

東京における 130 年間の降水組成の変遷をみる

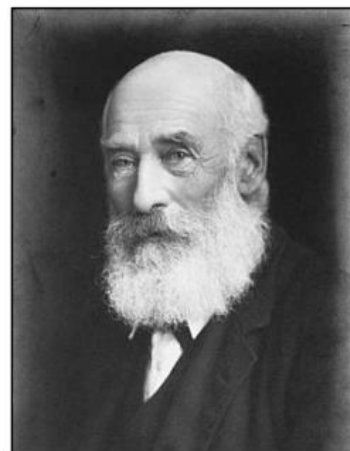
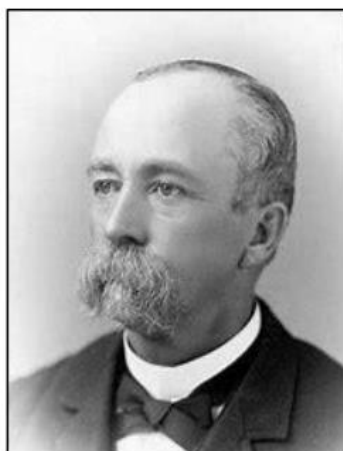
藤田 慎一

1. はじめに

ロバート・アンガス・スミス(R. A. Smith)は、19 世紀中ごろのイギリスで、大気汚染の改善に労があつた化学者である。その功績により 1857 年には、王立協会の会員に推挙されている。1872 年にスミスは『大気と降水—化学気候学の始まり—』と題する著書を、ロンドンのロングマン・グリーン社から出版した。農芸化学の始祖として名高いドイツのリービヒ(J. von Liebig)に捧げられたこの本は、当時の観測データをふんだんに引用した約 600 ページにおよぶ浩瀚なものである(図 1)。

スミスの著書は長いあいだ埋もれていたが、1950 年代にミネソタ大学のゴーハム(E. Gorham)が発掘してその業績を再評価した。ノースカロライナ大学のクーリング(E. B. Cowling)は、酸性雨を意味する acid rain という術語を用いた最初の化学者が、スミスであることをひろく知らしめた。酸性雨の名付け親として、スミスの名は有名になった。なにぶん 50 年前の著作である。記述のなかには現在の視点からみれば、やや古くなった個所があるのはやむを得まい。術語として acid rain と acid-rain とが混在しており、あまり意識せずこれを使った形跡もある。スミスの仕事の背景には、1863 年のアルカリ法の制定があり、ソーダ工場が排出する酸性物質、とくに塩化水素の環境影響については、すでに活発な議論が行われていた。

リービヒが撒きスミスが育てた種子の一つは、やがて科学の揺籃期の日本に咲くことになる。



Robert A. Smith (1817-1884) Edward Kinch (1848-1920)

図 1 スミス著『大気と降水』の中扉。蔵書印の教育博物館は、現在の国立科学博物館の前身。

2. 日本への影響

19 世紀おわりの農芸化学の分野は、リービヒの栄養説が名実ともに確立し、無機肥料の効用が認識された時代である。植物の生長に必要な窒素分の起源を明らかにするため、1860 年代中ごろのロシアでは、農学校と農事試験場のほとんどで降水の分析が行われていたといわれる。その影響はドイツにとどまらず、ヨーロッパと南北アメリカの各国、赤道直下のヨーロッパの旧植民地、そして明治初年

の日本にもおよんだ。

この時代の日本は、欧米の知識を貪欲に輸入した科学技術の揺籃期である。招請に応じて多数の外人教師が来日して教育や指導に携わった。化学のダイバース (E. Divers) や鉱物学のミルン (J. Milne) や農芸化学のキンチ (E. Kinch) は、スミスの僚友プレイフェア (L. Playfair) らの尽力によって設立された王立化学学校の卒業生である。

このなかで 1876 (明治 9) 年に来日して駒場農学校 (東京大学農学部の前身) で教鞭をとったエドワード・キンチは、4 年半の滞日中に土壌や飼料や用水や食品など、実にさまざまな試料の化学分析を手がけたことで知られる。イギリスに帰国したキンチは、サイレンセスターの王立農学校において、師匠のチャーチ (A. H. Charch) の後任として降水の分析に永く携わる。とくに注目されたのは塩化物イオンの動態であった。キンチが遺した膨大な分析データは、没後 40 年にして日の目を見る。大気大循環の研究で名高いスウェーデンのロスビー (C. G. Rossby) らが、新しい化学気候学の立ち上げに援用したからであるが、その事跡は日本ではあまり知られていない。日本の降水の化学に学問的な先鞭をつけたのは、キンチの後任としてドイツから招請されたケルナー (O. Kellner) であった。

オスカー・ケルナー (オスカル・ケルネルとも) は 1851 年にドイツのシュレージエンで生まれ、ブレスラウとライプチヒの両大学に学び、のちホーエンハイムの農事試験場に勤務した。1881 (明治 13) 年に来日し、駒場農学校→東京農林学校→帝国大学農科大学で農芸化学を教え、農商務省で試験の指導にあたるなど、日本の農芸化学の基礎を築いた。京王井の頭線で駒場東大前の駅を降りると、南側にケルネルたんぼとよばれる圃場がいまも残っている。

1883 年から 1885 年にかけてケルナーは、沢野 淳 (のち農事試験場長)、吉井豊造 (のち札幌農学校教授)、牧野 (奥) 健蔵 (のち専売局技師) を指導して、東京駒場で降水の採取と分析を行った。ドイツの農芸化学年報に掲載されたケルナーらの論文は、生産活動の規模が小さかった時代に日本の降水成分の濃度を定量したものとして貴重である (図 2)。分析項目 (と分析方法) は、アンモニウムイオン (ネスラー法) と硝酸イオン (シュレージング・ティーマン法) の二つであり、硝酸イオンは亜硝酸イオンを含むものとしている。降水の採取方法についての説明はない。

吉井豊造によるケルナー論文の抄訳は、東京化学会誌 (日本化学会誌の前身) の第 8 帙に「東京雨水中ノアンモニア及硝酸ノ量」の題で掲載されている。研究の目的は、冒頭に格調高くつぎのように述べられている。

夫レ窒素化合物ハ植物生長ニ欠ク可ラサルモノナリ。其自然来リテ土地ヲ肥ヤシ植物ヲ栄養スル者ヲ挙レバ左ノ三種ニ外ナラサルヘシ。(略) 欧州ニ在リテハ諸學者夙ニ比等化合窒素ノ種類分量等ヲ試験シ以テ農業進歩ヲ裨益スル少ナシトセス。然レドモ本邦ニ在リテハ斯ノ如キ試験ヲ行ヒシモノアルヲ聞カス。

このように農学的な見地から、窒素化合物の沈着量の実態を明らかにすることであった。

ケルナーらのデータをみると、アンモニウムイオンの濃度は降水量が少ない期間ほど高くなる。これに対して硝酸イオンの濃度は、冬季に高く夏季に低くなる。だが東京の降水量は夏季に多くて冬季に少ないので、濃度に降水量をかけて単位面積・単位時間あたりのフラックス (湿性沈着量とよぶ) になおすと、両者は相殺されるためそれほど大きな季節差は生じない。

Mittheilungen aus dem agrikulturchemischen Laboratorium des Kaiserl. japanischen landwirthschaftlichen Instituts zu Tokio.

I. Untersuchungen über den Gehalt der atmosphärischen Niederschläge an Stickstoffverbindungen.

Von

Dr. O. Kellner (Referent), J. Sawano, T. Yoskii u. R. Makino.

Die Menge des gebundenen Stickstoffs, welche auf natürlichem Wege, ohne menschliche Eingriffe fortwährend dem festen Lande einverleibt wird und der Vegetation zu Gute kommt, setzt sich bekanntlich zusammen aus dem kohlen-sauren Ammoniak, welches aus dem Meerwasser in die Luft diffundirt und mit letzterer landeinwärts bewegt wird; ferner aus dem salpetersauren und salpetrig-sauren Ammoniak, das bei der Einwirkung elektrischer Entladungen auf feuchte Luft seine Entstehung nimmt und schliesslich aus dem salpetrigsauren Ammoniak, welches bei dem Verdampfen des Wassers an der Luft stets neu erzeugt wird. Der Uebergang dieser Stickstoffverbindungen aus der Luft in die Ackererde vollzieht sich nun theils durch direkte Absorption, indem dieselben von der feuchten Krume aufgenommen und, wie es scheint, vor abermaligem Verdampfen vollkommen geschützt werden, theils durch die atmosphärischen Niederschläge, welche auf ihrem Wege durch die Luft kohlen-saures und salpetersaures Ammoniak auflösen und dem Erdreich zuführen, und theils durch die Pflanzen, welche mit ihren oberirdischen Organen eine geringe Menge direkt aufnehmen.



Oskar Kellner (1851-1911)

図 2 ケルナー論文「降水中の窒素化合物の量に関する研究」。東京農林学校農芸化学教室からの研究報告と題して掲載された 3 報の論文の一つ。

その頃イギリスの河川汚濁委員会では、有機金属化学の研究で名高いフランクランド (E. Frankland) が中心になって、降水 (飲料水) の水質調査を行っていた。ケルナーらはその報告書を引用して、東京とイギリスの窒素化合物の濃度と沈着量を比較している。駒場の硝酸イオンの濃度は、ロザムステッド農事試験場の濃度よりも低い、降水量が約 2 倍あるため両者の湿性沈着量に大きな違いはない。またアンモニウムイオンと硝酸イオンの比率をみると、両地点の値に大差がないのは不思議であるとしている。

1892 年に日本人の婦人を伴って帰国したケルナーは、ザクセンの農事試験場長に任ぜられ、畜産飼料について重要な研究を行った。いくつかの学術雑誌の監修にもあたった。晩年にはザクセンの枢密顧問官に任ぜられ、東京帝国大学から名誉教師の称号が贈られている。

3. 降水成分の地理分布

ケルナーらの研究の意義は、この時代の世界各地における降水成分の地理分布、それ以降の東京における降水成分の経年変化。これらの解析に資する観測データを遺したことである。

まず世界各地における降水中の窒素分の濃度であるが、1913 年にロザムステッド農事試験場のミラー (N. H. J. Miller) が発表した「ヘブリデスとアイスランドにおける降水の化学組成」と題する論文に詳しい。この論文のなかでミラーは、世界各地で過去 50 年間に行われた降水成分の分析データを収集し、1 年以上続いた 40 地点の沈着量を製表した (表 1)。この表は Miller (1913) をもとに作成。元表の沈着量は 1 エーカーあたりのガロンで示されているが、なじみが薄いので 1 平方メートルあたりのグラムに換算して示した。

表 1 世界各地におけるアンモニウムイオンと硝酸イオンの湿性沈着量

地点	国	期間	年降水量	アンモニウム	硝酸
			mm/y	g/m ² y	
ロザムステッド	イギリス	1889-1912	712	0.31	0.14
ロンドン	イギリス	1910-1911	542	11.11	
フランフルト	スウェーデン	1909	827	0.37	0.15
コペンハーゲン	デンマーク	1880-1885	558	1.10	0.26
プロティ	ロシア	1900-1905	491	0.49	0.03
レーゲンワルデ	ドイツ	1864-1867	577	1.85	1.00
フローレンス	イタリア	1869-1875	1135	1.14	0.41
モンスリー	フランス	1876-1900	547	1.16	0.36
カタルーニャ	スペイン	1888-1889	466	0.15	0.08
セントミシュレ	オーストリア	1885-1886	1116	1.33	0.65
東京	日本	1883-1884	1338		0.12
東京	日本	1885	1582	0.20	
オタワ	カナダ	1907-1912	836	0.41	0.20
ミシシッピー	アメリカ	1894-1895	1120	0.26	0.08
ユタ	アメリカ	1891-1893	409	0.60	0.04
ブリスベーン	オーストラリア	1908	1154	0.25	0.21
リンカーン	ニュージーランド	1884-1887	754	0.06	0.13
バルバドス	バルバドス	1885-1910	1505	0.10	0.54
トリニダード	トリニダードトバコ	1901-1902	1477	0.24	0.01
英領ギアナ	ガイアナ	1890-1909	2477	0.10	0.16
カルカッタ	インド	1891	1169	0.20	0.13
マドラス	インド	1890-1893	822	0.07	0.11
セイロン	スリランカ	1898-1899	2088	0.41	0.14
ハノイ	ベトナム	1904-1905	1780	1.02	0.80
東ジャワ	インドネシア	1891	1194	0.13	0.07

ミラーが収集したデータのなかには、イギリス領のバルバドスやガイアナにおける 20 年以上にわたるモニタリングの結果や、ハノイ、カルカッタ、東ジャワなど東南アジアにおける興味深いデータも含まれる。植物の生長が旺盛な熱帯の降水の実態に、科学者の関心が向けられたからである。

この論文のなかで東アジアでは唯一、ケルナーらが駒場で行ったモニタリングのデータが引用されている。駒場におけるアンモニウムイオンと硝酸イオンの濃度は、いずれもヨーロッパ各地点の濃度よりも低い。降水量が多いため湿性沈着量にそれほど大きな違いはない。ロンドンでたいへん高濃度のアンモニウムイオンが観測されている点は注目される。これらのモニタリングのほとんどは、栄養塩として降水の役割を評価するために行われたものである。リービッヒの没後 40 年を経過した当時でも、降水の化学に関心がよせられていたことがわかる。

ミラーの論文は、岡田武松(中央気象台長)が 1951 年に著した『雨』にも、「一寸古いが」のただし書きを付けて引用されている。ほかに適当なものがなかったからではあるまいか。というのは管見の限りでは、スウェーデンのエリクソン(E. Erikson)が 1952 年に約 300 件の論文を集成するまで、世界中の降水成分のデータを整理したものは 40 年近くなかったからである。ちなみにエリクソンの論文中に引用された日本のデータは、ケルナーのほか後述する三宅泰雄(中央気象台技師)と菅原 健(名古屋

大学教授)の 3 件である。

4. 日本における降水化学の進展

4.1 農芸化学の視点から

つぎに東京における降水組成であるが、ケルナーの帰国後に東京帝国大学では系統的な研究は行われず、この仕事は農商務省の農事試験場の手に移った。東京西ケ原の本場のほか畿内(柏原)、九州(熊本)、陸羽(大曲)の各支場では、ケルナーの門下筋にあたる川島禄郎(のち九州帝国大学教授)の指導により、1913(大正 2)年から 28 年間にわたって大がかりなモニタリングが行われた。

試料の採取にはガラス製の大型のろうとを用い、雨の有無にかかわらず一定期間、大気中に連続して暴露した。分析項目は硝酸、亜硝酸、アンモニウムの各イオンであり、西ケ原の本場では硫酸イオンと塩化物イオンのデータも遺されている。1924 年まで 11 年間の濃度の経年変化は、農事試験場に隣接する東京高等蚕糸学校教授の今関常次郎が、また 1933 年まで 20 年間の濃度の経年変化は、中央气象台技師の倉茂英次郎(のち三重水産専門学校長)が解析している。倉茂はこのデータの性格をつぎのように述べる。

西ケ原の観測では、降水の有無に関せず受水用のろうとは常に野天に晒してあるから、この分析の結果は純粋の降水の成分というよりも、寧ろ大気中より地上に降下せる汚濁物の全量、特に窒素肥料の供給源としてのアンモニアその他の全量を測ったものと見る方が妥当であろう。

少し説明を加えると、大気中に排出されたガス状・粒子状の汚染物質が、輸送・拡散、変質の過程を経て地表面に沈着するメカニズムは、湿性沈着と乾性沈着の二つに分けられる。湿性沈着とは汚染物質が雨や雲や雪や霧など「雨冠」に取り込まれて沈着するもの。乾性沈着とは雨冠と直接の関係はなく、ガスや粒子の形で沈着するものである。

純粋に降水の成分だけ見ようとすれば、ろうとの上蓋が降雨にあわせて自動的に開閉する採取器(ウェットオンリーサンプラーとよぶ)が必要である。1時間あたり1mm 以上雨の降っている時間数は、東京では年間の 10%に満たない。残りの時間は野天にさらされているからである。だがこうした採取器は当時まだなかった。後述する中央气象台のモニタリングでは、雨が降りそうになると採取器を屋外に出し、蒸留水でたえずろうとを洗浄するなどして降下塵の混入を防いだ。たいへんな労力が必要であり、また著者の経験によれば、一般に成分濃度がたいへん高い初期降雨の取りこぼしは避けがたい。

川島らの解析結果によれば、窒素化合物の濃度は東京で最も高く、大阪近郊の柏原がこれに続く。熊本や大曲の濃度は相対的に低い。窒素化合物の全量に占めるアンモニウムイオンの割合は、どの地点も 60%以上である。川島の関心は陸上と海上の降水の違いにも向けられた。第一次世界大戦の結果、旧ドイツ領の南洋諸島は、日本の委任統治のもとに置かれることになる。パラオ群島のコロール島にあった南洋庁の産業試験場の調査では、年降水量が 3800 mm の同島の沈着量はたいへん多く、その大半は硝酸イオンである。川島は熱帯地方で植物の生育が旺盛な理由は、気温が高いことのほか窒素分の沈着が莫大なことも一因だろうと考えた。

倉茂の解析では、濃度と降水量との関係を見ると、だいたい反比例の関係にあること。降水の種類で見ると、霧や露は雨や雪よりも汚染されていることが指摘されている。これらは現在でも通用する概念で

ある。

なお大気中のアンモニアの起源としては、窒素を含む有機物の腐敗を、また硝酸と亜硝酸の起源としては、空中放電をおもなものとしてあげている。石炭や石油など化石燃料の燃焼の伴う窒素酸化物の排出は、この時代にはまだあまり注目されなかった。ちなみに 2000 年現在の地球規模での窒素酸化物の総排出量は、窒素(N)換算で年間約 47 TgNy⁻¹(T:テラ=10¹²), このうち人為起源の占める割合は約 71%と推計されている。

4.2 公衆衛生学の視点から

わが国では農事試験場の調査が終わったのちも、公衆衛生学、気象学、地球化学、環境科学などさまざまな視点から、降水と降下塵のモニタリングが行われた。このうち東京については、百人町(東京市衛生試験所)、大手町(中央气象台)、高円寺(気象研究所)、東陽/新砂(東京都公害研究所/同環境科学研究所)、新宿御苑(環境庁/環境省)、府中(東京農工大学)、武蔵野(成蹊学園)、三田(慶応義塾大学)、狛江(電力中央研究所)、北の丸(環境省)などがある。

日本で都市の大気汚染が最初に深刻化したのは、早くから工業化が進み、東洋のマンチェスターともよばれた大阪である。1918(大正 7)年に大阪市は、鏑木徳二(のち朝鮮総督府林業試験場長)にヨーロッパのばい煙防止の調査を委託する。その結果をうけて北区北扇町の大阪市立衛生試験所の屋上では、藤原九十郎所長の指導のもとに、1922 年から降下ばいじん量の測定が始められた。試料は木製の枠に取り付けた約 60 cm 正方の亜鉛引鉄製のろうとを用いて、容量が約 25 l のガラスびんに採取した。1 カ月ごとに回収した試料を分析し、不溶性物質、炭素分、灰分の降下量が求められた。イオン成分の濃度も期間を限って定量された。このモニタリングは第二次世界大戦の末期を除くと、実に 100 年近くにわたって続けられた。

やや遅れるが東京でも、東京市衛生試験所の有本邦太郎(のち国立栄養研究所長)の指導により、1927 年から数次にわたって降下ばいじん量の調査が行われた。東京市のモニタリングでは、降下物は総量、灰分、可燃分に分けて重量で示し、総量に対する可燃分の比が求められた。

大戦後に都市の大気汚染が再燃するなかで、降下ばいじん量の測定は多くの都市に広まる。調査に用いられた試料の採取器の原型は、19 世紀のおわりにイギリスで規格化が進められたものであり、デポジットゲージとよばれる。直径が約 30 cm の磁製のろうとに連結した採取びんを金属製のスタンドに取り付け、鳥糞の混入を防ぐため金網でろうとを囲ってある。これを簡素化したダストジャーも使われた。ちなみに自動開閉式の「ウェットオンリーサンプラー」に対して、こうした常時開放式の採取器は「バルクサンプラー」とよばれる。試料のイオン成分の濃度や pH の測定も行われるようになった。

4.3 気象学の視点から

20 世紀になると気象学の分野では、凝結現象に学問的な関心が集まり、その一環として降水の化学組成に興味を持たれるようになった。1933(昭和 8)年に中央气象台の倉茂英次郎は、降水の化学の分野で、測候関係が研究すべき課題をいくつかあげている。当時の状況を知るうえで興味深いので、要約して掲げると、

- ① 降水の酸性度の観測とそれが産業におよぼす影響
- ② 都市の大気汚染として降水成分の細かい時間変化の把握

- ③ 農業の分野より大気から供給される窒素量の測定
- ④ 潮風(塩害)と関連して海岸からの距離や風向・風速と降水成分との関係
- ⑤ 降水成分の高さ方向の変化
- ⑥ 雷雲が発生した際の窒素化合物の濃度変化の真否

このうち①の酸性度の観測は 2 年後に実現する。中央気象台長の岡田武松は、農事試験場長の安藤広太郎の勧めもあり、昭和のはじめから農学や水産学や化学の学卒者を採用していた。彼らが配属されたのは産業気象掛である。1935 年 5 月に中央気象台は化学掛を新設し、翌月から東京大手町で降水成分の調査を定常業務として開始した。同年 8 月には品川暴風信号所と羽田出張所、10 月には神戸海洋気象台におけるモニタリングが追加された。東京の分析は三宅泰雄技師(のち東京教育大学教授)と松居秀夫技手とが、神戸の分析は松平康男技手(のち広島大学教授)が担当した。

中央気象台の観測方法について簡単に紹介しておこう。試料は内径が 16 cm で深さが 16 cm の磁製のポットを 8 個ならべて採取し、ポットは降下塵で汚れないよう蒸留水で頻りに洗浄した。分析項目(と分析方法)は、塩化物(モール法)、硝酸(スルファニル酸 α ナフチルアミン法)、亜硝酸(ブルシン法)、アンモニウム(ネスラー法)、硫酸(比濁法, 比色法, アンドリウス法)の各イオンと pH(吸光光度法)であった。いくつかの気象官署でも、分析項目や観測期間を縮小するなどしてモニタリングが行われた。

観測データはひと雨ごとの各成分の濃度と沈着量, 降水量で荷重した月間の平均濃度と総沈着量という現代の体裁と比べて遜色のない形で整理され、『気象要覧』の 430 号から 748 号に掲載されている。化学成分の濃度と降水量との関係, 濃度の時間変化と地理分布, 降水と海塩の化学組成の違い, 霧水の化学成分などにかんする三宅らの先駆的な研究も行われた。

第二次大戦の末期に中断した中央気象台による降水の分析は、戦後早い時期に再開された。だが気象業務の見直しのなかで、東京では 1951 年 5 月をもって、また神戸でも 1961 年 12 月をもって約 25 年間にわたる調査の幕を閉じた。

世界気象機関 WHO の勧告をうけた気象庁が、大気バックグラウンド汚染観測網 BAPMON の一環として、岩手県三陸町(2001 年に大船渡市と合併)の綾里で降水のモニタリングを開始したのは、約 15 年をおいた 1976 年 1 月のことである。1986 年には南鳥島のモニタリングが追加された。ウェットオンリーサンプラーを用いた降水の分析として、日本では最長期の一つであったが、2011 年 12 月をもって休止に至った。

4.4 地球化学の視点から

日本の降水化学は、第二次大戦後に菅原 健を中心にして活発な研究を再開した。従来から研究されてきた成分のほかに、いくつかの金属成分の濃度が定量され、既往のデータについても新しい解釈が加えられた。

気象庁による降水のモニタリングがおわりに近づいたころ、スウェーデンの土壤学者エグナー(H. Egner)は栄養塩の循環を調べるため、国内に多数の降水採取器を設けていた。この観測網は、1956 年には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、のち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、スカンジナビアの数十地点で定期的に降水を採取・分析し、前述したキンチ

らによる既往のデータも併せて、ナトリウムイオンに対する塩化物イオンの濃度比の関係を調べた。濃度比の地理分布のパターンをいくつかに分類して、気圧配置との関係について説明を試みたわけである。だが三宅は「首肯しかねる点がある」とやや懐疑的である。

ロスビーらは化学気候学 (Chemical Climatology) という研究の分野を提唱する。世界中の降水組成のデータを集成したエリクソンは、大気中におけるさまざまな物質の収支にかんする研究に先鞭をつけた。化学気候学という術語は、ロスビーらが発明したものではなく、アンガス・スミスが 1872 年に著した『大気と降水』の副題でもあった。だがその内容はこの間にだいぶ変わっていた。スミスの時代の降水の化学はスポット的な観測が中心であり、濃度と海岸からの距離との関係について解析を試みることはあっても、分布を面的に捉えるという発想はまだなかった。19 世紀のおわりに大気汚染が深刻化すると、イギリスのラッセル (W. J. Russell) らは観測網 (モニタリングネットワーク) の考え方を導入し、濃度や沈着量の地理分布が議論されるようになる。だがその水平規模は都市スケールにとどまった。20 世紀の中ごろロスビーらの時代になって、降水成分の地理分布と総観規模の気象擾乱との関係が議論されるようになったのである。観測網の整備や拡大が、研究の進展に大きく貢献したことはいうまでもない。三宅は『降水の化学』のなかで、化学気候学の意義をつぎのように述べる。

ある期間について平均された化学物質の分布の状態を考えるならば、それは一つの気候に対応すると考えられる。個々の化学物質の排出機構や移動・消失の過程がいかに複雑であろうとも、それらが総合されて最終的に得られたものが化学物質の分布であるから、その期間の平均的な気象状態としてきまる一つの気候に対して、化学物質の平均的な分布が決定されるということができよう。ここに化学気候学という概念が生ずる。

化学物質と気象との関係を扱う研究分野は、今日では大気化学 (Atmospheric Chemistry) の名でよばれるようになった。大気化学と関連する重要な社会問題には、環境の酸性化のほか、地球の温暖化やオゾン層の破壊などがある。

スカンジナビアの降水組成のデータを解析したスウェーデンの土壤学者オーデン (S. Oden) は、この地域の降水は酸性化の傾向を強めており、その原因はイギリスやヨーロッパ中部の工業地帯から輸送された硫酸化物にあるに違いないという結論に達する。1968 年に取りまとめられ、経済協力開発機構 OECD に提出されたその報告書は大きな反響をよんだ。オーデンらの報告をうけたスウェーデン政府は、1972 年 6 月にストックホルムで開催された国連の「人間環境会議」で、国境を越えた環境問題として酸性雨を提起する。

1872 年にアンガス・スミスが『大気と降水』の冒頭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、ちょうど百年目の年であった。

4.5 環境科学の視点から

日本の酸性雨は、ヨーロッパや北アメリカとはやや違った経緯のもとに出発した。1973 (昭和 48) 年 6 月に静岡県と山梨県で住民数百人が、霧雨の際に眼や喉の痛みを訴えた。農作物には斑点状の障害もみられた。1974 年 7 月には、届け出数が 3 万人以上におよぶ大規模な被害が関東一円で発現した。被害が最も大きかったのは、埼玉県と群馬県と栃木県の県境を囲む地域であり、降り始めの霧

雨や小雨のときに集中し、同時に強い酸性度が観測された。環境庁や自治体による実態調査の結果、眼や喉の痛みはホルムアルデヒドやギ酸や過酸化水素などの刺激性の物質と、水素イオンとの相乗作用によるものではないかと推定された。だがこれらの物質の起源や履歴は解決せずに残された。

皮肉なことに環境庁が 5 ケ年計画で調査を開始した 1975 年の夏季を最後にして、被害の届け出は聞かれなくなった。日本ではこの一連の事件を湿性大気汚染、あるいは「いわゆる」をつけて酸性雨とよぶようになる。接頭語がとれて社会的にも定着した酸性雨の調査を支えたのは、地域住民との接点が大きい自治体の研究者であった。

こうした背景のもとに環境庁は、1983 年に国立環境研究所の大喜多敏一を主査に酸性雨対策検討会を組織し、5 ケ年計画で「第 1 次酸性雨対策調査」を開始した。バルクサンプラーを改造した「ろ過式」とよばれる日本独特の採取器が、東京をはじめ全国 29 地点に設置された。1988 年に始まった「第 2 次調査」では、国設大気測定所 23 局にウェットオンリーサンプラーが設置された。1994 年に始まった「第 3 次調査」では、離島に測定所を新設するなど観測網の拡充と強化が図られた。これらの調査の結果、欧米に匹敵する量の硫酸イオンと硝酸イオンが沈着していること。日本海側で冬季に硫酸イオン濃度の増加が認められること。アルカリ度の低い湖沼の存在が確認されること。スギなどの樹木に原因不明の衰退が確認されることなど、日本の酸性雨の実態が明らかになる。

湿性大気汚染が喧伝された 1970 年代の中ごろから、自治体による酸性雨のモニタリングが各地で始められた。有力な自治体の試験研究機関が中心となり、行政枠を越える形で全国を五つのブロックにわけて調査を開始した。1991 年以降は全国環境研協議会の傘下に、全国規模のネットワークを展開してきた。

1980 年代の中ごろになると、中国や韓国や台湾など東アジアの各国も酸性雨は社会的な関心を集めるようになる。中国では「空中鬼」とよばれることも伝えられた。各国は独自に調査を進めてきたが、試料の採取方法や分析方法はまちまちであり、欧州監視評価計画 EMEP や全米酸性降下物調査計画 NADP のように標準化された体制はなかった。

こうした背景のもとに日本の環境庁は、1992 年に東アジア酸性雨モニタリングネットワーク EANET の構想を対外的に提唱する。まず専門家による技術会合が開催され、マニュアルとガイドラインの策定が進められた。観測データの取りまとめを担う酸性雨研究センター ADORC (のちアジア大気汚染研究センター ACAP と改称) は、新潟に置かれることも了承された。環境庁の「第 3 次調査」が終わった 1999 年以降は、国設大気測定所の一部が EANET に継承された。国内の監視体制は都市地域、田園地域、遠隔地域の三つの測定所に再編成され、東京は都市地域の測定所に位置付けられた。

広域モニタリングの開始に先立って 2 年間の試行稼働が行われ、その結果をふまえて 2001 年 1 月に本格稼働を開始した。2022 年現在の EANET 参加国は、日本、中国、インドネシア、マレーシア、モンゴル、フィリピン、韓国、ロシア、タイ、ベトナム、カンボジア、ラオス、ミャンマーの 13 ケ国である。北朝鮮は参加せず台湾は排除されている。ヨーロッパに遅れること約 30 年、北アメリカに遅れること約 20 年にして、アジアにも本格的な酸性雨のモニタリング体制が確立したのである。

5. 東京における降水組成の経年変化

試料の採取方法や分析方法が時代とともに変化してきたため、経年変化の解析にはデータの吟味が必要である。まず採取方法の違いであるが、著者らが東京の狛江で行った 3 方式(常時開放式:ろ

過式:自動開閉式)の併行観測では、硝酸イオンの濃度については 1.00:0.78:0.66, アンモニウムイオンの濃度については 1.00:0.81:0.79 のデータが得られている。さまざまな要因が複雑に関与する可能性があるため、これが普遍的なものかどうかは明らかでない。

データの整理方法については、質量濃度と当量濃度とモル濃度の互換が、また硝酸態窒素やアンモニア態窒素のように窒素 N(at) 表示された濃度は換算が必要である。古いデータには濃度は匁/坵や珪/坵、沈着量は瓦/町歩年などの形で整理されたものがある。不自然な非連続性が認められるデータもある。一般にデータの精度管理は今日ほど厳密ではなかった。これらの整合を確かめることは今後の課題とし、ここでは原論文のデータを換算して示した。

表 2 は、東京都内における窒素化合物の濃度の推移を取りまとめたものである。アンモニウムイオンの濃度は、経年的にやや減少の傾向がみられるが、その変化はそれほど大きなものではない。これに対して硝酸イオンの濃度は、時代とともに大きく変化してきたことがわかる。1930 年代の大手町の硝酸イオンの濃度は、1910 年代の西ヶ原の濃度よりやや高く、終戦直後の 1940 年代おわりの高円寺の硝酸イオンの濃度はかなり低い。1940 年代おわりの降水成分の濃度の減少は、神戸や名古屋などで硫酸イオンに顕著に現れており、菅原は慎重な言いまわしながら、二酸化硫黄の排出量の減少が関与しているのではないかと推定した。

1975 年の西ヶ原の硝酸イオンの濃度を、60 年前の同じ地点の濃度と比較すると、3 倍以上の増加が認められる。大喜多らは東京都衛生研究所による 1961~1962 年と 1981~1982 年の降下ばいじんのろ液の分析データを解析し、アンモニウムイオンの沈着量は約 20 年間で約 2/3 に減少したのに対して、硝酸イオンの沈着量は約 2 倍に増加したことを示した。東京都公害研究所が 1970 年代はじめに都内の 5 地点で測定した硝酸イオンの濃度は、約 60 年の間に 3 倍から 5 倍の範囲で増加した。電力中央研究所が 1980 年代のなかごろ狛江で開始したモニタリングの結果をみると、硝酸イオンの濃度は 2000 年ころまで大きな増減なく推移し、その後は次第に減少してきた。この傾向は 2000 年の三宅島の噴火後数年を除くと、硫酸イオンについても同様である。なお狛江における大気中の窒素酸化物の濃度は、1990 年には約 60 ppb であったが、その後は年率約 5.6%の割合で減少してきた。二酸化硫黄の濃度は 1990 年代のおわりまで 7ppb 前後で推移したが、2000 年代になると 2 ppb 以下まで低下した。

表 2 東京における降水中のアンモニウムイオン硝酸イオンの濃度の経年変化

地点	年	アンモニウム	硝酸	降水量	実施機関
		mg/L	mg/L	mm/y	
駒 場	1883-1885		0.19	1338	駒場農学校
駒 場	1886	0.15		1582	駒場農学校
西ヶ原	1913-1924	0.92	0.62	1628	農事試験場
西ヶ原	1925-1933	0.99	0.47		農事試験場
大手町	1935-1938	0.70	1.33		中央气象台
高円寺	1947-1949	0.45	0.24		気象研究所
西ヶ原	1975	0.97	1.95		農事試験場
5 地点 *	1973-1975		2.30-3.22		東京都公害研究所
高円寺	1973-1977	0.40	1.80		気象研究所
府 中	1975-1978	0.74-0.96	1.04-1.77	1461	東京農工大学
狛 江	1984-1985	0.62	2.17	1420	電力中央研究所
東陽/新砂	1984-1987	0.60	2.37	1425	環境庁
狛 江	1987-1990	0.46	1.42	1538	電力中央研究所
狛 江	1991-1995	0.45	1.61	1510	電力中央研究所
狛 江	1996-2000	0.51	1.63	1552	電力中央研究所
狛 江	2001-2005	0.40	1.38	1631	電力中央研究所
狛 江	2006-2010	0.37	1.39	1693	電力中央研究所
狛 江	2011-2015		1.33		電力中央研究所

* 千代田, 大田, 板橋, 調布, 青梅

これらを日本の大気汚染の経緯と比較してみよう。明治時代のおわりから増加をはじめた二酸化硫黄の排出量は、大戦前の 1937 年ころを最大にして低下をはじめ。大戦で生産活動が壊滅的に崩壊した 1946 年ころ最小になり、戦後の復興ともにふたたび増加をはじめて 1970 年ころ最大となり、それ以降は減少してきた。これに対して大戦前の窒素酸化物の排出量の変化は微々たるものであった。窒素酸化物の排出量の増加が著しいのは、1960 年代になってからであり、モータリゼーションの普及がこれと関係していた。農事試験場による降水のモニタリングが始まった 1913 年から 1975 年の間に、窒素酸化物の排出量は年間 30 万トンから 180 万トンまで、約 6 倍増加したと推定される。排出量をもっと多かったのは、1970 年代おわりから 1980 年代はじめの 5 年間であった。首都圏だけの排出量の変化は明らかでない。だが関東地方の 1 都 6 県における窒素酸化物の排出量は、1970 年代おわりには日本全域の約四分の一を占めた。つまり関東地方と日本全域の排出量の経年変化は、パターンのように大きく違わないのではなかろうか。以上をもとに総合的に考えると、1990 年代おわりまでの東京における硝酸イオンの濃度は、首都圏における窒素酸化物の排出量と連動して変化していた可能性が高い。

広域モニタリングの展開が軌道に乗り、新しい排出インベントリーを用いた広域輸送モデルの解析が進むにつれて、降水の硫酸イオンに対する硝酸イオンの濃度比は、東アジアの生産活動の推移に連動して、複雑に変化していることが明らかになった。硫酸イオンと硝酸イオンの濃度は減少の傾向にある。アンモニウムイオンの濃度も減少の傾向にあるが変化は緩慢であり、カルシウムイオンの濃度はあまり変化してないだろう。このへんに将来にわたる日本の降水の「質」の変化を推理する鍵がありそうである。

では遠隔地域におけるモニタリングが主流になり、越境大気汚染の影響が量的に評価されるようになった現在、都市地域のモニタリングはその役割をおえたのだろうか。そうではあるまい。大気中に排出された汚染物質は、移流・拡散、変質、沈着・除去の過程をへてはじめて物質循環は完結するが、湿性沈着は排出源のごく近傍からすでに始まっている。したがって大気汚染が深刻なアジアの大都市で、排出源の抑制効果などを検討するうえで、降水のモニタリングが果たす役割は大きい。長期間にわたる降水成分のデータが、貴重な知見を提供することは明らかであり、その重要性は今日でも失われるものではない。東京における 130 年間の降水組成のデータを整理し、その変遷を調べたゆえんである。

参考文献

1. Cowling, E. B. (1982) *Environ. Sci. Technol.*, 16, 110–123.
2. Erikson, E. (1952) *Tellus*, 4, 287–303.
3. Fujita, S., Takahashi, A., Sakurai, T. (2003) *Tellus*, 55B, 23–34.
4. 藤田慎一 (2012) 酸性雨から越境大気汚染へ, 成山堂書店.
5. 藤田慎一, 三浦和彦, 大河内博, 速水 洋, 松田和秀, 櫻井達也 (2021) 越境大気汚染の物理と化学, 2 訂版, 成山堂書店.
6. Gorham, E. (1955) *Geochemica et Cosmochemica Acta*, 7, 231–239.
7. 石川百合子 (2001) 地理学評論, 74A-1, 1–18.
8. Itahashi, S. et al. (2018) *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 2835–2852.
9. 関東地方公害対策本部 (1975) 関東地方のいわゆる酸性雨 (湿性大気汚染) について
10. 川島禄郎 (1929) 肥料学, 地球出版.
11. Kellner, O., Sawano, J., Yoshii, T., Makino, R. (1886) *Landaw. Jahrbur*, Band, XV. 701–708.
12. 熊澤恵理子 (2011) 農村研究, 113, 1–13.
13. 熊沢喜久雄 (1986) 肥料科学, 9, 1–41.
14. 倉茂英次郎 (1933) 天気と気象, 1, 390–393.
15. Miller, N. H. J. (1913) *Scott. Met. Soc.*, XVI, 157.
16. 三宅泰雄, 杉浦吉雄 (1957) 降水の化学, 地人書館.
17. 大平俊男 (1977) 公害と対策, 13, 10, 1007–1014.
18. OECD (1977) *The OECD Program on Long Range Transport of Air Pollutants*, OECD Press.
19. 小倉紀雄 (1980) 大気から海洋への汚染物質の移動, 環境科学特別研究, 47–54.
20. 岡田武松 (1951) 雨, 岩波書店.
21. 大喜多敏一 (1987) 酸性雨, 気象研究ノート, 第 158 号.
22. Rossby, C. G., Egner, H. (1955) *Tellus*, VII, 18.
23. 酸性雨対策検討会大気分科会 (1987) 酸性雨対策調査中間報告書, 121.
24. Smith, R. A. (1872) *Air and Rain*, Longmans Green & Co., London.
25. 菅原 健 (1948) 科学, 18, 485–492.