

# 成果報告概要

## 琵琶湖集水域へ降下する大気汚染物質の 琵琶湖水質への影響評価 —過去・現在・未来—

滋賀県立大学環境科学部 永淵 修

## 成果報告の内容

- ① 琵琶湖集水域における湿性降水物の長期変動特性
- ② 大気降水物直接負荷量の評価
- ③ エアロゾル中のリンの起源
- ④ 琵琶湖への大気降水物の直接負荷量評価
- ⑤ 伊吹山における大気中水銀及び同期するガス状成分の鉛直分布とその評価

大気降下物は、非特定汚染源の1つであり、降下塵（乾性沈着）および、降雨（湿性沈着）によりもたらされる。大気降下物は栄養塩、酸性物質、重金属、POPsなどの陸域への流入経路であり、陸域や水域へ直接影響を与える。しかし、(1) 集水域単位での大気降下物負荷量の長期的な評価や(2)大気降下物採取時における採取量のばらつきについての検討はあまり行われてこなかった。さらに、琵琶湖集水域における大気降下物研究はあまり例がない。そこで、□～□では、琵琶湖集水域での大気降下物負荷量の特徴を明らかにすること、大気降下物負荷量の評価法についても検討することを目的とした。

### ①琵琶湖集水域における湿性降下物の長期変動特性

琵琶湖集水域における大気降下物負荷量の長期変動解析を行い、 $\text{NO}_3^-$ 負荷量に着目した地域由来汚染の検討を行った。調査は朽木、彦根、草津、油日の4地点（図1）でバルクデポジットサンプラーを用いて、1990年～2008年に実施した。その結果、 $\text{NO}_3^-$ 大気降下物負荷量は、朽木を除く、彦根、草津、油日の3地点で、2000年以降増加した。特に油日では2000年以前と以降では1.6倍となり他の地点より大きく増加した。

### ②大気降下物直接負荷量の評価

2000年以降 $\text{NO}_3^-$ 負荷量が増加した油日近傍には、窒素化合物を排出する茶園、名阪国道が存在する。さらにバルクデポジットサンプラーの設置地点である油日岳内には高濃度 $\text{NO}_3^-$ 流出林地（油日R）も存在するため、長期変動結果から得られた $\text{NO}_3^-$ 大気降下物負荷量の増加要因を検討するのに適した地点であ



図1 調査地点

ると考えられる。そこで油日Rの近傍に位置する、名阪国道、茶園などの地域由来汚染源から排出された $\text{NH}_3$ 、 $\text{NO}$ および $\text{NO}_2$ ガスが油日Rの大気中ガスに影響を与えるか否かを検討した。調査は2008年1月～2009年2月に、油日R、茶園、名阪国道の地点に小川式サンプラーを設置し、大気中ガス濃度を測定する方法で実施した。名阪国道では $\text{NO}_2$ 、 $\text{NO}$ および $\text{NH}_3$ 、茶園では $\text{NO}_2$ の発生源であることが確認されたが、自動車道路からのガスの揮散の逓減率および、風向の検討から、名阪国道および茶園から揮散したガスの油日Rへの直接影響はないと考えられた。つまり、2000年以降の $\text{NO}_3^-$ 大気降下物負荷量の増加の要因はローカルな大気汚染の影響によるものでないことが示唆された。

### ③エアロゾル中のリンの起源

モニタリングで用いた評価法について、すな

わち、大気降水採取における設置地点の代表性についての検討を行った。

バルクデポジットサンプラーは貯水タンクにロートを取りつけたものであるために、小昆虫やリターなどが侵入し、負荷量にばらつきが生じる可能性がある。そこで、大気降水採取時のばらつきに着目し、バルクデポジットサンプラーを、1地点に10台設置した。10台のサンプラーからそれぞれ計算した全窒素 (TN) および全リン (TP) の年負荷量の変動係数 (CV 値) はそれぞれ、2.7, 24%であり、TP のばらつきは大きかった。窒素のばらつきは小さいことから、油日での  $\text{NO}_3^-$  大気降水負荷量は 2000 年以降確実に増加したと考えられた。しかしその原因は不明である。一方、リンはばらつきが大きいことを考慮して、大気降水負荷量評価を行うべきであると考えられた。

このリンのばらつきが大きい要因を明らかにするための基礎研究として、大気中リンの起源について検討した。カスケードインパクターで大気中粒子状物質を捕集した結果から、2~5 月の大気中リンは黄砂飛来および花粉飛散に由来することを明らかにした (図 2)。また、黄砂飛来時には  $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$  などの大気汚染物質の移流が確認された。

#### ④琵琶湖への大気降水物の直接負荷量評価

近年、琵琶湖における特定汚染源からの汚染物質負荷量は、法律による規制基準値の設定と、排水処理技術の進歩により著しく改善されてきている。しかし、いまだに琵琶湖北湖、南湖における TN 濃度、及び南湖における TP 濃度は環境基準に達していない。その一因として、現在ほとんど汚濁防止対策が行われていない非特定汚染源からの汚染物質負荷が考えられる。この非特定汚染源の直接的な供給ルートは、

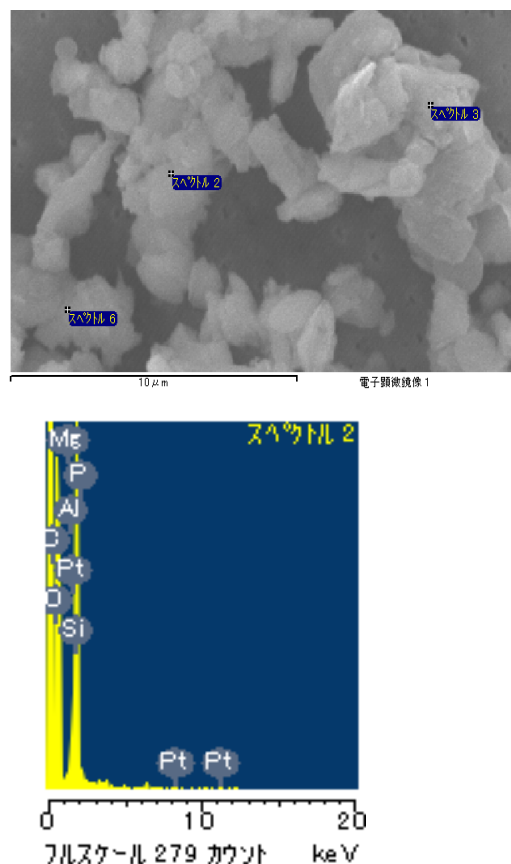


図 2 粒子の SEM 画像と分析結果

河川・地下水・湖面降水物の 3 種が考えられる。文献によると、これらの窒素負荷量寄与率は、それぞれ 65%、7%、28%と報告されている<sup>1)</sup>。

琵琶湖は南北約 60km にも及んでいる。よって、琵琶湖集水域で採取した降水から、湖面降水物による直接負荷量を算出する場合、採水地点が少ないと過小評価や過大評価を行ってしまう可能性がある。

本研究では、琵琶湖集水域の複数の調査地点における結果から、湖面降水物による琵琶湖への汚染物質負荷量のより正確な評価法を検討することを目的とした。

琵琶湖周辺の朽木、摺墨、彦根、草津の 4 地点を調査地とし、林外雨を月に一度採取した。本研究に用いたデータは 2000~2008 年までである。試水の測定項目は主要イオン ( $\text{SO}_4^{2-}$ 、

Cl<sup>-</sup>、Na<sup>+</sup>、K<sup>+</sup>、Ca<sup>2+</sup>、Mg<sup>2+</sup>）、リン（TP、DP、PO<sub>4</sub>-P）、窒素（TN、DN、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>）であり、これらから各調査地点における琵琶湖への負荷量を算出した（なお、この負荷量は各地点における降水が琵琶湖湖面全体に降下したと仮定している）。負荷量は次式で求めた。

$$\text{降水量 (mm)} \times \text{濃度 (mg/L)} \times 10^{-1} \times \text{琵琶湖の面積 (km}^2\text{)}$$

この結果から琵琶湖に対する湖面降下物による汚染物質負荷量を推定するために、以下の二つの方法（B1、B2）を用いた。

B1: 朽木、摺墨、彦根、草津、各地点の負荷量の琵琶湖への寄与率は、それぞれ 25%であり、それらの合計が琵琶湖への負荷量であった。

B2: 各調査地点を線で結び、その中点から調査地点ごとに琵琶湖に対する寄与率を算出した。各調査地点の寄与率は、朽木 26.7%、摺墨 15.3%、彦根 41.0%、草津 17.0%である。

これらの方法で算出した B1 と B2 の値は比較的近く、妥当であると考えられる。これら、B1、B2 の値と、草津の負荷量の琵琶湖への寄与率が 100%とした場合（KN）の比較を行うと、Cl<sup>-</sup>、Na<sup>+</sup>、K<sup>+</sup>、Mg<sup>2+</sup>といった海塩由来のイオンでは、KNとB1、B2の誤差は68.2～77.3%にも及んだ（表1）。これは、海塩の影響が大きい朽木、摺墨の寄与率が異なるためであり、これら4イオンの負荷量は KN、つまり一地点からの算出では、かなりの過小評価がなされることが明らかになった。

同様に NH<sub>4</sub>-N、NO<sub>3</sub>-N、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、nssSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>では 11.0～29.7%の過大評価、または過小評価がなされ、これらは起源を都市域や海塩とするものであった。

これらの原因は、各調査地点における降水量、降水成分濃度が異なるためである。また、各調査地点における各イオン負荷量は、海塩成分濃度の違いや周辺地域の土地利用の違いにより大きく異なっており、琵琶湖に対する大気降下物による負荷量を算出するには、複数の調査地点が必要であることが明らかになった。

表1 琵琶湖に対する湖面降下物負荷量算出方法の比較

	KNとB1、B2の比較 (%)			
	B1	B2	B1	B2
降水量	69.3	72.4		
TN	105.9	111.4	nssSO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	78.4 83.1
DN	107.6	112.7	NO <sub>3</sub> -N	119.2 129.7
NH <sub>4</sub> -N	83.2	83.9	Cl <sup>-</sup>	23.0 25.2
TP	88.7	89.0	Na <sup>+</sup>	27.0 29.2
DP	96.1	97.2	K <sup>+</sup>	22.7 24.9
PO <sub>4</sub> -P	105.3	107.4	Ca <sup>2+</sup>	94.5 100.3
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	69.4	74.0	Mg <sup>2+</sup>	28.9 31.8
KN=Bのとき100%と表記する				

### ⑤伊吹山における大気中水銀及び同期するガス状成分の鉛直分布とその評価

水銀は人間に対し、強烈な神経毒性を持った重金属である。また、元素態のガス状水銀は非常に滞留時間が長く、地球規模で移流する汚染物質である。国連環境計画は水銀の毒性・残留性を考慮し、2005年に水銀に関する Decision 23/9IVを採択し、各国政府機関に対して環境への水銀放出量と健康リスクの削減を求めた。その要求を受け、2006年には日本を含めた6カ国で水銀の大気輸送に関する研究分野の Global Partnershipが発足した。これは

水銀の長距離輸送や、高地や山岳における大気中水銀濃度などに関する研究を促すものであった。しかしながら、日本では水銀に関するモニタリング及び水銀の沈着量や動態の解明がほとんどなされていない。

本研究では、滋賀県米原市伊吹山を観測タワーとし、高度毎における水銀及び同期するガス状成分である O<sub>3</sub>、SO<sub>2</sub>、NH<sub>3</sub>、NO<sub>2</sub>、NO の鉛直分布及び温湿度を観測し、水銀の長距離輸送及び地域的な汚染の影響を評価した。

滋賀県米原市伊吹山の登山道において、2009年4月17日から同年9月2日まで観測を行った。約100m毎、10箇所(260m~1348m)に温湿度計及びパッシブサンプラーを設置し、大気中の Hg、O<sub>3</sub>、SO<sub>2</sub>、NH<sub>3</sub>、NO<sub>2</sub>、NO を捕集した。また、260m、835m、1348m の3地点においてアクティブサンプラーを用いてガス状水銀及び粒子状水銀を捕集した。

観測期間中における各高度のガス状水銀の平均濃度は、山頂、840m、260m において、その中の数回の高濃度の期間が平均値を引き上げており、それ以外の期間は北半球のバックグラウンド値である 1.0 ngm<sup>-3</sup> から 1.5 ngm<sup>-3</sup> 程度であった。観測期間中のガス状水銀濃度の最大値は、山頂で 9.8 ngm<sup>-3</sup>、840m 地点において 9.7 ngm<sup>-3</sup> であった。これはバックグラウンド値の 6~10 倍である。

バクトラジェクトリを用いて、高濃度の期間における気団の経路を解析する(図3)と、気団は中国沿岸部もしくは東北部を通過していた。気団が最も大きな水銀の発生源のひとつであるとされている中国を通過していること、水銀が石炭の燃焼によって放出されることから中国における石炭燃焼によって発生した水

銀が輸送され、日本に到達した可能性が高い。また、濃度がバックグラウンド値程度であったとき、同様にバクトラジェクトリを用いて解析すると小笠原気団の時や、日本国内を通過していた。

観測地点の近辺には水銀の発生源であるとされる火力発電所や、火葬場、ゴミ焼却場はなく、また、気団が国内を通過している時は水銀濃度がバックグラウンド値程度であることから地域的な汚染の影響は受けていないと考えられる。

濃度が高いときは必ず気団が中国大陸を通過していること、気団が国内を通過してきたときには常にガス状水銀濃度が低いことから、観測地点は長距離輸送による汚染の影響を大きく受けているといえる。

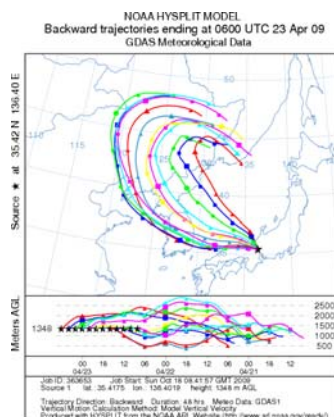


図3 高濃度時のバクトラジェクトリ解析

#### 参考文献

- 1) 國松孝雄, 琵琶湖の物質収支-琵琶湖から流出する物質量を測定する-, 滋賀県琵琶湖研究所所報, 12, 68-73(1995)

