により降水分析
1873		アンガス・スミスが『大気と降水』を著す
1883	この頃インド（英）、仏印（仏）、南洋諸島（独） で降水調査	ロンドンスモッグ（1880年にも） ラッセルらがロンドンに降水観測網を設置
1919		英国でアルカリ法の成立
1923		ミラー『ヘブリデスとアイスランドの降水組成』 ケルナーが霧水分析をもとに古い海塩核説を提唱 セーレンセンがpHの概念を提唱
1952		ロンドンで大スモッグ
1955		ゴーハムが水域環境の酸性化を指摘 ロスビーとエグナーが北欧で降水成分の広域観測を 開始
1956		欧州大気観測網（EACN）の発足
1968		オデンが硫黄化合物の長距離輸送を指摘
1972	各地に気象機関のバックグラウンド観測所を開設	ストックホルムで国連の「人間環境会議」を開催 OECDの主宰によるモニタリングプログラムの開始
1973		米・加間で2国間協議を開始
1975		第1回酸性雨国際会議（Columbus, アメリカ）
1976		カナダにCANSAPが発足
1977		ヨーロッパでEMEPが発足
1978	韓国で最初の酸性雨調査	米国でNAPAPが10か年の調査研究を開始
1979		長距離越境大気汚染条約の締結
1980	韓国でソウル地域の酸性雨調査	第2回酸性雨国際会議（Sandefjord, ノルウェー）
1983	中国で第一次酸性雨調査 中国で第二次酸性雨調査 中国で國務院環境保護委員会の採択	米・加間で越境大気汚染に関する覚書を交換
1984		EMEP費用負担議定書の採択
1985		第3回酸性雨国際会議（Muskoaka, カナダ） ヘルシンキ議定書の採択（SO ₂ 排出量の30%削減）
1988	重慶で酸性雨に関する国際会議を開催	ソフィア議定書の採択（NO _x 排出量の凍結）
1990	中国で第八次五ヶ年計画	第4回酸性雨国際会議（Glasgow, スコットランド）
1991	世界銀行による RAINS-Asia	米国で新大気浄化法が成立 VOC排出抑制議定書の採択
1992	台北で東亜地区酸雨国際研究会を開催 日本の環境庁が東アジア酸性雨 MN 構想を提唱	リオデジャネイロで国連の「環境開発会議」を開催
1993	富山で第1回専門家会合を開催	
1994		オスロ議定書の採択（SO ₂ 排出量のさらなる削減）
1995	東京で第2回専門家会合を開催 新潟で第3回専門家会合を開催	第5回酸性雨国際会議（Gothenberg, スウェーデン）
1996		京都でCOP3を開催
1997	広島で第4回専門家会合を開催	
1998	横浜で第1回政府間会合を開催。試行稼動に合意。 横浜で第1回暫定科学諮問グループを開催	複数物質・複数影響議定書の採択
2000	新潟で第2回政府間会合を開催	
2001	東アジア酸性雨MNを本格稼動	

はじめに

理事 狛江研究所長 福島 充男



越境大気汚染という言葉で代表されるように、酸性雨は多国間にまたがる環境問題である。欧米では1970年代に森林衰退や湖の酸性化が顕在化し、酸性雨との因果関係について国際的な科学論争が展開された。しかし、各国の合意を踏まえて排出削減が実践された結果、問題は収束に向かいつつある。

これに対して、経済成長の途上にある東アジアでは、化石燃料の消費拡大によって二酸化硫黄や窒素酸化物の排出量が急増しており、都市域の大気汚染など深刻な環境問題を引き起こしている。そして、近い将来、越境汚染が増大するのではとの懸念がある。このため、欧米の研究者も参画して、現状把握と将来の広域輸送に関する研究が繰り広げられている。また、環境庁の尽力により「東アジア酸性雨モニタリングネットワーク」が本年1月に正式に稼働した。

当研究所における酸性雨研究は、1980年代の中ごろにスタートした。1987年には通商産業省からの受託研究を開始し、所内研究と受託研究を連動させる形で、原因物質の発生から環境影響の発現までの一連の過程を総合的に評価することを目標に研究を進めてきた。東アジア諸国および欧米の研究機関との共同研究も独自に展開し、観測データや評価モデルの共有を通して酸性雨問題の相互理解に努めた。これまでに得られた研究成果の前半部分は、電中研レビューNo. 31「酸性雨の影響評価」(1994年11月発行)で紹介させていただいた。

このレビューでは、それ以降の研究成果を中心に、内外の動向を含めて紹介する。21世紀を迎え、東アジアにおける経済発展と環境保護の両立を考えるうえで、いささかなりともお役に立てば幸いである。

第 1 章

1

**酸性雨問題の変遷と
当研究所の取り組み**

第1章 酸性雨問題の変遷と当研究所の取り組み 目次

粕江研究所大気科学部長 上席研究員 藤田 慎一

1 - 1	酸性雨問題の始まり	9
1 - 2	アジアの酸性雨	12
1 - 3	当研究所の取り組み	15



藤田 慎一（1975年入所）

酸性雨課題推進担当として、当研究所の酸性雨研究を統括するとともに、大気物理学と化学に関する研究を分担してきた。現在は、大気中での硫黄酸化物や窒素化合物の収支と濃度の経年変化に関する研究を進めている。

1 - 1 酸性雨問題の始まり

1-1-1 はじめに

産業革命が成熟した19世紀中ごろのイギリスは、生産活動が著しく進展した反面、大都市や工業地域で環境問題が深刻化した時代であった。ロンドンなど大都市では、石炭の燃焼により排出される二酸化硫黄（ SO_2 ）や降下ばいじんは、凄まじい大気汚染を引き起こした。化学工業の分野では、原料として大量のソーダ灰を必要とした。ソーダ灰の製造方法として、ソルベー法はまだ工業化されておらず、ルブラン法によって副産される塩化水素（ HCl ）は、深刻な環境汚染を招いた。マンチェスターなど工業都市の後背地では、緑林は枯れ果て「死海の辺」のように荒廃したといわれる。

ソーダ産業による環境汚染に音を上げた政府は、1863年にアルカリ法を制定し、アルカリ監督官のポストを新設した。その初代に任じられたのは、王立協会会員の化学者アンガス・スミスである。1872年に出版された大著『大気と降水』⁽¹⁾のなかで、スミスは酸性雨を意味する acid rain の術語を初めて用い、酸性のガスや雨が綿布を脱色し、構造物や金属を腐食し、農作物に被害をもたらした事例を示した（図1-1-1）。

スミスの時代、酸性雨の原因物質は HCl と SO_2 であった。 HCl による環境汚染を解決に導いたのは、ソルベーが工業化に成功した当時の先端科学技術であり、アルカリ法を初まりとする近代的な環境法の制定である。だが石炭の燃焼による大気汚染に有効な解決策は見出せず、その後も事情は好転しなかった。抜本的な大気汚染の改善は、苦いスモッグ事件を幾度も経験して、1956年に大気清浄法が制定されるまで待たねばならなかった⁽²⁾。

降下ばいじんと SO_2 を相手に悪戦苦闘している間に、新たな環境問題が現れた。モータリゼーションの発展により、窒素酸化物（ NO_x ）が汚染物質として登場したこと。広域規模の輸送現象が発見されたことである。火の手は1960年代の終わり、北海を挟んだ対岸のスカンジナビアにあがった。

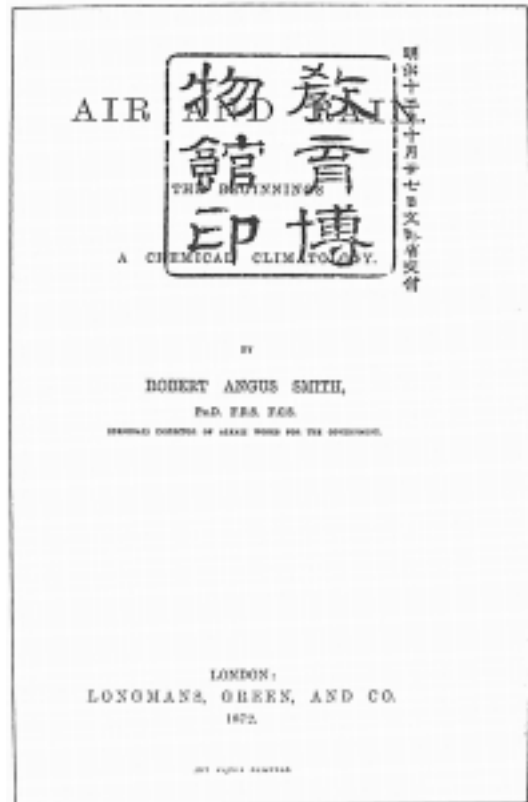


図1-1-1 スミス著『大気と降水』（1872）の中扉（国立国会図書館蔵）

1-1-2 ヨーロッパの酸性雨

同じころドイツでは、別の視点で降水の分析が行われていた。降水中に含まれる NH_4^+ や NO_3^- などの窒素化合物は、作物の栄養源として農学者の興味を引いた。その提唱者は農芸化学の始祖であり、スミスの師でもあるリービッヒである。大気中には作物の生育に必要な量の窒素分があるから、肥料として与えることはない。リン酸塩とアルカリだけ施せばよいと考えたのである。この学説を検証するためリービッヒは、1840～1860年代に各地で降水の分析を行った⁽³⁾。その影響はドイツにとどまらず、ヨーロッパの各国、そして科学技術の揺籃期の日本にもおよんだ。

なかでも精力的な研究が行われたのはイギリスであ

った。ロザムステッドに農事試験場を創設したロースとギルバートは、長期間にわたる実験を行なった。彼らの後継者は、リービッヒの学説を正して窒素肥料の必要性を説き、窒素化合物として NH_4^+ と NO_3^- とが同じように有効なことを示した。

ドイツのホーエンハイムの農事試験場から駒場農学校（東京大学農学部の前身）に招請された農芸化学者ケルナーも、窒素化合物の供給源に興味をもった一人である。1883～1885年にケルナーは、東京で降水の分析を行なった⁽⁴⁾。ケルナー論文を今日的な眼で見ると、わが国の生産活動が小さかった時期に、 NH_4^+ や NO_3^- の濃度を定量した点に価値が見出される。当時のヨーロッパの学術誌に何回か引用されるなど、その意義は小さくなかったと推察される。窒素化合物の供給源として、当時もっとも注目されたのは降水であった。これに対する答としてケルナーは「降水量は絶対量の尺度でない」ことを、気候条件が異なる東京とロザムステッドのデータの比較により結論したのである。

ヨーロッパの降水化学は、第2次大戦後に新たな展開をみる。スウェーデンの土壤学者エグナーは、栄養塩の循環を調べるため、国内に多数の採取器を設けていた。この観測網は1956年に、大気大循環の研究で有名なロスビーが主宰するストックホルム大学の気象学教室に移管され、後に欧州大気化学観測網（EACN）とよばれるネットワークの中核となる。ロスビーとエグナーは「化学気候学」という分野を提唱した。そして多地点で採取した降水を分析し、気圧配置など気象条件との関係について説明を試みた⁽⁵⁾。同僚のエリクソンは、硫黄化合物の収支の研究に先鞭をつけた。

化学気候学の術語は、ロスビーらが最初に提唱したものではなく、アンガス・スミスが『大気と降水』を著わしたときの副題でもあった。だがその内容は80年間にだいぶ変っていた。スミスの時代の降水化学は、スポット的な観測が中心であり、濃度分布を面的にとらえる発想はまだなかった。19世紀の終わりになり、大気汚染が深刻化すると、セントバーソロミュー病院の化学者ラッセルは観測網の考え方を導入し、デポジットゲージとよばれる統一規格の採取器を考案して降水を分析し、濃度分布の地図を作った。だがその広さは、水平距離で数十kmの範囲にとどまった。20世紀の中ごろロスビーらの時代になって、ようやく成分濃度

と気象擾乱との関係が議論されるようになったのである。観測網の整備と拡大とが、研究の進展に貢献したことはいうまでもない。

スカンジナビアの観測データを解析したスウェーデンの土壤学者オデンは、この地域の降水は酸性化の傾向を強めており、その原因は海をわたってイギリスやドイツから輸送された SO_2 にあるに違いないと確信する。同じころスウェーデンの西海岸では、多くの湖が酸性化して水棲生物に影響を与えていることも判明した。オデンらの進言を受けたスウェーデン政府は、1972年にストックホルムで開催された国連の「人間環境会議」でこれを提起する。アンガス・スミスが『大気と降水』のなかで化学気候学の始まりを宣言し、酸性雨の環境影響を論じてから、奇しくも100年目の年であった。

スウェーデン政府が人間環境会議に提出した報告書⁽⁶⁾は、賛否両論の大きな反響をよんだ。隣国のノルウェーは好意的であり、指弾されたイギリスやドイツは冷淡であった。原因究明に乗り出した経済開発協力機構（OECD）は、1972年に11か国の参加のもとに、長距離越境監視評価に関する協力計画（LRTAP）を発足させた。オデンらの主張を確認するためには、越境大気汚染を定量的に評価する必要があった。このためヨーロッパを対象に、長距離輸送モデルの「原版」を開発し、排出量と沈着量の収支を国ごとに算定した⁽⁷⁾。

また1977年には、国連の欧州経済委員会（ECE）の協賛をうけ、東ヨーロッパを含む16か国の参加のもとに、欧州監視評価計画（EMEP）が発足した。ヨーロッパ各国はこのプロジェクトにより、同一の観測マニュアルに基づいてモニタリングを実施し、原因物質の排出量データを共有し、長距離輸送モデルを用いて越境大気汚染を評価することになった。こうしてエグナーらがスウェーデンで始めた小規模な観測は、30年後にはイベリア半島から旧ソ連国境までを網羅する大規模な観測ネットワークへと発展する。

実態調査の結果、降水の酸性化がほぼヨーロッパ全域を覆う現象であり、湖沼の生態系の衰退とも関係することが確認された。ところがOECDが行なった数値実験の結果、ヨーロッパ各国の間には越境大気汚染が交互する結果が得られたことから問題は複雑化した。各国は自国の環境対策と併行して、対外的な対応も迫られたからである。

1979年に開催されたECEの環境担当相会議には32か国が参加し、長距離越境大気汚染条約（1983年発効）を採択した。この条約に基づき1985年には、ECEに属する21か国の署名のもとに、ヘルシンキ議定書（1987年発効）を採択した。議定書を批准した国は、通称「30%クラブ」とよばれるSO₂の削減協約、つまり各国における1980年時点の排出量の最低30%を1993年までに削減することが義務付けられた。さらに1988年には、ECEに属する25か国の署名のもとに、ソフィア議定書（1991年発効）を採択した。議定書を批准した国は、1994年までに各国のNO_xの排出量を、1987年時点のレベルに凍結することが義務付けられた。

具体的な削減方法は各国に任された。矢面に立たされたのは、電気エネルギーの供給を石炭火力発電所に頼ってきた各国の電気事業である。だが各国の内情は相応に複雑であった。電気エネルギーをおもに原子力に依存するフランスは、当初から酸性雨にあまり関心を示さなかった。排出国の一つと指弾された旧西ドイツも最初は冷淡であった。ところが国内の森林衰退を目の当たりにしてから態度を急変し、もっとも熱心な排出削減の推進国となった。イギリスはヘルシンキ議定書を批准したが、対外的には削減率をなかなか約束しなかった。国内的には電力庁の民営化問題も抱えていた。電気エネルギーをおもに水力に依存するスカンジナビアには、もともと大規模な石炭火力発電所はなかった。だが、原子力発電の凍結という国内事情により、スウェーデンはその不足分を何に求めるかの選択を余儀なくされる。

1980年代の終わりに怒涛のように始まった東ヨーロッパの崩壊は、排出削減がまがりなりにも走り出していたヨーロッパの酸性雨を錯綜するものにした。西ヨーロッパを凌駕するといわれながら、なかばペールに包まれていた大気汚染の実態が露見したからである。旧チェコスロバキア、ポーランド、旧東ドイツの国境地帯にある森林は、ほとんど壊滅状態にあることが判明した。

1-1-3 北アメリカの酸性雨

1970年代になると、酸性雨への関心は北アメリカでも高まった。過去の分析データを解析したライケンズ

らは、北アメリカでも酸性化の兆候がみられると主張した。1976年にカナダは降水観測網（CANSAP）を設け、広域モニタリングを開始した。その背景には、国内に沈着する酸性物質の一部が、アメリカから越境したのではないかという懸念があった。

一方のアメリカでは、1978年に国家大気物質沈着計画（NADP）が発足し、1980年には全米酸性降水影響評価計画（NAPAP）の傘下に大規模な調査が始まった⁽⁸⁾。SO₂の排出源は五大湖の南東部に集中しており、酸性化が著しいのは五大湖の北東部であった。1980年にアメリカとカナダは「越境大気汚染に関する合意覚書」を交換する。カナダは、自国の湖沼生態系の衰退は明らかだから、硫酸と硝酸の沈着量が1 haあたり20 kgを下まわるよう、排出源側で対策を講ずるべきだと主張した。これに対してアメリカは、ソースとレセプタの関係は科学的に説明されたものではないとして、自国の排出源に抑制を求めるには、なお調査・研究が必要だという態度を最後まで崩さなかった。

1983年に30%クラブが発足すると、カナダはこれを上まわる50%の削減計画を打ち出した。アメリカは事実上これを無視した。当時アメリカでSO₂の70%近くを排出したのは、石炭火力発電所であった。だが日本とは違ってアメリカには電力会社が数百もあり、なかには環境対策にすぐ費用を投じられない零細なものもあった。矢面に立たされた電気事業は、電力研究所（EPRI）を中心に精力的な調査を開始した⁽⁹⁾。

国内で大議論が交わされたにもかかわらず、1987年に発表されたNAPAPの中間報告書は「酸性雨の影響は小さい」という消極的なものであった。レーガン政権は、酸性雨法の立法に対して後向きの姿勢に終始した。1989年に発足したブッシュ政権はまもなく、SO₂排出量の大幅削減を骨子とした大気浄化法の改訂に乗り出す。そしてカナダを訪問して、国内の環境対策を具体的に進める約束をし、10年以上にわたる政策論争はひとまず決着をみた。

このように排出削減をめぐる経緯は、ヨーロッパと北アメリカとは事情が異なった。小国が陸続するヨーロッパの進め方は、科学論争の結論を全部待たないで、政治決着の形で方向を定めたものであった。臨界負荷量の評価など、研究の一部は将来の課題として残された。これに対して本質的に2国間の問題であるア

アメリカは、莫大な人・物・金を投じて調査を先行し、その結果をふまえて国内法を改訂した。

いずれにせよ、排出削減が国際的な合意のもとに走り出したヨーロッパや北アメリカでは、酸性雨問題は収束にむかい始めた。1990年代になると、環境問題の関心はもっぱら地球温暖化に向けられるようになった。

EPRIをはじめとする電気事業の研究機関も、プロジェクトの規模を縮小した。酸性雨は先進国から途上国の問題と見なされ、生産活動の進展が著しい東アジアに世界の関心が集まり出した。国内の環境対策に見通しを得たアメリカは、極東地域の環境安全保障のカードに酸性雨を使って、中国を牽制し始めた。

1-2 アジアの酸性雨

1-2-1 はじめに

ケルナーが1892年に帰国した後、降水の分析は農商務省の農事試験場の手に移った。東京西ヶ原の本場と畿内、九州、陸羽の各支場では、川島禄郎の指導により、1913年から20年間近くにわたって大規模な調査が行われた⁽¹⁰⁾。

降水の化学組成は、農芸化学のほか林学、公衆衛生学、気象学などの分野でも関心事であった。鉱煙による森林の被害は、当時大きな社会問題であり、鍋木徳二などの林学者によって精力的な調査が進められた。早くから工業化が進んだ阪神地域では、日本のマンチェスターとよばれた大阪の大気汚染がまず深刻化した。1918年に大阪市は、鍋木徳二にヨーロッパの大気汚染の調査を委託する。その結果、市立衛生試験所では1920年から降下ばいじん量の測定が始められた。この調査は第2次大戦末期に中断したものの、70年以上にわたって続けられてきた。大阪市は、全国に先駆けて1932年に「ばいじん防止規則」を制定し、その後の各都市における活動のきっかけを作った⁽¹¹⁾。

第2次大戦後、大気汚染が再燃するなかで、降下ばいじん量の測定は他の都市にも広がった。イギリス規格に準拠したデポジットゲージが用いられ、気象条件を考慮して採水瓶の大きさに工夫がなされた。溶存成分の分析も順次始められた。熊本や四日市では、1960～1970年代にかけてpHが経年的に低下したことも報告されている^{(12)、(13)}。

1930年代になると、気象学の分野でも降水化学に関

心が集まるようになった。1933年に中央気象台の倉茂英次郎⁽¹⁴⁾は、測候関係が将来研究すべき項目を調査し、その一つに「各地の降水の酸性度とそれが産業におよぼす影響」をあげている。中央気象台は1935年に化学掛を新設し、三宅泰雄の指導のもとに降水の分析を開始した⁽¹⁵⁾。第2次世界大戦末期に中断した調査は、戦後の早い時期に再開された。だが気象行政の整理・統合のなかで、まもなくほとんどの地点で打ち切られた。最後まで残った神戸海洋気象台でも、1961年をもって約25年間にわたる観測の幕を閉じた。

気象庁が岩手県三陸町の綾里で降水の分析を再開したのは、約15年をおいた1976年である。この調査は世界気象機構の勧告を受けて、大気バックグラウンド汚染観測網(BAPMoN)の一環として始められたものである⁽¹⁶⁾。綾里はその地域観測所として出発したが、1994年に日本では初めて南鳥島に基準観測所が設けられ、CO₂濃度や大気混濁度とならんで降水の分析が始まった。

1-2-2 日本の酸性雨

わが国の酸性雨は、ヨーロッパや北アメリカとは少し違った形で出発した。1973年と1975年の梅雨の時期、関東地方の住民の多くから眼や皮膚の痛みを訴える届け出があった。植物や農作物の一部には可視障害もみられた。被害地域で酸性度の強い降水が観察されたことから、濃度や組成に関心が集まり、環境庁や自治体によって調査が行われた。その結果、被害はホルムアルデヒドや過酸化水素など刺激性物質と、水素イオンとの相加作用によると推定された。だがその全体像は、

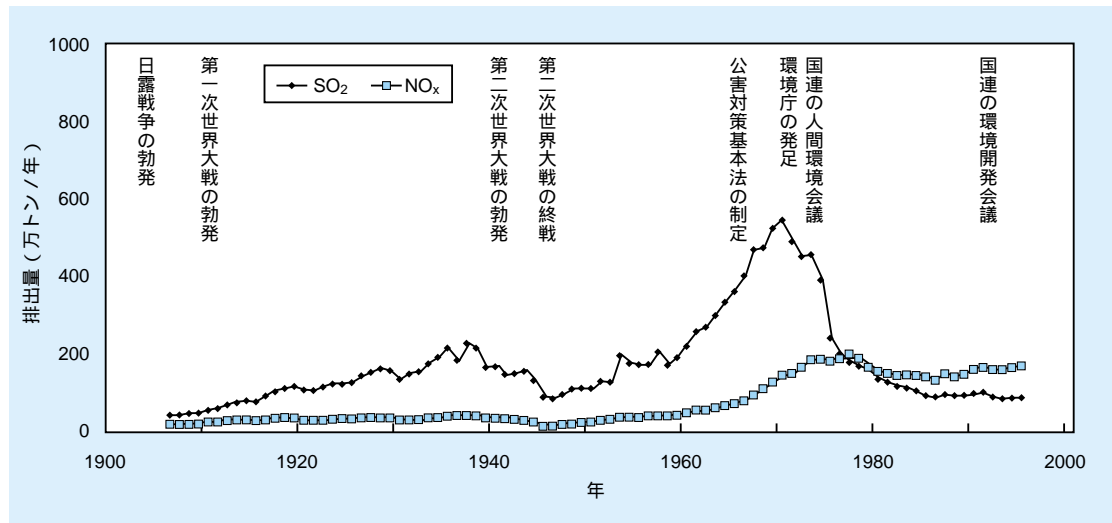


図1-2-1 わが国における過去100年間の二酸化硫黄と窒素酸化物の排出量の推移

完全に解決せずに残された。皮肉なことに、環境庁が5か年計画で調査を開始した1975年の夏を最後に、被害は聞かれなくなった。わが国ではこの一連の事件をさして「湿性大気汚染」、あるいは酸性雨とよんできた¹⁷⁾。

湿性大気汚染が起きた1970年代のわが国は、1960年代に深刻化した公害問題をうけて1968年に大気汚染防止法が制定され、SO₂排出量が急激に減少し始めた時代と符合した(図1-2-1)。同じころ欧米で喧伝された越境大気汚染は、まだ問題視されてなかった。当時として世界を先行した環境保全対策と、独特の気象条件や地理要因もあいまって、広域的な被害は将来的にも生じないという見方が支配的であった。上層には偏西風が吹くこと、海に囲まれた島国であり物質が滞留しにくいこと、酸性物質に対して緩衝能をもつ土壌が多いこと、閉鎖性の湖沼が少なく陸水の交換が早いことが、あまり明確な根拠なくその理由とされた。

ところが1986年に、群馬県衛生公害研究所の関口恭一¹⁸⁾が関東地方でみられるスギ衰退を報告し、その原因として酸性雨を指摘したことから事情は一変した。原因不明のスギ衰退とオキシダント指数の分布はよく対応することも分かり、環境庁と林野庁は緊急調査を行った¹⁹⁾。これに先立って環境庁は、1983年に酸性雨対策検討会を設置し、環境影響が顕在化したときに備えて5か年計画で「第1次酸性雨対策調査」を開始していた。その結果、全国の多くの地点に欧米なみの酸性物質が沈着していることが分かった²⁰⁾。

環境庁の第1次調査は1987年度に終了し、翌1988年

度からは5か年計画で「第2次調査」に引き継がれた。国設大気測定局に自動計測機と自動開閉型の採取器を設置し、濃度の連続測定と降水の分析とが行なわれた²¹⁾。

第2次調査は1993年度に終わり、1994年度からは酸性雨の未然防止を目標に掲げた「第3次調査」が5か年計画でスタートした。新たに離島に酸性雨測定所を新設するなど、観測網の拡充・強化が図られた。第3次調査の『中間とりまとめ』は1997年4月に発表された²²⁾。このなかでは、日本海側で冬季にSO₄²⁻濃度の上昇が認められ、大陸の影響が示唆されること。アルカリ度の低い湖沼が確認され、数値実験の結果では、早い場合30年後に酸性化する可能性があること。原因不明の樹木衰退が引き続き確認されることなどが指摘された。陸水の酸性化は、当研究所の見解²³⁾と異なるものであったが、『最終とりまとめ』の段階で訂正された。

環境庁の第1次調査を実質的に支えたのは、自治体の試験研究機関であった。1988年に始まった第2次調査では、観測地点が国設大気測定局に切り替わったため、有力な自治体を中心となり行政枠を越える形で全国を5ブロックに分け、広域モニタリングを開始した。梅雨など特定の気象条件を選び、第1次調査と同じ「ろ過式採取器」を用いて集中観測を行った。全国公害研協議会の傘下に、全国100地点以上からなる独自のネットワークが展開された²⁴⁾。

当研究所では、硫黄化合物の輸送や収支の解析を目的に、1987年から全国規模のモニタリングを開始した²⁵⁾。1990年以降は西日本地域への集中化を図り、あわせて

当研究所が主宰する東アジアのネットワークに組み込んだ。統一手法のもとに実施された共同観測としては、東アジアで最初のものであるが、所期の目的を達したため1996年9月をもって足掛け10年にわたる調査の幕を閉じた。

1-2-3 東アジアの酸性雨

1980年代になると、酸性雨への関心は東アジア各国でも高まった。中国における酸性雨の調査は、1970年代の終わりに試行的に始められ、重慶など西南地域の都市では、予想よりも酸性化は著しいことが判明した。同じころ行われた北京や南京の調査では、酸性化の兆候はみられないが、硫酸や硝酸の濃度は高いことも分かった²⁶⁾。

1982年に国家環境保護局は「全国第1回酸性雨会議」を開催し、その結果を受けて第6次5か年計画の一環として1983年から2年間、四川省と貴州省で「第1次調査」を行った。その結果、都市の酸性雨は深刻な状況にあることが確認された。平坦な北東地域と比べると大気の変換時間は長く、降水量は多く、土壌の酸緩衝能は弱いことがその理由とされた。第1次調査をふまえて、1985年からは第7次5か年計画の一環として「第2次調査」が行なわれた。国家環境保護局が作成した観測マニュアルをもとに、28省区に約200地点からなる大規模な観測ネットワークが設けられた。華南3省区では重点観測も行われた。その結果、降水の酸性度の強い地域は局地的なこと、酸性度は年々上昇の傾向にあること、農作物、森林、建築物などに被害を生じていることが判明した²⁷⁾。

1990年以降は、第8次5か年計画のもとに、華中7省で調査が行われた。その結果、湖南省の長沙など華中地域の酸性雨が深刻なこと、巨視的にみると酸性化は東へ拡大していること、環境被害には大気汚染物質の直接影響も関与していること、酸性化の原因は石炭燃焼に起因するSO₂にあることが確認された。行政当局は石炭の硫黄分の低下、住宅暖房のガス化、環境アセスメントの実施などの環境対策を策定し、その一部は実行に移されてきた。

韓国における酸性雨の調査は、1970年代の終わりにソウルと蔚山で行われたのが最初である。1980年に国

立環境研究院は、ソウル地域に18か所の観測局を設けて予備調査を行った。1984年には『酸性雨測定網運営指針』が制定され本格調査が始まった。観測局の数はその後も増加し、自動開閉型の採取器への切り替えを進めるなど、ネットワークの整備・拡充が図られた。観測局の総数は、1995年には全国39都市・92地点に達した²⁸⁾。黄砂襲来時の降水組成の研究や、長距離輸送モデルの開発も始まった。ソウルにおける降水のpHは、夏季にやや高く冬季にやや低くなる傾向がある。工業都市の蔚山では、1993年以降のpHに上昇の傾向が認められる。残念ながら北朝鮮の状況はよくわからない。

台湾における酸性雨の調査は、行政院環境保護署によって1984年に始められた²⁹⁾。西海岸の台中にアジア最大級の石炭火力発電所を建設中の台湾電力公司も、独自の調査を進めてきた。1990年には環境保護署によって、離島を含む10地点に観測局が設けられた。代理表面法による乾性沈着量の測定が行われていることは特筆される。調査結果によると、酸性度の強い降水はおもに北部で春季に発現する。硫酸と硝酸の濃度はこれと似た季節変化を示す。東アジアを対象にした長距離輸送モデルの開発も、台湾大学などで進められている。台湾の大気質に影響をおよぼすおもな排出源は、季節風が卓越する冬季は上海付近に、また梅雨季は華南地域にある。1995年5月には、台北で「東亜地区酸雨国際研究会」が開催された³⁰⁾。

東南アジアでは、19世紀の終わりにオランダ、イギリス、フランスなど旧植民地の宗主国による降水の分析が行なわれたものの、酸性雨モニタリングは東アジアと比べて遅れた。ロザムステッドの農事試験場のミラーは、1913年に発表した論文のなかで、アンガス・スミス以来50年間にわたる世界各地の分析値を集成した³¹⁾。そのなかにはジャワ、カルカット、ハノイなどの興味深いデータが掲載されている。植物の生育が旺盛な熱帯の情報が、窒素化合物の供給源を知るうえで必要とされたためである。1970年代になるとBAPMoNの一環として、東南アジアにも観測地点が設けられた。欧米の研究機関の協力をうけて、既往のデータの再解析も始められた。マレーシアやタイの主導のもとに、「南・東・南東アジア酸性雨ネットワーク」(ARNSESEA)を構築する動きもあった。

このようにアジアの各国は、独自に国内のモニタリ

ングを進めてきた。だが試料の採取や分析の方法はまちまちであり、ヨーロッパのEMEPや北アメリカのNAPAPのように、国際的に標準化されたものではなかった。こうした背景のもと、アジア地域に共通の観測ネットワークを構築する必要性の声が高まり、国連環境開発会議、環日本海環境協力会議、エコアジア環境相会合などの場で議論されてきた。

わが国の環境庁は、1992年に「東アジア酸性雨モニタリングネットワーク(EANET)」構想を提唱した³⁷⁾。そ

して構想の実現に向けて4回の専門家会合を開催し、技術マニュアル原案の策定を進めた³⁸⁾。1997年2月に広島で開催された第4回会合で合意の形成がなされ、本格稼働までの暫定ネットワークセンターは新潟に置かれた。1999年に始まった環境庁の「第4次調査」では、国設観測網の見直し作業などが進められた。2001年1月、EANETは国連環境計画の傘下に10か国が参加して本格稼働を開始し、酸性雨研究センター(ADORC)がそのコーディネータに指名された。

1 - 3 当研究所の取り組み

1-3-1 はじめに

わが国の電気事業では、環境保全を経営の重点課題に位置づけ、地域社会との共存を図ってきた。火力発電所の建設にさいしては、事前に広範な環境アセスメントを行なって環境の保全や保護につとめ、化石燃料の使用にあたっては、良質な燃料の利用、さまざまな環境対策の実施、燃焼方式の改善を積極的に進めてきた。発電の過程で生じる副産物や廃棄物の処理・処分についても、素材としてリサイクルの割合を広げるなど省資源化に努めてきた。

ところが、環境問題をとりまく情勢は1980年代の終わりに大きく変化した。地域社会の枠を越えた広域規模の問題に関心が集まり、エネルギーと環境との調和が強く求められるようになったのである。こうしたなかで当研究所は、1980年代の初めに研究に着手し、まず植物影響と降水化学の課題に取り組んだ。1987年には通商産業省からの受託研究が発足し、所内研究と受託研究を連動させる形で、酸性物質の沈着量、スギ衰退の実態、山地流域での物質移行、表層土壌の酸緩衝能などの研究をフェーズI(1987~1992年)として進めた。東アジア各国との共同観測も、世界に先駆けて開始した³³⁾。1993年からはフェーズII(1993~1997年)として、「硫黄化合物が関与した酸性雨」の研究を展開した²³⁾。

1-3-2 硫黄化合物が関与した酸性雨の研究

まず広域的な観測ネットワークを独自に構築して、日本列島の硫黄化合物の収支を調べた。その結果、硫黄化合物の総沈着量は、みかけ上、人為起源のSO₂の排出量を2倍以上上まわることが分かった。硫黄化合物の起源を明らかにするため、独自の長距離輸送モデルを開発して解析した。国内に沈着する硫黄化合物のうち、国内の人為起源に由来するものは約40%、火山活動に由来するものは約20%、国外の人為起源に由来するものは約40%と推計された。

環境の酸性化が顕在化している欧米では、河川・湖沼の水質変化を予測するモデルが開発され、環境対策の策定に利用されている。EPRIが開発した流域の酸性化予測(ILWAS)モデルをもとに、鉱物の風化速度や植生作用などに仮定をおき、わが国でもっとも影響が生じやすいと考えられる流域条件を設定して長期予測を行った。その結果、現状レベルの酸沈着量が続くかぎり顕著な酸性化は生じない。だが沈着量が現在の2倍程度になると、その累積効果によって、長期的には酸性化が起こり得ることが分かった。

樹木に対する酸性物質の影響を評価するため、代表的な樹種を対象に暴露実験を行い、可視害の発現や乾物生長の変化を調べた。わが国でみられるスギ衰退には、オゾンと水ストレスの影響が複合的に関与している可能性が高い。また、現状レベルより高濃度のSO₂が

負荷されたときには、乾物生長の低下する樹種がいくつかある。このため、仮に東アジアでSO₂濃度が大幅に上昇することがあれば、オゾンとの複合作用によって、いくつかの樹種に影響のおよぶ可能性はあることが分かった。

森林土壌に対する酸の臨界負荷量の研究は、ヨーロッパで始められ、東アジアにも適用が試みられてきた。当研究所では、可能なかぎり実測データを評価に反映させることを方針に、群馬県の表層土壌の臨界負荷量を推定した。推定した値は、世界銀行の酸性雨プロジェクトRAINS-Asiaの値より約1桁高いものであった。土壌酸性化にともなう影響発現の閾値は、ヨーロッパの方法を踏襲して塩基とアルミニウムの濃度比を1とした。だが、人工酸性雨を用いた暴露実験の結果によると、この値は樹種によって異なるため、わが国の森林生態系を考慮した閾値の設定や評価モデルの整合性について、さらに検討が必要なが分かった。

酸性雨の構造物影響については、社会的な付加価値が高いコンクリート構造物を対象に検討を進めた。短期間の実験で化学的劣化を評価する促進試験の方法はないため、水和物の分解や強度に関する長期的な評価は難しい。だが表面侵食量などは、降雨量との関係で評価が可能なが分かった。このため、より明確な傾向が判断できるまで、5年間の長期暴露実験を開始した。

以上の成果は、1996年11月に東京で開催した国際セミナー「酸性物質の輸送と影響評価」の場で国内外の関係者に紹介された²³⁾。1997年12月は、酸性雨に関心をもつ多くの分野に参加をよびかけ、東京で公開セミナー「酸性物質の広域輸送と環境影響」を開催した²⁴⁾。

1-3-3 窒素化合物が関与した酸性雨の研究

1980年代までの酸性雨は、先進国が集まるヨーロッパや北アメリカの環境問題であった。だが国際的な排出協約が走り出した結果、問題は収束にむかい始めた。これに対して、今後発展が予想される東アジアでは、重要な環境問題として大きく浮上するようになった。国内問題の立場に固執してきた中国も、量的な評価はともかく実態として、広域的な物質輸送が存在することに表立って反対しなくなった。

EANETは2001年1月に本格的な稼動を開始した。第6回酸性雨国際会議は、アジアでは初めて2000年12月につくばで開催された。東アジアの酸性雨に世界の関心が集まり、その解決に日本の貢献が求められるようになった証といえよう。独り日本が最新の環境対策を施せばよいという時代ではなくなったのである。研究課題の中心もSO₂からNO_x、湿性沈着から乾性沈着、実態把握から現象のモデル化というように変化した。RAINS-Asia²⁵⁾に代表されるように、酸性雨の全体像を一貫したモデルで捉え、実効ある環境対策に役立てようという社会科学型の研究も志向されるようになった。

環境問題の発現が予測されたとき、あるいは既に発現しているとき、ソースとレセプタの関係を定量的に説明し、科学の成果を対策の実現に反映させる筋道は避けて通れない。両者を介在するのは、大気圏・水圏・地圏・生物圏における物質輸送と物質循環という基本原理である(図1-3-1)。相手国に対策の実現を迫るうえで、厳密な科学的裏付けが要求されるのはもちろんであり、1980年代にアメリカがカナダに反論したのもこの点であった。一方で科学的な結論を待って対策を講じたのでは、往々にして遅すぎるのも確かであり、ヨーロッパは政治決着で方向を求める道を選んだ。21世紀を迎え排出量の増大が予測される東アジアでは、今後の選択肢について議論が展開されることになる。

こうした趨勢をふまえて当研究所では、1997年からはフェーズIII(1997~2000年)として、「窒素化合物が関与した酸性雨」の研究を展開してきた。研究の目標は「広域輸送の評価」「環境影響の評価」「総合評価」の三つである(図1-3-2)。広域輸送の評価では、大気

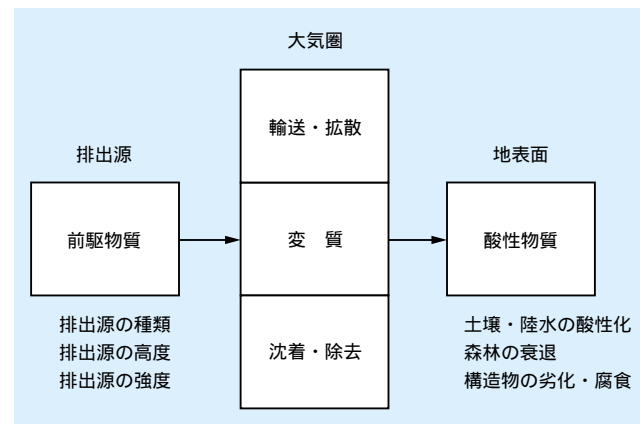


図1-3-1 環境大気中における酸性物質の輸送過程

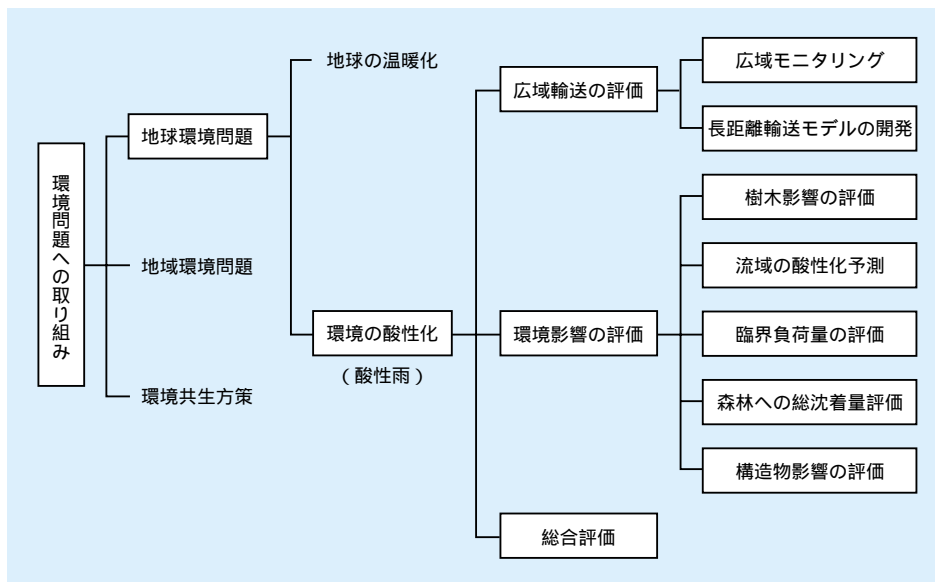


図1-3-2 電力中央研究所における酸性雨研究の展開

圏を対象に窒素化合物の動態を観測し、排出から沈着までの過程をモデル化する。環境影響の評価では、地表面に沈着した酸性物質が、地圏・水圏・生物圏を循環する過程を追跡し、環境が許容し得る負荷量を評価する。あわせて構造物影響や、樹木衰退におよぼす複合要因を解析する。総合評価では、将来のエネルギー需給を分析し、排出量の推移をシナリオ化して沈着量の変化を予測する。こうして酸性雨の全体像を明らかにし、施策に資する判断材料を提供することが目標で

ある。

人類が直面する経済 (Economics)、エネルギー (Energy)、環境 (Environment) の三つのEのトレードオフは、しばしば「トリレンマ」の名でよばれる⁹⁶⁾。トリレンマを解決するためには、環境の分野を切り離すことなく、三つの分野の叡智を結集して総合的に取り組む必要がある。当研究所では、酸性雨の研究で培った知見を活用し、アジアの環境問題の解決にむけて貢献していきたい。

第 2 章

2

酸性物質の広域輸送

第2章 酸性物質の広域輸送 目次

粕江研究所大気科学部長 上席研究員 藤田 慎一
粕江研究所大気科学部 上席研究員 市川 陽一
粕江研究所大気科学部 主任研究員 速水 洋

2 - 1 東アジアの酸性雨の実態	21
2 - 2 長距離輸送モデル研究の現状	26
2 - 3 広域輸送の将来予測	28
コラム1：ミックス・アジア	31

藤田 慎一（8ページに掲載）



市川 陽一（1977年入所）
大気汚染物質の輸送に関する研究に従事している。酸性雨の研究では、広域輸送評価を担当した。これまで、発電所の環境影響評価のために、排ガス拡散予測手法や石炭粉じんの飛散量予測手法を開発した。



速水 洋（1990年入所）
気象学と環境化学の学際分野に携わってきた。現在は、窒素化合物を対象に、野外観測と長距離輸送モデル開発に取り組んでいる。

2-1 東アジアの酸性雨の実態

2-1-1 はじめに

東アジア各国は1980年代に酸性雨のモニタリングを開始した。その結果、国ごとの状況はかなり判明したが、東アジア全域にわたる酸性雨の実態を把握するためには、統一手法によるモニタリングとデータ解析が不可欠である。こうした背景のもとに設立されたEANETは、2001年1月に活動を開始したばかりであり、現在のところ系統的な解析結果を報告するには至っていない。

ここでは数少ない統一手法によるモニタリングの一例として、1990年代の初頭に当研究所が中国、韓国、台湾の研究機関の協力を得て計18地点で行った結果に基づき、東アジアの降水化学の概要を紹介する。

2-1-2 降水組成の地理分布

降水がさまざまな溶存成分を含み、その濃度が地理的・時間的に大きく変動することはよく知られている。こうした溶存成分は、ふつう海塩起源と非海塩起源の二つに分けられる。海塩起源のなかで当量的に大きな割合を占めるのは、 Na^+ 、 Mg^{2+} 、 Cl^- の各成分である。これに対して非海塩起源のなかで当量的に大きな割合を占めるのは、 Ca^{2+} 、 NH_4^+ 、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- の各成分である。

溶存成分に占める海塩起源と非海塩起源の割合は、地域によって大きく異なる。たとえば北京や済南のような大陸の地点では、溶存成分の約85%が非海塩起源である。これに対して八丈島や奄美のような洋上の地点では、溶存成分の約85%が海塩起源である。濃度に降水量を乗じてフラックス（湿性沈着量）の形でみると、海塩成分の地理的な変動はきわめて大きい。これに対して、非海塩成分の地理的な変動は意外なほど小さい。

非海塩成分の発生源はさまざまであり、物質の種類に応じて、広域的なものと局地的なものとが複雑に重

畳している。その全貌の解明は今後の課題であるが、広域的なものを大雑把に括ると、塩基性のカルシウム（粒子）の発生源はおもに大陸の乾燥地帯にある。アンモニア（ガス）の発生源は、おもに大陸の農業・畜産地域にある。 SO_2 （ガス）の発生源は、おもに黄海から渤海湾にいたる沿岸地域（人為起源）と日本列島の南西部（火山起源）とにある。 NO_x の発生源は、広域的な発生源は SO_2 とほぼ一致するが、局地的な発生源は大都市圏に集中する傾向がある⁽¹⁾。

前駆物質の発生源が中国大陆と人間活動とに類型化されることから、降水組成の質的な特徴を検討するとき $[\text{nss-SO}_4^{2-} + \text{NO}_3^-]$ と $[\text{nss-Ca}^{2+} + \text{NH}_4^+]$ の値は、その起源や履歴を評価するうえでよい指標になる。農業環境技術研究所の鶴田治雄⁽²⁾は、前者を酸性化ポテンシャルAP、後者を中和ポテンシャルNPと定義して、日本、中国、北アメリカの降水の質的な違いを論じた。また国立公衆衛生院の原 宏⁽³⁾は $-\log[\text{AP}]$ をpAiと定義して、潜在的な酸性度の違いを論じている。

図2-1-1は、東アジアの各地点におけるAPとNPの年平均値の関係を示す。図中の実線は $-\log[\text{AP} - \text{NP}]$ の当値線であり、降水の酸性度を示す指標となる。こ

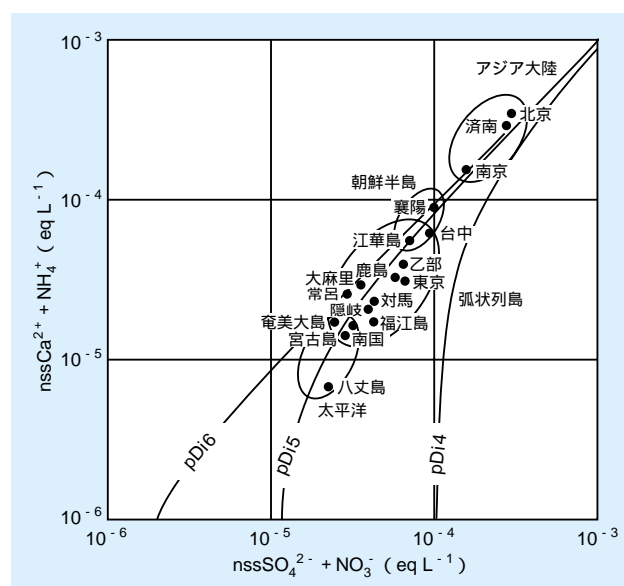


図2-1-1 東アジアにおける酸性化ポテンシャルAPと中和ポテンシャルNPの関係

の図から明らかなように、大陸北部にある北京や済南では、成分濃度の間にNP > APの関係が成立する。すなわちAPの値は高いがNPの値は相対的にさらに高い。これは人為起源の硫酸や硝酸を中和するのに十分な量のカルシウムやアンモニアが定常的に大気中に供給されており、雲内あるいは雲より下層で降水粒子に取り込まれていることを意味する。このため、アジア最大のSO₂発生域の一つである山東半島の後背に位置するにもかかわらず、年間を通して酸性度の強い雨は降ってない。

一方、太平洋上にある八丈島や奄美では、成分濃度の間にNP < APの関係が成立する。すなわちAPの値は低いとNPの値は相対的にさらに低い。このため、主要な発生域から数百 km 以上離れているにもかかわらず、年間を通して相対的に酸性度の強い雨が降るようになる。

地理的にみて中国大陆と太平洋の間に位置する朝鮮半島ではNP = APの関係が成立し、二つの値の大小関係は交互する。発生源からの距離に対する濃度の減衰率は、APよりもNPの方が大きく、NP/APの値は中国大陆から北太平洋に東南に下るにしたがって次第に小さくなる。つまり、水循環を介した酸性化物質と中和物質の除去過程には時間的な差異がある。

図2-1-2は各地点における降水のpHの出現頻度分布

を示す。全18地点の年平均値は約4.9であり、最大値は済南(pH 6.1)に、最低値は東京(pH 4.5)に見出される。pHの出現頻度は、大部分の地点で単峰型の分布を示すが、中央値は中国北部でpH 6.0 ~ 6.5、日本でpH 4.5 ~ 5.5にあるなど、分布パターンは地域的に異なる。ほぼ同じ経度上にある北京、済南、南京、台中の4地点の頻度分布をみると、緯度的に済南と台中の中間にあたる南京の頻度分布は、両地点の分布を重ねた双峰型のパターンを示す。これと類似した裾の広い頻度分布は朝鮮半島の西海岸にある江華島でもみられ、中国大陆の中部から朝鮮半島の西部の降水は、気象条件によって大陸性気塊と海洋性気塊の双方の影響を受けることが分かる。

東アジアの年降水量は、日本海の沿岸を特異点にして、東アジアの南東側で多く北西側で少ない分布を示す。台湾や日本の東海岸の降水量は3000 mm yr⁻¹を越えるが、中国北西部の降水量は200 mm yr⁻¹を下まわる。海域の降水量はよく分からない。東アジアの降水の成因はきわめて複雑であるが、溶存成分の湿性沈着量は、基本的に降水量と濃度の積で規定されるフラックスである。このため降水量(海域で多い)と濃度(大陸で高い)とが相殺される非海塩成分の湿性沈着量は、変動率が相対的に小さくなる。これに対して降水量(海域で多い)と濃

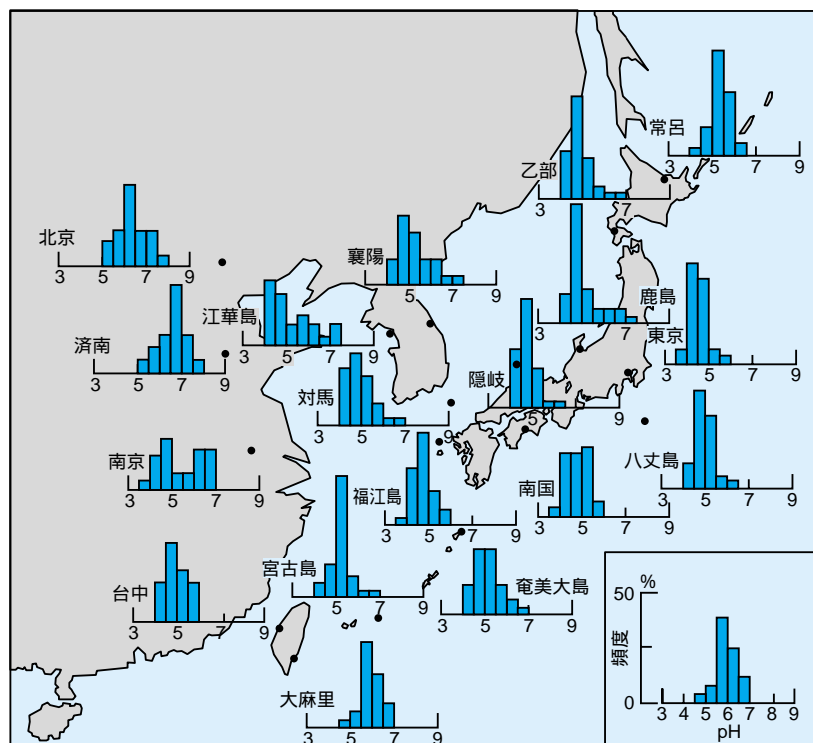


図2-1-2 東アジアにおける降水のpH出現頻度

度（海域で高い）とが重畳する海塩成分の湿性沈着量は、変動率が相対的に大きくなる。溶存成分の濃度のバランスでできる水素イオンの湿性沈着量も、結果的に変動率の大きな分布パターンを示す。このように非海塩成分の物質循環は、東アジア規模の水循環と密接に関係しており、これが当該地域における降水化学の特徴を形作っている。

2-1-3 降水組成の経年変化

1980年代の中ごろになると、国内の混乱が収束した中国でエネルギー消費量の増大が始まり、 SO_2 や NO_x の発生量は急激に増加するようになった。前駆物質の発生量の増加は、わが国の大気や降水に何らかの質的な変化を

もたらすのか？ 1990年代になるとこうした議論が活発に行われるようになった。

図2-1-3は西日本地域の6地点における1987～1996年の成分濃度（最大値、平均値、最小値）の経年変化を示す。降水の酸性度を支配する nss-Ca^{2+} 、 NH_4^+ 、 nss-SO_4^{2-} および NO_3^- の各濃度は、いずれも寒候季（10～3月）に高く、暖候季（4～9月）に低くなるのが分かる。過去10年間の変化をみると、観測事実として NO_3^- と NH_4^+ の濃度の増加は顕在化しており、この間の増加率は約45%に達する。これに対して nss-Ca^{2+} 濃度と nss-SO_4^{2-} 濃度は、経年的に横ばいであり、窒素化合物のような明瞭な変化は認められない⁽⁴⁾。

図2-1-4は西日本地域におけるAPとNPの月平均値

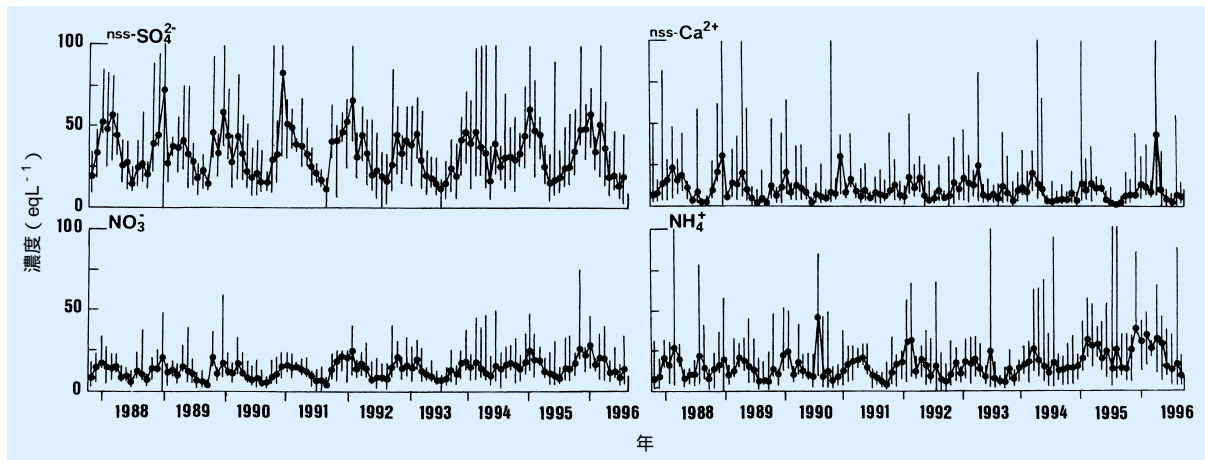


図2-1-3 西日本地域における降水中の nss-SO_4^{2-} 、 nss-Ca^{2+} 、 NO_3^- 、 NH_4^+ の経年変化

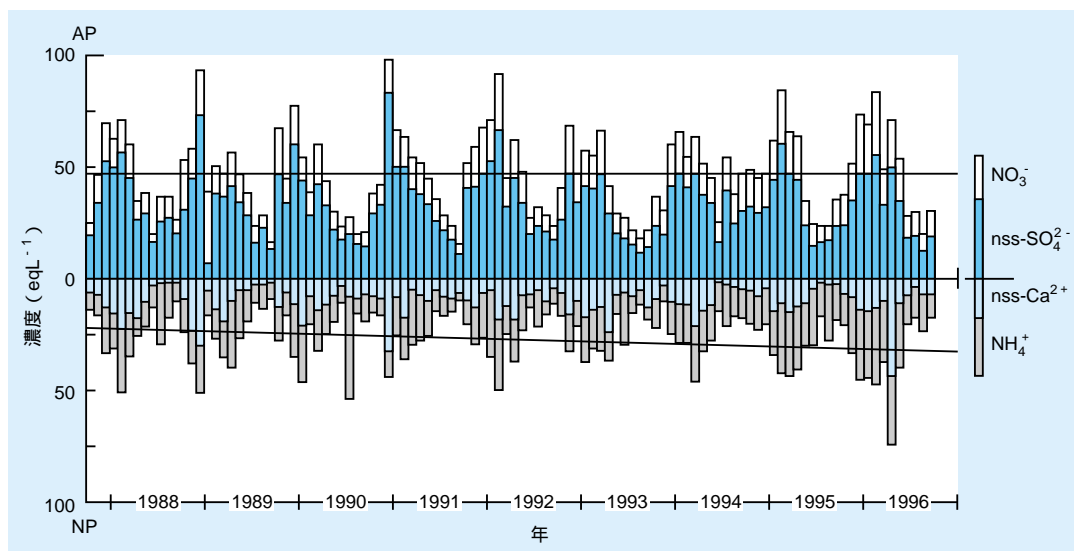


図2-1-4 西日本地域における酸性化ポテンシャルAPと中和ポテンシャルNPの経年変化

(降水量で荷重した6地点での平均値)の経年変化を示す。APとNPの値は、いずれも寒候期に大きく暖候期に小さくなることが分かる。APの値は季節間の差異が大きく経年的に横ばいである。これに対してNPの値は季節間の差異が小さく、経年的にやや増加している。その結果、西日本地域のNP/APの値は経年的にやや増加してきた。すなわちこの地域の降水の質は、NP/APの値が小さな海洋型から大きな大陸型へと漸進してきた。期間中の気象条件に大きな変化がなかったとすれば、こうした経年変化には、先駆物質の発生源の変化が関係している可能性が高い。

東アジア地域の生産活動は、近年、増大しており降水中の NO_3^- 濃度も増加している。にもかかわらずnss- SO_4^{2-} 濃度は横ばいで推移しており、明瞭な増加は認められない。その結果、西日本地域における $\text{NO}_3^-/\text{nss-SO}_4^{2-}$ 濃度比は、過去約10年間に27～51%の増加を示した。上記の6地点を包絡する三角形の領域のなかには活動中の7火山がある。当研究所の計算によれば、わが国の陸域におけるnss- SO_4^{2-} の湿性沈着量の20～30%は火山起源である。年間の SO_2 発生量が約360 GgS yr⁻¹と人為起源に匹敵する桜島の活動は、近年やや静穏化している。だが火山からの SO_2 の発生量が減少したことを裏付ける明確なデータは現在のところない。 $\text{NO}_3^-/\text{nss-SO}_4^{2-}$ 濃度比の単調な増加は、間欠的な火山活動の変動のみで説明することは困難であり、東アジアにおける NO_x 発生量の増加が深く関係しているものと推察される⁽⁶⁾。

降水の $\text{NO}_3^-/\text{NH}_4^+$ 濃度比は、一定の季節変化を示すものの、経年的にみればかなり一様である。つまり見かけ上、 NO_3^- の増加に見合うだけの NH_4^+ がほぼ定常的に降水中に存在している。これは、硝酸の中和に働くおもな物質がアンモニアであること、その発生量は経年的に増加していること、硝酸とアンモニアは類似した履歴をへて降水要素に取り込まれものであることを示唆する。つまり他の成分と同様に、海を越えたアンモニアの輸送はすでに顕在化していると考えてよい。

一般に降水中のアンモニアは、地表面に沈着した後、土壤微生物により硝酸に変換され、結果的には生態系の酸性化に寄与する。したがって東アジアで酸性雨の環境影響を考えるときには、大気系だけではなく、土壌・生態系も含めた総合的な評価が必要である。

2-1-4 日本列島における硫黄化合物の収支

観測データの蓄積が進むにつれて明らかになった重要な結論の一つは、冬季の日本海沿岸に多量の SO_4^{2-} が湿性沈着していることである。

硫黄化合物の起源や履歴を明らかにする方法はいくつかある。第1は観測データの解析である。たとえば、高濃度が観察されたときの気塊の履歴を分類して発生源の方向を推定する。第2は発生源に固有な物質の分析である。たとえば、硫黄や鉛の同位体比を大陸と日本の化石燃料中のそれと比較して発生源を推定する。第3は大気下層での物質収支の解析である。比較的広い地域で流入、流出、発生、沈着の各量を計算し、それらの加減により圏外からの流入を評価する。第4は長距離輸送モデルの解析である。輸送中に起こる物理・化学現象を計算機のなかで再現し、発生源の寄与を定量的に見積もる。本項ではこのうち第3の収支解析の結果を紹介したい。

いま日本列島に大きな仮定のボックスを重ねたとする。このボックスの中での硫黄化合物の濃度の時間的な変化率は、発生量、沈着量、流入量、流出量の和で与えられる。定常状態を仮定したとき、以上4つの和はゼロになる。ボックスの床面積は約720,000 km²であり、その約50%が海域、残りの約50%が陸域である。陸域の約70%が森林、約20%が水田や畑地であり、都市域の占める割合は5%以下にすぎない。

図2-1-5は収支解析の結果であり、1980年代後半の人為発生量、湿性沈着量、乾性沈着量、人為発生量に対する総(湿性+乾性)沈着量の比が114のメッシュと15の気候区別に集計してある⁽⁷⁾。

人為起源の SO_2 の発生量は、生産活動の指標などをもとに見積もる。推計された発生量は約435 GgS yr⁻¹で

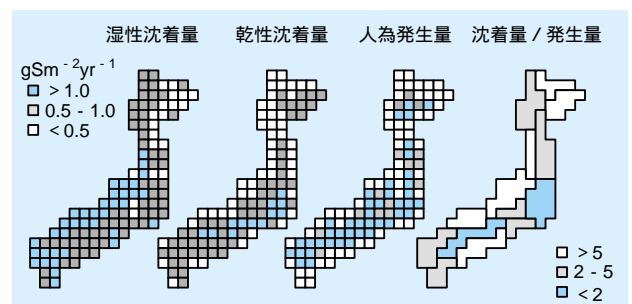


図2-1-5 日本列島における硫黄化合物の収支

あり、全量に占める固定源と移動源の割合はおおむね 80 : 20 である。発生源の分布をみると中央の山脈の南側、つまり首都圏から北九州にいたる沿岸地域に帯状に分布している。東アジア全域の発生量 (11.5 TgS yr^{-1}) に占めるわが国の割合は約 4 % である。

SO_4^{2-} の湿性沈着量は、降水濃度と降水量の観測データをもとに見積もる。推計された沈着量は約 620 GgS yr^{-1} である。日本海側の気候区では、寒候期の沈着量が年間の 2/3 を占め、また中央山脈の南側の気候区では暖候期の沈着量が年間の 2/3 を占める。全域を通年でみると暖候期と寒候期の沈着量の割合はほぼ半々である。

SO_2 (ガス) と SO_4^{2-} (粒子) の乾性沈着量は、大気濃度と沈着速度をもとに見積もる。地表面に近いある高さでは、乾性沈着フラックスはその高さでの濃度に比例すると考え、速度の次元をもつ比例定数を沈着速度で定義する。沈着速度には地表面の状態や微気象的な条件が含まれており、土地利用や風速分布など入手可能な情報を加工して計算する。推計された乾性沈着量は約 430 GgS yr^{-1} であり、全量に占めるガスと粒子割合はおおむね 90 : 10 である。

沈着量 / 発生量の比率は地域的に異なるが、この値が 4 以上の気候区は、みかけ上明らかに沈着量が過剰な領域である。こうした領域は沿岸地域への集中が著しい。これに対してこの値が 2 以下の気候区は、発生にほぼ見合う量の硫黄分が沈着している領域である。こうした領域は中央山脈の南側に集中している。日本全体をみると、沈着量 / 発生量の比率は約 2.4 となり、これは日本列島に沈着する硫黄化合物の全量はみかけ上、この地域からの発生量を 2 倍以上上まわることを意味する。

もちろんこうして推計には誤差を伴う。だが以上の計算から得られる重要な結論は、日本列島の全体をみれば沈着量は発生量を大きく上まわること、日本海側と太平洋側とでは収支の構造がかなり異なることである。定常状態を仮定すれば、日本海側でみられる過剰な硫黄化合物の起源は、天然起源の硫黄化合物、あるいは圏外からの流入のいずれかに求めなければならない。

天然起源の硫黄化合物として重要なのは、海塩起源の硫酸塩、火山起源のガス状硫黄、生物起源の還元態硫黄

の三つである。日本列島は世界有数の火山地域であり、活火山の総数は 83 を数える。1980 年代後半に噴煙活動がみられた火山には桜島、阿蘇山、諏訪之瀬島など 12 がある。火山起源の硫黄の発生量は約 500 GgS yr^{-1} と推計され、これは人為起源の SO_2 発生量に匹敵する⁽⁸⁾。中国大陸や朝鮮半島に活動中の火山はない。これらのなかで、1980 年代に最大量の SO_2 を放出した火山は、九州の南に位置する桜島である。生物起源の硫黄の発生量は明確でない。だが既往の海洋観測データなどから大胆に推計すると約 70 GgS yr^{-1} となり、火山起源や人為起源よりも相対的に小さいとみられる。

以上の推計から明らかなことは、天然起源の硫黄化合物のなかで、日本列島の硫黄の収支に最も大きく関係するのは火山活動だということである。現に火山の影響を考慮すると、発生量に対する沈着量の比率は 1 に近い値になる。だが、火山の分布は地理的に偏在しており、また噴煙の流出経路は季節的に大きく変化する。たとえば桜島をみると、暖候期には日本列島の上層へ向かう流れが優勢であるが、寒候期には太平洋上に流出する割合がきわめて高い。このため寒候期の日本海側でみられる高濃度の原因を、火山活動のみで説明することは風系的にみて困難である。

では、冬季の高濃度はどのように説明されるのだろうか。シベリア高気圧が優勢な寒候期に北西風によって日本海に押し出された乾燥気塊は、日本海を吹走する間に水蒸気の供給を受け対流不安定となる。この湿潤気塊は、日本列島の背骨をなす山脈に当たって強制上昇し、日本海側の北斜面に特異的に大雪をもたらす。卓越風によって海上に輸送された硫黄分はこの過程で降雪雲に取込まれ沿岸地域に湿性沈着する。海塩粒子の発生量は、海域の風速に直接関係するから、日本海域で発生した海塩起源の硫酸塩も、この過程で雲内あるいは雲より下層で降水粒子に取込まれ沿岸地域に湿性沈着する。硫黄分の一部を消失した乾燥気塊は、中央山脈を越えて太平洋側に流出する。沿岸地域でみられる沈着量と発生量の差は、定常モデルでもある程度の説明は可能である。だが、硫黄化合物の起源や履歴を定量的に評価するためには、長距離輸送モデルによる解析が不可欠である。

2 - 2 長距離輸送モデル研究の現状

2-2-1 はじめに

大気中の主要な酸性物質は硫酸と硝酸である。このうち硫酸とその前駆物質（以下、硫黄化合物）は、モデル化を行う上で扱いが比較的容易である。このため輸送モデルの研究は硫黄化合物を中心に進展してきた。一時期のモデル開発ラッシュはひと段落つき、発生源寄与評価などの解析結果もほぼ出揃った。現在はモデルの相互比較や長期トレンドの予測といった応用的な段階に入っている（2-3参照）。

当研究所はこれまで、アメリカのアイオワ大学、台湾電力公司 / 台湾大学と共同研究の体制を組み、モデルの相互比較を進めてきた。アイオワ大学との共同研究の成果はすでに報告済みである⁽⁹⁾。2-2-2では台湾電力公司 / 台湾大学とのモデル比較研究を紹介する。この共同研究は、より総合的なモデル比較研究であるミックス・アジア（コラム1参照）に引き継がれており、モデルの現状認識と性能向上が期待されている。

硝酸とその前駆物質（以下、アンモニアを含め窒素化合物と呼ぶ）を対象としたモデル開発は発展途上にある。窒素化合物は粒子化することで長距離輸送されるため、大気中の窒素化合物の形態（ガス、粒子）を予測することが不可欠である。2-2-3では当研究所における取り組みのなかから、硝酸・硝酸塩のガスと粒子相間の分配に関する研究を紹介する。

2-2-2 硫黄化合物の長距離輸送モデルの比較研究

当研究所と台湾電力公司 / 台湾大学は、それぞれのモデルを用いて硫黄化合物の輸送計算を行い、結果を相互比較する共同研究を実施した⁽⁹⁾。両機関のモデルの概要を表2-2-1⁽¹⁰⁾に示す。大きな違いはモデルの型と物理・化学過程の扱い方である。輸送計算は冬期（1993年1月中旬）と台湾の梅雨期（1993年5月下旬）を対象に行った。入力条件のうち発生源データは共通とした。気象データは、当研究所のモデルにはアメダス、高層気象などの観測データを数学的に補間したものを、時間・空間的に高解像度で多要素の気象データを必要とする台湾側のモデルには、地域気象モデルで計算した予測値を用いた。

対象期間に当研究所の酸性雨モニタリング地点で得られた観測値に対する計算結果を図2-2-1と図2-2-2に示す。硫黄化合物の大気中濃度（図2-2-1左・中央）については、両モデルともほぼ妥当な予測性能を持つことがわかった。台湾側のモデルは当研究所のモデルよりも予測濃度が若干低いものの、両モデルとも高濃度側で過小予測するなど予測傾向は類似した。この過小予測は、発生源データが60 km四方の平均値であるため、局所的な発生源の影響を考慮できなかったことが原因と考えられる。硫黄化合物の変質割合（= 粒子状硫酸塩 / 全硫黄化合物；図2-2-1左）については、変質過程を非常に簡略

表2-2-1 電中研と台湾電力 / 台湾大学の長距離輸送モデル⁽¹⁰⁾

名称	電中研 トラジェクトリー型長距離輸送モデル (TRJ)	台湾電力公司 / 台湾大学 Taiwan Air Quality Model (TAQM)
基本構造	トラジェクトリー型 風に沿って流れる気塊の濃度を計算	オイラー型 空間を三次元格子に区切って濃度を計算
対象物質	硫黄化合物	硫黄化合物, 窒素化合物, 他
気象場	観測データの単純内挿 上空の風, 降水量	地域気象モデルMM5の出力 風, 降水量, 気温, 水蒸気量, 他
輸送拡散	二次元	三次元
湿性沈着	パラメタ化した雲内・雲下洗淨	液相化学, パラメタ化した雲内・雲下洗淨
乾性沈着	設定した乾性沈着速度	抵抗式による乾性沈着速度
気相化学	2化学種 (SO ₂ , 粒子状硫酸塩), 1反応式	63化学種, 157反応式

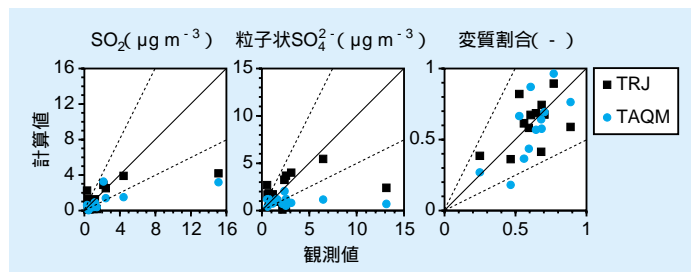


図2-2-1 観測値（1993年1月）と計算結果の比較

TRJは電中研モデル、TAQMは台湾側のモデルを示す。

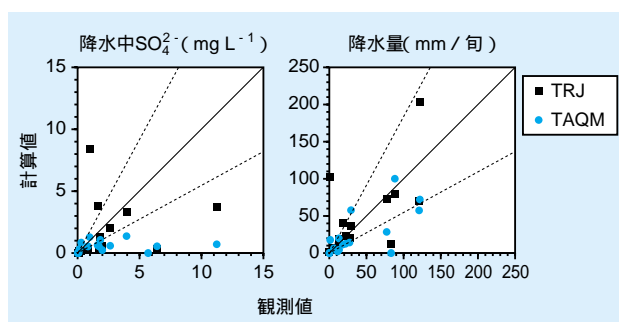


図2-2-2 観測値（1993年5月）と計算結果の比較

化した当研究所のモデル、および詳細に扱った台湾側のモデルともに観測値を良好に再現した。

これらの結果に比べて、降水中の硫酸イオン濃度（図2-2-2左）は予測精度が劣り、極端に予測が外れる地点も見られた。降水量（図2-2-2右）についても同様であった。降水中の硫酸イオン濃度は降水量の影響を大きく受けるため、その予測精度も降水量の予測精度に依存する形となった。

この共同研究ではほかにも計算を行い、硫黄化合物の旬平均濃度と旬間沈着量の予測値はモデルのタイプ（トラジェクトリー型とオイラー型）による違いが少ないこと、予測精度はむしろ空間解像度と降水量予測に影響されること、変質過程は簡略型でも十分に表現できることなどが明らかになった。

2-2-3 硝酸・硝酸塩のガス・粒子相間分配

硝酸・硝酸塩はガスあるいは粒子の形態をとる。両者の沈着特性は大きく異なるため、沈着量を予測・評価するには両者を分けて扱う必要がある。さらに粒子は粒径 $2.5 \mu\text{m}$ を境に、微小粒子と粗大粒子とで化学組成も大きく異なることが知られている。そこで当研究所は、3

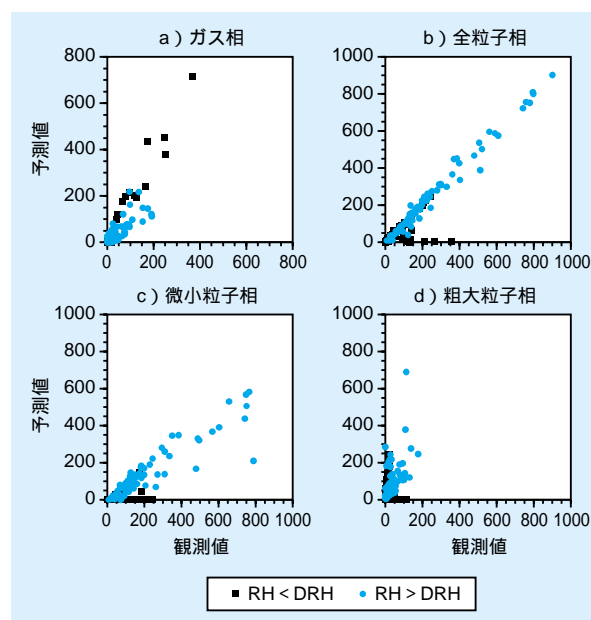


図2-2-3 微小・粗大粒子相がガス相と同時に平衡状態にあると仮定して予測した相別硝酸・硝酸塩濃度と観測濃度 (nmol m^{-3})

RHは湿度、DRHは硝酸アンモニウムの潮解点を示す。

相（ガス、微小粒子、粗大粒子）の硝酸・硝酸塩濃度を把握すべく、日単位の観測を通年で行っている。この観測では、上流側からインパクト、デニューダ、フィルターバックを組み合わせて、1ラインで3相を同時捕集できるサンプラーを用いている¹¹⁾。ここでは、時間解像度を日単位から3あるいは6時間に上げて東京都狛江市（当研究所の構内）で行った特別観測の解析結果を紹介する。

この特別観測は1998年2月と8月に行い、計150のサンプルを得た。このサンプルを対象に、微小・粗大の粒子相がいずれもガス相と平衡にあると仮定して解析した。平衡反応の計算にはEQUISOLV II¹²⁾を用いた。図2-2-3は相別に観測値と予測値を比較したものである。湿度が硝酸アンモニウムの潮解点以上の場合についてみると、

微小粒子相と粗大粒子相を足し合わせた全粒子相の予測濃度は、観測濃度とほぼ1:1の対応を示した。したがって、ガス相と全粒子相間の分配は良好に再現されたと考えてよい。その一方で、微小粒子相は高濃度側で過小予測し、粗大粒子相は全体的に過大予測した。粒子相全体では観測値をほぼ再現したのだから、微小粒子相の過小予測分が粗大粒子相として予測されたことになる。

実大気においては、ガス相と粒子相は必ずしも平衡状態にはない。だが、ガス状の硝酸が微小粒子表面へ到達する時間は通常秒から分のオーダーであり、ほぼ平衡状態にあるとみてよい。一方、粗大粒子は平衡までに数日を要する場合がある⁽¹³⁾。このため微小・粗大の粒子相がいずれもガス相と平衡あると仮定したのでは、硝酸が粗大エアロゾル相に速く移動してしまい、過大予測をもたらすことになる。

そこで、粗大粒子相はガス相と平衡に達していないと仮定してこれを系から除外し、ガス相と微小粒子相間の平衡計算を行った。結果を図2-2-4に示す。微小粒子相

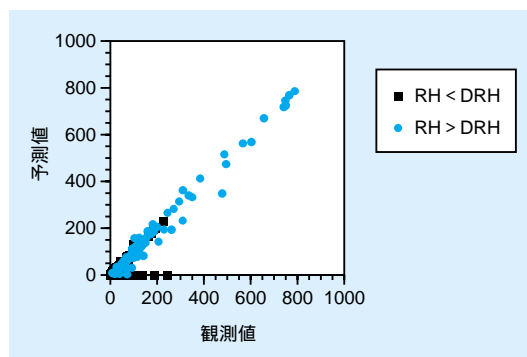


図2-2-4 微小粒子相のみがガス相と平衡状態にあると仮定して予測した微小粒子相の硝酸塩濃度と、観測濃度 (nmol m^{-3})
RHは湿度、DRHは硝酸アンモニウムの潮解点を示す。

への分配が良好に再現されるようになり、仮定の妥当性が確認された。この仮定は、先の仮定では適用範囲外であった湿度が硝酸アンモニウムの潮解点よりも低い場合にも適用できる。

2 - 3 広域輸送の将来予測

2-3-1 はじめに

アジアにおける越境大気汚染の解析結果が1992年にはじめて紹介されたとき⁽¹⁴⁾、そうした問題を議論する環境は整っていないという批判の声が一部にあった。しかしその後、多くの研究者が解析結果を報告するようになり(たとえば市川⁽¹⁵⁾)、最近では世界銀行の「RAINS-Asia プロジェクト」、国連開発計画・国連経済社会部の「北東アジアの越境大気汚染のモデリングに関する専門家会議」、オーストリアの国際応用システム分析研究所が主催した「アジアの大気汚染物質の輸送に関するワークショップ」(コラム1参照)のように、アジアでも国際的な議論の場が設けられるようになってきた⁽¹⁶⁾。

越境大気汚染の解析は、適切で効率のよい環境対策を考えるうえで必要不可欠である。高価な排煙処理施設を東アジア全域にすぐに導入することは不可能であり、大

気汚染が効果的に低減される地域を優先せざるを得ない。その場合、将来のエネルギー需要と排出抑制のシナリオのもと、酸性物質の沈着量がどのように増減するのかを容易に解析するツールが役に立つ。

本節では、当研究所が行った越境大気汚染の解析結果と将来予測の解析ツールを紹介する。

2-3-2 越境大気汚染の解析

当研究所では硫黄化合物の長距離輸送モデルとして、トラジェクトリー型⁽¹⁷⁾、⁽¹⁸⁾およびトラジェクトリーとオイラーのハイブリッド型⁽⁵⁾、⁽¹⁹⁾のモデルを開発した。これらのモデルの妥当性は、当研究所がわが国の21地点で取得した通年観測データとの比較により検証した。ハイブリッド型モデルで予測したわが国の硫黄沈着量は、観測値の80%強であり、多くの地点で両者はファクター2(1/2~2倍)以内で一致した。このようにモデルの予測

精度は高い。トラジェクトリー型モデルについては、乾性沈着量の予測結果はハイブリッド型モデルよりも多少低かったが、湿性沈着量については大差がなかった。

妥当性が確認されたハイブリッド型モデルを用いて、わが国に沈着した硫黄がどの国・地域から輸送されてきたのかを推定した。結果を図2-3-1に示す。ロシア、モンゴル、台湾の影響は、合計しても1%程度と小さく、この図には現れていない。日本全域で見ると、わが国の人間活動による影響が40%、火山の影響が20%、大陸の影響が40%を占める。寒候期は季節風の影響により日本海側で大陸の影響が80%を超える。

当研究所の予測結果は大阪府立大学²⁰⁾の予測結果と近いが、世界銀行²¹⁾とは火山と大陸の影響の点で、中国科学院²²⁾とは全体的に大きな差が見られた²³⁾。これらの相違の原因を探るため、長距離輸送モデルの比較計算プロジェクト「ミックス・アジア」が実施された(コラム1参照)。

2-3-3 酸性物質沈着量の将来予測解析ツール

当研究所は国際応用システム分析研究所と共同で、わが国における酸性物質沈着量の将来予測解析ツールTRAJEC(Trans-sea of Japan and East China sea system)を開発した。特徴は以下の通りである。

- ・将来の沈着量は、現状の発生 - 沈着関係(ある地域で発生した大気汚染物質がどこにどれだけ沈着するかを表す行列)と将来の排出量伸び率から計算する。
- ・対象物質は、現在のところ硫黄化合物であるが、窒素化合物についても近々組み込む予定である。
- ・対象期間は1990年～2030年である。排出量と沈着量の基準年は1995年である。
- ・Windows 95/98上で沈着量の計算、排出量・沈着量のマップ表示、排出・沈着データファイルの編集ができる。
- ・マップ上である地点を指示することにより、その地点の排出量、沈着量、影響を及ぼす地域などの数値情報が得られる。

硫黄の発生・沈着関係は、当研究所のトラジェクトリー型モデルで計算した。人為起源の排出量は現在得られる最新(1995年)の1度格子データを用いた。火山から

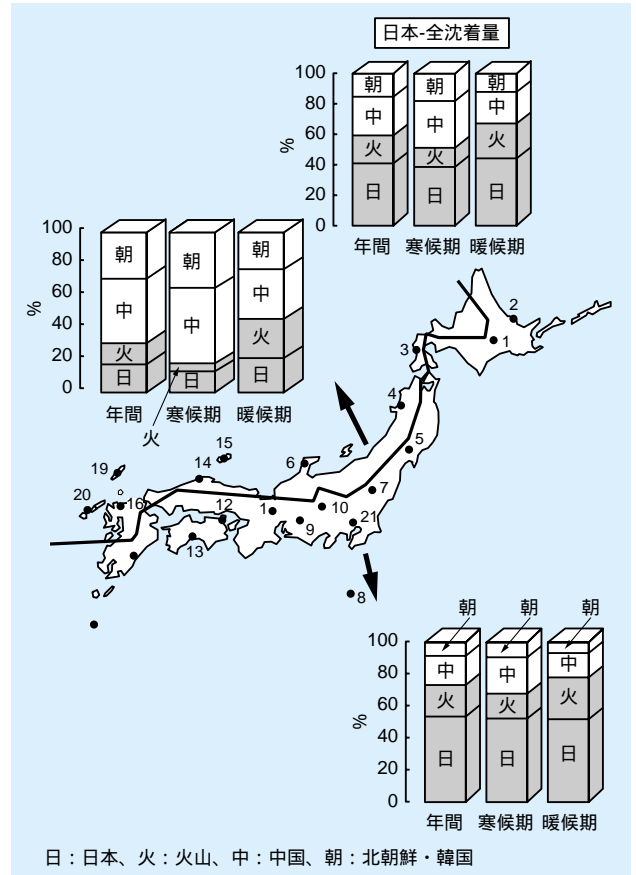


図2-3-1 わが国に沈着する硫黄化合物の発生源

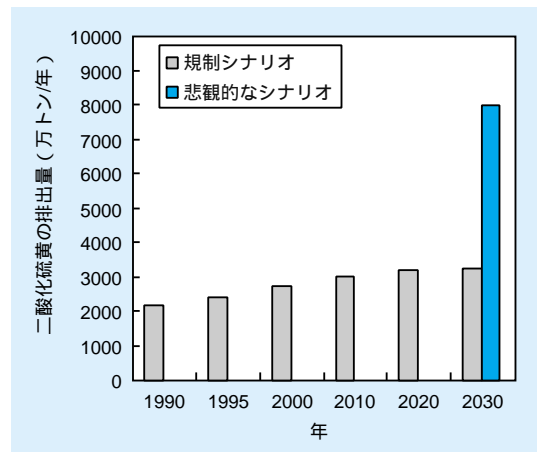


図2-3-2 東アジアの二酸化硫黄排出量の経年変化予測

の排出量も考慮した。列として与える発生源は東アジアの51小領域と火山から成り、行として与える沈着点は日本を1度間隔で区切った88格子点から成る。

図2-3-2は東アジアの二酸化硫黄排出量の経年変化を示す。この図の規制シナリオには、東アジア各国・地域の現状の規制が反映されている。つまり、日本にはすべ

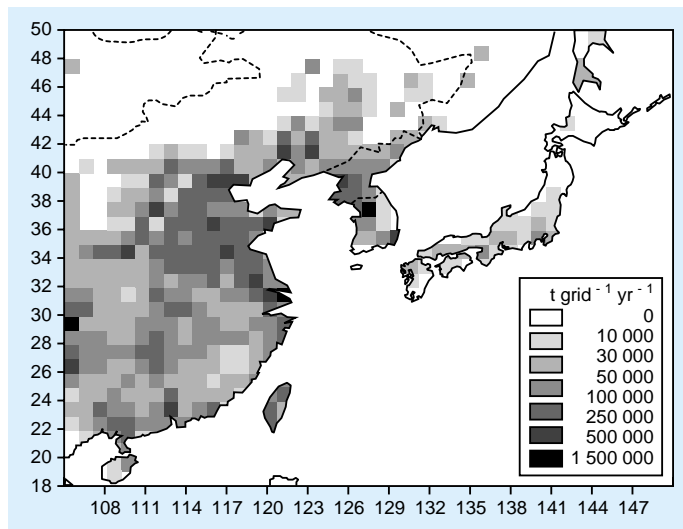


図2-3-3 2030年における東アジアの二酸化硫黄排出分布の予測

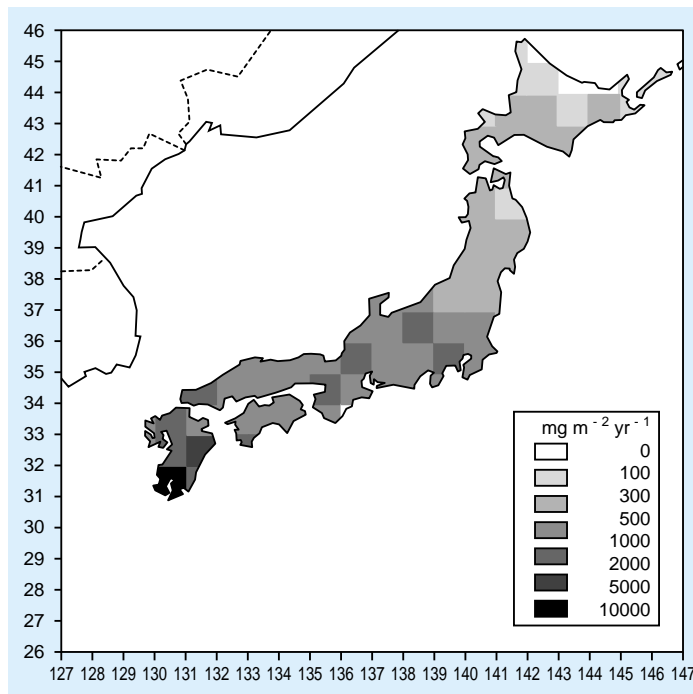


図2-3-4 2030年におけるわが国の硫黄沈着量分布の予測

ての産業部門で既設、新設を問わず高効率の湿式脱硫装置の導入と燃料の低硫黄分を課し、韓国・台湾・香港にはすべての新設の燃焼プラントに高効率湿式あるいは同等の脱硫装置の導入と燃料の低硫黄分を課し、中国には新設の発電所に対して地域の事情に応じて燃料転換や簡易脱硫装置の導入を課している。

現状規制シナリオにおける2030年の東アジアの二酸化硫黄排出量分布とわが国の硫黄沈着量分布をそれぞれ

図2-3-3、図2-3-4に示す。このシナリオでは、わが国の2030年の硫黄沈着量は1995年に比べて約20%増加した。中国の2030年のエネルギー消費量が1995年の2.7倍に、二酸化硫黄排出量が3.5倍になるといふかなり悲観的なシナリオ²⁴⁾では、日本海側で硫黄の沈着量が2倍になる地域が生じた。こうした硫黄沈着量の増加は、主に朝鮮半島の西にある渤海湾と黄海を囲む領域の排出量が増加することによる。

コラム1 ミックス・アジア

モデルによって異なる発生・沈着関係

1990年代はアジアを対象とした長距離輸送モデルの開発と越境大気汚染の解析が進んだ時代であった。日本、韓国、中国、台湾のみならず、欧米の研究者からもアジアの大気汚染物質の輸送に関する研究成果が多数発表された。しかし、発生・沈着関係に着目すると、結果に違いが見られる。長距離輸送モデルの妥当性は観測データをもとに検証される。ところが、妥当性を確認したモデルを用いて発生・沈着関係の評価しても、モデルによって結果が異なるという奇妙なことが起こる。この原因を探るため、研究者が一堂に会して計算結果の相違について議論する必要があった。国際応用システム分析研究所（IIASA^(注1)）と当研究所は、広域輸送評価の整合性をとることの重要性を認識し、「アジアの大気汚染物質の輸送に関するワークショップ」を開催した。

欧米亜から20を超える機関が参加

1998年7月、99年7月、2000年9月にIIASAで開催された。第1回会議では長距離輸送モデルの比較計算プロジェクト「ミックス・アジア」^(注2)の提案、第2回会議では比較計算結果の紹介^(注3)、第3回会議では比較計算の総括が行われた。会議参加機関のリストを表1に、第3回会議の参加者を写真1に示す。

モデルの整合性評価の大きな第一歩

当研究所は1995～1998年に台湾電力/台湾大学

表1 「アジアの大気汚染物質の輸送に関するワークショップ」の参加機関

国・地域	機関名
日本	電中研, 京都大, 山梨大, 東京大, 九州大, 気象研, 大阪府大, 酸性雨研究センター
韓国	科学技術研, 延世大
中国	科学院大気物理研, 同済大, 清華大
台湾	雲林技術科学大
米国	アイオワ大, プリンストン大, アルゴンヌ国立研, ジョージア工科大
欧州	イアサ, スウェーデン気象水文研, イタリア大気物理研

はミックス・アジアの参加機関



写真1 ワークショップの参加者

と共同研究を実施し、両機関の長距離輸送モデルによる比較計算を行った。ここで得られた成果^(注4)がミックス・アジアの下地になった。これをベースに、当研究所、アメリカ・アイオワ大学、九州大学が必要なデータを用意し、比較計算の始まりとなった。ミックス・アジアに対して、解析の事例数が十分でない、評価地点が日本に偏っているなどの指摘はあったが、参加した8つのモデルの計算結果から、「個々の結果には当然違いが見られるが、発生・沈着関係を含めて予測結果の大まかな特徴は一致している。例えば、二酸化硫黄の濃度分布のパターンやある地点の沈着量に影響を与える主発生源地域などは各モデルで似ている。また、モデルパラメータを極端な値にしなければ、予測結果の違いは、鉛直輸送の扱いなどモデルの構造に起因するのではないか。」ということが明らかであるいは示唆された。このような結果が得られたことは、モデル間の相違とその原因を明らかにするための大きな第一歩といえる。今後、ミックス・アジアが発展的に継続していくことを期待する。

注1：イアサ（IIASA: International Institute for Applied Systems Analysis）と呼ばれる非政府、非営利の国際研究機関。所在地はオーストリアのラクセンブルグ。エネルギーと技術、人口と社会、環境と資源などの問題が得意である。

注2：MICS-ASIA（Model InterComparison Study of Long Range Transport and Sulfur Deposition in East Asia）

第

章

3

森林生態系における酸の
挙動

第3章 森林生態系における酸の挙動 目次

狛江研究所大気科学部 上席研究員 佐藤 一男
狛江研究所大気科学部 主任研究員 高橋 章
狛江研究所大気科学部 主任研究員 若松 孝志

3 - 1 森林への酸の総沈着量	35
3 - 2 土壌 - 植生系における酸の収支	37
3 - 3 臨界負荷量とアルミニウムの化学	40
コラム2：窒素飽和の功罪	44



佐藤 一男（1982年入所）
石炭灰埋立地の環境影響評価，酸性雨の土壌影響評価を行ってきた。現在は，森林生態系の物質循環の研究に取り組んでいる。



高橋 章（1988年入所）
酸性雨のモニタリング，酸性物質の乾性沈着に関する研究に従事してきた。現在は，森林への化学物質の沈着量評価の研究に取り組んでいる。



若松 孝志（1996年入所）
酸性雨の土壌影響を評価するため，森林土壌における酸の収支の評価を行ってきた。現在は，森林生態系の物質循環の研究に取り組んでいる。

3 - 1 森林への酸の総沈着量

3-1-1 はじめに

わが国の国土は、その約7割が森林に覆われている。このため酸性雨による環境影響の中では、森林生態系に及ぼす影響が最も重要な検討課題の一つである。

酸性雨によって、はたしてどの程度の酸(H^+)が森林に負荷されているのか。この問題は生態系への影響を評価するうえで最も基本的な問題であるが、答を得るのはそう簡単でない。 H^+ は降水によって森林にもたらされる(湿性沈着)ほかに、酸性ガスの形で樹冠に沈着している(乾性沈着)。湿性沈着量は降水中的の H^+ 濃度に降水量を乗じることで推計できるのに対し、乾性沈着量を実測することは極めて難しい。このため、わが国では乾性沈着に関する研究が遅れており、沈着量の実態はあまり知られていなかった。

こうした背景のもと、当研究所はインフェレンシャル法と呼ばれるモデルを用いて乾性沈着量の推計を行ってきた。本節では、群馬県のスギ林を対象に H^+ の総沈着量(湿性+乾性)を推計した結果を紹介する。

3-1-2 実験林における酸性雨調査

当研究所は群馬県から県有林の一部を借り受け、1996年4月から5年間にわたって酸性雨に関する総合調査を実施した。調査の目的は森林生態系における酸の挙動と収支を明らかにすることである。以下では借用した林地を「実験林」と呼ぶことにする。

実験林は群馬県妙義町の大桁県有林内に位置し、面積が11.4 haの集水域をなしている(図3-1-1)。標高は520~720 m、主な植生はスギ(63%)、ヒノキ(27%)、アカマツ(10%)である。集水域の出口から約100 m上流に入ったスギの一斉林内に、20 m×60 mの調査区を設定し、集中観測を実施した。調査区内のスギ個体数は127本、樹齢は39年、樹高は約20 m、平均胸高直径は23.7 cmであった。

調査区のほぼ中央に高さ約30 mの観測タワーを設置

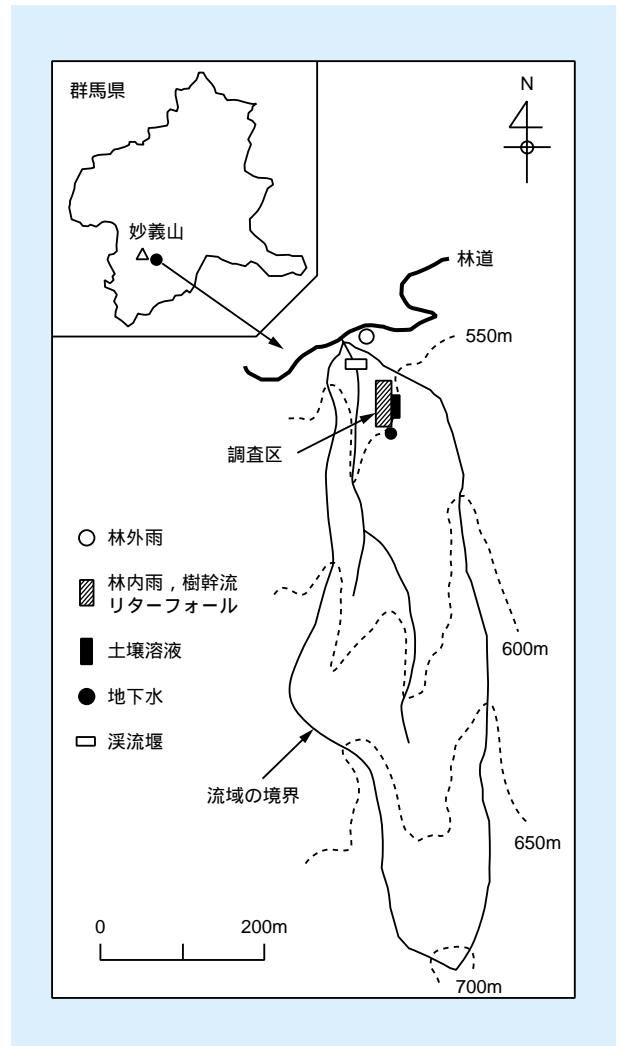


図3-1-1 実験林の位置

し、その塔頂で樹冠より上の気象要素(風向、風速、温湿度、日射量)と大気質(SO_2 、 NO_2 、 HNO_3 、 HCl 、粒子状物質)の連続観測を行った。また、タワー中間の樹冠近傍に結露計を設置し、ぬれ時間の観測を行った。これと併行して、胸高直径が平均的なスギ5本を選び、林内雨と樹幹流の採取を行った。林外雨は集水域出口の平坦地で採取した。土壌溶液や植生調査の概要は3-2を参照されたい。以下に述べる解析では1997年10月~1998年9月の1年間のデータセットを用いた。

3-1-3 SO₂の乾性沈着に及ぼす葉面のぬれ効果

はじめに代表的な酸性ガスであるSO₂の乾性沈着について検討した⁽¹⁾。SO₂は水に対する溶解性が比較的高い。このため森林への乾性沈着量は、葉面のぬれ具合によって大きく変動することが予想される⁽²⁾。図3-1-2(下)は結露計で観測した月ごとのぬれ時間の割合を示す。ぬれ時間は冬季から夏季かけて増大する傾向が認められた。観測期間を寒候季(10月~3月)と暖候季(4月~9月)に分けると、寒候季のぬれ時間はわずか17%であったのに対し、暖候季は60%に及んだ。このように観測地点のスギ林は、暖候季に極めて湿潤な状況にあることが分かった。こうしたぬれ時間の変動がSO₂の乾性沈着量に及ぼす影響をインフェレンシャル法⁽³⁾を用いて評価した。

インフェレンシャル法は乾性沈着のプロセスを比較的簡易なモデルで表現し、気象データや濃度データを用いて、対象成分の乾性沈着量を推定するものである。既存の気象や濃度のデータを利用すれば、新たなデータの取得は不要であり、また全国規模の沈着量の推定

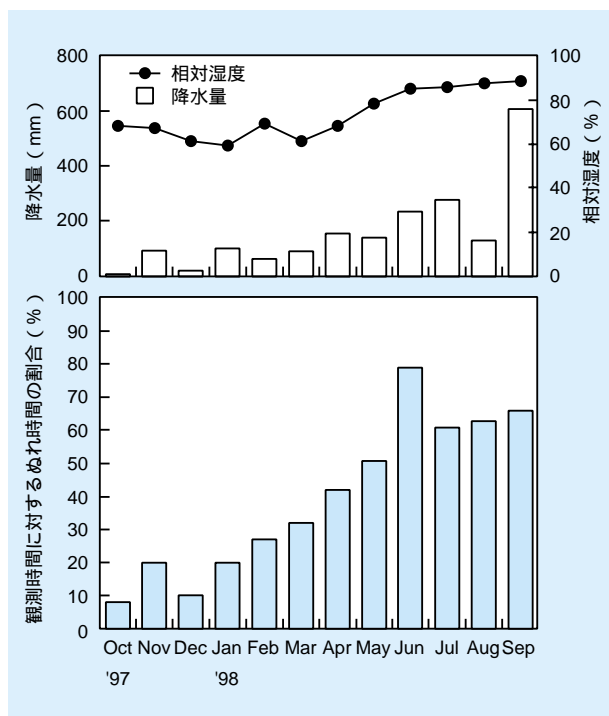


図3-1-2 スギ林におけるぬれ時間(下段)および降水量、相対湿度の観測結果(上段)

も可能である。

推定方法の概要は以下の通りである⁽³⁾。一般に、大気中のガス状物質の乾性沈着量Fは、大気中の濃度Cと沈着速度V_dの積の形で推定される。

$$F = V_d C \quad (3.1)$$

大気から沈着面までを3つの輸送過程でモデル化すると、V_dは各過程での沈着抵抗の和の逆数で表される。

$$V_d = (R_a + R_b + R_c)^{-1} \quad (3.2)$$

ここで、R_a:空力学的抵抗、R_b:準層流抵抗、R_c:表面抵抗である。インフェレンシャル法では、気象データなどから各沈着抵抗を算出し、沈着速度の推定を行う。

この沈着速度に対するぬれの影響を調べるため、ここではぬれ効果なし(ケース1)とぬれ効果あり(ケース2)の2ケースについて沈着速度を計算した。ケース2では、結露計がぬれを検出した期間はR_cを構成する抵抗の1つであるクチクラ抵抗R_{cut}の値を0とした。その結果、ケース1では沈着速度は寒候季、暖候季ともに0.32 cm s⁻¹(平均値)となった。一方、ケース2の場合はケース1よりも寒候季に約2倍(0.62 cm s⁻¹)、暖候季に約3倍(1.03 cm s⁻¹)に増大した。

こうした沈着速度の増大は、当然、乾性沈着量の増大をもたらす。図3-1-3は算出した沈着速度に大気中のSO₂濃度を乗じてSO₂の乾性沈着量を推計した結果である。図では各月の積算値を示した。ケース1の場合、SO₂の年間沈着量は0.15 keq ha⁻¹となったのに対し、ケース2では0.22 keq ha⁻¹となり、ぬれを考慮することにより1.5倍に増大した。一方、図中の点線はSO₄²⁻のネット林内沈着量(NTF)を表す。NTFとは、林内雨による沈着量(TF)と樹幹流による沈着量(SF)の和から、林外雨による沈着量(PD)を差し引いたものである。樹冠に沈着したSO₂はすべてH₂SO₄に変換され、降雨時にSO₄²⁻の形で林床に降ると仮定すれば、NTFは対象期間の積算乾性沈着量に相当する⁽⁴⁾⁻⁽⁶⁾。図3-1-3に示したように年間のNTFは0.25 keq ha⁻¹であり、ケース2の推計結果はこの値にほぼ一致した。

以上の結果から、湿潤な気候条件に立地するわが国

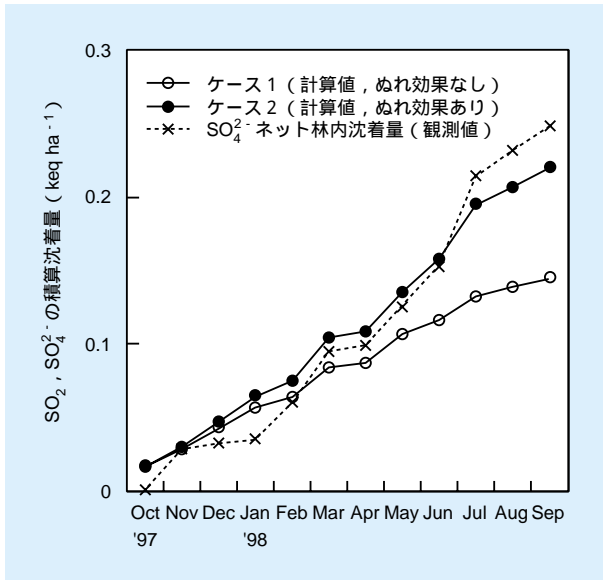


図3-1-3 推定したSO₂の乾性沈着量とSO₄²⁻のネット林内沈着量の比較(積算値)

の森林においては、SO₂の乾性沈着量は葉面のぬれの影響を大きく受けること、R_{cut}の値を0とすることでぬれ効果を考慮できることがわかった。

3-1-4 酸の総沈着量

つぎにSO₂以外の酸性ガス(NO₂, HNO₃, HCl)についてもインフェレンシャル法を用いて乾性沈着量の推定を行い、森林へのH⁺の総沈着量を評価した⁽⁷⁾。H⁺の乾性沈着量を計算する際、樹冠に沈着したSO₂とNO₂

表3-1-1 スギ林へのH⁺の湿性・乾性沈着量 (keq ha⁻¹ yr⁻¹)

総沈着量	湿性沈着量	乾性沈着量			
		SO ₂	HNO ₃	NO ₂	HCl
1.24	0.52	0.72			
		14%	19%	6%	19%

はすべてH₂SO₄とHNO₃に変換されると仮定した。H⁺の湿性沈着量は、林外雨の観測結果から算出した。

推定されたH⁺の総沈着量は1.24 keq ha⁻¹ yr⁻¹となった(表3-1-1)。この値は欧米の森林での沈着量に匹敵するものである^{(8)~(10)}。総沈着量に占める乾性沈着量の割合は58%であり、湿性沈着量を上回った。4種のガス成分の中ではHClの寄与が最大(19%)であった。こうした高い寄与率は欧米では報告例がない。HClの寄与が高くなった原因は、HClの沈着速度が大きいことに加え、大気中のHCl濃度がSO₂やHNO₃に匹敵するレベルにあったためである。

その背景には関東地方の煙源の特異性がある。一般に、HClの主要な排出源は焼却場と考えられている⁽¹¹⁾。関東全域では、ごみ焼却場のHCl排出量は30~40 kt yr⁻¹にのぼる⁽⁷⁾⁽¹²⁾。この値は、同地域におけるSO₂やNO_xの排出量(当量ベース)と同じオーダーである⁽⁷⁾。一方、西欧諸国におけるHCl排出量はSO₂やNO_xの排出量よりも約2桁小さい⁽¹¹⁾。このように関東地方ではHClの排出量が特異的に多い。このことがHClの寄与率を増大させた主要因と推定される。

3-2 土壌 - 植生系における酸の収支

3-2-1 はじめに

前節では大気から森林へ酸(H⁺)が沈着するメカニズムと年間の総沈着量について述べた。こうしたH⁺の負荷が仮になくても、森林生態系の内部では自然のプロセスでH⁺がつねに生産されている。NH₄⁺の硝化、植生による陽イオン吸収、土壌中のCO₂、土壌有機酸などがそのメカニズムである。したがって、酸性雨は外部

からH⁺を上乗せしている「外乱」と位置づけられよう。

本節では、こうした外乱が森林生態系におけるH⁺の収支にどの程度影響を及ぼしているかについて、前節と同じ群馬県の実験林(スギ林)を対象に評価した結果⁽¹³⁾を紹介する。

3-2-2 酸の収支の推定方法

欧米では1980年代からH⁺収支の研究が行われてき

た¹⁴⁾¹⁵⁾。それらの多くは流域全体を対象としたものであるが、酸性雨が土壌の酸性化や養分循環に及ぼす影響を評価するには、土壌 - 植生系に焦点を当てる必要がある。本研究では土壌 - 植生系を①樹体、②土壌表層（落葉層 + 0 ~ 10 cm）、③土壌下層（10 ~ 100 cm）の3つのコンパートメントに分け、それぞれのH⁺収支を推定した。これにより土壌 - 植生系内部でのH⁺循環の様子を可視化することができる。

野外観測のうち、林外雨、林内雨、樹幹流は3-1で述べた通りである。これらに加え、土壌溶液（深さ10、100 cm）とリターフォールの通年観測を行った。また樹体への元素の蓄積量を推定するため、大・中・小の3本のスギを伐倒し、化学分析を行った。以上のデータをもとに、前記の3コンパートメントにおける各種イオン（Ca²⁺、Mg²⁺、K⁺、Na⁺、NH₄⁺、SO₄²⁻、NO₃⁻、Cl⁻、HCO₃⁻、orgⁿ）の収支をそれぞれ算定し、その結果に基づきH⁺収支を推定した。その際、つぎの仮定を設けた。(1)樹木が根から陽イオンを吸収した場合は、当量のH⁺が根から放出される（陰イオンが吸収された場合はH⁺が消費される）、(2)土壌から陽イオンが溶出した場合は、当量のH⁺が消費される（陰イオンが溶出した場合はH⁺が供給される）、(3)樹木が根から吸収する窒素はすべてNO₃⁻の形態とする。最後の仮定は、土壌溶液中の窒素は97%以上がNO₃⁻であったという観測結果に基づいている。大気からのH⁺の総沈着量は3-1で推定した値を用いた。

以下では、イオンの収支の例として窒素と塩基の収支を紹介し、最後にH⁺収支の推定結果について述べる。

3-2-3 窒素の収支

図3-2-1は土壌 - 植生系における窒素の収支を示す。図の要旨はつぎの通りである。(1)大気からの総沈着量は2.1 kmol ha⁻¹ yr⁻¹であり、ほぼ同量が林内雨と樹幹流によって林床に負荷されている。(2)樹木による全吸収量は4.9 kmol ha⁻¹ yr⁻¹であり、その90%がリターフォールとして林床に還元されている。(3)林内雨が土壌表層を浸透する間に、NO₃⁻フラックスが著しく増大している（増分：3.8 kmol ha⁻¹ yr⁻¹）。これは主に有機態窒素の無機化によるNH₄⁺の生成とその硝化に起因する。(4)こうしたNO₃⁻の生成は土壌下層でも起こり、

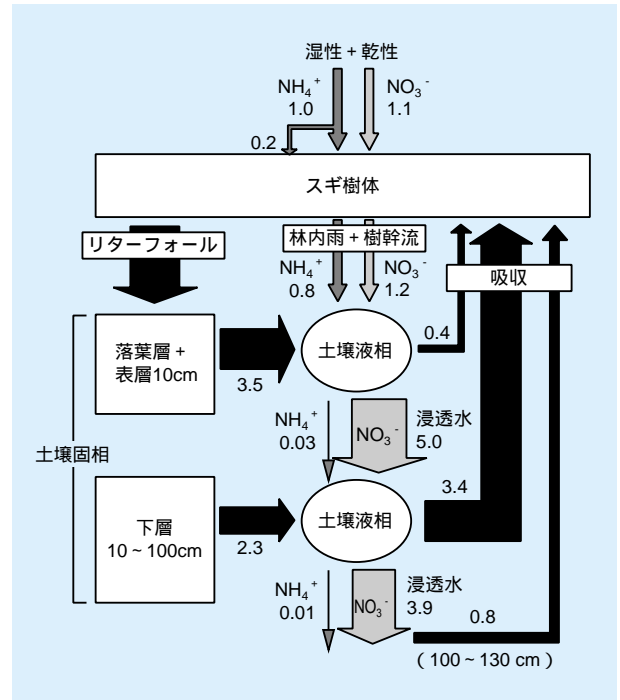


図3-2-1 土壌 - 植生系における窒素の収支
(単位：kmol ha⁻¹ yr⁻¹)

表層から流入したNO₃⁻との含量は樹木によって完全には吸収されず、3.9 kmol ha⁻¹ yr⁻¹が系外に流出している。

窒素が植生によって十分に吸収されずに、根域土壌層から流出している状態を「窒素飽和」と呼び、欧米では陸水酸性化の原因として問題視されている（コラム2参照）。

3-2-4 塩基の収支

図3-2-2は土壌 - 植生系における塩基（Ca²⁺ + Mg²⁺ + K⁺ + Na⁺）の収支を示す。前記にならって要約するとつぎの通りである。(1)大気からの総沈着量は0.7 keq ha⁻¹ yr⁻¹であり、これに樹冠からの溶脱が加わって、2.4 keq ha⁻¹ yr⁻¹の塩基が林床に負荷されている。(2)樹木による吸収量は10.8 keq ha⁻¹ yr⁻¹であり、その93%がリターフォールと樹冠溶脱により林床に還元されている。(3)林内雨が土壌表層を浸透する間に、塩基のフラックスが著しく増大している（増分：4.8 keq ha⁻¹ yr⁻¹）。これは土壌固相からの供給に起因する。(4)こうした供給は土壌下層でも起こり、表層から流入

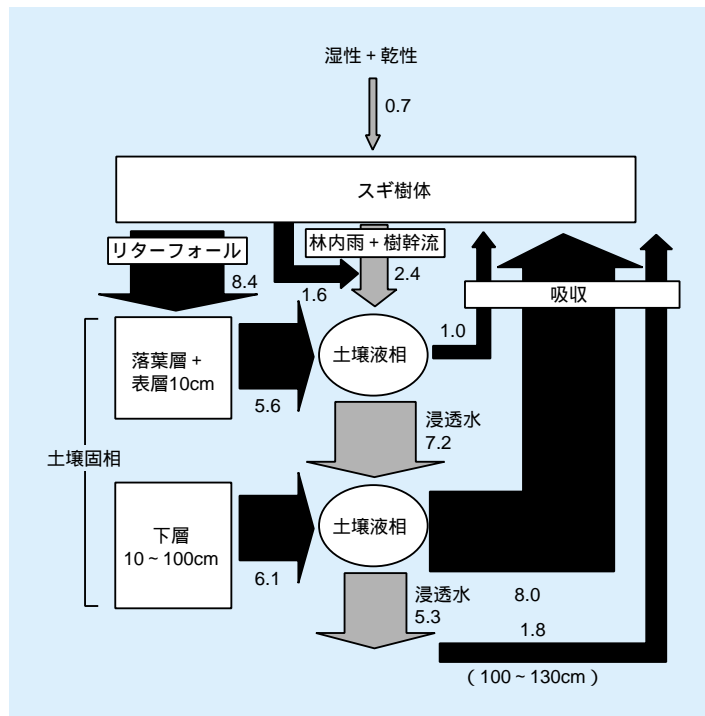


図3-2-2 土壌 - 植生系における塩基の収支 (単位: keq ha⁻¹ yr⁻¹)

した塩基との含量は13.3 keq ha⁻¹ yr⁻¹に達する。そのうち60%は樹木に吸収され、40%は系外に流出している。(5)その結果、この土壌 - 植生系では4.6 keq ha⁻¹ yr⁻¹の塩基が正味で流亡している。

以下で述べるが、土壌から多量の塩基が溶出していることが、土壌浸透水の酸性化を阻止しているのである。

3-2-5 H⁺の収支

図3-2-3は土壌 - 植生系におけるH⁺の収支を示す。図の要旨はつぎの通りである。(1)大気から樹冠への総沈着量は1.2 keq ha⁻¹ yr⁻¹であり、内訳は湿性42%、乾性58%である(3-1参照)。樹冠では塩基溶脱による中和が起こり、林床に到達する前に大部分のH⁺が消失している。(2)厚さがわずか10 cmの土壌表層で6.7 keq ha⁻¹ yr⁻¹のH⁺が生産されている。その76%はNH₄⁺の硝化に由来し、とりわけ土壌有機物由来のNH₄⁺の寄与が大きい。供給されたH⁺は土壌からの塩基放出などによって完全に中和されている。(3)土壌下層における全生産量は10.5 keq ha⁻¹ yr⁻¹であり、その76%は植

生の塩基吸収に起因する。供給されたH⁺は、土壌からの塩基放出と植生のNO₃⁻吸収によって完全に中和されている。

大気由来のH⁺量を①酸性雨(湿性+乾性)、②樹冠でのNH₄⁺吸収、③大気由来のNH₄⁺の硝化によるH⁺負荷量の合計とみなせば、その値は3.1 keq ha⁻¹ yr⁻¹である。これに対し、土壌 - 植生系の内部では15.9 keq ha⁻¹ yr⁻¹のH⁺が生産されている。大気由来のじつに5.2倍である。換言すれば、H⁺の全供給量に対する大気降水物の寄与は16%となる。

森林生態系はこうした外乱を系内の物質循環のプロセスに取り込んで、完全に消化吸収し、系外への流出(土壌浸透水の酸性化)を防いでいる。その担い手は土壌による豊富な塩基の放出である。おそらく、外乱が加わった分だけ、鉱物風化による塩基供給量は増大しただろう。大気降水物によるH⁺負荷量が現在のレベルを推移するならば、こうしたバランスは維持されるだろう。仮に将来、塩基の放出で賄いきれないほどH⁺負荷量が増大すると、系外への流出が不可避となる。そうしたH⁺負荷量は「臨界負荷量」と呼ばれている。

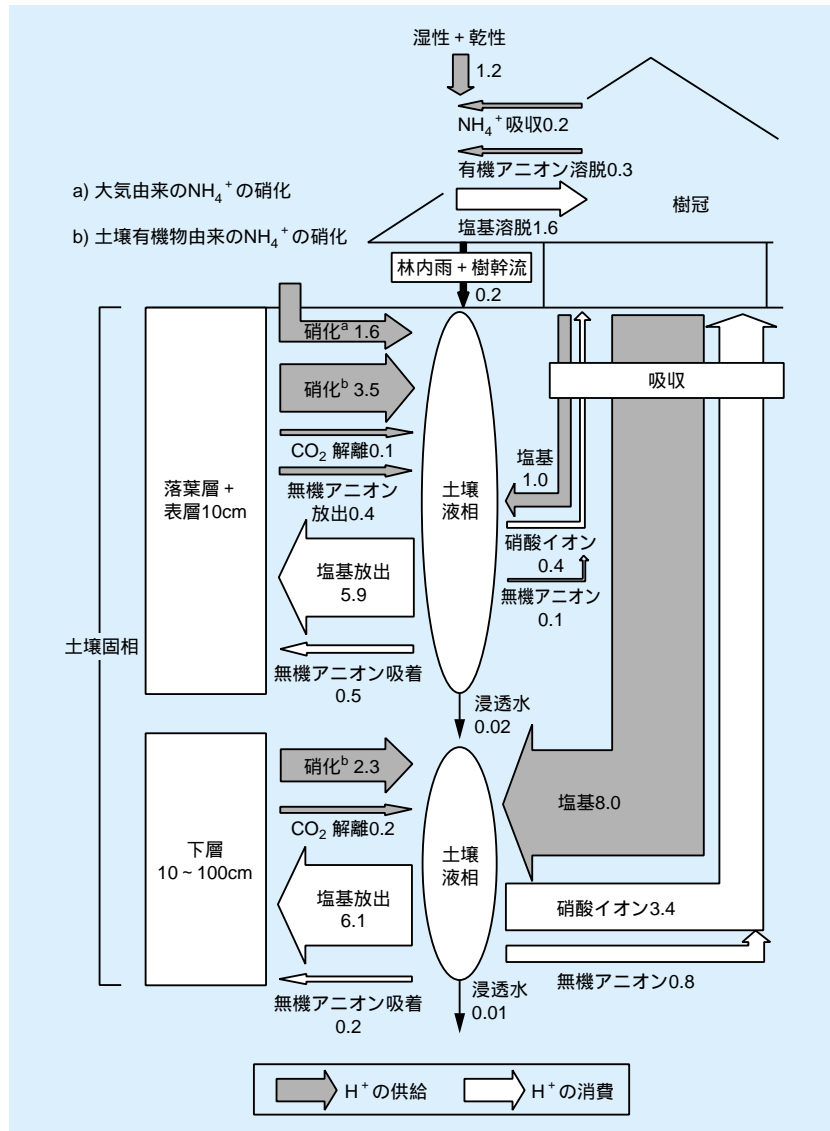


図3-2-3 土壌 - 植生系におけるH⁺の収支 (単位: keq ha⁻¹ yr⁻¹)

3 - 3 臨界負荷量とアルミニウムの化学

3-3-1 はじめに

臨界負荷量 (critical load) の概念は1980年代中ごろにヨーロッパで創出された¹⁶⁾。1990年代初頭にはヨーロッパ全域を網羅する臨界負荷量のマップが作成され、それに基づく国際交渉によって二酸化硫黄の排出量削減に関する第2次議定書 (オスロ議定書) が1994年に

調印された¹⁷⁾。その時期、わが国でも臨界負荷量は酸性雨研究のキーワードの1つとなりつつあった。ところが、1996年に臨界負荷量の科学的妥当性について数多くの問題点を指摘する論文¹⁸⁾がお膝元のヨーロッパで発表された。わが国でもそれを追認する論文¹⁹⁾が出された。ついには、アジアを舞台としたRAINS-Asiaプロジェクトの1998年ワークショップにおいて、今後は臨界負荷量という用語を用いないことが合意されるに至った¹⁹⁾。

このように臨界負荷量に対する評価はこの10年間でめまぐるしく変遷した。批判の主旨は、用いられた推定方法（モデル）が複雑な森林生態系をあまりにも単純化しているため、推定された「臨界負荷量」は真の意味での臨界負荷量ではあり得ないというものである。これは正鵠を射たものであるが、森林生態系を忠実に再現するモデルを開発することはほとんど不可能であろう。とすれば、いろいろな切り口で生態系を多面的に捉えることが必要であり、いわゆる臨界負荷量もその一つである得る。こうした視点に立ち、当研究所でも臨界負荷量に関わる研究を進めてきた。

本節ではヨーロッパで採用された臨界負荷量の推定方法とその問題点について述べ、当研究所が行ってきた研究の一部を紹介する。

3-3-2 臨界負荷量の推定方法とその問題点

ヨーロッパでは定常物質収支モデルと呼ばれる方法で臨界負荷量が数値化された⁽¹⁷⁾⁽²⁰⁾。基本的な考え方は、森林生態系に被害が現れない範囲で最も土壌の酸性化が進んだ状態を臨界状態と定義し、ある1つの化学的指標を用いて臨界状態を表わす。前記モデルでは、土壌溶液中の塩基（ $BC = Ca^{2+} + Mg^{2+} + K^{+}$ ）とAlのモル濃度比BC/Alが化学的指標とされた。樹木にとって塩基は栄養成分、Alは有害成分であるから、両者の濃度比が小さいほど樹木の生長は阻害される⁽²¹⁾。BC/Al比の閾値は苗木を用いた実験結果から1とされた。また、土壌溶液中のAl濃度はギブサイトの溶解平衡で規定されると仮定された。

表3-3-1 定常物質収支モデルによる臨界負荷量推定の問題点

土壌の非定常性
・土壌はフィールド条件下では定常状態にない
・評価地点の履歴や季節変化などを考慮できる非定常モデルによる評価のほうがより現実的な解を与える
生物指標
・樹木を単一の指標とすることは疑問
・樹木根に養分を供給する菌根菌、植物死骸の分解者であるミミズ、大気質に敏感な地衣類なども指標となり得る
化学的指標
・BC/Al比が植物の生長を支配する唯一の土壌特性ではない（温度、湿度、窒素やリンの濃度なども重要）
・根の塩基吸収に及ぼすAlの影響はフィールド条件下では未解明
・BC/Al比は季節的にも空間的にも大きく変動するから、閾値を1に固定するのは不適当
・Al濃度がギブサイトの溶解平衡で規定されるとする仮定は非現実的

文献18をもとに作成

こうした臨界負荷量の推定方法に対し、数多くの問題点が指摘されている。その一例⁽¹⁸⁾を表3-3-1に示した。これらの指摘はどれももっともである。しかし、Alが樹木根に有害であることは事実である。また土壌溶液のBC/Al比が低下すると、樹木の生長が阻害されることも実験で証明されている⁽²¹⁾。しがたって、定常物質収支モデルで推定される「臨界負荷量」を全面的に否定する必要はないだろう。少なくとも森林衰退のリスクを表す一つの指標であり得る。

3-3-3 当研究所の取り組み

以下では当研究所が進めてきた研究のうち、広島県の林地の土壌溶液におけるAlの形態とBC/Al比の調査結果、および H^{+} の許容沈着量の試算結果を紹介する。

(a) 土壌溶液におけるAlの形態

森林の土壌溶液においては、Alは Al^{3+} のほかにも各種の無機錯体や有機錯体の形で、また多核体としても存在し得る。これらのうち植物毒性の中心は Al^{3+} であり、有機錯体の毒性はきわめて弱いといわれている⁽²²⁾。

図3-3-1は酸性岩（花崗岩、流紋岩）を母材とする土壌が分布する広島県南部の25地点における土壌溶液のpHとAlの形態を示す。地点番号に下に植生を示した。土壌溶液はその樹種の樹冠下でポーラスカップ法⁽²³⁾で採取した。深さは50 cm（根域）である。Alは高速液体クロマトグラフ/ホルモガリオン蛍光法⁽²⁴⁾で定量した単核 Al （ Al_m ）である。棒グラフがない地点では Al_m は検出されなかった。

Al_m 濃度は地点によってかなり異なっていたが、概してpHが低い地点で高かった。 Al_m の形態も地点間の差が大きく、すべてが有機態 Al_m の地点もあれば、No.23地点のようにすべてが無機態 Al_m の地点もあった。この結果から、Al濃度が同じでも、樹木根に対する有害性は相違し得ることが理解できる。

(b) BC/Al比

図3-3-2は同地点におけるBC/Al比を示す。分母のAlには、植物毒性が強い Al^{3+} とその加水分解種の総和（ $Al_t = Al^{3+} + AlOH^{2+} + Al(OH)_2^{+} + Al(OH)_3^0$ ）、およびICP発光分析法で定量された全Al（ Al_t ）の2種類をと

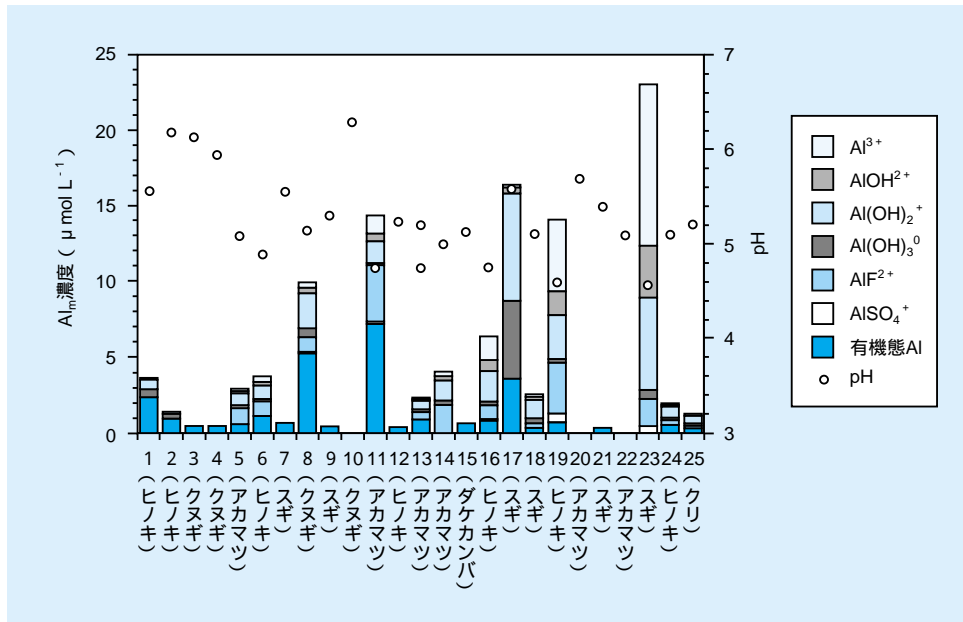


図3-3-1 森林の土壌溶液における Al_m の濃度と形態（深さ50cm）

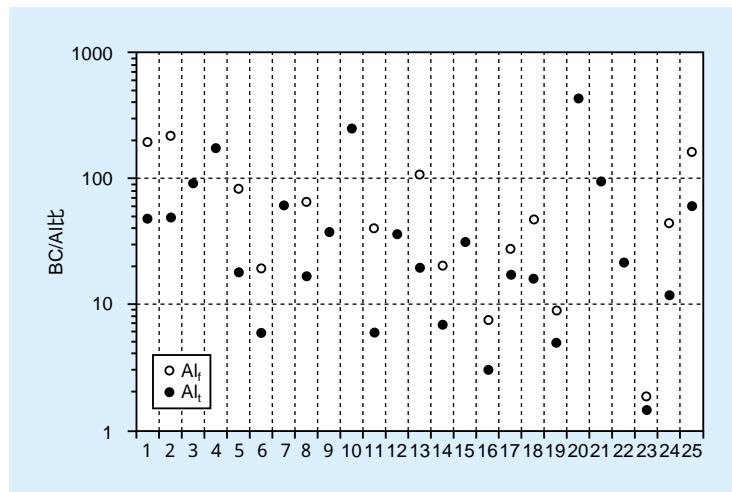


図3-3-2 森林の土壌溶液のBC/Al比（深さ50cm）

った。 Al_r には Al_m のほかに多核Al種が含まれる。 Al_f が不検出であった10地点はBC/ Al_f のみを示した。

Al_f は Al_r の一部であるから、BC/ Al_f はBC/ Al_r よりもつねに大きくなる。 Al_f が検出された15地点についてみるとBC/ Al_f の方が1.3～6.8倍（平均3.5倍）大きかった。逆にBC/ Al_r はBC/Alの最小値である。その値は1.5～440の範囲にあり、いずれの地点もヨーロッパでの閾値1を上回った。

この閾値は、苗木を用いた膨大な数の実験結果を既往文献から蒐集し、BC/Al比と相対生長率の関係をプ

ロットして求められたものである⁽²⁾。Alの内容については記述がないため Al_r が用いられたと推定されるが、植物毒性との関係があいまいである。今後、BC/ Al_f あるいはBC/無機態 Al_m を指標とした場合の閾値が解明されることを期待したい。さらに、5-2で述べるが、樹種による閾値の違いについても検討が必要である。

(c) 酸の許容沈着量の試算

BC/ Al_f を指標とし、その閾値を1とした場合、上記の25地点はいずれも臨界状態に到達していない。では、

今後大気からどの程度のH⁺が上乘せされたら臨界に達するであろうか。図3-3-3はその値を当研究所が考案した簡易な定常物質収支モデルを用いて試算した結果である。許容上乘せ量は0.77 ~ 15.8 (幾何平均2.90) keq ha⁻¹ yr⁻¹の範囲にあった。環境庁²⁵⁾が広島県の倉橋島で観測したH⁺の湿性沈着量は0.355 keq ha⁻¹ yr⁻¹ (平

成6 ~ 9年度の平均値)である。乾性沈着量もそれと同レベルと仮定すれば、現在のH⁺の総沈着量は0.710 keq ha⁻¹ yr⁻¹のオーダーである。したがって、許容上乘せ量が最も低い地点でも、現在の沈着量と同程度の上乗せが許容されると推計される。

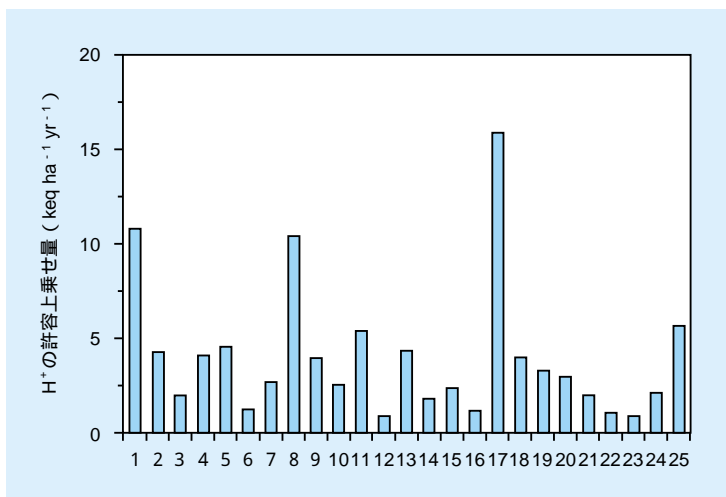


図3-3-3 大気からのH⁺の許容上乘せ量

コラム2 窒素飽和の功罪

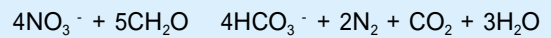
大気降水物は森林生態系への重要な窒素の供給源である。しかし植生が要求する以上の窒素が供給されると、余剰分が根域土壌層から下層に流出する。こうした状態は「窒素飽和」と呼ばれている。

欧米のいくつかの生態系では、過剰な窒素の負荷により、根域土壌層からNO₃⁻が流出している⁽²⁶⁾⁽²⁷⁾。NO₃⁻は陰イオンであるから、陽イオンを同伴して行動する。欧米で問題になっているのは、同伴陽イオンがH⁺やAlであり、土壌浸透水の酸性化をもたらしている点である(罪)。これは土壌が酸中和能力に乏しいことに起因する。したがって、浸透水の酸性化はNO₃⁻に限らずSO₄²⁻やCl⁻が大量に負荷された場合でも起こり得る。

群馬県の実験林(スギ林)でも、土壌-植生系からNO₃⁻が流出しており、飽和状態になっている。しかし土壌から十分な塩基の供給があるため、塩基(主にCa²⁺)がNO₃⁻に同伴し、H⁺やAlの流出

は起っていない(図3-2-1~3-2-3参照)。つまり、窒素飽和に特段の罪状は認められないのである。

逆に陸水のアルカリ度(HCO₃⁻)の形成に重要な役割を果たしていることが調査の結果分かった⁽²⁸⁾(功)。根域土壌層から流出したNO₃⁻は下層土壌を浸透して地下水帯に流入する。そこでNO₃⁻は著しく減少し、その減少量に見合う量のHCO₃⁻が生じていることが分かった(図1)。こうした量論関係は、地下水帯で微生物による脱窒(次式)が起っていると考えれば説明がつく。



この反応が起れば、地下水中の硝酸態窒素の安定同位体比(¹⁵N)が上昇する。実際、地下水の¹⁵N値は土壌溶液に比べて3~4パーミル上昇しており、HCO₃⁻の生成は脱窒に起因することが裏づけられた。

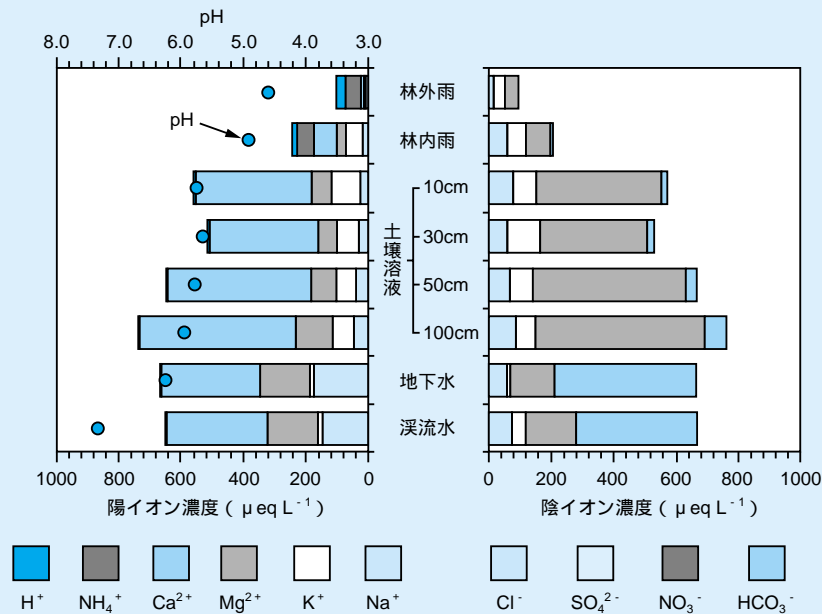


図1 群馬県のスギ林における降水と陸水の年平均化学組成

第 4 章

4

山地流域の酸性化予測

第4章 山地流域の酸性化予測 目次

我孫子研究所環境科学部長 上席研究員 宮永 洋一
我孫子研究所環境科学部 主任研究員 池田 英史

4 - 1 鉱物風化による酸中和作用の評価手法	47
4 - 2 酸中和作用の流域比較	48
4 - 3 酸性化の長期予測	52
コラム3：世界の陸水影響予測モデル	54



宮永 洋一（1976年入所）
ダム貯水池の水質予測と対策，酸性雨の陸水影響予測，湖沼底泥の有効利用などの研究に従事してきた。現在は河川・貯水池環境保全や土砂管理などの課題に取り組んでいる。



池田 英史（1985年入所）
これまで，山地流域における水文，水質，鉱物に関するデータを基に酸性雨が陸水水質に及ぼす影響に関する研究に従事してきた。現在は，廃棄物処分施設が周辺に及ぼす環境影響，森林土壌による二酸化炭素固定に関する研究に従事している。

4 - 1 鉱物風化による酸中和作用の評価手法

4-1-1 はじめに

前章では土壌 - 植生系における酸の収支について述べた。本章では視野を流域全体に広げて、鉱物風化による酸中和作用と流域の酸性化予測に関する当研究所の研究結果を紹介する。

欧米のいくつかの流域では土壌や陸水が酸性化しており、その原因として酸性雨が指摘されている⁽¹⁾。わが国でも長期的にみて酸性化は起り得るのか。この問いに答えるため、当研究所では鉱物の化学的風化による酸中和作用を定量的に評価する手法を開発し、いくつかの流域に適用した。本節では手法の概要について述べる。

4-1-2 中和作用の概要

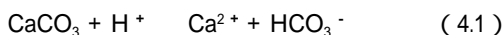
湿性沈着および乾性沈着の形で森林にもたらされた酸(H⁺)は、流域内で種々の物理・化学・生物学的作用を受ける。ここでは、山地流域における酸の中和反応を概観する。

(a) 樹冠での中和

樹木の葉の表面からはK⁺などの塩基が滲出する⁽²⁾。これらの塩基と酸性雨中のH⁺がイオン交換し、H⁺が吸収除去される(3-2-5参照)。

(b) 炭酸塩の溶解

土壌や地層中にCaCO₃などの炭酸塩鉱物が存在することがある。これが以下の反応によりH⁺を中和する。



(c) 陽イオン交換

土壌粒子の表面は一般にマイナスに荷電している。その部分に吸着しているCa²⁺などの塩基と土壌水中の

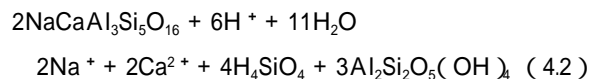
H⁺とがイオン交換し、H⁺が土壌に吸着される。

(d) 陰イオンの吸着

黒ボク土などに含まれるアロフェンの表面にはOH⁻が吸着している。このOH⁻と土壌水中のSO₄²⁻とが交換反応を起こし、土壌水中に放出されたOH⁻がH⁺を中和する。

(e) 鉱物の化学的風化

土壌や岩盤に含まれる鉱物は、土壌水中のH⁺との反応により塩基を放出し、H⁺を消費する。広範囲の地層に含まれ、風化作用を受けやすい斜長石がカオリナイトに変化する例を以下に示す。



鉱物の風化は、H⁺を消費し、塩基を放出するという点で陽イオン交換による中和作用と同じである。しかし、酸の中和容量を決定する塩基の総量は、土壌中の交換性塩基に比べてはるかに多い。また、鉱物は交換性塩基と異なり、土壌化の進んでいない深部にも分布しており、それらの層でも酸を中和し得る。したがって、陽イオン交換よりも長期間にわたって酸を中和できる。

4-1-3 流域における鉱物の風化速度と中和作用の評価手法

上記の中和反応のうち、山地流域で普遍的にみられる反応は陽イオン交換と鉱物風化である。当研究所では、この両者の作用を定量的に分別する方法を考案した⁽³⁾。

流域内の土壌水や地下水に溶解している物質のうち、HCO₃⁻のように気相との交換があるもの以外は、以下に示す物質収支式が成立する⁽⁴⁾。

$$\text{Out} - \text{In} = W \pm \text{Ex} \pm \text{Bio} \quad (4.3)$$

ここで、Out：地下水や河川水に溶解して流域から流出する量、In：大気から降下する量、W：鉱物風化により供給される量、Ex：土壌とのイオン交換による供給量、Bio：樹木による供給量（吸収量）である。このうち、Wは以下の式から求められる。

鉱物*i*から風化によって放出される化学種*x*の量 F_{xi} は次式で与えられる。

$$F_{xi} = - a_{xi} dM_i/dt \quad (4.4)$$

ここで、 a_{xi} ：鉱物*i*の風化反応におけるイオン*x*の当量比、 M_i ：鉱物*i*の流域内含有量、 t ：時間である。この式において、鉱物*i*の風化速度は、流域内含有量の減少率 $- dM_i/dt$ で表される。したがって、流域内に含まれ

る主要鉱物について式(4.4)を合計すれば、風化により供給される化学種*x*の総量が求められる。式(4.3)において樹木の項を無視すると化学種*x*についての収支式は次式となる。

$$\text{Out}(x) - \text{In}(x) = - (a_{xi} dM_i/dt) \pm \text{Ex} \quad (4.5)$$

ここで、 $\text{Out}(x)$ 、 $\text{In}(x)$ は流域全体の物質収支から、 a_{xi} は推定した風化反応式から求められ、未知数は dM_i/dt およびExとなる。ここでは、流域内で供給されているイオンおよび H_4SiO_4 について求めた収支式を連立させることにより、鉱物の風化速度と陽イオン交換量を同時に求める。 H_4SiO_4 はイオン交換によっては供給されず、風化に対して極めて安定である石英を除く鉱物の風化によってのみ供給されるので、風化速度を評価するうえで有効な指標となる。

4 - 2 酸中和作用の流域比較

4-2-1 はじめに

前節で述べた評価手法を、酸性化したアメリカの流域と酸性化していないわが国の流域に適用し、各流域の中和作用の比較を行った⁽⁵⁾。

4-2-2 比較対象とした流域

比較を行った各流域の位置、地質、河川水質を図4-2-1に示す。河川水質はpH、pH 4.8アルカリ度 ($\mu\text{eq L}^{-1}$)の年平均値を示した。対象とした流域は、わが国

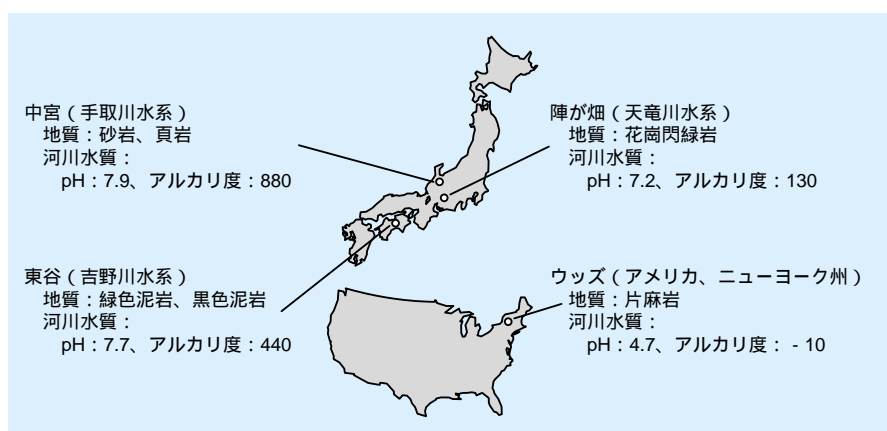


図4-2-1 試験流域の位置、地質、河川水質

の手取川水系中宮流域（石川県吉野谷村）、吉野川水系東谷流域（高知県本川村）、天竜川水系陣が畑流域（長野県浪合村）、アメリカのウッズ（Woods）第2流域（ニューヨーク州アディロンダック公園内、ウッズ流域と略記）の4流域である。いずれの流域も工場や鉱山などの人為汚染源はない。

各流域の河川水質を比較すると、ウッズ流域ではpHが4.7と低く、アディロンダック地域の他の湖沼と同様、酸性化が進んでいる。それに対し、わが国の3流域はいずれもpH 7以上であり、酸性化は生じていない。筆者らは以前、日本全国の約200地点の河川を対象に、酸中和能力の指標であるアルカリ度の調査を行った⁽⁶⁾。その結果と比較すると、中宮流域のアルカリ度は平均よりも高く、東谷流域はほぼ平均であるのに対し、陣が畑流域は下位10%の範囲に含まれる。

地質については、中宮流域では地表より順に、褐色森林土、崖錐堆積物、砂岩・頁岩互層が分布する。東谷流域は黒色片岩、緑色片岩が分布し、表土は1 m未満である。陣が畑流域では表層より、残積性未熟土、崖錐堆積物、花崗閃緑岩が分布し、中和作用は小さいと考えられる。ウッズ流域の地質は先カンブリア代（約6億年以前）に形成された片麻岩であり⁽⁷⁾、地表には漂礫土（glacier till）と呼ばれる層が存在するが厚さは2.5 mと薄い⁽⁸⁾。

4-2-3 流域調査の方法

(a) 流域の物質収支

湿性沈着量は降水量と降水中の濃度の積から求め、乾性沈着量は大気中の粒子状物質濃度と沈着速度⁽⁹⁾との積から求めた。H⁺の沈着量については陰イオンの沈着量の総和と陽イオンの沈着量の総和との差から求めた。一方、流域からの流出量は、河川水中の濃度と流出高の積から求めた。河川水質は流域下端で月に1～2回調査した。河川流量は連続観測し、両者から月間のOutを求め、最後に年間のOutを求めた。

(b) 鉱物の同定

土壤に含まれる一次鉱物、二次鉱物を同定し、風化反応式を決定した。一次鉱物については含有率も求めた。一次鉱物の同定は、ボーリングコアサンプルや露

頭から採取した母岩試料の分析により行った。分析方法は偏光顕微鏡による観察、および不定方位法によるX線回折とした。方解石（CaCO₃）については、1N-HClを添加して同定した。二次鉱物の同定は、母岩試料の2 μm以下の画分の分析により行った。

4-2-4 流域調査の結果

(a) 流域の物質収支

4流域の物質収支を図4-2-2に示す。大気からのH⁺の沈着量は流域間で大きな差はなかった。流域からのH⁺の流出量は、わが国の3流域では沈着量に比べて無視し得る量であり、流域内でほぼ完全に中和されているのに対し、ウッズ流域では十分に中和されず、河川へ流出していた。つぎに塩基（Ca²⁺、Mg²⁺、Na⁺、K⁺）とアルカリ度の主成分であるHCO₃⁻の流出量は、中宮流域や東谷流域で多く、陣が畑流域やウッズ流域に比べて流域の中和作用が大きいことがわかる。またH₄SiO₄の流出量から、東谷流域およびウッズ流域ではケイ酸塩鉱物の風化速度が小さいことがわかる。なお、今回対象とした流域では塩基、HCO₃⁻、H₄SiO₄の沈着量は流出量に比べて少なかったため図示を省略した。

(b) 鉱物の風化反応式

流域内で観察された一次鉱物の種類と含有率を表4-2-1に示す。東谷流域の方解石は深度14.9～15.1 m付近に脈状に存在していたため、その範囲の含有率を示した。これらの鉱物のうち、石英は風化に対して極めて安定であるので、考察から除外した。二次鉱物についてはX線回折の結果および土壌水、地下水の水質から

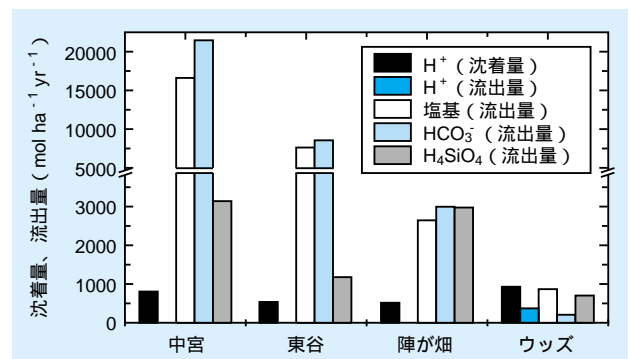


図4-2-2 試験流域への沈着量と流出量（年間積算値）

表4-2-2 試験流域内で観察された一次鉱物の化学組成と風化反応式（一例）

中宮流域	斜長石 : $\text{Na}_{0.98}\text{Ca}_{0.02}\text{Al}_{1.02}\text{Si}_{2.98}\text{O}_8 + 1.02\text{H}^+ + 4.43\text{H}_2\text{O}$ $0.98\text{Na}^+ + 0.02\text{Ca}^{2+} + 1.96\text{H}_4\text{SiO}_4 + 0.51\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4$
東谷流域	緑泥石 : $\text{Mg}_{3.7405}\text{Fe}^{\text{II}}_{5.24}\text{Al}_{5.205}\text{Si}_{5.606}\text{O}_{20}(\text{OH})_{16} + 7.481\text{H}^+ + 2.1265\text{H}_2\text{O} + 1.31\text{O}_2$ $3.7405\text{Mg}^{2+} + 0.401\text{H}_4\text{SiO}_4 + 5.24\text{Fe}(\text{OH})_3 + 2.6025\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4$
陣が畑流域	黒雲母 : $\text{K}_{0.69}\text{Mg}_{1.31}\text{Fe}^{\text{III}}_{3.38}\text{Al}_{2.97}\text{Si}_{5.41}\text{O}_{20}(\text{OH})_4 + 3.31\text{H}^+ + 9.265\text{H}_2\text{O}$ $0.69\text{K}^+ + 1.31\text{Mg}^{2+} + 2.44\text{H}_4\text{SiO}_4 + 3.38\text{Fe}(\text{OH})_3 + 1.485\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4$
ウッズ流域	角閃石 : $\text{Na}_{0.12}\text{Mg}_{1.10}\text{Ca}_{0.87}\text{Al}_{0.52}\text{Fe}^{\text{III}}_{4.22}\text{Si}_{6.93}\text{O}_{22}(\text{OH})_2 + 16.72\text{H}^+ + 3.98\text{H}_2\text{O}$ $0.12\text{Na}^+ + 1.10\text{Mg}^{2+} + 0.87\text{Ca}^{2+} + 4.22\text{Fe}^{3+} + 6.41\text{H}_4\text{SiO}_4 + 0.26\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4$

表4-2-1 各鉱物の含有量（重量%）

流域	中宮	陣が畑	東谷	ウッズ
石英	29.4	34.8	32.5	19.0
斜長石	26.8	28.4	21.3	32.9
カリ長石	8.6	20.6		34.4
黒雲母	27.8	10.2		
角閃石				6.5
白雲母			27.1	
緑泥石			9.0	
方解石			18.6*	

* : 方解石は深度14.9 - 15.1mのコア中の値

表4-2-3 各流域の風化速度、交換性イオン供給量（mol ha⁻¹ yr⁻¹）

	中宮	陣が畑	東谷	ウッズ
斜長石	1016	1562	487	288
カリ長石	25	0		10
黒雲母	1183	330		
角閃石				31
緑泥石			115	
白雲母			59	
方解石			4485	
方解石 and/or 交換性Ca ²⁺	8902	277		239
交換性Mg ²⁺		- 213		44
交換性Na ⁺	736		99	
風化層厚さ (m)	30	17	8	2.5
H沈着量 (mol ha ⁻¹ yr ⁻¹)	780	489	507	898

カオリナイトが考えられた。以上の検討に基づき、各流域で生じていると考えられる風化反応式の一例を表4-2-2に示す。

(c) 中和作用の検討

以上に示した物質収支および鉱物の風化反応式に基づいて、各流域の中和作用を検討した。各流域における鉱物の風化速度、陽イオン交換による供給量を表4-2-3に、各流域へのH⁺の沈着量と鉱物風化による中和量を図4-2-3に示す。カリ長石と白雲母は、他の鉱物に比べて風化による塩基供給量が少ないため図には含めていない。

中宮流域では、H₄SiO₄濃度が深度にかかわらず一定であること、土壌水と地下水の水質の鉛直分布をみると土壌化がほとんど進んでいない深度10 m付近でもCa²⁺が供給されていることから^{(3)、(10)}、主要な中和反応は方解石の風化と考えられる。

東谷流域では、土壌水と地下水の水質は崖錐堆積物から砂岩・頁岩（風化層）に変化する深度5 m付近でpH、アルカリ度ともに上昇しており、この層の中和作用が大きいと考えられる。一方、H₄SiO₄濃度は深度に

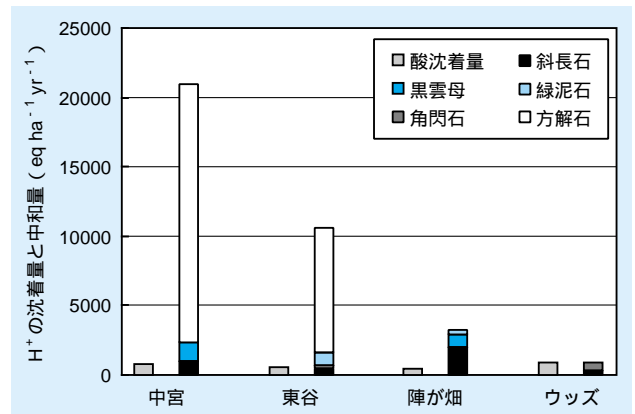


図4-2-3 各流域におけるH⁺の沈着量（左側）と鉱物風化による中和量（右側）

かかわらず低い値であった。以上より、この深度付近で方解石の風化もしくは交換性Ca²⁺によるCa²⁺の供給による中和作用が大きいと考えられるが、この深度は土壌化がほとんど進んでおらず、陽イオン交換容量(CEC)、交換性Ca²⁺ともに小さい。それに対して表4-2-1に示したように、方解石が含まれている深度15 m付

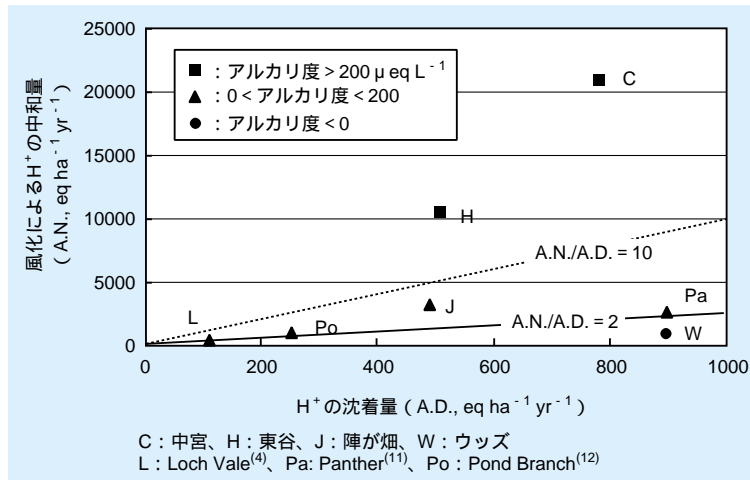


図 4-2-4 各流域におけるH⁺の沈着量、風化による中和量と陸水アルカリ度の関係

近の層で中和作用が大きい。以上より、Ca²⁺の供給は方解石の風化によるものと考えられる。

陣が畑流域では、7 m より深部の風化花崗閃緑岩層で土壌水、地下水のpH、アルカリ度、H₄SiO₄濃度が高いことから、ケイ酸塩鉱物、特に斜長石の風化による中和作用が働いていると考えられる⁽³⁾。しかし、図4-2-3に示すように前記2流域に比べて中和作用は小さい。これは、風化されやすい方解石の寄与が小さいことや、花崗閃緑岩が風化した残積性未熟土が流域に分布しており、降水の流域内滞留時間が短いためと考えられる。

ウツズ流域では他の流域と異なり、河川水が酸性であるためFe³⁺が河川に流出している。このためFe³⁺の収支を含めて検討した。この流域は、塩基、HCO₃⁻、H₄SiO₄のOutがいずれも小さい。したがって、わが国の流域に比べて鉱物の風化速度が小さく、風化および陽イオン交換により中和しきれないH⁺が河川へ流出していると考えられる(図4-2-2参照)。

4-2-5 風化作用と陸水水質との関係

以上の考察により明らかになった各流域、および既

往の研究^{(4)、(11)、(12)}におけるH⁺の沈着量、鉱物風化による中和量と河川水のアルカリ度との関係を図4-2-4に示す。ウツズ流域のように、風化によるH⁺の中和量(A.N.)とH⁺の沈着量(A.D.)の比(A.N./A.D.)が2~3を下回る流域では、河川水のアルカリ度がマイナスとなり酸性化している。一方、中宮流域や東谷流域のように、この比が10~15を上回る流域では河川水のアルカリ度は酸性雨に対する感受性なしとされる200 μeq L⁻¹以上⁽¹³⁾であった。

わが国の3流域のうち最も中和作用の小さい陣が畑流域の場合、H⁺の沈着量が現在の2~3倍に増加した場合にはアルカリ度がマイナスとなり、酸性化が生じるおそれがある。しかし、H⁺の沈着量が増大した場合には鉱物の風化速度も増大することや、風化で中和しきれないH⁺は陽イオン交換で中和されるため、河川水質への影響は小さいと考えられる。また、全国河川水質調査の結果⁽⁶⁾から、全体の90%が陣が畑流域よりもアルカリ度が高い流域であり、H⁺の沈着量が増大した場合でも酸性化は生じる可能性は小さいと考えられる。

4 - 3 酸性化の長期予測

4-3-1 はじめに

酸性雨の陸水への影響は、1960年代頃からヨーロッパ北部やアメリカ北東部、カナダなどで顕在化し、河川・湖沼の酸性化に伴う魚類の減少などの生態系影響が発生している^{(14)、(15)}。一方わが国では、1980年代から環境庁や当研究所などによる全国規模の調査が始められ^{(16)、(17)}、欧米に近いレベルの酸沈着量が観測されている。しかし、20年経った現在でも土壌や陸水への顕著な影響は現れていない。

当研究所では、酸性雨の土壌・陸水への長期的な影響を予測評価するため、流域における酸の中和や水収支・物質収支を考慮した予測手法の構築を行ってきた⁽³⁾。

4-3-2 陸水影響予測モデル

地表に沈着した酸性物質は、森林・土壌系における種々の物理・化学・生物学的作用を受け、主として土壌との陽イオン交換と鉱物の化学的風化によって中和され、地中を浸透して河川へ流出する。

酸性雨の陸水影響予測手法としては、こうした流域における酸の中和作用およびその他の水質変化のメカニズムを数式化した数値モデルを用いて、流域の地形、降水量、酸の沈着量、土壌化学性などの条件を与え、水や各種イオンの場所的、時間的変化を数値計算する方法がある。欧米では、1980年代にILWAS (Integrated Lake and Watershed Acidification Study)⁽¹⁸⁾、MAGIC (Model of Acidification of Groundwater In Catchment)⁽¹⁹⁾などのモデルが開発され実用化されており、これらはわが国の陸水影響予測においても参照すべきモデルと考えられる。

4-3-3 わが国における陸水影響の長期予測

現在のところ、わが国では陸水影響モデルによる解析の報告例は非常に少ない。

当研究所では、1993～94年に年間の物質収支を観測

した吉野川水系の東谷流域を対象に、ILWASモデルによる陸水影響予測のケーススタディを行った。この流域の概要は4-2で述べたように火山・鉱山・温泉や人為汚染源のない山地森林流域である。流域の酸中和能は、全国的には中程度に相当する。

ILWASモデルによる計算では、この流域の深さ16 mまでを深度方向に4層(厚さ0.5, 0.5, 7, 8 m)に分け、気象、 H^+ の沈着量、土壌化学性、透水係数などの条件は実測値を与えた。しかし、鉱物の風化速度は実測が困難である。このため当研究所では4-1で述べたように、流域の土壌・地層中の鉱物組成と年間の物質収支のデータから平均的な風化速度を推定する方法を考案した。この手法で東谷流域の平均的な風化速度を求めると、表4-3-1のようになった。1年間の河川流量と水質の再現計算を行ってモデルのパラメータを決定した上で、100年間の水質の長期予測を行った。結果を図4-3-1に示す。気象条件は過去10年分の観測値を10回繰り返し、 H^+ の沈着量は1年分の観測値を100年間与えた。現状の条件をそのまま延長した「基準ケース」の計算結果では、現状レベルの H^+ の沈着量 $507 \text{ eq ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ (湿性+乾性)が100年間続いても、河川の水質は安定していて酸性化は起こらない。しかし、仮に表4-3-2の鉱物の風化のうち方解石の寄与(87%)がまったくないとした場合の「比較ケース」では、数十年後には河川水の酸性化の兆候が現れ、その後徐々に酸性化が進んでいくという結果になった。この流域の表層0.5 mにおける交換性塩基含有量の実測値は 81 keq ha^{-1} であり、これは現状の H^+ 沈着量の160年分を中和できる容量である。しかし、土壌中では CO_2 の溶解による酸の生成もあるため、風化による中和作用が働かなければ土壌は急速に塩基を失い、河川水のアルカリ度が低下し、酸性雨の影響を受けやすくなるものと考えられる。

表4-3-1 風化速度の推定値 ($\text{mol ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$)

斜長石	緑泥石	白雲母	方解石
487	115	59	4485

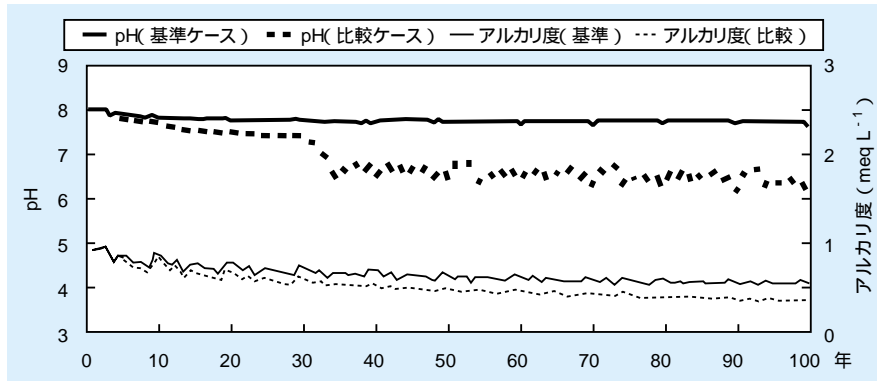


図4-3-1 100年間の水質の予測計算結果

この結果は東谷という特定の流域についての結果であり、しかも1年間の水質の再現計算で決定したパラメータ値をそのまま100年先の予測に使っているため、

陸水影響予測としてはまだ不十分な段階にある。しかし図4-3-1の結果から、予測結果には鉱物の風化速度の評価が大きく影響することが明らかになった。

コラム3 世界の陸水影響予測モデル

1970年代に酸性雨による陸水の酸性化が顕在化した欧米では、陸水水質の将来像を予測し、あるいは有効な対策を練るためのツールとして、様々な陸水影響予測モデルが開発されてきた²⁰⁾。それらのモデルは対象別に、土壌モデル、湖沼モデル、流域モデル、流域・湖沼モデルの4種類に分類される(図1)。メカニズムの扱い方からは集約モデルと素過程複合モデル、時間的には定常モデルと非定常モデルに分類される。集約モデルとは流域内の化学反応を少ないパラメータで代表させるものであり、素過程複合モデルとは4-1-2でも述べた化学反応を別個にモデル化し、組み合わせたものである。

ここでは、流域への適用実績が多いILWASモデルとMAGICモデルの二つを紹介する。ILWASモデルはアメリカ電力研究所(EPRI)が実施したILWASプロジェクトで作成されたモデルである。流域を積雪、土壌層(多層)、河川、湖沼に分け、まず水文モデルで流域内の水流動(降水の移行と河川への流出)を計算する。つぎに化学モデルで

土壌中での鉱物風化や陽イオン交換、降水と樹冠との相互作用、根からの吸収などを計算し、河川水質を予測する(図2)。解析の時間単位は1日である。一方、MAGICモデルは長期の予測を目的として開発されたものであり、解析の時間単位は1年である。水文モデルは、流域全体の降水量と蒸発散量を入力条件として、表面流、浸透流および側方流を経験式で解析する。化学モデルは土壌中の主要な素過程を考慮している。

これらのモデルは、対象地点の条件や解析目的に応じて使い分ける必要がある。例えば、ILWASモデルは融雪に伴う湖沼水pHの低下など短期的な水質変化の予測に適するのに対し、MAGICモデルは数百年という長期的な予測を得意とする。これらのモデルはあらゆる素過程を完全にモデル化しているわけではなく、またわが国の山地流域を対象に開発されたものでもない。このためわが国に適用するには、モデルの特性を熟知したうえで、流域条件に適合するかどうかを見極める必要がある。

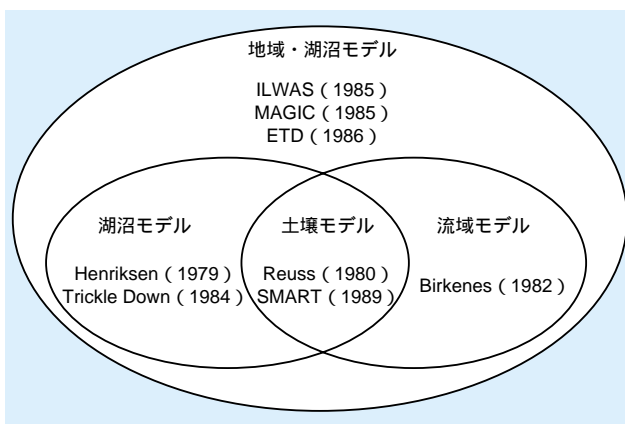


図1 酸性雨陸水影響予測モデルの位置づけ⁽²⁰⁾

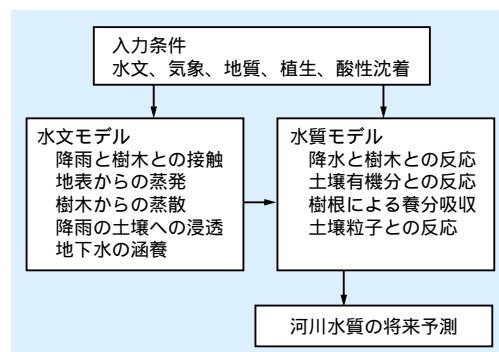


図2 ILWASモデルの構成

第 5 章

5

樹木への影響評価

我孫子研究所応用生物部長 上席研究員 河野 吉久
我孫子研究所応用生物部 主任研究員 松村 秀幸

5 - 1 各地の森林衰退状況 57
5 - 2 酸性雨・霧の影響 62
5 - 3 オゾンと二酸化硫黄の単独および複合影響 66

コラム4：オゾンのクリティカルレベル 70



河野 吉久（1974年入所）
大気汚染物質の影響評価に関する研究の中で、降下ばいじん、重金属・微量元素の植物影響、酸性物質の複合影響や各地の森林衰退原因の解明に関する研究に従事。現在は、陸域生態系アセスメントや森林における炭素固定量評価の課題にも取り組んでいる。



松村 秀幸（1990年入所）
酸性降下物や光化学オキシダントなどの大気汚染物質の植物への影響に関する実験的研究に従事。現在はガス状大気汚染物質（オゾン、二酸化硫黄、二酸化窒素）の樹木影響に関する研究に取り組んでいる。

5 - 1 各地の森林衰退状況

5-1-1 はじめに

1970年代の初頭に、北欧の研究者を中心に降雨の酸性化現象と樹木の生長低下との関係が議論されはじめ、酸性雨研究が北欧や米国の研究者を中心に本格化するようになった。その後、1970年代の終わりから1980年代にかけて、旧西ドイツを中心に広範囲にわたる森林の衰退現象が指摘されるようになり、わが国でも森林衰退現象と大気汚染物質や酸性雨との関係について議論が活発に行われるようになった^{(1)、(2)}。

本節では、欧米の代表的な森林衰退地域と国内で議論されている森林や樹木の衰退の概況を紹介する。

5-1-2 ヨーロッパの状況

1970年代の初頭から、旧西ドイツで新しい症状を伴った衰退現象がヨ - ロッパモミ (*Abies alba*) やドイツトウヒ (*Picea abies*) で見られるようになり、1970年代後半には中央ヨ - ロッパ各国でも様々な樹種に異常症状が見られるようになった。こうした森林衰退現象は「新しい森林衰退」と呼ばれている^{(3)、(4)}。

1985年に各国の森林衰退状況調査が始まり、1986年には共通の調査マニュアルが採択された⁽⁵⁾。旧西ドイツを中心に1986年からヨーロッパ全体での調査が開始され、現在も続いている⁽⁶⁾。この調査では、基本格子(グリッド)として16 km × 16 kmが設定された。国によってはさらに細かい格子、例えば1 km × 1 kmが設定されている。格子の交点では、樹高が60 cm以上で物理的な損傷を受けていない個体を対象に、代表的な優占種などから少なくとも20個体を抽出して、表5-1-1に示した落葉率や変色率で衰退度を判定する。調査木が伐採されたり、風害などで倒木した場合には代替木を選別している。

国や地域によって対象樹種は異なるが、1998年にはヨーロッパ全体で17,861地点が調査対象となり、合計371,238本が調査されている。一方、国別や地域別の比

表5-1-1 UN/ECE-EUによる落葉率と変色率による区分⁽⁶⁾

	階級	落葉率	程度
落葉状況	0	0 ~ 10%	健全
	1	> 10 ~ 25%	軽度 (警告段階)
	2	> 25 ~ 60%	中程度
	3	> 60 ~ < 100%	重度
	4	100%	枯死
変色状況	0	0 ~ 10%	健全
	1	> 10 ~ 25%	軽度 (警告段階)
	2	> 25 ~ 60%	中程度
	3	> 60 ~ < 100%	重度
	4	100%	枯死

較を行うため、共通的な樹種としてドイツトウヒ、ヨ - ロッパアカマツ (*Pinus sylvestris*)、ヨ - ロッパモミ、ヨ - ロッパブナ (*Fagus sylvatica*)、ヨ - ロッパナラ (*Quercus robur*) など13種が選定されている⁽⁶⁾。1998年の国別調査結果(基本格子5,695地点の代表木127,455本の状況)を図5-1-1に示した。全調査木の平均落葉率は20.2%で、樹種別ではヨーロッパナラ27.1%、ドイツトウヒ19.7%、ヨーロッパアカマツ19.6%、ヨーロッパブナ18.7%であった。

このような森林調査のデータをみる場合、特に次の点に留意する必要がある。

- ・調査地点であらかじめ抽出した代表的な数樹種の現況を数値化し、平均値として示したものであること
- ・落葉原因の中には気象害(乾燥害、凍害など)、病虫害、あるいは局地的な大気汚染の影響など、いろいろな原因によるものが含まれていること
- ・落葉状況は種や地域によって異なること
- ・同じ樹種でも立地(気候、土壌タイプ、標高など)や樹齢などの条件が異なること

ヨーロッパにおける森林衰退の原因はまだ十分に解明されておらず、これまでに土壌酸性化説、オゾン + 酸性ミスト説、マグネシウム欠乏説、窒素過剰説、ストレス複合説など、様々な仮説が提唱されてきた⁽⁷⁾。しかし現在のところ、森林衰退の主要な原因は大気汚染物質であり、気象害などの非生物的要因や病虫害など

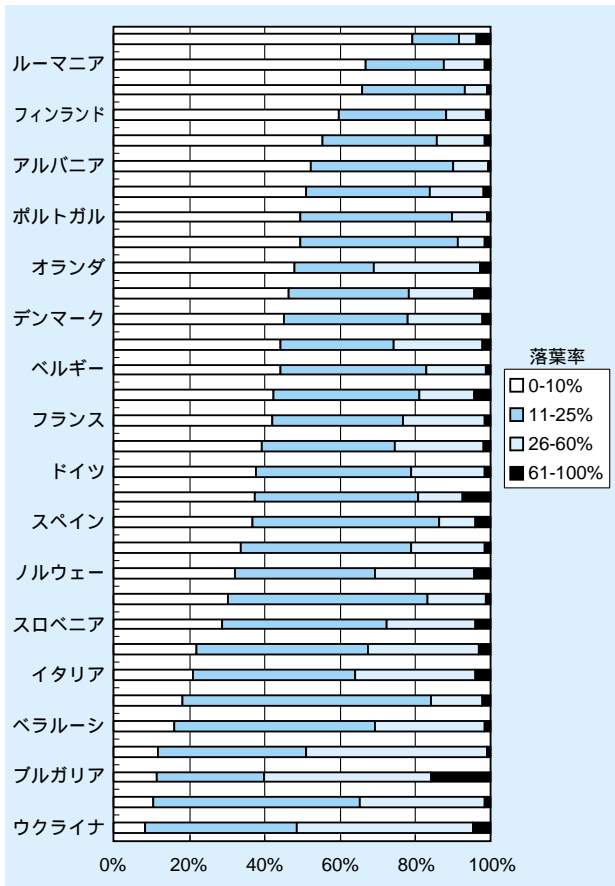


図5-1-1 1998年における欧州各国の森林の状況⁶⁾
 調査地点総数：5695点、総調査個体数：127,455本

の生物的要因は二次的なものであるとの考え方が一般的である³⁾。また、中央ヨーロッパにおいて短期間に大規模な面積の森林が消滅した原因の一つとして、重度の大気汚染による樹木の衰退とそれに伴う病虫害の発生などのため、大規模な計画外の伐採が行われたことがあげられている⁸⁾(写真5-1-1)。一方、最近の調査によるとヨーロッパでは森林の生長量が増加しており、硫酸化物の減少と引き換えに窒素化合物の沈着量が増加したことがその原因として指摘されている⁹⁾。

5-1-3 北米の状況

北米における森林衰退はヨーロッパとはやや異なり、ある特定の地域で限られた樹種の衰退が問題となっている。全米酸性降水影響評価プログラム(NAPAP)では、葉量の減少や変色、異常な生長低下、枝や個体の枯死率の増加などを衰退の徴候とし、森林衰退現象を

- ・ 樹木や森林の正常な成熟や老齢化現象とは異なる
- ・ 自然要因だけでは説明できない
- ・ 森林モニタリング調査などで明らかになるほどの激しさと広がりをもった現象である

と定義している。



写真5-1-1 チェコ共和国・Jizersky山地の森林の現況

ここでは北米の主要4地域における森林衰退の現状とその原因をまとめた⁽⁴⁾。

(a) アパラチア山脈北部のトウヒと南部のモミの衰退

アパラチア山脈北部のアカトウヒ (*Picea rubens*) は、異常な落葉と枝や梢端の枯損、生長低下、高い枯死率を示している。衰退は樹齢や林分状態とは無関係で、標高とともに増加している。年輪解析によると、最近20～25年間の生長が著しく低下している。一方、南部の標高が高い地帯では、フレーザーモミ (*Abies fraseri*) の衰退が顕著である(写真5-1-2)。カサアブラムシの仲間 (*Adelges picea*) が樹液を吸汁する過程で毒素を放出し、3～7年後には樹体が枯死する⁽⁶⁾。一方、共存するアカトウヒには寄生しないため、アカトウヒの衰退はみられない。

アカトウヒもキクイムシ類などによる虫害が最も直接的な枯死原因と考えられているが、アカトウヒやモミは高標高域に分布するため、酸性の雲水や高濃度のオゾンにさらされる頻度が高い。このため、針葉からの養分溶脱の増加や、オゾンが体内の生理的なプロセスを阻害し、耐凍性を低下させ、モミよりも耐寒性が

低いアカトウヒの方が冬季の異常寒波の影響を受けやすいのではないかと考えられている⁽⁴⁾。

(b) アメリカ西海岸のマツ類の衰退

カリフォルニア州シエラネバダ山脈やサンパナディエーノ山脈では1950年代からポンデローサマツ (*Pinus ponderosa*) やジェフリーマツ (*Pinus jeffreyi*) に、針葉の異常(旧葉の白色斑点など)、生長低下、枯死が生じていた。1970年代にはこの地域の広い範囲で衰退が観察されるようになった。マツの衰退分布とオゾン濃度の時間的・空間的分布が一致し、オゾンの暴露試験によって野外で観察される可視害や生長低下が再現されている。また、オゾンの影響は乾燥ストレスが加わったときに助長され、オゾンと乾燥ストレスを受けたマツはキクイムシ類に対する抵抗性が著しく低下することも明らかにされている⁽⁴⁾。このため、オゾンが第一の衰退原因と考えられている。

(c) アメリカ南東部のストロームマツの衰退

アメリカ南東部のストロームマツの衰退は1950年代から観察されている。衰退の特徴は生長低下であるが、



写真5-1-2 米国・ミッチェル山のフレーザーモミとアカトウヒ林の状況
白骨樹(枯死木): フレーザーモミ

オゾン被害に類似した可視害も報告されている^{(11)~(13)}。

NAPAP⁽⁴⁾は、オゾンの慢性的な影響も否定できないが、生長低下はむしろ過去の土地利用形態、樹齢の増加とそれに伴う樹木間の競争の増大、その他の自然要因が原因であるとしている。しかし、野外で観察される針葉の可視害が、オープントップチャンパーなどのオゾン暴露試験で再現されたことが報告されており、オゾンの直接影響による衰退との評価もある⁽⁴⁾。

(d) 北米北東部のサトウカエデの衰退

アメリカ北東部～カナダ南東部のサトウカエデの衰退が、1970年代後半から1980年代中ごろにかけて発生した。衰退の特徴は葉の矮小化と変色、葉量の減少、枝の枯損などで、1900年代初期から断続的に報告されている兆候に類似している。

サトウカエデの衰退は、害虫による異常落葉と葉中の養分（特にカリウム）欠乏が主要な衰退原因と考えられている。その根拠として、

- ・この地域の土壌はK、Mgなどの栄養塩類が少ない
- ・衰退分布と酸性降下物の分布が一致しない
- ・年輪解析で異常な生長低下が認められない
- ・現状レベルの酸性雨や土壌溶液中のAl濃度では苗木の生長低下や被害が実験的に認められない

などがあげられている⁽⁴⁾。

5-1-4 わが国の状況

わが国では平地林のスギ、山地林のモミとブナ、亜高山帯林のシラビソ類の衰退、マツ類のザイセンチュウ病による枯死、ナラ類に寄生するカシノナガキクイムシの食害が原因する枯損現象⁽¹⁴⁾などと酸性雨や大気汚染の影響との関連性について関心がもたれている。ここでは、スギ、モミ、ブナ、シラビソ類の衰退についてまとめた。

(a) スギの衰退

(1) 衰退の現状

スギの衰退は、東京などの大都市周辺において1960年代から注目され^{(15)~(17)}、その後現在までに衰退範囲が拡大し、関東・甲信^{(18)~(21)}、関西・瀬戸内⁽²²⁾、北陸地方⁽²³⁾の平野部におよんでいる。

従来報告されているスギ衰退現象の中には気象害、病虫害などの原因を特定できる衰退も含まれているが、実態調査の結果、原因不明の衰退木は新潟平野、濃尾平野、大阪平野、岡山平野、四国瀬戸内沿岸の各周辺地域で見られる。しかし、仙台平野、出雲・松江・米子平野、大分平野、宮崎平野では顕著な衰退現象は観察されない。また、スギの衰退地点は標高の低い地域に多く分布し、衰退木は大径木で風当たりの強い孤立木や林冠からの突出木に多いことなどの特徴が明らかになった^{(24)、(25)}。

(2) 衰退の原因

スギの衰退が報告されはじめた1960～1970年代には二酸化硫黄との関係が論じられた⁽¹⁸⁾。関口ら⁽¹⁾や高橋ら⁽²⁰⁾が関東地方のスギ衰退は酸性降下物と関連性があると示唆して以来、二次汚染物質^{(21)、(22)、(26)}、あるいは水・乾燥ストレス^{(27)~(30)}などの原因が指摘されてきた。

関東・甲信地域を除く全国の主要9地域の実態調査とともに土壌の理化学性や葉中の主要元素含有量を調査した結果、スギの衰退が認められた地域では表層土壌のpHが低い傾向にあった。しかし、スギ衰退との密接な関係は認められていない。また、全国規模での降雨pHの観測結果とスギ衰退の地域分布とを比較しても、関連性はみられていない^{(23)、(31)、(32)}。

(b) モミの衰退

神奈川県丹沢山系に位置する大山（標高1245 m）の標高700～1100 mに分布するモミ天然林は、神奈川県天然記念物に指定されているが、衰退により消滅が危惧されている。鈴木・尾岸⁽³³⁾は1954年の航空写真を解析し、モミの衰退は1954年以前に始まったこと、衰退のピークは1960年中ごろ～1970年中ごろで、以後は新たな衰退進行はみられないことを報告している。井川ら^{(34)、(35)}は大山の標高約700 mにおいてpH 2.61の霧を観測し、酸性霧のモミへの影響は大きいと指摘している。一方、古川・井上⁽³⁶⁾はモミの老齢化、自然災害、大気汚染、酸性雨・霧などとモミの衰退との関係について検討したが、いずれも関連性は低いと指摘している。モミを選択的に食害するハラアカマイマイによる被害も衰退原因の一つとして指摘されている⁽³⁷⁾。

現在の大気状況から過去に始まった衰退の原因について推定するのは困難であるが、林床にモミの稚樹

が少ないこと、標高700 m付近の林分ではアカガシが優占していること、1955年前後の大山の植生群落調査では確認されなかったカヤなどが多く生育することなどから、大山のモミ林は常緑広葉樹林に遷移あるいは更新しつつあるとも考えられている。福岡県宝満山のモミについても須田ら³⁸⁾が同様の指摘をしている。

(c) ブナの衰退

神奈川県³⁹⁾による航空写真の解析と現地調査の結果によると、丹沢山系・塔ヶ岳のブナ林の衰退は1969年まで認められなかったが、丹沢山・蛭ヶ岳・檜洞丸では1954年にすでに衰退が認められている。丹沢山では1973年をピークに衰退木が減少傾向にあるのに対し、蛭ヶ岳・檜洞丸では年々増加し、蛭ヶ岳では1990年には全体の2/3が衰退し、現在でも衰退が進行している(写真5-1-3)。

一方、静岡大学環境研究会⁴⁰⁾は1984年以降目立ち始めた伊豆半島の天城山系におけるブナ衰退の実態調査を行った。その結果、天城山系では、

- ・ブナの衰退は樹冠表面の細枝の枯死から始まる
- ・衰退木が多く発生している場所は、地形や植生からみて風衝地である

- ・衰退木が風や乾燥に対して抵抗力のない樹形である
- ・衰退が始まった時期が極端に降雨量の少なかった1984年と一致している

これらのことから、風当たりの強い場所に生育し、乾燥に対して抵抗力の弱い樹形をしたブナ個体が、1984年に土壤水分の不足と風による水分損失に耐えられなくなって衰退し始めたかと考察している。また、丹沢山系と同様にブナ林床には後継樹となるブナ稚樹が生育していないことなどから、天城山系のブナの衰退は遷移過程における自然現象の一つであるとも考えられている。

(d) シラビソ・オオシラビソの衰退

日光、秩父山系、南アルプス、八幡平・八甲田山の亜高山帯域、紀伊半島の大台ヶ原、大峰山系の弥山、四国石鎚山のシラビソ類の衰退現象は、これまでは台風や季節風などが原因した亜高山帯に特有な現象とされてきた。日光周辺で枯死木の存在する地形は、南東斜面で風の吹きぬける場所、あるいは北西斜面でも尾根上部で南東風の吹きぬける位置で、環境条件が類似している。谷本ら⁴¹⁾の年輪解析の結果によると、1982年



写真5-1-3 丹沢山系のブナの衰退状況

表5-1-2 欧米と日本の森林・樹木衰退現象の比較

	ヨーロッパ		北米		日本
	旧東側	旧西側	西海岸	東海岸	
樹種	ドイツウヒ ヨーロッパモミ ヨーロッパブナ カンパ類 ナラ類 マツ類		マツ類	モミ類 アカトウヒ サトウカエデ マツ類 ナラ類	スギ モミ ブナ シラビソ類 カンパ類 ナラ・カシ類 マツ類
症状	急激な衰退 枯死 白骨化	葉の黄化 落葉の増加 枯死	枯死率の増加	先端からの衰退 縞枯れ 白骨化	縞枯れ 先端枯れ 枯死 白骨化
原因	二酸化硫黄 オゾン 異常乾燥 風	二酸化硫黄 N沈着の増加 Mg欠乏 風 乾燥	オゾン 乾燥	虫害 オゾン 耐寒性の低下	酸性霧 大気汚染 風、台風 病虫害

の台風襲来年と衰退年とが一致している。一方、山頂の風衝部では矮性化したシラビソ類が枯死しており、変形した樹形から常習的な季節風が枯損の原因であると推定されている。

しかし、最近になって酸性雨や酸性霧の影響に加えて、これらの標高の高い地域は一般にオゾン濃度が高いことから、その影響の可能性を指摘する報告がみられるようになってきた⁽⁴²⁾。これらの山岳域はいずれも大気・気象・降水の連続観測データが欠落しているため、基本的なデータを取得するための基盤整備を行い、議論を行うことが肝要と考える。

(e) 森林衰退の原因

自然条件下において樹木の衰退や枯死に係る要因は多数あるが、それらは生物的要因と非生物的要因の2

つに大別される。生物的要因としては、病虫害、動物の食害、個体間の競争や遷移などがある。非生物的要因としては異常低高温、乾燥、多雨、強風などの気象条件や人為起源の汚染物質の影響などがある。樹木の衰退原因を解明するためには、どの要因が主要因（一次要因）で、何が従要因（二次要因）であるか、あるいはどの要因とどの要因が複合的に影響しているのかを検討する必要がある⁽⁴³⁾。表5-1-2に欧米と日本の森林衰退状況を概略的にまとめた。種が異なることを除けば、いずれの地域でも衰退・枯死といった現象が観察される。しかし、その原因は表に示した要因以外にも多々ある。自然環境条件下では、各地で指摘されているオゾンや酸性物質の影響以外にも、気象要因や生物要因との相互関係について考慮する必要がある。

5 - 2 酸性雨・霧の影響

5-2-1 はじめに

1970年代初頭に、関東地方などで小雨が降った後にアサガオやツツジの花弁が脱色する現象が観察された。1975年には東京都公害研究所が「湿性大気汚染」として調査・研究報告を發表している⁽⁴⁴⁾。大気汚染対策の結果、二酸化硫黄の大気中濃度は顕著に低下したが、全

国のいたるところで酸性雨が報告されるようになり、これが各地の樹木衰退の原因ではないかと考えられるようになった^{(1)、(2)}。

森林や樹木は、様々な環境要因の影響を受けながら生育している。本節では酸性雨と酸性霧（ミスト）の暴露実験結果、および森林衰退現象との関連について概説する。

5-2-2 可視害の発現と降雨 pH との関係

作物に対する酸性雨の影響を評価するために開発した降雨装置⁽⁴⁵⁾を改良し、降雨の分布精度を高めて長期の暴露実験に使用した。人工酸性雨は、純水 (pH 5.6 : 対照) に硫酸、硝酸、塩酸を 5 : 2 : 3 (当量比) の割合で混合して調製した。1 時間当たりの降雨強度を 2.5 mm とし、生長期は 20 mm/回、3 回/週の頻度を標準

に、冬季は要水量を考慮して頻度・時間を調整した。

急性反応である可視害の発現状況をもとに、表 5-2-1 に示したように人工酸性雨に対する 46 樹種の感受性を分類した⁽⁴⁶⁾。降雨 pH が 2.0 ~ 2.5 の場合はいずれの樹種にも斑点や壊死斑が発現し、種によっては落葉や枯死するものがあった。しかし、その程度は pH 3.0 になると急激に低くなった。ハイネスら⁽⁴⁷⁾が示したように、人工酸性雨の暴露による可視害の発現 pH は樹種によって異なり、pH の閾値は針葉樹の場合は 3.0 ~ 2.5 の間、広

表 5-2-1 人工酸性雨暴露による樹木の可視障害発現状況⁽⁴⁶⁾

樹種		pH					葉の可視症状
		5.6	4.0	3.0	2.5	2.0	
針葉樹							
アカマツ	(2)*	-	-	-		+	葉先の壊死
ウラジロモミ	(3)	-	-	-	-	+	壊死、落葉
カイツカカイブキ	(1)	-	-	-		+	鱗片葉の褐変壊死
カラマツ	(3)	-	-	-	+	全落葉	白化
クロマツ	(1)	-	-	-		+	葉先の壊死
サワラ	(1)	-	-	-		+	鱗片葉の褐変壊死
スギ	(3)	-	-	-	-	+	葉先の壊死
ストロブマツ	(3)	-	-	-	-		短葉化 (pH2.5)
ドイツトウヒ	(2)	-	-	-	-	+	壊死、落葉
ヒノキ	(1)	-	-	-	-	+	鱗片葉の褐変壊死
モミ	(2)	-	-	-		+	壊死、落葉
常緑広葉樹							
ウバメガシ	(1)	-	-	-		+	葉緑の壊死
オオムラサキツツジ	(1)	-	-	-		+	葉先の壊死
カナメモチ	(1)	-	-	+		+	壊死斑
サツキ	(1)	-	-	-		+	葉先の壊死
シャリンバイ	(1)	-	-	+		+	壊死斑、小葉化
スダジイ	(1)	-	-	-		+	壊死斑
タブノキ	(1)	-	-	-		+	壊死斑
ツバキ	(1)	-	-	+		+	葉緑の壊死
トキワサンザシ	(1)	-	-	+		+	葉全体の壊死
トベラ	(2)	-	-	+		+	葉緑の壊死
ネズミモチ	(1)	-	-	+		+	壊死斑
マサキ	(1)	-	-	+		+	壊死斑
マテバシイ	(1)	-	-	-		+	葉緑の壊死
ヤマモモ	(1)	-	-	-		+	葉緑の壊死
落葉広葉樹							
アジサイ	(1)	-	-	+		全落葉	壊死斑
アンズ	(1)	-	-	+		全落葉	壊死斑、穿孔
ウメ	(4)	-	-	+	+		壊死斑、落葉
エニシダ	(1)	-	-	-		枯死	壊死斑
ケヤキ	(3)	-	-	-	+		壊死斑、小葉化
コデマリ	(1)	-	-	-		+	壊死斑
コナラ	(3)	-	-	+	+		葉緑の壊死、壊死斑
シラカンバ	(3)	-	-	-	+	全落葉	葉緑の壊死、落葉
ソメイヨシノ	(1)	-	-	+		全落葉	壊死斑、穿孔
トウカエデ	(3)	-	-	-	+	全落葉	葉緑の壊死、壊死斑
ドウダンツツジ	(2)	-	-	+		枯死	褐色壊死斑
トネリコ	(3)	-	-	+	+		壊死斑
ドロヤナギ	(3)	-	-	-	+		葉緑・葉脈の壊死
ハナミズキ	(2)	-	-	+		全落葉	壊死斑、葉緑の壊死
ブナ	(3)	-	-	+	+		葉緑の壊死、壊死斑
ミズナラ	(3)	-	-	+	+		葉緑の壊死、壊死斑
ミヤギノハギ	(1)	-	-	+		枯死	壊死斑
ムラサキハシドイ	(1)	-	-	+		全落葉	壊死斑
ヤシヤブシ	(1)	-	-	-		+	壊死斑点、小葉化
ヤマザクラ	(4)	-	-	+	+		壊死斑、落葉
ユリノキ	(3)	-	-	+	+		壊死斑

- : 可視障害なし、+ : 可視障害あり。

降雨量 : 20mm (2.5mm hr⁻¹ × 8hr) / 回 × 3 回 / 週

* (1) 1991年7月から10月に暴露、(2) 1992年4月から6月に暴露、
(3) 1993年4月から6月に暴露、(4) 1993年7月から9月に暴露。

葉樹では4.0～3.0の間にあった。

降雨と霧を比較すると、霧やミストの方が水滴径が小さいため比表面積が大きい。このため、水滴中に取り込まれる成分濃度が高く、雨滴よりも霧の方がpHは低くなる傾向にある。したがって、同じpHでも霧やミストの方が影響は大きいと考えられている。そこで、両者の影響を比較するため、単位面積当たりの沈着量を等しくして降雨と霧を模したミストによる影響の差異を調べた。その結果、可視害の発現頻度や障害の程度は降雨よりもミストの方が大きくなる傾向にあったが、可視害の発現pHにはほとんど差はみられなかった⁽⁴⁸⁾。

5-2-3 生長におよぼす影響

スギ、ヒノキ、サワラを対象に2年間の暴露実験を行った結果、pH 2.0の人工酸性雨では可視害が発現し、光合成器官の落葉・枯死に伴う生長低下が認められたが、pH 5.6～3.0では生長低下はみられなかった⁽⁴⁹⁾。つぎに、3生長期（約27か月間）にわたって人工酸性雨を暴露した結果、針葉樹8種のうち、クロマツはpH 2.5における個体乾物重量がpH 5.6に比べて有意に低下

したが、クロマツ以外では有意な生長低下は認められなかった（図5-2-1）。針葉樹の場合、pH 5.6の場合の個体乾物重量を基準にすると、pH 2.5のそれは±20%の変動範囲であった。落葉広葉樹の場合は-90%～+65%の範囲で変化し、半数が-50%以上を示した。特にドロヤナギ、トネリコ、トウカエデの生長低下が顕著であった^(43, 50)。これらの結果から、可視害発現と同様に、生長反応についても針葉樹の方が広葉樹よりも耐酸性は強いことがうかがえる。

一方、ポットに充填した土壤に無施肥の状態でpH 4.0あるいは3.0の人工酸性雨やミストを暴露すると、生長促進効果がみられる場合が多い^(49, 51, 52)。この生長促進効果は、人工酸性雨の主成分として用いた硝酸の施肥効果と考えられる。pH 3.0の人工酸性雨を年間2000mm与えた場合の窒素負荷量は56 kg ha⁻¹に相当する。この値は市販の8-8-8式化成肥料の基準施肥量（80 kg ha⁻¹）よりもやや少ないが、窒素の施肥効果が十分に見込める量である。鈴木ら⁽⁵³⁾の林内雨調査によると、東京都多摩地区では100 kg ha⁻¹ yr⁻¹の硝酸イオンが沈着している。ヨーロッパの最近の調査結果でも、森林の材積量（バイオマス）が以前よりも増加しており、

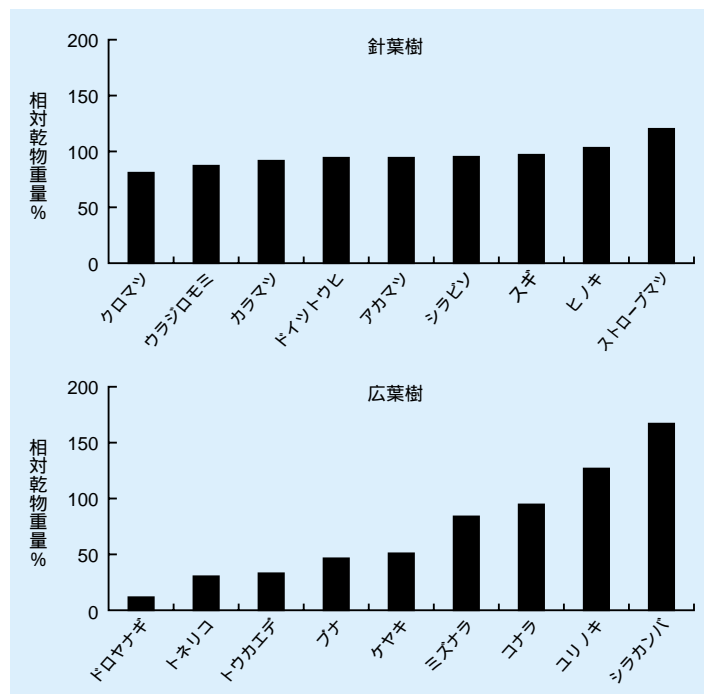


図5-2-1 樹木の生長におよぼす人工酸性雨 (pH2.5) の影響⁽⁴³⁾

暴露期間：3生長期（27か月間）、総降雨量：4100mm。
ただし、シラビソとケヤキは1生長期の結果。

縦 軸：pH5.6の個体乾物重量を基準にした相対値として表示。

その原因として窒素沈着量の増加が指摘されている⁽⁹⁾。今後は、窒素沈着量の増加がもたらす影響について検討も必要と考える。

5-2-4 土壌酸性化の影響

酸性雨が樹木衰退を引き起こす原因の一つとして土壌の酸性化が考えられる。すなわち、土壌pHの低下、塩基の溶脱による養分欠乏、Alイオンの毒性影響である。

3-3で述べたように、土壌の酸性化によりAlが溶出し、土壌溶液の塩基(BC)とAlのモル濃度比(BC/Al)が1以下になるとドイツウヒなどの根の生長が抑制されたことから⁽⁵⁴⁾、北欧の森林土壌に対するBC/Al比の閾値(critical point)は1とされた⁽⁵⁵⁾。

スギへの暴露実験では、降雨pHが2.0の場合に1年後にBC/Al比は約0.4に低下した^{(56)、(57)}。また、図5-2-1に

示した人工酸性雨を約27か月間(約4,100 mm)暴露した後の土壌pHは、pH 3.0の降雨では初期値の5.3から4.7に、pH 2.5の降雨では4.4に低下した。このため、降雨pHが2.5のとき、広葉樹あるいは針葉樹を植栽した土壌のBC/Al比は0.8~1.0に低下した(図5-2-2)。

暴露実験では、人工酸性雨が植物体の地上部と土壌の両方に沈着するため、地上部に対する直接影響と土壌を介した間接影響を分けて考えることは難しい。しかし、針葉樹の場合はBC/Al比が1以下になってもほとんどの樹種に顕著な生長低下は認められなかった。一方、落葉広葉樹の場合は生長低下の割合が樹種によって大きく異なった。この結果から、閾値は樹種によって異なることが明らかである。今後、BC/Al比が指標として適当かどうか、またBC/Al = 1が閾値として適当かどうかの検討が必要と考える^{(43)、(58)}。

5-2-5 酸性雨とオゾンの複合影響

スギ衰退の実態調査結果によれば、光化学オキシダント濃度が60 ppbを越える時間数が多く、生長期の降水量が少ない地域ほど、衰退の程度が激しい傾向にあった。このため、スギ衰退にはオキシダントや乾燥ストレスが影響している可能性が示唆される^{(25)、(26)}。

オキシダントの主成分であるオゾンと酸性雨の複合影響を調べるため、スギ、ヒノキ、サワラを対象に2年間の暴露実験を行った⁽⁵¹⁾。オゾン単独の場合、オゾン濃度が高くても個体の生長に見かけ上の影響はなかったが、地上部に比べて根の割合が相対的に減少する、すなわち光合成産物の分配が影響をうけることが明ら

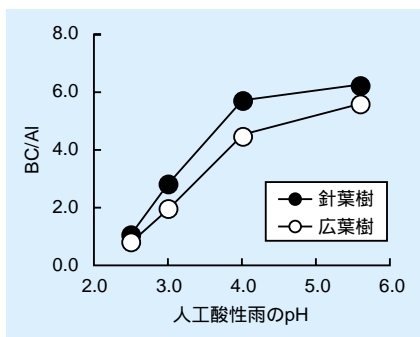


図5-2-2 人工酸性雨暴露実験終了後の土壌のBC/Al⁽⁵⁰⁾

暴露期間：3生長期(27か月間)、総降雨量：4100mm
BC/Al = (K + Ca + Mg) / Al (mM/mM)

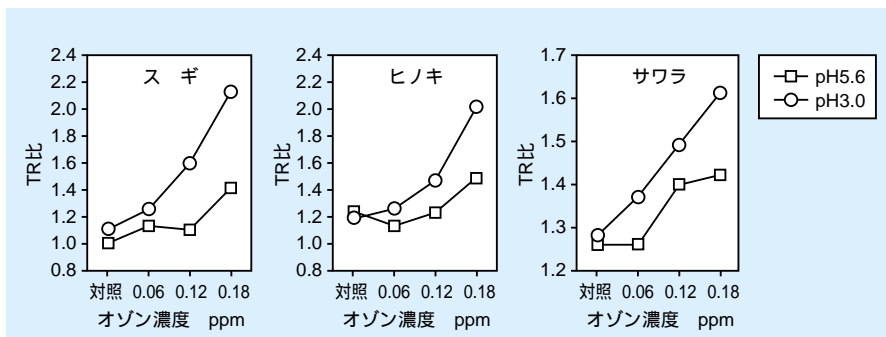


図5-2-3 スギ、ヒノキ、サワラの地上部(Top)と根(Root)の重量比におよぼすオゾンと人工酸性雨の複合影響⁽⁵¹⁾

暴露期間：23か月間、総降雨量：4300mm
オゾンは毎日09：00～15：00の間に一定濃度で暴露

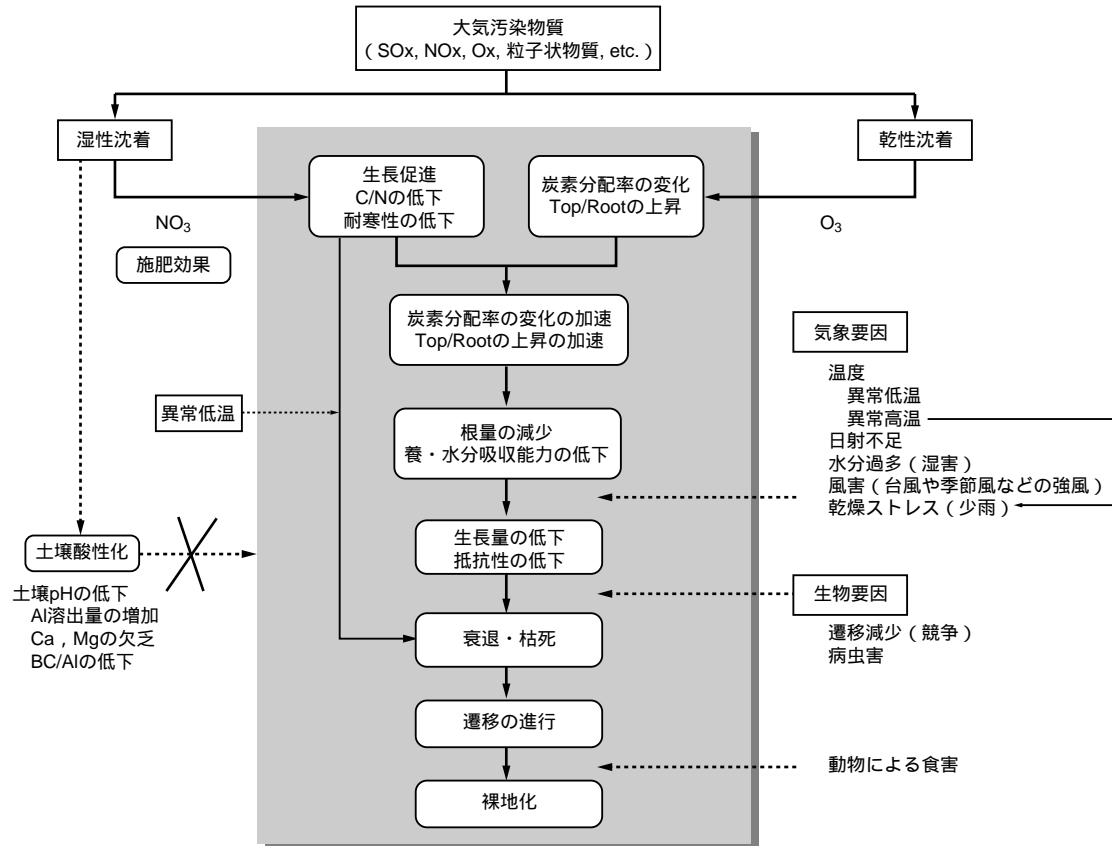


図5-2-4 窒素化合物とオゾンの複合影響仮説

かとなった。オゾンに pH 3.0 の人工酸性雨を複合すると、対照よりも個体の生長量は増加するが、分配率のアンバランスが加速されることがわかった（図5-2-3）。また、オープントップチャンバーを用いて光化学オキシダントを浄化した大気と非浄化大気に pH 3.0 の酸性ミストを組み合わせた3年間の暴露実験でも、酸性ミスト中の硝酸がオゾンの影響を増大させる可能性があることが判明した⁵²⁾。

都市周辺域におけるスギの衰退原因として水ストレス説（大気の乾燥化の影響）^{57)~59)}が提示されているが、オゾンと窒素化合物の複合影響によって光合成産物の分配率のアンバランス化が加速されている可能性が考えられる。このようなアンバランス化は結果的にスギなどの水要求の大きい樹木の乾燥ストレス感受性を増大させていると考えることができる（図5-2-4）。

5-3 オゾンと二酸化硫黄の単独および複合影響

5-3-1 はじめに

わが国では厳しい排煙対策が取られているため、二酸化硫黄（SO₂）の樹木への直接影響は極めて小さいと考えられる。しかし、東アジア地域の著しい工業化の

進展にともなってわが国へのSO₂の移流が増加することがあれば、生態系への影響が懸念される。一方、オゾン（O₃）濃度も将来増加することが予測されている。

わが国に生育する樹木に及ぼすO₃やSO₂の影響を調べた既往の研究は、高濃度急性暴露による葉の可視害発現を指標としたものが多い^{59)、60)}。しかし、可障害を指

標とした場合のO₃やSO₂の閾値やその樹種間差は、生長反応を指標としたものとは一致しないばかりでなく、可視害が発現しなくても樹木の生長は低下することがある^{61)、62)}。

そこで、当研究所では樹木を対象に、オープントップチャンバーを用いたO₃とSO₂の暴露実験を2年半にわたって実施した。

5-3-2 O₃とSO₂の単独影響

17樹種（針葉樹8種＋落葉広葉樹9種）の苗木を黒ボク土を詰めたポットに移植して用いた。暴露実験は当研究所の赤城試験センター（群馬県勢多郡宮城村）構内の標高540 m地点に、16棟の大型オープントップチャンバー（OTC）を設置して行った。OTCの利点は、野外環境に近い条件で大気汚染物質の植物影響を評価できる点である。OTCは二重のパイプハウスで構成され、内側のハウスは上部東西に沿った幅30 cmの開口部以外は農業用ビニールで被覆し、外側のハウス枠には降雨を遮断するため上部のみに幅120 cmのビニールを張った。内側ハウスの両東西妻面上部には、外気を導入するための送風機を1基ずつ設置した。外気はOTC中央部へ向かって拡散させ、ハウスの上部開口部から排出する設計である。

暴露期間は1993年4月～1995年9月の30か月間とした（ただし1994年1～4月と1995年1～3月は暴露しなかった）。O₃濃度は外気を活性炭フィルターで浄化し

た大気、およびその大気につねに外気の1.0、1.5、2.0倍になるようにO₃を添加した4段階とした（図5-3-1）。SO₂濃度は浄化大気および10、20、40 ppbの4段階とした（図5-3-1）。1.0倍以上のO₃区および10 ppb以上のSO₂区における濃度は目標濃度よりも若干低かったが、おおむね良好に制御できた（表5-3-1）。

(a) 葉の可視害発現に及ぼす影響

O₃あるいはSO₂の単独暴露による葉面の可視害発現状況を表5-3-2に示した。外気の1.5～2.0倍の高濃度O₃あるいは20～40 ppbの高濃度SO₂の暴露によって、針葉樹では4種のマツ類（アカマツ、クロマツ、ストロブマツ、カラマツ）とドイツウヒ、落葉広葉樹では供試した全9種の葉に可視害が発現した。ポプラ（ドロノキ）では外気の1.0倍のO₃暴露によっても可視害が発現した。ウラジロモミ、スギ、ヒノキの3種の針葉樹では可視害は認められなかった。

(b) 生長に及ぼす影響

1.5～2.0倍の高濃度O₃の暴露によって、6種の針葉樹（アカマツ、ストロブマツ、カラマツ、ドイツウヒ、ウラジロモミ、スギ）およびミズナラを除く8種の落葉広葉樹の乾重量が有意に低下した。これらのうち、針葉樹のストロブマツと落葉広葉樹のポプラ、トウカエデでは1.0倍O₃区においても乾重量は低下した。一方、20～40 ppbの高濃度SO₂の暴露によって、4種の針葉樹（アカマツ、ストロブマツ、カラマツ、ウ

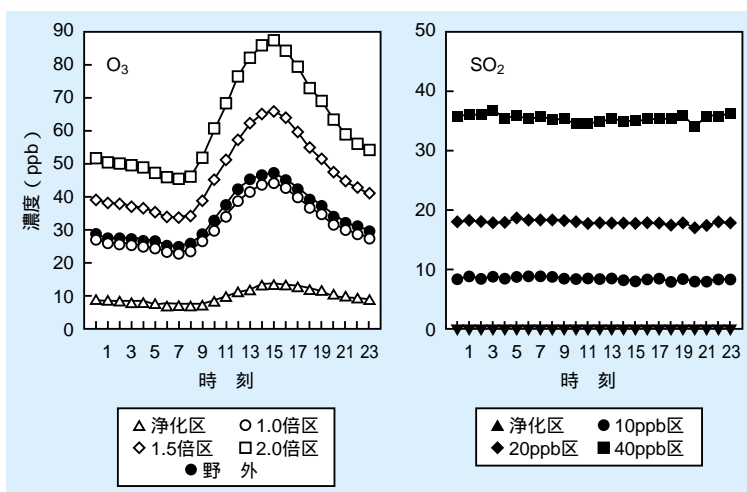


図5-3-1 O₃およびSO₂濃度の日パターン（暴露期間平均）

暴露期間：'93年4～12月、'94年5～12月、'95年4～9月

表5-3-1 O₃とSO₂の暴露期間中における平均濃度

	期間	処理区	濃度 (ppb)		
			24時間 平均値	12時間 平均値	日最高値 平均値
O ₃	1993年 4月～12月 (275日)	浄化区	12	12	20
		1.0倍区	28	30	46
		1.5倍区	41	44	67
		2.0倍区	54	58	89
		野外	30	32	48
	1994年 5月～12月 (245日)	浄化区	10	11	17
		1.0倍区	33	38	57
		1.5倍区	49	56	83
		2.0倍区	65	74	110
	野外	36	41	60	
	1995年 4月～9月 (183日)	浄化区	9	10	17
		1.0倍区	36	38	59
1.5倍区		53	57	88	
2.0倍区		71	75	118	
野外		37	40	61	
SO ₂	1993年 4月～12月 (275日)	浄化区	<1	<1	<1
		10ppb区	8	8	13
		20ppb区	18	18	25
		40ppb区	35	35	42
		野外	<1	<1	1
	1994年 5月～12月 (245日)	浄化区	<1	<1	<1
		10ppb区	8	8	11
		20ppb区	17	17	22
		40ppb区	32	32	39
	野外	<1	1	2	
	1995年 4月～9月 (183日)	浄化区	<1	<1	<1
		10ppb区	10	10	14
20ppb区		19	19	27	
40ppb区		39	39	53	
野外		<1	<1	1	

12時間：6:00 - 17:59

表5-3-2 葉の可視害発現におよぼすO₃とSO₂の単独影響

樹種	O ₃ 処理区				SO ₂ 処理区			
	浄化	1.0倍	1.5倍	2.0倍	浄化	10ppb	20ppb	40ppb
A) 針葉樹								
アカマツ	-	-	+	+	-	-	-	+
クロマツ	-	-	-	+	-	-	-	+
ストロブマツ	-	-	+	+	-	-	+	+
カラマツ	-	-	-	+	-	-	-	+
ドイツトウヒ	-	-	-	+	-	-	-	+
ウラジロモミ	-	-	-	-	-	-	-	-
スギ	-	-	-	-	-	-	-	-
ヒノキ	-	-	-	-	-	-	-	-
B) 落葉広葉樹								
ポプラ	-	+	+	+	-	-	+	+
シラカンバ	-	-	+	+	-	-	+	+
コナラ	-	-	-	+	-	-	+	+
ミズナラ	-	-	-	+	-	-	-	+
ブナ	-	-	-	+	-	-	-	+
ケヤキ	-	-	+	+	-	-	-	+
ユリノキ	-	-	-	+	-	-	-	+
トウカエデ	-	-	-	+	-	-	-	+
トネリコ	-	-	-	+	-	-	-	+

試験期間：30か月（1993年4月～95年9月）
 但し、カラマツ・シラカンバは16か月（93年4月～94年8月）
 ケヤキは5か月（93年4月～8月）
 94年1～4月と95年1～3月は暴露休止。
 - / +：可視害発現なし / 可視害発現
 但し、可視害には早期落葉も含む

ラジロモミ)と4種の落葉広葉樹(シラカンバ、ケヤキ、ユリノキ、トウカエデ)の乾重量が有意に低下し

た。針葉樹のストロブマツと落葉広葉樹のユリノキ、トウカエデでは10 ppb SO₂区においても乾重量は低下した。

以上のように、生長反応からみたO₃あるいはSO₂に対する感受性は樹種によって異なった。ポプラのようにO₃に感受性の高い樹種では、現状のO₃濃度レベルでも生長への影響が発現し得ることが示唆された。一方、ストロブマツなどの外来樹種を除くと、SO₂が平均10 ppb程度では生長に対する影響はみられなかったが、常時20 ppb以上になると影響が懸念される樹種のあることがわかった。さらに、本研究で供試した17樹種間のO₃あるいはSO₂に対する感受性の順位は、可視害発現を指標にした場合と生長低下を指標にした場合では必ずしも一致せず、生長低下を引き起こすO₃やSO₂の濃度レベルと可視害を発現させる濃度レベルも樹種により異なることが明らかとなった。

5-3-3 O₃とSO₂の複合影響

17樹種を対象に前記と同じ設定の4段階のO₃区と4段階のSO₂区をすべて組合せた16処理区の複合暴露実験を行った。図5-3-2に樹種ごとの生長反応(個体乾重量)を示した。O₃濃度は暴露期間中の平均濃度である。アカマツ、ウラジロモミ、トウカエデの3樹種では、O₃濃度が高くなると生長が低下したが、SO₂濃度も高くなると相加的に生長が低下した。クロマツやブナではSO₂とO₃の複合影響がみられ、SO₂濃度が高くなるにしたがいO₃濃度の増加に伴う生長低下が相乗的に大きくなった。ドイツトウヒ、ヒノキ、ポプラ、コナラ、ミズナラ、トネリコでも程度は小さいが、同様の相乗的な複合影響がみられた。ストロブマツ、カラマツ、シラカンバ、ケヤキ、ユリノキの5樹種では、SO₂濃度が20 ppbまではO₃濃度の増加に伴う生長低下の程度が相加的あるいは相乗的に大きくなった。しかし、SO₂濃度が40 ppbになると相殺的に複合影響が弱くなり、SO₂濃度によって反応が異なった。これらに対し、スギだけはSO₂とO₃の複合影響がみられなかった。

以上のことから、本研究で供試した17樹種は、スギを除くと、O₃に対する負の生長反応は10 ppbより高い濃度のSO₂が付加された場合に相加以上の作用を及ぼし、生長低下を増大させることが明らかとなった。

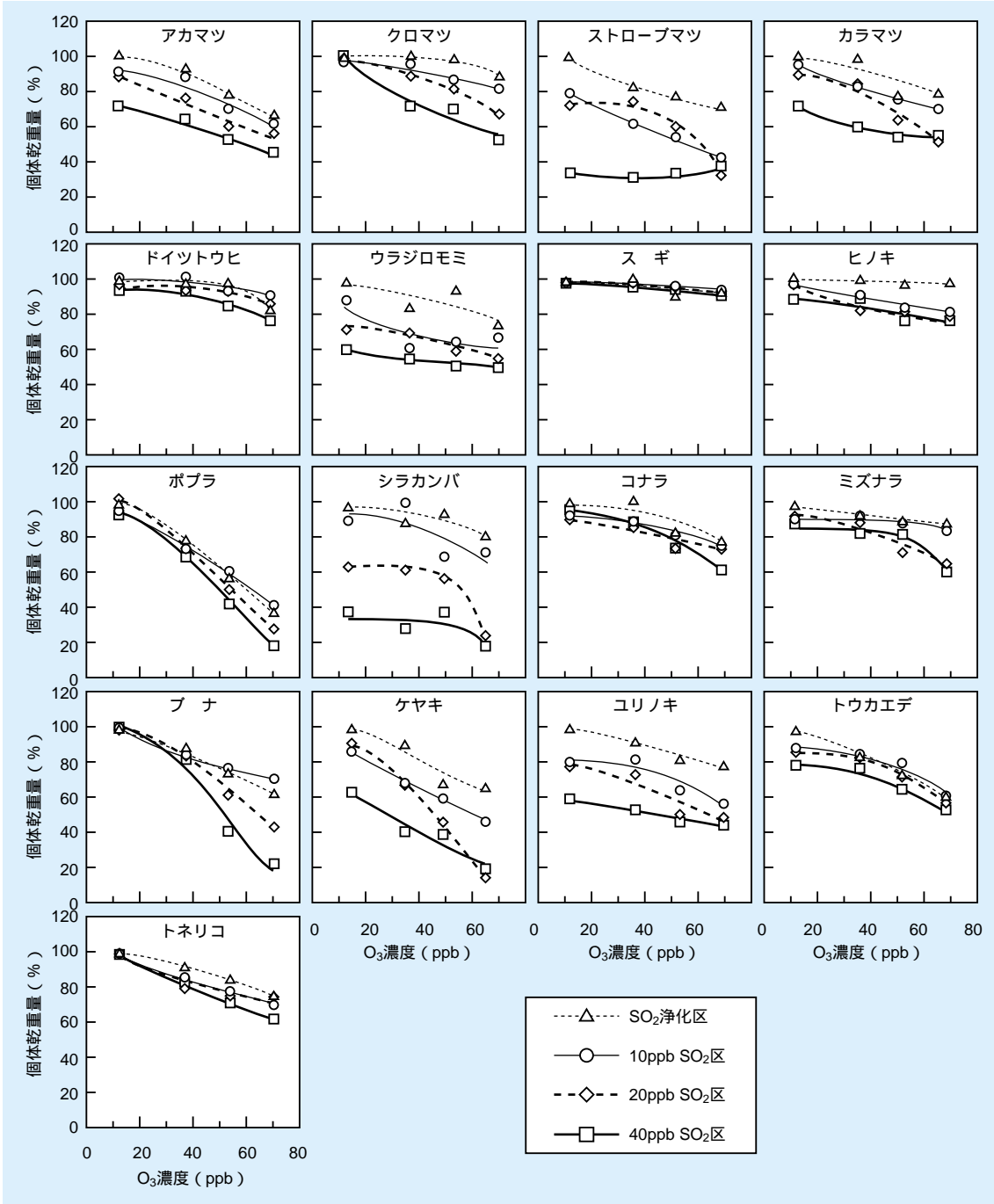


図5-3-2 個体乾重量におよぼすO₃とSO₂の複合影響

試験期間：30か月（カラマツ・シラカンバは16か月、ケヤキは5か月）
 縦 軸：浄化区（O₃浄化×SO₂浄化）に対する相対値（%）
 横 軸：暴露期間中における日中12時間の平均O₃濃度
 曲 線：各SO₂区において平均O₃濃度に対する個体乾重量（相対値）をウェィブル関数で回帰した曲線
 （ストローブマツの40ppb SO₂区は二次関数による回帰）

コラム4 オゾンのクリティカルレベル

国々が隣接しているヨーロッパでは、国境を越えた大気汚染物質の輸送が大きな環境問題となった。このためヨーロッパ国連経済委員会が国際交渉が行われ、その中でクリティカルレベル (critical level、CL) という概念が生まれた。CLは大気汚染物質が植物などに直接的影響を及ぼす場合の閾値濃度を意味する。現在は、農作物や樹木に影響を及ぼしていると考えられているオゾン (O_3) を対象にCLの設定・改訂が進められている。

1988年に最初のCLが提案され、生長期における日中7時間の平均濃度として25 ppbが設定された。その後、平均濃度よりも閾値濃度の超過分を積算したドウス (濃度×時間) が植物の反応とよく整合することが明らかとなり、1993年に40 ppbを越えた O_3 のドウスがCLの指標と決定された。その値をAOT40 (Accumulated exposure Over a Threshold of 40 ppb) と呼ぶ (図1)。ヨーロッパではバックグランド O_3 濃度が40 ppbよりも若干低いことから、閾値として40 ppbが採用された。

現在のところ、植物のタイプごとにレベルⅠと呼ばれるCLが決められている。1年生の農作物を対象としたCLは3,000 ppb・hrのAOT40である。この値は O_3 に感受性の高いコムギを用いたオープントップチャンバー (OTC) による暴露実験の結果から導かれたものであり、コムギの標準的栽培期間である3か月間 (50 W m⁻²以上の日照時) に5%の減収を引き起こすドウスであった。一方、

森林の樹木を対象とした O_3 のCLは10,000 ppb・hrのAOT40と定められている。樹木のCLは4~9月の6か月における日照時のAOT40を対象としている。解析には、 O_3 感受性の高いヨーロッパブナの苗木を対象としたOTCによる暴露実験結果が用いられた。10,000 ppb・hrのAOT40で1年あたりの生長量が10%減少したことがCLの根拠であった。

AOT40を指標としたレベルⅠのCLは、ヨーロッパのあらゆる環境条件下における、あらゆる農作物や樹木に対して指定されている。しかし、 O_3 に対する反応は植物の種や品種によって大きな差があり、生育環境や他の汚染物質との交互作用によっても大きく変化する。このためレベルⅠのCLは植物に及ぼす潜在的な O_3 影響を表現するだけに使用され、実際の被害程度の定量的評価には用いられていない。現在ヨーロッパでは、それらの変動要因を組み込んだレベルⅡのCLによる実際の O_3 影響評価手法の開発に取り組んでいる。

以上、ヨーロッパで設定されたCLについて概説したが、その値を世界の他の地域へ適用するには十分な注意が必要である。ヨーロッパ内においても、スカンジナビアから地中海まで大きな気候的格差があり、同一のCL値を適用することに多くの異論がある。CLはそれを適用する地域の植生を対象とした暴露実験結果や野外データに基づいて設定することが重要である。

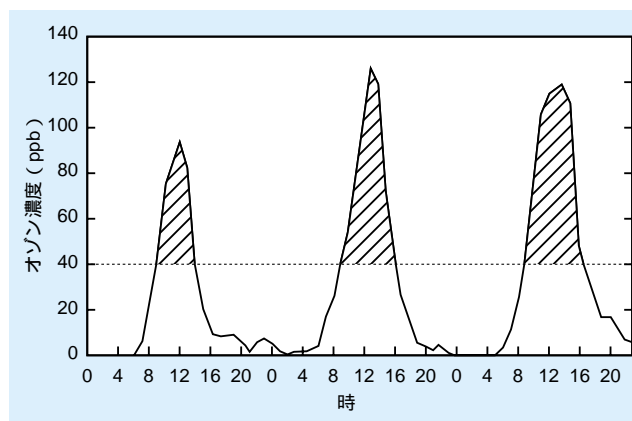


図1 オゾンのAOT40の算出に関する概念図
40 ppb以上の斜線部をAOT40として算出する。

第 章

6

コンクリート構造物への
影響評価

第6章 コンクリート構造物への影響評価 目次

我孫子研究所構造部長 上席研究員 金津 努
我孫子研究所構造部 主任研究員 山本 武志

6 - 1	コンクリートの劣化要因	73
6 - 2	暴露実験による影響評価	75
コラム5	コンクリートのつらら現象	79



金津 努（1978年入所）
LNG地下タンク，原子力発電所格納容器の温度応力設計合理化研究に従事。現在は，原子力発電所屋外重要土木構造物の耐震設計合理化研究，コンクリート製電力施設の健全度診断，酸性雨影響などの研究に取り組んでいる。



山本 武志（1993年入所）
フライアッシュの有効利用に関して，品質と混和したコンクリートの性能評価，JIS改正に関する調査研究に従事。現在は，フライアッシュのアルカリ骨材反応抑制効果やボゾラン活性の早期評価の研究に取り組んでいる。

6-1 コンクリートの劣化要因

6-1-1 はじめに

コンクリートの経年劣化には、塩害、アルカリシリカ反応、炭酸化、硫酸塩による浸食、凍害などのように、十年から数十年で被害が顕在化するような現象^(注1)と、酸性雨のように劣化進行が非常に緩慢で、通常の構造物の耐用年数内でそれが原因と判断することが難しい現象がある。劣化速度の速い現象については、経年変化の評価方法や対策技術が開発され、耐用年数が数十年のコンクリート構造物では、これらの劣化現象を考慮に入れた設計手法が提案されている⁽¹⁾。しかし、酸性雨については現象が十分に解明されておらず、これに起因する経年劣化の評価は困難な状況にある。

最近では既設施設の共用期間の延伸、耐用期間が100年を超える施設の設計などが行われるようになってきた。また、既設施設の施工方法に起因する劣化の早期顕在化が問題となっている。従来、二次的な要因としての位置づけであった酸性雨の影響も、他の要因との複合劣化要因として考慮すべき事項となってきた。

本節では、降雨に起因するセメント硬化体の化学的変質について、既往の知見をとりまとめた。

6-1-2 劣化因子

コンクリートとは、セメントペースト（セメント・水）に骨材（砂・砂利）を混ぜた硬化体であり、主要な水和物はCa-Si-H₂O系化合物（C-S-H）とCa(OH)₂である。コンクリート中の空隙に水分が浸透することにより、Ca(OH)₂がCa²⁺とOH⁻に解離する。また、セメントに微量含まれているNa₂O、K₂Oが溶解してNa⁺、K⁺、OH⁻になるため、コンクリート中の空隙のpHは12～13と非常に高い。しかし、空気中の二酸化炭素や水素イオン（H⁺）を含んだ雨水、河川水、霧などに曝されると、H⁺とOH⁻の中和反応が起り、コンクリート

の表面から徐々に空隙のpHが低下し、セメント水和物の変質する。いわゆる中性化と呼ばれる現象である。水和物の変質速度は、コンクリート構造物の状態や環境条件により異なる。特に、ひび割れが生じた場合や、コンクリート打設時に過剰の練混ぜ水が投入されて空隙が多いコンクリートの場合は劣化が促進される。コンクリートに生じるひび割れの原因は、外力荷重、温度応力、乾燥収縮、凍結融解、アルカリシリカ反応、塩害による鉄筋膨張などである。つまり、コンクリート打設時に用いる材料および配合の違いと、構造物を供用する場所の地域特性の違いにより、コンクリートに生じるひび割れの特性が異なる。その結果、H⁺の影響度合いはかなり異なると考えられる。わが国における雨水の年平均pHは4.6～5.2（平均4.8）の範囲にあるが、降水量の分布を考え合わせると、雨水を介して地表面へ負荷されるH⁺量（湿性沈着量）は、南西地域の方が北東地域より多くなる⁽²⁾。したがって、コンクリートに及ぼす影響も地域により異なるものと考えられる。

6-1-3 酸性雨による炭酸化の促進

コンクリート表面とひび割れ面は、空気中の二酸化炭素の影響により、セメント水和物（C-S-H、Ca(OH)₂）が炭酸化したカルサイト（CaCO₃）の薄膜で覆われている。その状態のひび割れに酸性雨が浸入した場合の化学反応式をコラム5に示した。浸透水はカルサイトを溶解して高濃度のH⁺とHCO₃⁻を含む水となるが、ひび割れを出ると脱炭酸が起り、炭酸カルシウム（CaCO₃）が析出する⁽³⁾。

6-1-4 酸による水和物の化学的変質

中性の水にモルタルを浸漬した場合でも、モルタルからCa²⁺が溶出する。しかし、酸性溶液に浸漬した場合の方が溶出量は著しく多くなる。pH 4.0、pH 3.5、pH 3.0の溶液にモルタルを浸漬した実験⁽⁴⁾が行われ、pHの違いによるペースト部のCaO、SiO₂、Al₂O₃、Fe₂O₃、

注1：これらの要因を考慮した設計を行った場合には、現象は生じないが、顕在化するまでかなりの長期間を要する。

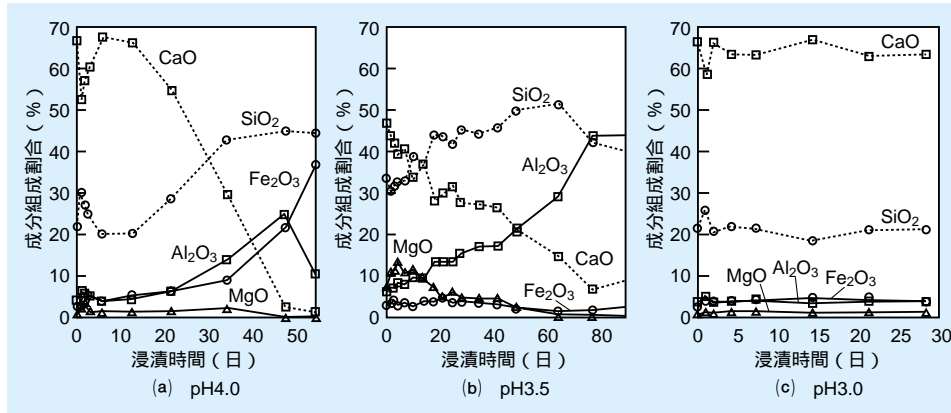


図6-1-1 種々pH条件での組成成分割合の経時変化 (普通ポルトランドセメント、W/C = 50%)⁽⁴⁾

MgOの溶出特性の違いが明らかにされた(図6-1-1)。また、各試料とも浸漬時間の経過とともに変色した。pH 4.0では浸漬開始後数日で黒色になり、25日程度で隅角部が白色に変色した。pH 3.0では50日目程度で茶色(赤褐色)に変色した。これらの変色は、ペースト表層部における元素の存在比率と関係があり、特にFe₂O₃とAl₂O₃は内部から表層部に向かう濃縮作用があると考えられている。

6-1-5 炭酸化による化学的变化

セメント水和物であるC-S-Hを定量分析する手法を用いて、他のセメント水和物(Ca(OH)₂、モノサルフェート)と合わせて炭酸化速度が評価された⁽⁵⁾(図6-1-2)。その結果、①セメント水和物であるC-S-HとCa(OH)₂の炭酸化は同時期に始まり、その後もほぼ並行して進行する、②C-S-Hに比べてCa(OH)₂の炭酸化速度の方が大きい、③C-S-Hに比べてモノサルフェートの炭酸化速度の方が大きい、④C-S-Hの炭酸化は、カルシウム含有率が低い低カルシウム型のC-S-Hを経て進行することが明らかにされた。

6-1-6 炭酸化による物理的变化

炭酸化によるセメント組織の変質について、実験的に次の知見が得られている。モルタルを炭酸化させ、その炭酸化した部分と炭酸化していない部分の細孔径分布の比較により、炭酸化した領域のほうが1 μm以下の細孔径容積が全般的に低下し、組織が緻密化すると

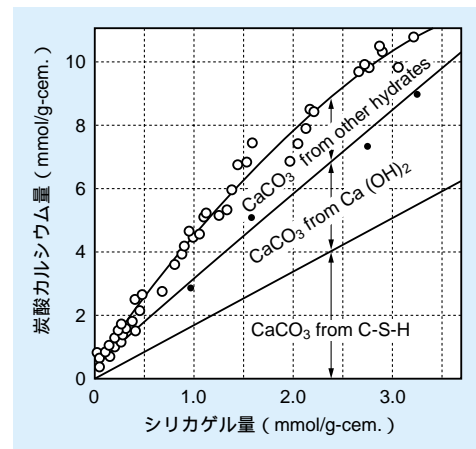


図6-1-2 炭酸カルシウム量とシリカゲル量の関係⁽⁵⁾

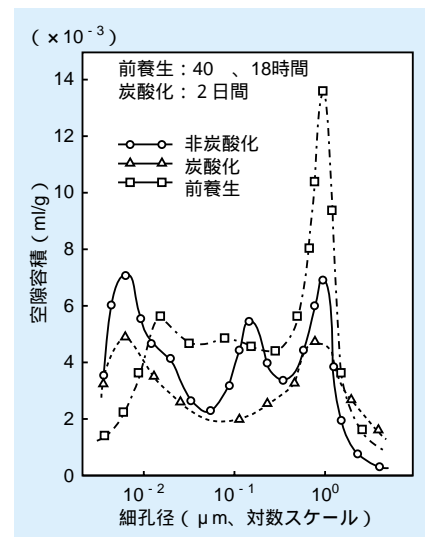


図6-1-3 各試料の細孔径分布⁽⁶⁾

いう結果が得られている⁽⁶⁾(図6-1-3)。また、空隙量の低下にともない、モルタルの曲げ強度は増加する。一

般に、水酸化カルシウムが炭酸化により炭酸カルシウム（カルサイト、パテライト、アラゴナイト）に変化することで、硬化体内の細孔量は低減する。しかし、

Ca 溶出が容易な組織に変質することも事実であり、ひび割れなどの欠陥ができる場合には、劣化を促進する要件になる。

6 - 2 暴露実験による影響評価

6-2-1 はじめに

前節で述べたように、酸性雨の影響は長期にわたってゆっくりと進行する性質のものであり、暴露試験により影響を検証するには、長期間の継続実験を必要とする。当研究所では、4か年にわたり酸性雨を模擬した人工雨を用いて暴露試験を実施し（総降雨量は約9000 mm）、以下の4つの観点から酸性雨のコンクリートへの影響を評価した。

- ① pHによって表面浸食量はどのように異なるか
- ② コンクリート内部にどのように影響するか
- ③ コンクリートの強度は影響を受けるのか
- ④ コンクリートの表面状態（色調）にどのように影響するか

6-2-2 模擬酸性雨による暴露実験

(a) 酸性雨の条件

模擬酸性雨の陰イオン組成は、わが国での実測例を参考にして、純水（pH 5.6：対照）に硫酸、硝酸、塩

酸を5：2：3（当量比）の割合で混合して調製した。pHは2.5，3.0，4.0，5.6の4段階とした。

(b) 試験体の条件

(1) 形状・寸法

降雨に曝される面の状態が強度に反映され易いように、板状試験体を曲げ強度試験に用いた（図6-2-1）。形状は厚さ1.5 cm、幅4 cm、長さ16 cmである。この大きさの関係から、試験体はモルタル（コンクリートから砂利部分を除いたもの）で作製した。曲げ試験は、降雨に曝される面を引張り側にして実施した。

(2) 試験要因

酸性雨の影響は、コンクリート構造物の欠陥部で早期に顕在化することが既往の研究から明らかにされている。本研究では、モルタルの水セメント比（以下W/C）を大きくして品質を低下させ、構造物の欠陥を実験的に再現することにした。

W/Cを60%，80%，100%に変え、単位体積当たりのセメントペースト量が一定となるように配合を決定した。一般の配合ではW/C 65%がほぼ上限なので、W/C 80%，100%は品質をかなり低下させたものと考

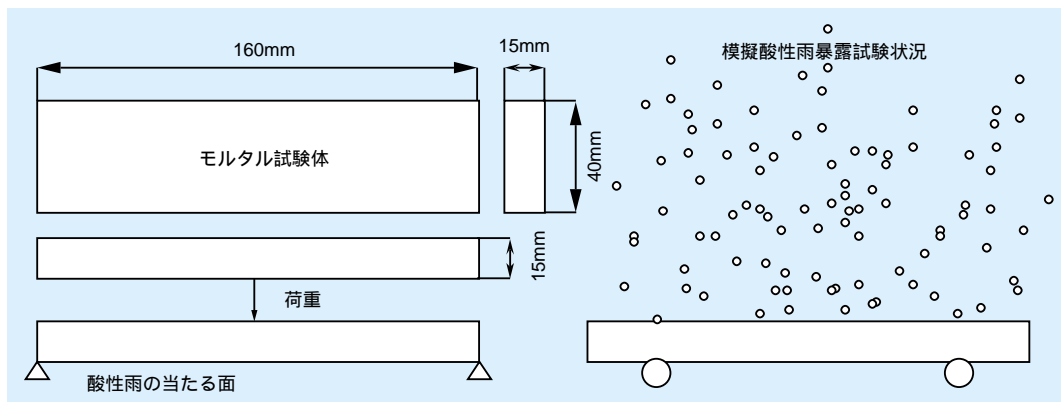


図6-2-1 モルタル試験体と曲げ強度試験方法

えることができる。試験体は1ケース3本である。

(c) 降雨条件

1降雨イベントを6時間、16 mmとし、これを2日に1回降らせた(雨量は1週間で約50 mm)。これは、乾湿を与えることにより実際の降雨条件に近づけるよう配慮したものである。模擬酸性雨の総雨量は約9000 mmであり、これは単純に年平均(約1700 mm)で換算すると、わが国の降水量の5～6年分に相当する。現実には、pH 4.0を下回る雨が年間1700 mm降っているわけではない。

6-2-3 表面の浸食量について

表面浸食量(浸食厚さ)は、所定降雨量を暴露した毎に0.01 mmまで測定した。この測定値は、雨滴が試験体表面に衝突する際の物理的な現象に起因する量と、酸性雨によりセメントペースト硬化体の変質して失われる量を合わせた量である。

降雨量と浸食量とは、模擬酸性雨の種類に関係なく非常に良好な直線関係が認められたことから、単位降雨量当たりの浸食深さ、つまり浸食速度として図6-2-2に示した。この図から、モルタルのW/Cの影響、模擬酸性雨のpHの影響を明確に把握することができる。

模擬酸性雨のpHが4.0以上の場合には、W/Cの大きい(品質不良の)モルタルの方が浸食速度はやや大きいものの、大きな差はなかった。つまり、わが国で通常認められる酸性雨のpH程度では、コンクリートの品質が悪くても(W/C: 80%, 100%), 浸食に与える影響はpH 5.6の降雨の場合と大差がないことを示すもの

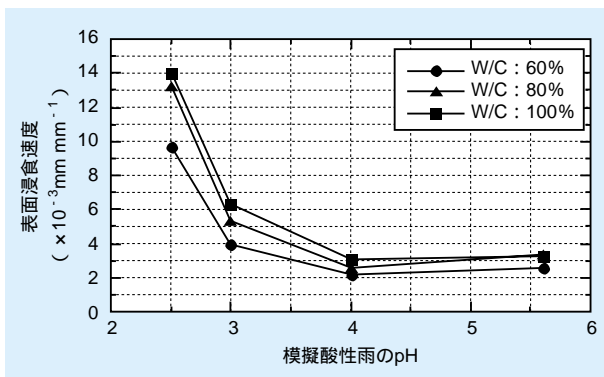


図6-2-2 模擬酸性雨のpHと表面侵食速度の関係

である。

浸食速度はpHが4.0を下回ると増加し始め、pH 3.0を下回ると急激に大きくなった。この領域では、モルタルの品質の影響も大きくなるが、pHの影響はさらに著しい。pH 3.0の場合の浸食速度は、pH 5.6に比較して、品質が通常モルタル(W/C: 60%)で約1.6倍、品質不良モルタル(W/C: 80%, 100%)で約2倍となった。pHが2.5になると、品質が通常モルタルで約3.8倍、品質不良モルタルで約4.3倍となった。降雨量10000 mmのときの浸食量は、pH 5.6の場合で0.3 mm程度、pH 2.5の降雨で1.0～1.4 mmと推定される。

本実験で得られたpHと浸食速度の関係をpHが変動する実際の降雨の場合に適用するとすれば、各pHの降雨量に浸食速度を乗じて、それらを積算することにより、表面浸食量の評価は可能と考えられる。

6-2-4 内部への影響について

試験体内部への影響は、組織の密実さ、品質の良さを表す指標として、単位体積当たりの細孔容積と主要な水和物であるCSH(Ca-Si-H₂O系化合物)を測定して評価した。酸性雨の内部への進入により硬化体が分解して各種イオンが溶出し、組織が多孔質化することが予測された。

実験結果(図6-2-3)は、品質が不良なモルタルほど総細孔容積は大きい値となったが、模擬酸性雨に暴露されても、それらの値は初期値のまま経時的にはほとんど変化しなかった。むしろ、経時的に小さくなる傾向が認められた。別途実施したNO₃⁻の測定結果から、酸性雨は内部へ浸透しているが、モルタルの微細構造へは悪影響を及ぼしていないことが示唆された。

さらに、セメントペースト硬化体の品質をより的確に評価するため、試験体の表層(5 mm)と内部(中央部5 mm)の2箇所から試料を採取しCSHを測定した(図6-2-4)。模擬酸性雨の影響は、pH 2.5の場合に明確に認められ、表層ほどCSHが多く分解されたが、pH 4.0とpH 5.6では採取場所による差はそれほど大きくなかった。むしろ、モルタルの品質(W/C)の影響が大きい。W/Cが100%と品質がかなり悪い場合は、降雨のみによりCSHの分解が進行した。

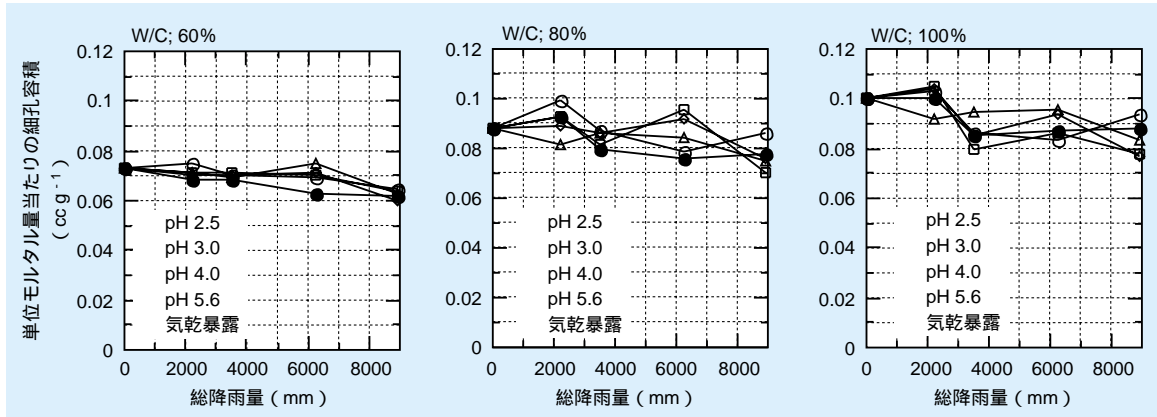


図6-2-3 総降雨量と試験体内部の総細孔容積

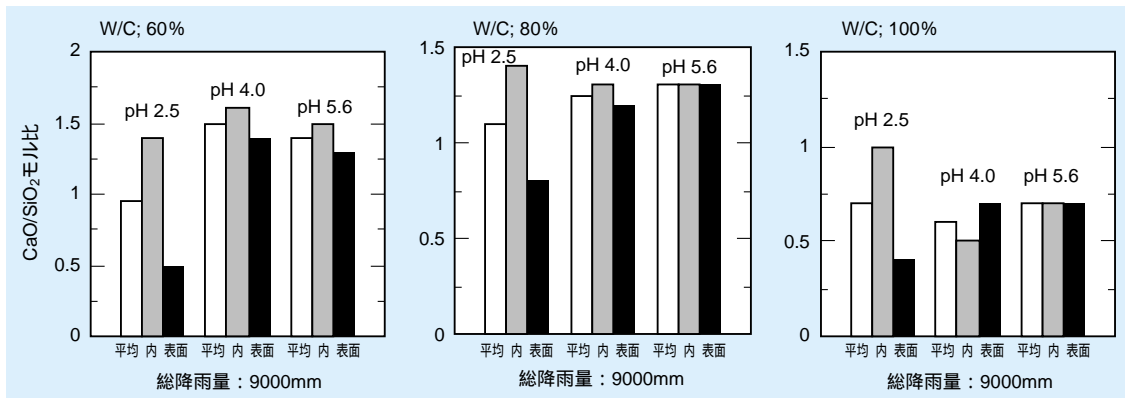


図6-2-4 C-S-Hの分析結果

本暴露実験から、モルタル内部への影響は次のように結論される。酸性雨のpHが3.0を下回る場合や、モルタルの品質が非常に不良の場合は、pH 5.6、W/C 60%の条件に比較して、セメントペースト硬化体の分解が顕著に生じる。しかし、pHが4.0以上、W/Cが80%以下ならば、酸性雨の影響はほとんどない。

6-2-5 曲げ強度に与える影響

模擬酸性雨に曝した面を引張り側として、試験体の曲げ試験を行った結果を図6-2-5に示す。ここではpH 5.6の場合を基準として強度変化を整理した。

曲げ強度は、モルタルの品質や模擬酸性雨のpHの違いにより、経時変化にわずかであるが差が生じた。W/Cが60%の場合は、降雨量が約9000 mmとなっても、pHにかかわらず曲げ強度比はほとんど変化しなかった。一方、W/Cが80%の場合は、曲げ強度比は経時

的にやや低下し、その割合はpHが低いほど大きくなった。すなわち、モルタルの品質が悪くpHが低い場合は、降雨量9000 mm程度で曲げ強度に若干の影響がでるものと考えられる。

6-2-4で述べたように、セメント硬化体のCSH分解の程度は内部より表層部で著しく、その傾向はpHが低いほど大きい。ここで述べた曲げ強度に対する影響は、そうしたCSH分解の結果と符合するものである。

6-2-6 表面状態（色調）について

降雨に起因するコンクリートの色調の経時変化は、一つの劣化事象と考えられる。色調の変化は、物理的、化学的な影響に比べて短期間で顕在化する現象であるため、他の要因を二次的要因を位置づければ、コンクリート構造物の性能に影響する一次的要因である。

図6-2-6は総雨量約9000 mm、試験日数1430日の時

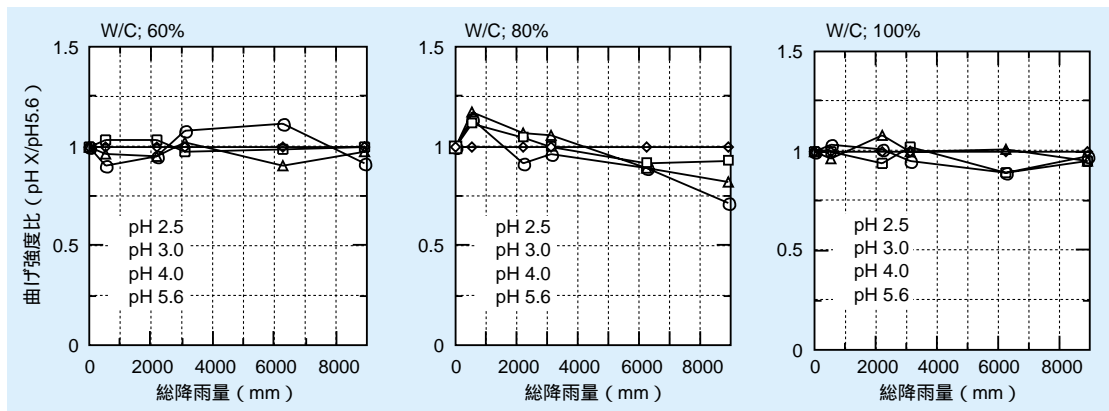


図6-2-5 総降雨量に伴う曲げ強度比の変化

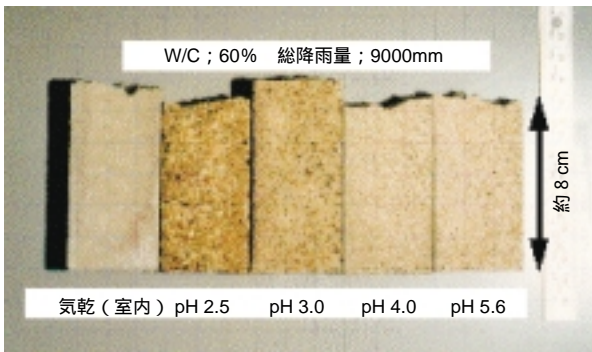


図6-2-6 各pHの条件での試験体表面の色調の相違

点の試験体 (W/C 60%) の外観を示した。室内に放置した試験体 (気乾) は、暴露開始時の外観とほとんど

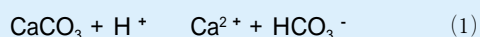
同じであった。一方、模擬酸性雨に暴露した試験体は、pHが5.6から低くなるにしたがい表面が赤茶けてきた。これは、モルタル中の鉄分 (Fe) が酸化されて褐色化したものと考えられる。既往の研究^{(7)、(8)}によれば、Feは酸性環境下であっても溶出しにくく、残留と濃縮が顕著になり、酸化とともに赤褐色化することが確認されている。

pHが5.6、4.0では、色調は気乾状態とそれほど大きく相違しなかったが、pHが3.0、2.5ではかなり色濃くなった。このような状態は、降雨量2100 mm時点で現れており、影響の顕在化は早い。しかし、実際の降雨pHのレベル (pH 4.0以上) では、色調変化は緩慢に進行する。

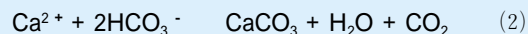
コラム5 コンクリートのつらら現象

ひび割れの入ったコンクリートの表面に、白色の液ダレ痕のようなものが付着していることがある。それは降雨の作用により生成した炭酸カルシウムの白色沈澱である⁽³⁾。

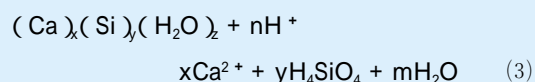
ひび割れ内の表層部は、セメント水和物（Ca(OH)₂）と空気中の炭酸ガスの反応により生成したカルサイト（CaCO₃）の膜で覆われている。そこに酸性雨が浸透すると、式(1)の反応が生じる。



雨水がひび割れ内を浸透する間に、雨水はCa²⁺とHCO₃⁻を含むかなり濃厚な溶液になる。やがて雨水がひび割れのそとに出ると、大気に開放されるため脱炭酸が起り、CaCO₃が析出する（式(2)）。つまり、ひび割れが発生しているコンクリート部材の下部で、円形状の結晶塊が生成し、徐々に成長することによりストロー状のつららとなる（写真1）。



同時に、コンクリート空隙内のpH低下により、セメント水和物であるCa-Si-H₂O系化合物の一部が溶解する（式(3)）。ここで生成したH₄SiO₄がゲル化し、ひび割れを閉塞することがあり、つららの形成を律速する要因となる。



実構造物に生じるつららの成長は、ひび割れ幅、環境温度、湿度、風、日射などの影響を受けるので、降雨の影響を評価するのは難しい⁽⁹⁾。また、純水やアルカリ水によってもつらら現象の起ることが明らかにされており、必ずしも酸性雨に特定される現象ではないが、pHが低い雨水の方が成長を促すことも確認されている^{(10)、(11)}。



写真1 コンクリートつらら

第 7 章

7

総合評価

第7章 総合評価 目次

企画部環境推進担当 部長 朝倉 一雄
粕江研究所大気科学部長 上席研究員 藤田 慎一
粕江研究所大気科学部 上席研究員 佐藤 一男

7 - 1 酸性物質の広域輸送	83
7 - 2 酸性物質の環境影響	84
7 - 3 今後の課題	85



朝倉 一雄（1971年入所）
火力発電所の排ガス拡散実態調査，排ガス
拡散予測手法および石炭火力発電所微量物質
の環境影響評価など，発電所の大気環境影響
評価に係わる研究を行ってきた。現在，企画
部で，地球温暖化問題や微量物質対策など，
環境研究全般にわたる総合推進の業務を担当
している。

藤田 慎一（8ページに掲載）

佐藤 一男（34ページに掲載）

7 - 1 酸性物質の広域輸送

(1) 東アジアの降水化学

東アジアの降水組成は、上層風や降水量などの気象条件と、前駆物質の排出源分布の二つに大きく支配されている。その質的な変化を検討するとき、AP： $[nss-SO_4^{2-} + NO_3^-]$ とNP： $[nss-Ca^{2+} + NH_4^+]$ の値はよい指標になる。大陸北部の降水はNP > APの関係が成立し、APは高いがNPは相対的にさらに高い。これは硫酸や硝酸を中和するのに十分な量のカルシウムやアンモニアが、定常的に降水中に供給されていることを意味する。このため、アジア最大のSO₂排出域の後背に位置するにもかかわらず、酸性度の強い雨は降っていない。太平洋上の降水はNP < APの関係が成立し、APは低いがNPは相対的にさらに低い。このため発生域から離れているにもかかわらず、年間を通して酸性度の強い雨が降ることになる。

西日本地域における降水中の $nss-Ca^{2+}$ 、 NH_4^+ 、 $nss-SO_4^{2-}$ 、 NO_3^- の各濃度は、寒候季に高く暖候季に低くなる傾向がある。 NO_3^- 濃度と NH_4^+ 濃度の増加は顕在化しており、過去10年間の増加率は約45%に達する。これに対して $nss-Ca^{2+}$ 濃度と $nss-SO_4^{2-}$ 濃度には、明瞭な経年変化は認められない。降水の酸性化に及ぼす硝酸の寄与は経年的に増加しており、東アジアにおけるNO_x排出量の増加がこれに深く関与している。

(2) わが国における硫黄の収支

1980年代後半の日本列島を対象に、硫黄化合物の収支を解析した。推計された人為排出量は約435 GgS yr⁻¹、湿性沈着量は約620 GgS yr⁻¹、乾性沈着量は約430 GgS yr⁻¹である。沈着量/排出量の比率は地域的に異なるが、日本全体をみると、みかけ上、全沈着量はこの地域からの排出量を約2.4倍上回る。硫黄化合物の収支には天然排出源、特に火山活動も大きく関与している。だがその分布は地理的に偏在しており、噴煙の流

出経路は季節的に大きく変化する。寒候期の日本海側でみられる高濃度の原因を、火山活動で説明することは風系的にみても困難である。

(3) 酸性物質の広域輸送

ハイブリッド型の広域輸送モデルを開発し、わが国に沈着する硫黄化合物の排出源の寄与率を計算した。予測されたわが国の沈着量は、観測値の80%強であり、多くの地点で両者はよく一致する。日本全域で見ると、全沈着量のうち人間活動による影響が40%、火山の影響が20%、大陸の影響が40%を占める。寒候期の日本海側では、季節風の影響により大陸の影響が80%を超える。

広域輸送モデルによる計算結果の妥当性は、他のモデルとの比較計算によって裏付けられた。台湾電力公司/台湾大学との共同研究や当研究所の提唱による国際プロジェクト(MICS-ASIA)により、複数の広域輸送モデルを用いて硫黄化合物の輸送計算を行い、モデル間の整合を調べた。その結果によると、個々の結果には当然違いはみられるが、発生-沈着関係を含めて予測結果の大まかな特徴は一致している。濃度や沈着量の予測精度は、空間解像度や降水量の評価に大きく支配されることがわかった。

国際応用システム分析研究所と共同で、わが国における酸性物質の沈着量の将来予測解析ツールTRAJECを開発した。将来のSO₂排出量について、現状規制シナリオにおける2030年の全沈着量は、1995年に比べて約20%増加する。中国の2030年のエネルギー消費量が1995年の2.7倍に、SO₂排出量が3.5倍になるという悲観的なシナリオでは、日本海側で硫黄の沈着量が2倍になる地域が生じる。わが国における硫黄沈着量の増加に関与するのは、主に朝鮮半島の西にある渤海湾と黄海を囲む領域からの排出量の増加である。

7 - 2 酸性物質の環境影響

(1) 森林への酸の総沈着量

群馬県の実験林（スギ人工林）を対象に，大気から樹冠への H^+ の沈着量を推定した。降水による湿性沈着量は $0.52 \text{ keq ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ ，4種の酸性ガス（ SO_2 ， NO_2 ， HNO_3 ， HCl ）による乾性沈着量は $0.72 \text{ keq ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ となり，総沈着量は $1.24 \text{ keq ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ と推計された。この値は森林土壌や湖の酸性化が喧伝される欧米の沈着量に匹敵するものである。一方，欧米に見られない特徴として， H^+ の乾性沈着量に占める HCl の寄与がかなり大きい（19%）ことがあげられる。

(2) 森林土壌への影響

前記の実験林を対象に，土壌 - 植生系における H^+ の収支を推定した。大気からは湿性 + 乾性沈着，大気由来の NH_4^+ の葉面吸収と土壌中での硝化により合計 $3.1 \text{ keq ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ の H^+ が負荷されている。これに対し，系の内部ではその5.2倍（ $15.9 \text{ keq ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ ）の H^+ が自然のプロセスで生産されている。さらに，両者を合わせたすべての H^+ は，土壌からの豊富な塩基の放出や植生のアニオン吸収により，系内で完全に中和されていることがわかった。

酸性岩（花崗岩，流紋岩）を母材とする土壌が分布する広島県南部の25地点を対象に，深さ50 cmにおける土壌溶液の BC/Al 比を調べた。その結果， BC/Al 比は1.5 ~ 440の範囲にあり，いずれの地点もヨーロッパでの閾値1を上回った。そこで， BC/Al 比が1となる H^+ の上乗せ量を試算した結果， $0.77 \sim 15.8 \text{ keq ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ となった。これらの値は，同地点における H^+ の総沈着量（およそ $0.7 \text{ keq ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ ）と同レベルかそれ以上である。

(3) 陸水への影響

山地流域で普遍的にみられる中和反応は，陽イオン交換と鉱物風化である。両者を定量的に分別する方法を考案し，手取川水系の中宮流域，吉野川水系の東谷流域，天竜川水系の陣が畑流域，アメリカ・アディロンダック公園内のウッズ（Woods）流域の四つに適用

した。中宮流域と東谷流域における主要な中和反応は，方解石の風化である。陣が畑流域ではケイ酸塩鉱物，とくに斜長石の風化が中和に働いている。一方，鉱物の風化速度が小さいウッズ流域では，風化と陽イオン交換では中和しきれない H^+ が流出し，湖水の酸性化を招いている。

以上の結果から，酸性化のおそれのある流域条件としては，石英や白雲母などの風化しにくい鉱物を多く含み，風化層が薄い（10 m以下）ため鉱物の風化速度が小さく（ $1 \text{ kmol ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ 以下），風化による H^+ の中和量と H^+ の沈着量の比が小さい（10以下）流域と考えられる。

鉱物風化の重要性はモデル計算でも裏づけられた。アメリカの電力研究所（EPRI）が開発したILWASモデルを東谷流域に適用し，河川水質の長期予測を行った。その結果，現状レベルの H^+ の沈着が100年間続いても，河川水質は安定しており酸性化は起こらない。一方，方解石の風化がまったく起こらないと仮定した場合は，数十年後に酸性化の兆候が現れ，その後徐々に酸性化の進むことが予測された。

(4) 樹木への影響

樹木を対象に人工酸性雨の暴露実験を行った。可視害の発現 pH は樹種によって異なり，針葉樹の場合は3.0 ~ 2.5の間，広葉樹では4.0 ~ 3.0の間にある。生長反応についても，針葉樹のほうが広葉樹よりも耐酸性は強い。土壌に無施肥の状態で人工酸性雨を暴露すると，硝酸の施肥効果により生長促進がみられる。針葉樹の場合は，土壌の BC/Al 比が1以下になってもほとんどの樹種に顕著な生長低下は認められないが，落葉広葉樹の場合は生長低下の割合が樹種によって大きく異なる。人工酸性雨にオゾンを複合させると，個体の生長量は増加するが，光合成産物の分配のアンバランス化が加速される。

以上の結果から，現状の酸性雨では可視害や生長抑制などの直接影響が発現する可能性は極めて小さい。また，衰退地点の土壌理化学性を考慮すると，土壌酸

性化が衰退原因である可能性も小さいと考えられる。

つぎに、オゾンとSO₂の暴露実験を行った。生長低下を引き起こすオゾンやSO₂濃度は、樹種によって大きく異なる。生長低下を指標とした場合と可視害を指標とした場合とでは、オゾンやSO₂の濃度の閾値は異なる。オゾンに感受性の高い樹種では、現状のオゾン濃度でも生長への影響が懸念されるものがある。SO₂濃度が常時20 ppb以上になると、SO₂の単独影響が懸念される樹種がある。現状濃度のオゾンと10 ppbより高い濃度のSO₂の複合暴露によって生長低下の程度が増大する。

以上の結果から、現状ではSO₂の樹木影響は極めて小さい。しかしSO₂濃度が常時20 ppb程度になると、SO₂の直接影響とオゾンとの複合影響が発現する危険性は高くなると考えられる。

(5) コンクリート構造物への影響

水セメント比(W/C)が60%、80%、100%のモル

タル試験体を製作し、模擬酸性雨による暴露実験(総雨量約9000 mm)を行った。一般のモルタルはW/C 65%が上限なので、80%、100%は品質をかなり低下させたモルタルである。模擬酸性雨のpHは2.5、3.0、4.0、5.6の4段階とした。

モルタル表面の浸食量は、pHが4.0以下になると増加し始め、pH 3.0以下で急激に増大する。モルタル内部への影響は、pHが2.5の場合やモルタルの品質が非常に不良の場合に顕著である。曲げ強度は、モルタルの品質が悪くpHが3.0以下の場合に若干低下する。表面の色調は、pHが5.6、4.0では気乾状態と大きく違わないが、pHが3.0、2.5ではかなり赤褐色化する。

わが国の酸性雨のpHは、低い場合でも4.0程度であるから、通常のコンクリート構造物では、50年程度の耐用年数の間に酸性雨が経年劣化を著しく促進させることはない判断される。

7 - 3 今後の課題

以上の研究結果を総合的に判断すると、酸性物質の濃度や沈着量が現状のレベルで推移する限り、近い将来、わが国の環境に大きな変化が現れる可能性は小さい。しかし将来的に濃度や沈着量が大幅に増加することがあれば、その可能性は必ずしも否定できない。

酸性雨問題の解決を図るためには、その監視、評価、削減対策に総合的に取り組む必要がある。酸性雨の監視については、わが国の提唱のもとに始まった東アジア酸性雨モニタリングネットワークが本格的に稼働した。国際的に統一された手法に基づく科学的な基礎データは、酸性雨現象の共通理解に役立つものと考えられる。酸性雨の評価については、海外の研究機関も参入して広域輸送や環境影響の調査研究が行われている。これらの客観的な評価を通じて、東アジアにおける酸性雨の現況や将来が一層の確度で明らかにされつつある。その結果をふまえて、各国の国情に合った環境対策の探索が行われていくことになる。わが国は、数々の環境問題を克服した環境立国として、対策技術の支援・移転を一層強力に進める必要がある。

一方では、化石燃料の消費による地球温暖化が進行しており、CO₂の排出削減を確実に実行することが、21世紀の人類にとって最重要課題である。環境負荷を軽減するエネルギー対策の基本は、CO₂排出量の少ない電力供給技術、省エネルギー、省資源化技術などのCO₂削減対策である。先進国は主体的にこれらの対策を実行するとともに、途上国との共同活動によるCO₂削減に取り組む必要がある。こうしたエネルギー対策への取り組みが、酸性雨問題の解決にも寄与する。

これまでは酸性物質の越境大気汚染やCO₂による地球温暖化が問題であったが、21世紀には水銀など微量物質の広域輸送も顕在化する可能性がある。

当研究所は、今後も継続して、各種の化学物質を対象に広域輸送の評価、森林生態系における循環機構の解明、植物への複合影響の解明などに取り組む計画である。また、国際的な研究ネットワークの一員として、酸性雨問題の検討の場に参画し、技術的な知見の提供や共同研究の活動に努めることにより、問題解決に貢献したいと考えている。

お わ り に

理事 我孫子研究所長 加藤 正進



地球環境問題を解決するためには、国際的な合意のもとに原因物質の排出削減を実行する必要がある。地球温暖化問題では、気候変動枠組条約に185か国が調印し、温室効果ガス濃度の安定化を目指してこれまでに6回の締結国会議が開催されてきた。酸性雨問題においても、欧米では本編で紹介したように、長い時間をかけた科学論争と幾多の国際交渉を経て、二酸化硫黄の排出削減が実行に移された。しかし、東アジア地域ではモニタリングネットワークが活動を開始したばかりであり、対策に動きだすにはまだ時間を必要とするとみられる。

当研究所は、正確な科学的知見を提供するという形で、排出削減に向けた国際世論の形成に貢献したいと考えている。この電中研レビューが幾分なりともそのお役に立てば幸いである。研究を行うにあたり、ご指導とご協力を賜った官公庁、大学、研究機関、電力会社の関係各位に心よりお礼申し上げます。

今後は、酸性物質を含めた広範な化学物質を対象として、大気中での輸送現象や陸域での動態解明、リスク評価に取り組む所存である。ここに関係各位のますますのご指導とご鞭撻をお願いする次第である。

引用文献・資料等

第1章

- (1) Smith, R.A., 1972, Air and Rain, Longmans Green & Co., London, 600 pp.
- (2) Brinblecombe, P., 1987, The Big Smog, Methem, London, 185 pp.
- (3) VDI (Verein Deutscher Ingenieure), 1993, Acidic Precipitation, VDI Kommission Reinhaltung der Luft, 281 pp.
- (4) Kellner, O., Sawano, J., Yoskii, T. and Makino, R., 1886, Mittheilungen aus dem Agrikulturchemischen Laboratorium des Kaiserl Japanischen landwirthschaftlichen Instituta zu Tokio, I. Untersuchungen uber den Gehalt der atmospherischen Niederschlage an Stickstoffverbindungen, Landw. Jahrbuhr, 15, 701-708.
- (5) Rossby, C.G. and Egner, H., 1955, On the chemical climate and its variation with the atmospheric circulation pattern, Tellus, VII, 118-133.
- (6) Bollin, B., Granat, L., Ingelstam, L., Johannesson, M., Mattsson, E., Oden, S., Rodhe, H. and Tamm, C.O., 1971, Air Pollution Across National Boundaries, Royal Ministry for Foreign Affairs, Royal Ministry of Agriculture, Stockholm.
- (7) OECD, 1977, The OECD Program on Long Range Transport of Air Pollutants: Measurements and Findings, OECD Press.
- (8) Irving, P.M. NAPAP, 1991, Acidic Deposition: State of Science and Technology, Summary Report of the U.S. National Acid Precipitation Program.
- (9) Hidy, G.M and Mueller, P.K., 1982, The Sulfate Regional Experiment: Report of Findings, EPRI Report EA-1901, Palo Alto, CA, U.S.A.
- (10) 川島祿郎「肥料学」、地球出版、957 pp.、1929
- (11) 庄司光「都市の公害問題」、国民衛生、24、55-67、1955
- (12) 西禎二「雨水のpHからみた大気汚染」、大気汚染ニュース、64、4-5、1971
- (13) 吉田克巳「酸性雨とあさがお」、大気汚染ニュース、66、1、1971
- (14) 倉茂英次郎「雨の成分」、天気と気象、1、390-393、1933
- (15) 中央気象台「気象要覧」、No.430、425、1935
- (16) 気象庁「大気バックグラウンド汚染観測年報」、1976
- (17) 関東地方公害対策推進本部大気汚染部会、一都三県公害防止協議会「関東地方におけるいわゆる酸性雨(湿性大気汚染)について」、76 pp.、1975
- (18) Sekiguchi, K., Hara, Y. and Ujiye, A., 1986, Dieback of *Cryptomeria japonica* and distribution of acid deposition and oxidant in Kanto district of Japan, Environ. Tech. Letters, 7, 263-268.
- (19) 環境庁、林野庁「昭和60年度関東地域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」、72 pp.、1986
- (20) 環境庁「第1次酸性雨対策調査結果について」、1986
- (21) 環境庁「第2次酸性雨対策調査結果」、80 pp.、1994
- (22) 環境庁「第3次酸性雨対策調査の中間取りまとめについて」、1997
- (23) CRIEPI, 1996, Proceedings of International Seminar on Transport and Effects of Acidic Substances, November 28-29, 1996, Tokyo, Japan.
- (24) 全国公害研連絡会酸性雨調査研究部会、平成3年度酸性雨全国調査結果報告書、100 pp.、1993
- (25) 藤田慎一、高橋章、西宮昌「わが国における酸性雨の実態 降水の観測網の構築」、環境科学会誌、7、107-120、1994
- (26) 程子峰「中国における酸性雨調査と測定法」、環日本海における酸性雨・雪講演要旨集、37-42、金沢、1990
- (27) 全浩「中国における酸性雨の現状とこれからの課題」、大気汚染学会誌、26、283-291、1991
- (28) Kim, H.-K., 1996, Air pollution research and monitoring of wet deposition in Korea, Proceedings of CRIEPI International Seminar on Transport and Effects of Acidic Substances, November 28-29, Tokyo, Japan, 26-35.
- (29) Jeng F.-T., 1995, Annual Report, EPA-84-E3F 1-09, Environmental Protection Administration of Taiwan, Taipei, Taiwan, 101 pp.
- (30) IAMAS/NTU/EPA, 1996, Proceedings of International Conference on Acid Deposition in East Asia, May 28-30, 1996, Taipei, Taiwan, 562 pp.
- (31) Miller, N.H.J., 1913, The composition of rain-water collected in the Hebrides in Iceland; With special reference to the amount of nitrogen as ammonia and as nitrates. Scott. Met. Soc. XVI, 141-158.
- (32) Environment Agency, 1997, Acid Deposition Monitoring Network in East Asia: Achievements of the Expert Meetings.
- (33) CRIEPI, 1993, International Workshop on Acidic Deposition in East Asia, November 24-26, 1993, Hakone, Japan, 63 pp.
- (34) 電力中央研究所「酸性物質の広域輸送と環境影響」、公開セミナー講演要旨集、34 pp.、東京、1997
- (35) World Bank, 1996, RAINS-Asia Proposal for Funding Phase II.
- (36) Yoda, S., 1995, TRILEMMA; Three Major Problems Threatening World Survival, CRIEPI, Tokyo, 246 pp.

- (37) 鈴木克則「東アジアの酸性雨モニタリングネットワーク」、EICA年報、4、33-38、2000

第2章

- (1) Fujita, S., Takahashi, A., Weng, J.-H., Huang, L.-F., Kim, H.-K., Li, C.-K., Huang, T.-C. and Jeng, T.-J., 2000, Precipitation chemistry in East Asia, *Atmos. Environ.*, 34, 525-537.
- (2) 鶴田治雄「東アジアの酸性雨」、*科学*、59、305-315、1989
- (3) Hara, H., 1993, Acid deposition chemistry in Japan, *Bull. Inst. Public Health*, 42, 1-12.
- (4) Fujita, S., Takahashi, A., Hayami, H. and Sakurai, T., 2000, Long-term trends in the chemical composition of precipitation over western Japan, *Water Air Soil Pollut.* (in press).
- (5) Ichikawa, Y., Hayami, H. and Fujita, S., 1998, A long-range transport model for East Asia to estimate sulfur deposition in Japan, *J. Appl. Meteor.*, 37, 1364-1374.
- (6) Takahashi, A. and Fujita, S., 2000, Long-term trends in nitrate to non-sea salt sulfate ratio in precipitation collected in western Japan, *Atmos. Environ.*, 34, 4551-4555.
- (7) 藤田慎一「日本列島における硫黄化合物の収支」、*環境科学会誌*、9、185-199、1996
- (8) 藤田慎一、外岡豊、大田一也「わが国における火山起源の二酸化硫黄の放出量の推計」、*大気汚染学会誌*、27、336-343、1992
- (9) Hayami, H., Fujita, S., Ichikawa, Y., Huang, T.-C., Lee, C.-K., Jeng, F.-T., Chang, J.-S., Chang, K.-H., Lin, P.-L. (1999) Joint Report on Regional Acid Deposition in East Asia. 電力中央研究所共同研究報告T989802.
- (10) 市川陽一、速水洋「東アジアを対象とした硫酸化物の長距離輸送モデルの評価」、*電力中央研究所研究報告* T96044、1997
- (11) 速水洋「ガスおよび微小・粗大エアロゾル別に捉えた大気中硝酸・硝酸塩の特徴」、*電力中央研究所研究報告* T99029、2000
- (12) Jacobson, M. Z., 1999, Studying the effects of calcium and magnesium on size-distributed nitrate and ammonium with EQUISOLV II, *Atmos. Environ.*, 33, 3635-3649.
- (13) Wexler, A. and Seinfeld, J. H., 1990, The distribution of ammonium salts among a size and composition dispersed aerosol. *Atmos. Environ.*, 24A, 1231-1246.
- (14) 日本経済新聞、日本の酸性雨どこから来た、1992(11月10日)
- (15) 市川陽一「北東アジアにおける酸性物質の長距離輸送、*水利科学*」、242、51-67、1998
- (16) 市川陽一、速水洋「東アジアの酸性物質の長距離輸送評

価」、*JAERI-Conf 99-001*、日本原子力研究所、97-108、1999

- (17) 市川陽一、藤田慎一、池田有光「東アジア地域を対象としたトラジェクトリー型モデルによる硫酸イオンの湿性沈着量の解析」、*土木学会論文集*、497/II-28、127-136、1994
- (18) Ichikawa, Y. and Fujita, S., 1995, An analysis of wet deposition of sulfate using a trajectory model for East Asia, *Water Air Soil Pollut.*, 85, 1927-1932.
- (19) Hayami, H. and Ichikawa, Y., 1995, Development of hybrid LRT model to estimate sulfur deposition in Japan, *Water Air Soil Pollut.*, 85, 2015-2020.
- (20) 池田有光、東野晴行「東アジア地域を対象とした酸性降下物の沈着量推定(II) - 発生源寄与を中心とした検討 - 」、*大気環境学会誌*、32、175-186、1997
- (21) Carmichael, G.R. and Arndt, R.L., 1995, Long-range transport and deposition of sulfur in Asia, *RAINS-ASIA: An assessment model for acid rain in ASIA*, Report on the World Bank sponsored project, Acid rain and emission reduction in Asia.
- (22) Huang, M., Wang, Z., He, D., Xu, H. and Zhou, L., 1995, Modeling studies on sulfur deposition and transport in East Asia, *Water Air Soil Pollut.*, 85, 1921-1926.
- (23) 市川陽一「酸性物質の長距離輸送」、*大気環境学会誌*、33、A9-A18、1998
- (24) 杉山大志、中国の長期エネルギー環境戦略 - CPEモデルによる「経済改革シナリオ」の分析 -、*電力中央研究所研究報告*Y99015、2000
- (25) 市川陽一、速水洋「アジアの大気汚染物質の輸送に関するワークショップ」、*大気環境学会誌*、34、A53-A56、1999

第3章

- (1) 高橋章、佐藤一男、若松孝志「インフェレンシャル法による森林への硫黄化合物の乾性沈着量の推定」、*電力中央研究所研究報告*T99002、1999
- (2) Erisman, J. W. and Wyers, G. P., 1993, Continuous measurements of surface exchange of SO_2 and NH_3 : Implications for their possible interaction in the deposition process. *Atmos. Environ.*, 27A, 1937-1949.
- (3) Hicks, B. B., Baldocchi, D. D., Meyers, T. P., Hosker, R. P., Jr. and Matt, D. R., 1987, A preliminary multiple resistance routine for deriving dry deposition velocities from measured quantities. *Water Air Soil Pollut.*, 36, 311-330.
- (4) Lindberg, S. E., Lovett, G. M., Richter, D. D., and Johnson, D. W., 1986, Atmospheric deposition and canopy interactions of major ions in a forest. *Science*, 231, 141-145.

- (5) Draaijers, G. P. J. and Erisman, J. W., 1993, Atmospheric sulphur deposition to forest stands: throughfall estimates compared to estimates from inference. *Atmos. Environ.*, 27A, 43-55.
- (6) Butler, T. J., and Likens, G. E., 1995, A direct comparison of throughfall plus stemflow to estimates of dry and total deposition for sulfur and nitrogen. *Atmos. Environ.*, 29, 1253-1265.
- (7) 高橋章、佐藤一男、若松孝志、速水洋「スギ林への酸の沈着量の評価」、電力中央研究所研究報告T99055、2000
- (8) Ulrich, B., 1983, Interaction of forest canopies with atmospheric constituents: SO₂, alkali and earth alkali cations and chloride. In Ulrich, B. and J. Pankrath (ed.), *Effect of accumulation of air pollutants in forest ecosystems*. Reidel, Dordrecht, 33-45.
- (9) Lindberg, S.E., Cape, J.N. and Ivens, W., 1992, Can sulfate fluxes in forest canopy throughfall be used to estimate atmospheric sulfur deposition? - A summary of recent results, In *Precipitation Scavenging and Atmosphere - Surface Exchange* (edited by Schwartz, S.E. and Slinn, W.G.N.), Hemisphere, Washington, 1367-1377.
- (10) Schaefer, D.A., Conklin, P., and Knoerr, K., 1992, Atmospheric deposition of acids, In Johnson, S.W. and Lindberg (ed.) *Atmospheric Deposition and Forest Nutrient Cycling*, Springer-Verlag, New York, 427-444.
- (11) Lightowlers, P.J., and Cape, J.N., 1988, Sources and fate of atmospheric HCl in the U.K. and Western Europe, *Atmos. Environ.*, 22, 7-15.
- (12) Kaneyasu, N., Yoshikado, H., Mizuno, T., Sakamoto, K., and Soufuku, M., 1999, Chemical forms and sources of extremely high nitrate and chloride in winter aerosol pollution in the Kanto Plain of Japan, *Atmos. Environ.*, 33, 1745-1756.
- (13) Wakamatsu, T., Sato, K., Takahashi, A. and Shibata, H., 2000, Proton budget for a Japanese cedar forest ecosystem, *Water Air Soil Pollut.* (in press)
- (14) Driscoll, C.T. and Likens, G.E., 1982, Hydrogen ion budget of an aggrading forested ecosystem, *Tellus*, 34, 283-292.
- (15) van Breemen, N., Driscoll, C.T. and Mulder, J., 1984, Acid deposition and internal proton sources in acidification of soils and waters, *Nature*, 307, 599-604.
- (16) Nilsson, J., 1986, Critical loads for nitrogen and sulphur, *Miljørapport 1986:11*, Nordic Council of Ministers, Copenhagen.
- (17) Hettelingh, J.-P., Posch, M., de Smet, P.A.M. and Downing, R.J., 1995, The use of critical loads in emission reduction agreements in Europe, *Water Air Soil Pollut.*, 85, 2381-2388.
- (18) Lokke, H., Bak, J., Falkengren-Grerup, U., Finlay, R.D., Ilvesniemi, H., Hygaard, P.H. and Starr, M., 1996, Critical loads of acidic deposition for forest soils: Is the current approach adequate?, *Ambio*, 25, 510-516.
- (19) 新藤純子「酸性降下物と生態系影響 臨界負荷量の評価に関する問題点」、*環境科学会誌*、12、251-258、1999
- (20) Posch, M., de Smet, P.A.M., Hettelingh, J.-P. and Downing, R.J. (eds), 1995, *Calculation and Mapping of Critical Thresholds in Europe*, Status Report 1995, RIVM Report No. 259101004, Coordination Center for Effects, National Institute of Public Health and the Environment, Bilthoven, the Netherlands.
- (21) Sverdrup, H. and Warfvinge, P., 1993, The effect of soil acidification on the growth of trees, grass and herbs as expressed by the (Ca+Mg+K)/Al ratio, Lund University, Report 1993:2, 177 pp., Lund, Sweden.
- (22) Bartlett, R.J. and Riego, D.C., 1972, Effect of chelation on the toxicity of aluminum, *Plant Soil*, 37, 419-423.
- (23) 若松孝志、佐藤一男、高橋章「脱炭酸にともなう土壌溶液試料のpH上昇」、*土肥誌*、70、775-784、1999
- (24) 佐藤一男、若松孝志、高橋章「スギ樹幹の近傍と遠方における土壌溶液の化学組成とアルミニウムの形態」、*土肥誌*、71、615-624、2000
- (25) 環境庁「第3次酸性雨対策調査とりまとめ」、*酸性雨対策検討会*、136 pp.、1999
- (26) Johnson, D.W., van Miegroet, H., Lindberg, S.E., Todd, D.E. and Harrison, R.B., 1991, Nutrient cycling in red spruce forests of the Great Smoky Mountains, *Can. J. For. Res.*, 21, 769-787.
- (27) Kreutzer, K., Beier, C., Bredemeier, M., Blanck, K., Cummins, T., Farrell, E.P., Lammersdorf, N., Rasmussen, L., Rothe, A., de Visser, P.H.B., Weis, W., Weiß, T. and Xu, Y.-J., 1998, Atmospheric deposition and soil acidification in five coniferous forest ecosystem: a comparison of the control plots of the EXMAN sites, *For. Ecol. Manage.*, 101, 125-142.
- (28) 若松孝志、佐藤一男、高橋章「スギ林小流域における渓流水のアルカリ度の形成メカニズム」、電力中央研究所報告研究報告T99016、2000

第4章

- (1) 宮永洋一、池田英史「酸性雨の陸水影響とその予測手法」、*水環境学会誌*、17、787-794、1994
- (2) 小林卓也、松村秀幸「降雨による樹冠からの塩基流亡のモデル化 - 苗木個体レベルにおける塩基流亡モデルの構築と変動要因の解明 -」、電力中央研究所研究報告U97069、1998
- (3) 池田英史、宮永洋一「流域の地質・水文条件を考慮した

- 陸水酸性化予測手法」、電力中央研究所研究報告U97098、1998
- (4) Mast, M.A., Drever, J.I., and Baron, J., 1990, Chemical weathering in the Loch Vale watershed, Rocky Mountain National Park, Colorado, *Water Resour. Res.*, 26, 2971-2978.
- (5) 池田英史、宮永洋一「陸水の酸性化における地質・水文条件の影響 - 鉱物の化学的風化による中和作用の流域間比較 - 」、*水環境学会誌*、22、655-662、1999
- (6) 池田英史、宮永洋一「酸性降下物による河川水質への影響の実態調査」、*日本地球化学会年会講演要旨集*、168、1994
- (7) April, R.H., Hluchy, M.M. and Newton, R.M., 1986, The nature of vermiculite in Adirondack soils and till, *Clays Clay Minerals*, 34, 549-556.
- (8) Peters, N.E. and Murdoch, P.S., 1985, Hydrogeologic comparison of an acidic lake basin with a neutral lake basin in the west-central Adirondack mountains, New York, *Water Air Soil Pollut.*, 26, 387-402.
- (9) 高橋章、藤田慎一、佐藤一男「樹冠雨測定法によるスギ林への酸性物質の乾性沈着速度の推定」、電力中央研究所研究報告T95010、1995
- (10) 池田英史、宮永洋一「流域内での酸性降下物中和機構に関する検討 - 山地流域を対象とした水文・水質調査 - 」、*環境工学研究論文集*、29、103-114、1992
- (11) April, R., Newton, R., and Coles, L.T., 1986, Chemical weathering in two Adirondack watersheds: past and present-day rates, *Geol. Soc. Amer. Bull.*, 97, 1232-1238.
- (12) Cleaves, E.T., Godfrey A.E., and Bricker O.P., 1970, Geochemical balance of a small watershed and its geomorphic implications, *Geol. Soc. Amer. Bull.*, 81, 3015-3032.
- (13) Hendrey, G. R., Galloway, J.N., Norton, S.A., Schofield, C.L., Shaffer, P.W. and Burns, D.A., 1980, Geological and hydrochemical sensitivity of the eastern United States to acid precipitation, *USEPA-600/3-80-204*.
- (14) 細見正明、須藤隆一「陸水域に及ぼす酸性雨の影響(1) 用水と廃水」、25、863-872、1983
- (15) 大喜多敏一「酸性雨の歴史」、*気象研究ノート*、158、1-6、1987
- (16) 木下正明「環境庁における酸性雨調査研究の現状」、*公害と対策*、27、106-111、1991
- (17) 酸性雨検討会、「酸性雨の実態調査」、電力中央研究所研究報告T91019、1992
- (18) Gherini, S.A., Mok, L., Hudson, R.J.M., Davis, G.F., Chen, C.W. and Goldstein, R.A., 1985, The ILWAS model, formulation and application, *Water Air Soil Pollut.*, 26, 425-459.
- (19) Cosby, B.J., Wright, R.F., Hornberger, G.M. and Galloway, J.N., 1985, Modelling the effects of acid deposition, *Water Resour. Res.*, 21, 1591-1601.
- (20) 池田英史、宮永洋一「酸性雨の陸水影響とその予測手法：現状と課題」、電力中央研究所調査報告U92055、1993

第5章

- (1) Sekiguchi, K., Hara, Y., and Ujiie, A., 1986, Dieback of *Cryptomeria japonica* and distribution of acid deposition and oxidant in Kanto district of Japan, *Environ. Tech. Lett.*, 7, 263-269.
- (2) 環境庁大気保全局・同水質保全局・農林水産省林野庁「昭和60年度関東地域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」、1987
- (3) Schütt, P. and Cowling, E.B., 1985, Waldsterben, a general decline of forests in central Europe: Symptoms, development, and possible causes, *Plant Dis.*, 69, 548-558.
- (4) NAPAP (National Acid Precipitation Assessment Program), 1991, Terrestrial, materials, health and visibility effects. In: *Acidic deposition: State of science and technology*, Vol. III, P. M. Irving (ed.), Office of the Director, 722 Jackson Place, NW Washington, D.C. 20503, U.S.A.
- (5) UN/ECE, 1988, Forest damage and air pollution, Report of the 1987 forest damage survey in Europe, Convention on long-range transboundary air pollution, International co-operative programme on assessment and monitoring of air pollution effects on forests.
- (6) UN/ECE-EC, 1999, Forest condition in Europe, Results of the 1998 crown condition survey, 1999 Technical Report, Convention on long-range transboundary air pollution, International co-operative programme on assessment and monitoring of air pollution effects on forests and European Union scheme on the protection of forests against atmospheric pollution, UN/ECE and EC, Geneva and Brussels, 1999, ISSN 1020-3729.
- (7) Tomlinson, G.H., 1990, Effects of acid deposition on the forests of Europe and North America, CRC Press, Florida, U.S.A.
- (8) Cerny, J., and Paces, T., 1995, Acidification in the Black Triangle Region, *Acid Reign '95*
- (9) Spiecker, H., Mielikäinen, K., Köhl, M. and Skovsgaard, J.P. (eds.), 1996, Growth trends in European forests: Studies from 12 countries, European Forest Institute Research Report No.5, Springer-Verlag.
- (10) Walker, S.L., 1991, Great Smoky Mountains - The splendor of the southern Appalachians, Camelback/Elan Venture, Scottsdale, Arizona 85250, U.S.A.

- (11) McLaughlin, S.B., 1985, Effects of air pollution on forests, A critical review, J. Air Pollut. Control Assoc., 35, 512-534.
- (12) Chevone, B.I., and Linzon, S.N., 1988, Tree decline in North America, Environ. Pollut., 50, 87-99.
- (13) Cowling, E.B., 1989, Recent changes in chemical climate and related effects on forests in north America and Europe, Ambio, 18, 167-171.
- (14) 伊藤進一郎、山田利博「ナラ類集団枯損被害の分布と拡大」、日本林学会誌、80、229-232、1998
- (15) 小林義雄「大気汚染と都市樹木」、森林立地、9(2)、6-10、1968
- (16) 川名 明、相場芳憲「都市林における水環境の変化とその影響」、森林立地、8(2)、17-21、1971
- (17) 山家義人「東京都内における樹木衰退の実態」、林試研報、257、101-107、1973
- (18) 山家義人「都市域における環境悪化の指標としての樹木衰退と微生物相の変動」、林試研報、301、119-129、1978
- (19) 横堀誠「茨城県内のスギ樹勢衰退とその要因に関する研究」、茨城県林試報告、13、1-32、1981
- (20) 高橋啓二、沖津進、植田洋匡「関東地方におけるスギの衰退と酸性降水物の可能性」、森林立地、28、11-17、1986
- (21) 高橋啓二、沖津進、植田洋匡「関東・甲信地方におけるスギの衰退と大気二次汚染物質の分布」、98回日林論、177-180、1987
- (22) 高橋啓二、梨本真、植田洋匡「関西・瀬戸内地方におけるスギ衰退とオキシダント指数、降雨量との関係」、環境科学会誌、4、51-57、1991
- (23) 安田洋「環境変化によるスギの衰退調査、平野部におけるスギ衰退分布と生育土壌(1)」、富山県林試研報、8、47-53、1982
- (24) 梨本真「スギの衰退と被害形態判別法」、電力中央研究所研究報告U87091、1988
- (25) 梨本真「スギの衰退と大気二次汚染物質との関係」、電力中央研究所研究報告U93017、1993
- (26) 梨本真、河野吉久「スギ衰退とオキシダント、降雨量の分布に関する一考察」、電力中央研究所研究報告U89017、1989
- (27) 松本陽介、丸山温、森川靖「スギの水分生理特性と関東平野における近年の気象変動 樹木の衰退現象に関連して」、森林立地、34、2-13、1992
- (28) 松本陽介、丸山温、森川靖、井上敬雄「人工酸性雨(霧)およびオゾンがスギに及ぼす影響と近年の汚染状況の変動 樹木の衰退現象に関連して」、森林立地、34、85-97、1992
- (29) 松本陽介、丸山温、森川靖「酸性雨等によるスギ衰退の原因を考察する/水ストレス説」、資源環境対策、29(2)、51-56、1993
- (30) Sakata, M., 1998, ¹³C variations of needles in declining Japanese cedar (*Cryptomeria japonica*), Environ. Sci., 11, 313-318.
- (31) 河野吉久、梨本真、小林卓也「都市周辺域のスギ衰退樹の葉中元素含有量」、大気環境学会誌、30、208-214、1995
- (32) 河野吉久、松村秀幸、小林卓也「スギの生育におよぼす酸性雨とオゾンの影響」、電力中央研究所総合報告U36、1999
- (33) 鈴木清、尾岸諒一「酸性雨による林木の衰退調査(その1) - 大山モミ林などの枯損経過調査」、神奈川県林試年報、33-34、1991
- (34) 井川学、補加栄一、細野哲也、岩瀬光司、長嶋律「酸性霧の化学組成と洗浄効果」、日化誌、698-704、1991
- (35) 井川学「酸性霧とその環境影響」、森林立地、34、36-39、1992
- (36) 古川昭雄、井上敬雄「丹沢山塊に分布するモミの衰退、大気汚染学会講演要旨集」、176-177、1990
- (37) 岸川敏朗、篠崎光男、牧野宏、鈴木清「神奈川県大山におけるモミ林衰退の原因調査(1) - 調査結果の概要について -」、大気汚染学会講演要旨集、339、1994
- (38) 須田隆一、宇都宮杉、大石興弘、濱村研吾、石橋龍吾、杉泰昭、山崎正敏、緒方健、溝口次夫、清水英幸「宝満山(福岡県)モミ自然林の衰退に関する調査」、環境と測定技術、19(5)、49-58、1992
- (39) 神奈川県、平成3年度樹木衰退度調査報告書、1992
- (40) 静岡大学環境研究会「天城山系におけるブナ林の衰退に関する生態学的研究.天城山系のツツジ類とブナの保護」、天城山系におけるアマギツツジ等の衰退の原因究明及び保護対策の検討調査報告書、1989
- (41) 谷本丈夫、劉岩、里道知佳、大久保達弘、二瓶幸志「奥日光・足尾・赤城山地における森林衰退と立地環境」、森林立地、38(1)、1-12、1996
- (42) 畠山史郎「奥日光地方における森林衰退と酸性降水物・酸化性大気汚染物質」、環境科学会誌、12、227-232、1999
- (43) Kohno, Y., Matsumura, H. and Kobayashi, T., 1998, Differential sensitivity of trees to simulated acid rain or ozone in combination with sulfur dioxide, In: Acid Deposition and Ecosystem Sensitivity in East Asia, V. Bashkin (ed.), Nova Science Publishers, U.S.A.
- (44) 東京都「“いわゆる酸性雨”に関する調査研究報告」、No. 1-0-28、東京都公害研究所、1975
- (45) Kohno, Y., and Kobayashi, T., 1989, Effect of simulated acid rain on the growth of soybean, Water Air Soil Pollut., 43, 11-19.
- (46) 河野吉久、松村秀幸、小林卓也「樹木の可視害発現におよぼす人工酸性雨の影響」、大気汚染学会誌、29、206-

219、1994

- (47) Haines, B., Stefani, M. and Hendrix, F., 1980, Acid rain: Threshold of leaf damage in eight plant species from a Southern Appalachian forest succession, *Water Air Soil Pollut.*, 14, 403-407.
- (48) 小林卓也、松村秀幸、河野吉久「人工酸性雨・酸性ミストが植物の可視害発現および生育におよぼす影響」、電力中央研究所研究報告 U94025、1994
- (49) 河野吉久、松村秀幸、小林卓也「スギ、ヒノキ、サワラの生育におよぼす人工酸性雨の影響」、*大気環境学会誌*、30、191-207、1995
- (50) Kohno, Y. (ed.), 1997, *Proceedings of CRIEPI International Seminar on Transport and Effects of Acidic Substances*, Nov. 28-29, 1996, CRIEPI, Tokyo, Japan.
- (51) 河野吉久、松村秀幸「スギ、ヒノキ、サワラの生育におよぼすオゾンと人工酸性雨の複合影響」、*大気環境学会誌*、34、74-85、1999
- (52) 松村秀幸「9種の針葉樹と5種の落葉広葉樹の生長におよぼす人工酸性ミストとオゾンの単独および複合影響」、電力中央研究所研究報告U99035、2000
- (53) 鈴木創、新井一司、久野春子「東京の山間部における森林衰退と大気環境」*林外雨、林内雨の実態調査、大気汚染学会講演要旨集*、313、1994
- (54) Sverdrup, H., and Warfvinge, P., 1993, The effect of soil acidification on the growth of trees, grass and herbs as expressed by the (Ca+Mg+K)/Al ratio, *Reports in Ecol. Env. Eng., Reports 2: 1993*, Lund Univ.
- (55) 河野吉久「植物からみたクリティカルロード(臨界負荷量)とクリティカルポイント(臨界値)」、*大気環境学会誌*、32(5) A65-A71、1997
- (56) 河野吉久、松村秀幸、小林卓也「人工酸性雨暴露に伴う土壌理化学性の変化とスギ、ヒノキ、サワラの根の生育」、*大気環境学会誌*、31、203-212、1996
- (57) Kohno, Y., Matsumura, H. and Kobayashi, T., 1995, Effect of simulated acid rain on the growth of Japanese conifers grown with or without fertilizer, *Water Air Soil Pollut.*, 85, 1305-1310.
- (58) 河野吉久、1999、森林衰退は酸性物質の影響が原因か?、*水利科学*、43(2)、1-26。
- (59) 青木正則、小川正、石川春彦、蓑原善和「数種樹木の障害発現と硫黄蓄積におよぼす低濃度SO₂接触の影響」、電力中央研究所研究報告477008、1979
- (60) 門田正也、太田肇「本邦産植物の夏期におけるオゾン被害の強弱」、*大気汚染研究*、7、19-26、1972
- (61) Kozlowski, T.T., Kramer, P.J. and Palardy, S.G., 1991, *The physiological ecology of woody plants*, Academic Press, San Diego, CA, U.S.A.
- (62) Pye, J.M., 1988, Impact of ozone on the growth and

yield of trees: A review, *J. Environ. Qual.*, 17, 347-360.

第6章

- (1) 土木学会コンクリート委員会「コンクリート標準示方書「耐久性照査型」、技報堂、2000
- (2) 電力中央研究所酸性雨検討会「日本における酸性雨の実態」、*資源環境対策*、28、1093-1098、1992
- (3) 小林一輔、宇野祐一「酸性雨によるコンクリート構造物の劣化機構に関する考察」、*コンクリート工学年次論文報告集*、13、615-620、1991
- (4) 上田洋、来海豊、工藤輝大「酸性雨など弱酸に対するセメントペースト・モルタル表層部の抵抗性評価」、*セメント・コンクリート論文集*、51、636-641、1997
- (5) 松里広昭、船戸己知雄、山崎之紀「炭酸化したセメント硬化体の強度と微細構造」、*セメント・コンクリート論文集*、46、592-597、1992
- (6) 鈴木康弘、金井謙介、五十畑達夫「炭酸化によるセメント硬化体の物性の向上」、*セメント・コンクリート論文集*、47、52-5、1993
- (7) 市坪誠、河合研至、竹村和夫、田沢栄一「雨水のpHがモルタルの色調変化に及ぼす影響」、*セメントコンクリート論文集*、50、490-495、1996
- (8) 市坪 誠、田沢栄一、河合研至「酸性雨環境下におけるモルタルの色調変化に関する一考察」、*セメントコンクリート論文集*、51、450-455、1997
- (9) 堤博文、河野広隆、渡辺博志「酸性雨とコンクリートに生じるつららの関係についての実験的考察」、*土木学会年次学術講演会V部門*、304-305、1991
- (10) 河野広隆、渡辺博志、堤博文「コンクリート構造物に及ぼす酸性雨の影響に関する研究」、*土木技術資料*、35-11、63-68、1993
- (11) 鈴木哲也、岡崎健治「トンネル覆工コンクリートに認められたつらら状の石灰沈殿物」、*開発土木研究所月報*、460、2-7、1991

既刊「電中研レビュー」ご案内

- NO. 33 「放射線ホルミシス 研究の意義と取り組み 」1996. 3
NO. 34 「ガスタービン研究 高効率発電の主役を担う 」1997. 1
NO. 35 「地下の探査・可視化技術」1997. 5
NO. 36 「送電線コンパクト化技術の開発 高分子材料の適用 」1998. 3
NO. 37 「乾式リサイクル技術・金属燃料FBRの実現に向けて」2000. 1
NO. 38 「大気拡散予測手法」2000. 3
NO. 39 「新時代に向けた電力システム技術」2000. 6
NO. 40 「原子燃料サイクルバックエンドの確立に向けて」2000. 11
NO. 41 「需要家と電気事業のエネルギーをトータルで考える
需要家の特性解明と省エネ技術 」2000. 11
NO. 42 「原子力発電所の人工島式海上立地」2001. 1

編 集 後 記

電中研レビュー第43号「酸性雨の総合評価」をお届けします。

昨年12月に第6回酸性雨国際会議がつくばで開催されました。1975年に第1回会議がアメリカのコロンバスで開かれて以来、欧米で回を重ねてきましたが、はじめてアジアに舞台が移りました。世界的にみて酸性雨問題の中心がアジアにあること、問題の解決にわが国のリーダーシップが期待されていることの証と受けとめています。

このレビューの内容の一部も、その会議で発表しました。国内の学会やシンポジウムでも発表を心がけ、広く

社会に成果を発信するよう努めてまいりました。とはいえ、一研究機関にできることには限りがあります。わが国で生まれた研究成果のほんの一握りにすぎませんが、酸性雨問題について、皆様のご理解の一助となれば幸いです。

最後になりましたが、このレビューには通商産業省資源エネルギー庁からの受託研究の成果の一部が含まれていることを申し添えます。また、巻頭言をお引き受けいただいた池田有光・大阪府立大学教授に心より感謝いたします。



電中研レビュー NO.43

平成13年2月20日

編集兼発行・財団法人 電力中央研究所 広報部
〒100-8126 東京都千代田区大手町1-6-1 [大手町ビル7階]
☎ (03) 3201-6601 (代表)
E-mail : www-pc-ml@criepi.denken.or.jp
<http://criepi.denken.or.jp/index-j.html>
印刷・株式会社 電友社

本部 / 経済社会研究所 〒100-8126 東京都千代田区大手町1-6-1 ☎ (03) 3201-6601 我孫子研究所 〒270-1194 千葉県我孫子市我孫子1646 ☎ (0471) 32-1181
狛江研究所 / 情報研究所 / 原子力情報センター 横須賀研究所 〒240-0196 神奈川県横須賀市長坂2-6-1 ☎ (0468) 36-2121
ヒューマンファクター研究センター / 低線量放射線研究センター / 事務センター 赤城試験センター 〒371-0241 群馬県勢多郡宮城村苗ヶ島2567 ☎ (027) 283-2721
〒201-8511 東京都狛江市岩戸北2-11-1 ☎ (03) 3480-2111 塩原実験場 〒329-2801 栃木県那須郡塩原町関谷1033 ☎ (0287) 35-2048



古紙配合率50%の再生紙を使用しています