

大気中水銀の地上への降下・沈着

Fall-out and Deposition of Airborne Mercury to the Ground

村林 真行*・勝俣恵美子*・尾形慎一郎**・松野 武雄*

Masayuki MURABAYASHI, Emiko KATSUMATA, Shinichiro OGATA and Takeo MATSUNO

Synopsis

From a chlor-alkali plant some amount of mercury vapor is emitted to the atmosphere. Fall-out of the mercury from the atmosphere to the ground was investigated by means of a miniature wind tunnel. Deposition velocity of mercury to soil was determined to be 3×10^{-4} m/s from the experiment. The amount of the mercury deposited to the ground was then estimated by using a deposition model.

The present estimation indicates that less than 9% of the total emission of the mercury was deposited to the ground at wind velocity of 0.5 to 3 m/s in a circular area having a radius of 500 m around the emission source. The estimate was in reasonable agreement with Wallin's results which were deduced from an analysis of moss and snow.

1. 緒 言

近年電解ソーダ工場においては、クローズド・システム化により、工場外部に排出される水銀量を極力少なくする努力が払われている¹⁾。工場から大気中に排出される水銀蒸気の排出量、拡散移行の状態についてはこれまでに報告してきた²⁾³⁾。しかし水銀蒸気の地上への降下沈着については従来ほとんど明らかにされておらず、排出された水銀蒸気が排出源からある距離までの間に相当量地上に沈着するのか、あるいは大部分が大気中を拡散するのかについては判断の手掛りもない状態であった。Wallin⁴⁾⁵⁾らはスウェーデンの電解数工場周辺の苔および雪の分析から、排出された水銀の沈着量を求め、工場から 0.5~15km の範囲に沈着する水銀は排出量の10%程度以下であることを報告した。ただ Wallin らの結果も 0~500m 内でのデータがないこと、苔に沈着した水銀の脱着の可能性があることなど問題がないわけではない。

一方大気中の気体やエアロゾルの地上への沈着に関しては原子炉の事故に関連して測定や解析が行われており I^{131} や Cs^{137} などの沈着についてある程度のデータが得られている。⁶⁾⁻⁹⁾ しかしながらデータ間のばら

つきが相当に大きく、また化学的活性の違いなどから、これらのデータをそのまま水銀蒸気に適用することは困難と考えられる。

今回我々は Wallin らのとは別の方法、即ち小型風洞を用いた実験を行い、沈着のモデル化によって、工場から大気中に排出された水銀蒸気の沈着について推算を行った。

2. 実験方法

土壌に対する大気中からの水銀の沈着についての基礎的データを得る目的から Fig. 1 のような小型風洞によって実験を行った。風洞には内径 30cm 長さ 4m の塩ビパイプを用いた。

風洞入口に精製された水銀を置き、ファンによって試料部に向け送風した。水銀はヒーターと温度コントローラにより所定の温度にコントロールし、マグネチックスターラーによって表面を攪拌した。沈着用試料として、ほぼ一定量の土壌をガラス容器につめ、風洞出口近くに置いた。ガラス容器は内径 22mm の試験管の先端約 25mm を切断したものを用いた。風洞内ではこのガラス容器の周囲も土壌で埋めた。さらにその風上部分は、土壌と同じ高さに長さ 50cm の塩ビ板を敷いた。

以上の風洞を用いて沈着実験を行い、ガラス容器中

* 当研究センター環境計測工学研究室

** 岡山化成(株)

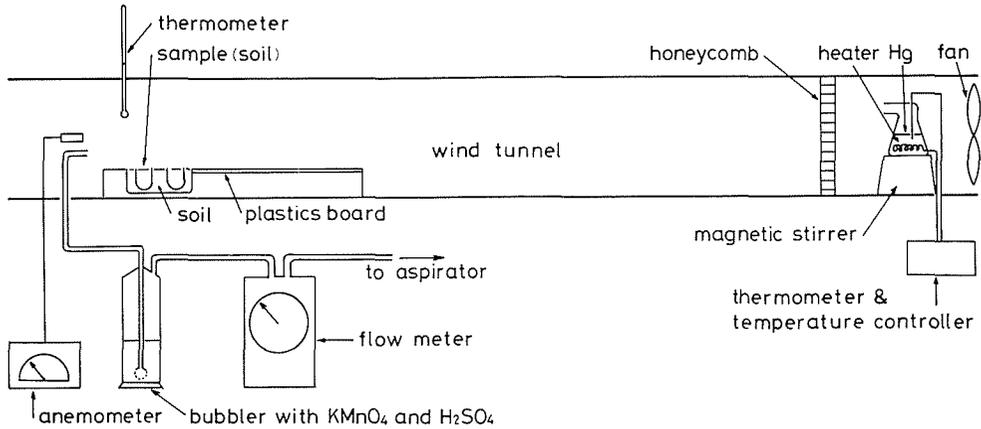


Fig. 1 Miniature wind tunnel

Table 1 Experimental values of ω , \bar{C} and v_d

run No.	U m/s	time* min	ω mg/m ² s	\bar{C} mg/m ³	v_d m/s
1	0.3	4,130	2.84×10^{-5}	1.22×10^{-1}	2.3×10^{-4}
2	0.3	5,420	3.84×10^{-5}	1.27×10^{-1}	3.0×10^{-4}
3	0.3	6,965	4.30×10^{-5}	1.27×10^{-1}	3.4×10^{-4}
4	0.3	5,690	3.29×10^{-5}	1.40×10^{-1}	2.4×10^{-4}
5	0.3	14,075	3.55×10^{-5}	1.35×10^{-1}	2.6×10^{-4}
6	0.3	14,180	4.03×10^{-5}	1.35×10^{-1}	3.0×10^{-4}
7	0.2	2,620	4.15×10^{-5}	1.62×10^{-1}	2.6×10^{-4}
8	0.2	7,000	4.93×10^{-5}	1.57×10^{-1}	3.1×10^{-4}
9	0.2	8,455	6.21×10^{-5}	1.54×10^{-1}	4.0×10^{-4}
10	0.2	9,860	5.18×10^{-5}	1.49×10^{-1}	3.5×10^{-4}
11	0.4	8,395	2.59×10^{-5}	1.16×10^{-1}	2.2×10^{-4}
12	0.4	7,015	2.48×10^{-5}	1.21×10^{-1}	2.1×10^{-4}
13	0.4	8,355	3.72×10^{-5}	1.21×10^{-1}	3.1×10^{-4}
14	0.4	9,855	3.22×10^{-5}	1.21×10^{-1}	2.7×10^{-4}
15	0.4	11,275	2.72×10^{-5}	1.22×10^{-1}	2.2×10^{-4}

* period during which sample of soil was placed in the wind tunnel

の土壌および風洞内の空気中の水銀の分析を行った。用いた土壌（関東ローム）の含水率は約57%で、実験中風洞内での乾燥を防ぐため適宜水を補給した。試料としての土壌は風洞内に2~10日間置いた。

風洞から取出した試料は硝酸、硫酸混液中で加熱処理を行った後、稀釈して冷原子吸光法により水銀の定量を行った。なお水銀を沈着させていない土壌についても水銀の定量を行い、土壌中のバックグラウンド濃度として分析値から差し引いた。

風洞内の空気中の水銀濃度は、Fig. 1のように土壌の後方数 cm の位置で、アスピレーターにより約1時間、空気約 1 l を吸引し、過マンガン酸カリウム硫酸溶液に吸収させた後、冷原子吸光法により定量した。この定量は風洞内に土壌を設置してある間、適宜間隔を

おいて行った。風洞内の風速は試料部近くで微風速計により測定した。

3. 結果および考察

土壌および空気中の水銀の分析結果を Table 1 に示す。Table 1 の ω は土壌に沈着した水銀量を deposition rate (mg/m²s) として表わしたものである。空気中の水銀濃度は実験期間中やむを得ず変動はしたものの、ほぼ一定値を示した。その（図積分）平均値を \bar{C} (mg/m³) として示した。 ω と \bar{C} から Chamberlain¹⁰⁾の用いた沈着速度 v_d (m/s) を次式から求めた。

$$v_d = \frac{\omega}{\bar{C}}$$

v_d に対する風速の影響は未だあまり明らかではな

い。水銀以外の物質で、例えば I^{131} について風速との関係が求められ、文献によっては風速とともに v_d の増大する傾向が示されて⁶⁾¹⁰⁾ はいるが、総体的にはデータのばらつきが大きく、はっきりした関係は明らかでない。本実験では Table 1 に示した三つの風速について v_d を求めたが、特に顕著な傾向は得られなかった。さらに風速の大きい場合については、今後検討が必要ではあるが、ここでは v_d は風速に依存しないものと仮定して以下の計算を進めた。

Table 1 から v_d の値は 3×10^{-4} m/s と求められた。水銀については v_d の実測値はこれまでに報告されていないが、水銀以外の物質では 2~3 の放射性同位元素についての測定値が報告されている。それは原子炉の事故に際しての野外での測定および風洞実験の結果で、データ間のばらつきが大きく、データに影響を与える要因の複雑さ、測定の難しさを示唆している。参考迄に挙げると、化学的にほぼ不活性な Cs^{137} についてのデータは、 $v_d = 4.5 \times 10^{-4} \pm 5.3 \times 10^{-4}$ (m/s) という値があり⁸⁾⁹⁾、水銀についての今回の測定結果と近い値を示している。

大気中から地上への沈着を考えるにあたっては、沈着する地上の物質、地形、天候等、 v_d に影響を与えると思われる多くの要因があり、尚今後のより詳細な検討が必要であるが、今回は概算値を得る目的から、土壌への dry deposition という条件を絞った。

以上求めた v_d と一排出源からの気体の拡散の関係は次のように表わされる¹⁰⁾。風下方向を x 軸、風向に直角水平方向を y 軸、高さ方向を z 軸とし、 $Q(x)$ を排出源から距離 x の球面を、単位時間に拡散通過する物質（ここでは水銀蒸気）の量とすると

$$\frac{\partial Q(x)}{\partial x} = - \int_{-\infty}^{\infty} \omega(xy) dy \quad (2)$$

(1)式、(2)式と点源についての Sutton の式¹¹⁾

$$C(xyz) = \frac{2Q_0}{U\pi C_y C_z x^{2-n}} \exp - \frac{y^2}{C_y^2 x^{2-n}} \exp - \frac{z^2}{C_z^2 x^{2-n}} \quad (3)$$

を組み合せると次式を得る。

$$Q(x) = Q_0 \exp - \frac{4v_d x^{n/2}}{nU\pi^{1/2} C_z} \quad (4)$$

ここに Q_0 (mg/s) は排出源の排出強度、 U (m/s) は風速、 $C(xyz)$ (mg/m³) は点 (xyz) における大気中濃度、 C_x, C_y, C_z (m^{n/2}) は Sutton の乱流拡散係数、 n は大気安定度定数である。

これまでに電解ソーダ工場から大気中に排出される水銀蒸気の拡散移行が、有限な線源を排出源とする Sutton の式によってほぼ表わされることをみてきた²⁾³⁾。また (4) 式は排出源を点源とした(3)式を用いて導かれたものであるが、有限な線源の場合も、点源の重ね合せとみれば、(4)式を用いることができる。一方風向が変化した場合も、排出源を中心とした円内に沈着する割合を考えれば(4)式は有効である。

そこで $v_d = 3 \times 10^{-4}$ m/s, $x = 100 \sim 5000$ m, $U = 0.5 \sim 3$ m/s, $C_z = 0.12$ m^{n/2}, $n = 0.25$ として(4)式から $Q(x)/Q_0$ を求めると Table 2 のようになる。Table 2 にみられるように、沈着量は風速に大きく依存するが、排出源から半径 500 m の円型区域内に沈着する水銀蒸気の割合は、風速 0.5~3 m/s として排出量の 2~9% と推定される。

Wallin ら⁴⁾⁵⁾ が苔および雪の分析から求めた結果によると、電解工場を中心として 0.5~5 km のドーナツ状区域に沈着した水銀が排出量の 3~6%, 0.5~15.0 km では 7~10% である。今回のモデル計算によると、これはそれぞれ $\leq 3\%$ および $\leq 5\%$ に相当することになり、計算を進める際の仮定、それぞれの実験誤差、および今回の計算が dry deposition のみに基づいていること等を考慮すると、Wallin らの結果とほぼ一致した傾向を示しているものといえる。

4. 結 言

以上非常に大胆な仮定のもとに推算を行い、今後検討すべき要因を多く残してはいるが、電解ソーダ工場から大気中に排出された水銀蒸気の地上への降下沈着について、その概要を明らかにできたものと思われる。計算結果によると、工場から例えば 500 m までの区域には、排出量の高々 9% 程度の水銀が沈着する事が推定される。

謝 辞

本研究を遂行するにあたり、実験に協力いただいた猪子正憲氏に感謝の意を表する。

Table 2 Ratio of $Q(x)/Q_0$ calculated from eq. (4)

	x m	100	300	500	5000
$Q(x)/Q_0$	at $U = 0.5$ m/s	0.92	0.91	0.91	0.88
	at $U = 3$ m/s	0.99	0.99	0.98	0.98

文 献

- 1) 杉野利之, 化学工業, 26(4), 374 (1975).
- 2) 村林真行, 尾形懐一郎, 松野武雄, 電気化学, 45, (3), 159 (1977).
- 3) M. Murabayashi, S. Ogata, T. Matsuno, Bull. Inst. Environ. Sci. & Technol., Yokohama National University, vol 3, 53 (1977).
- 4) A. Jernelöv, T. Wallin, Atmos. Environ., 7, 209 (1973).
- 5) T. Wallin, Environ. Pollut., 10, 101 (1976).
- 6) A. C. Chamberlain, Int. J. Air Pollut., 3, 63 (1960).
- 7) N. F. Islitzer, R. K. Dumbauld, Int. J. Air Pollut., 7, 999 (1963).
- 8) F. A. Gifford, Jr., D. H. Pack, Nucl. Safety, 3(4), 76 (1962).
- 9) Convair, Fission Products Field Release Test II Report, NARF-60-10T(AFSWC-TR-60-26), (sept. 1960).
- 10) A. C. Chamberlain, AERE HR/R, 1261(1955).
- 11) O. G. Sutton, Quart. J. Roy. Meteorol. Soc., 73, 257 & 426 (1947).