

1 大 気 課

1 酸性降下物の実態調査（第1報）

吉川 信治 犬塚加代子 淵野良蔵
岩本条治郎 古賀 靖浩

1 はじめに

最近、中国の四川省において酸性雨が原因で針葉樹が広範囲にわたって枯死するなど¹⁻³⁾、1970年代初期から⁴⁻⁶⁾欧米で問題になっている酸性雨はアジアでも深刻な環境汚染を引き起こし始めている。

わが国では関東地域において酸性雨等の酸性降下物による被害と思われるスギの枯死が認められている。⁷⁻⁹⁾

本県では昭和49年8月唐津地区において酸性雨によると思われるアサガオの花弁の脱色現象が観察され、その実態把握のため昭和52年まで雨水のPHや成分調査が行われた。^{10,11)}

また、昭和61年5月からは酸性雨の生態系への長期的な影響評価のための基礎資料を得る目的で、図-1に示す県下主要地域6カ所において降水の水溶性成分の降水量調査を行っている。今回、1年間の結果をまとめたので報告する。

- ①佐賀市
- ②鳥栖市
- ③唐津市
- ④伊万里市
- ⑤脊振村
- ⑥鎮西町

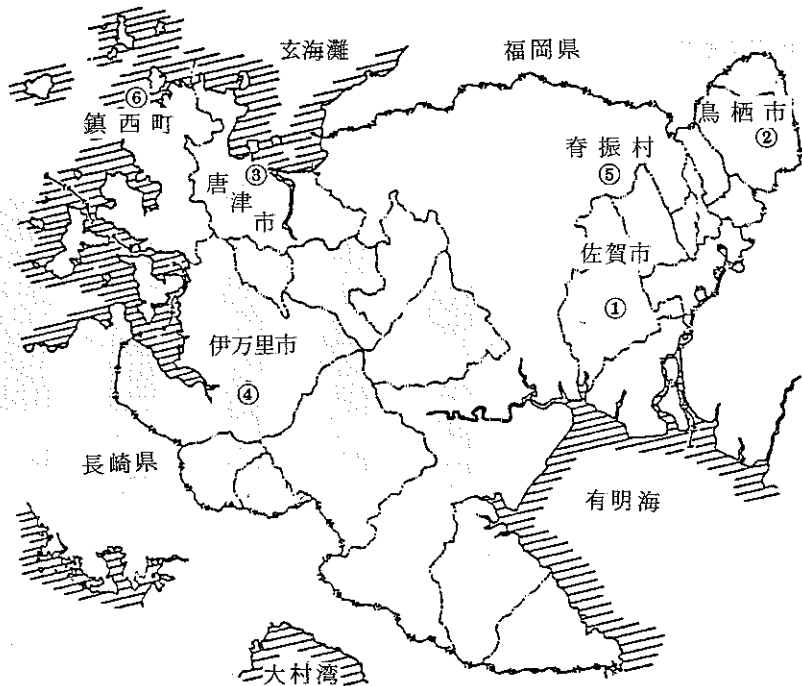


図-1 試料採取地点

2 調査方法

(1) 調査期間

昭和61年5月～昭和62年4月

(2) 調査地点

人口及び事業場の集中している佐賀市，大規模発生源（重油専焼火力発電所）の立地する唐津市，工場，事業場が集中し，交通の要衝である鳥栖市，工場の集中する伊万里市，バックグラウンド地域として鎮西町波戸岬（海岸部）及び脊振村（山間部）の計6地点において雨水の採取をした。

(3) 試料採取方法

降水は環境庁様式¹²⁾のろ過式採取装置を用い1カ月単位で採取を行った。

採取ロートは口径16.5cmのポリロートを，濾紙はメンブランフィルター（0.8 μ m）を用いた。各地点の降水量は貯水量をロート捕集面積で除して算出した。

(4) 分析項目及び分析法

PH：ガラス電極法

SO₄²⁻，NO₃⁻，Cl⁻：イオンクロマトグラフ法

K⁺，Na⁺，Mg²⁺：原子吸光光度法

NH₄⁺：インドフェノール法

3 結果と考察

(1) 気象状況

① 降水量

地域別降水量を
図-2に示す。
佐賀気象台の29年
間（1941～1970
年）の平均年間降
水量¹³⁾と比べ
て，やや多いかま
たは同レベルの降
水量であった。

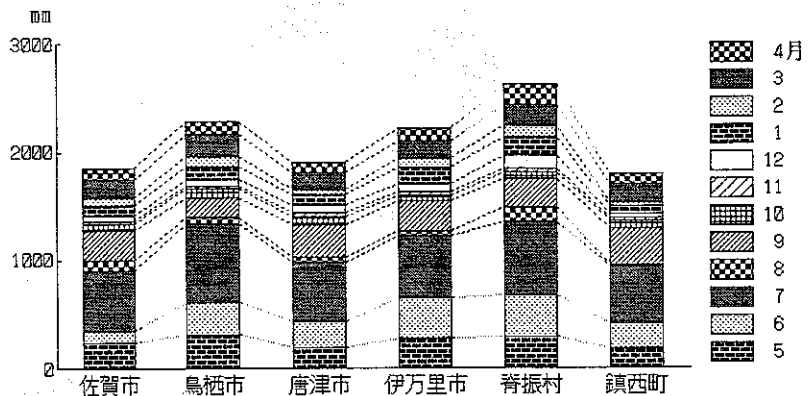


図-2 地域別降水量

降水量の地域差はあまりないが，山間部の脊振村が最も多く年間降水量は2,620mmとなっている。気象台のデータからこの地域は一種の山岳型気候を示し，気温の格差が小さく年間降水量は平地部より

多いことがわかる。平地部においては鳥栖市が2,280mmと最も多かった。

図-3の月別降水量では、いずれの地点も5月から7月の梅雨期に集中しておりこの時期だけで年間降水量の約50%を占めている。

そのほか9月にもピークがみられた。

なお、調査期間中台風の上陸または接近はなかった。

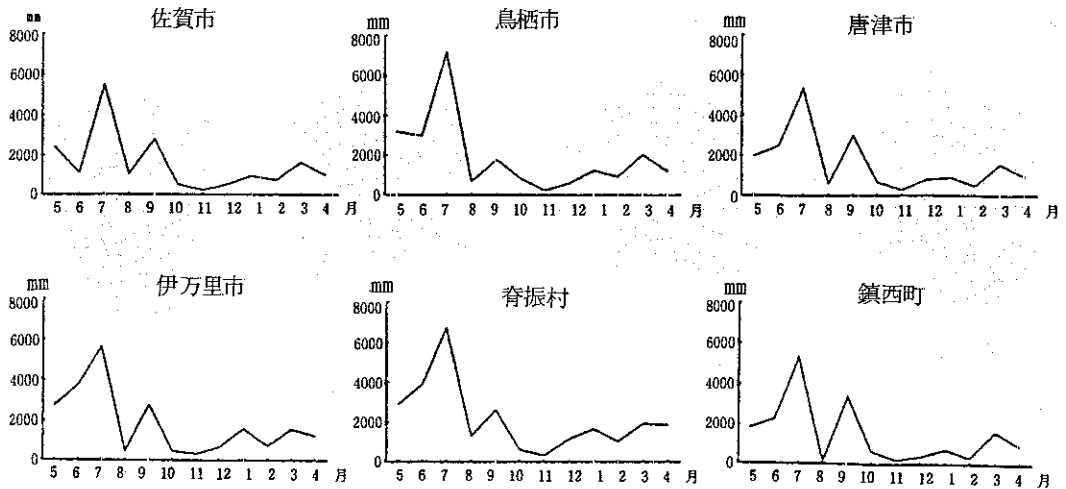


図-3 月別降水量

② 風 配 図

風配図は、大気環境常時監視局気象データを基に作成した。

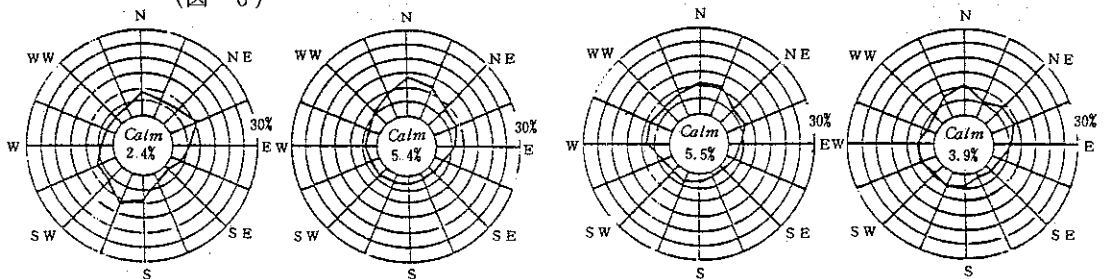
なお、鎮西町については環境放射線監視局データを使用した。

佐賀市：四季の変化が少ない地域である。中でも夏期に南南西の風，秋，冬，春期に北風の出現がみられる。（図-4）

鳥栖市：夏期は南南西の風の出現率が高く，秋，冬，春期は北，北北東の風が多い。冬期はそれに加え西南西の風の出現もみられる。（図-5）

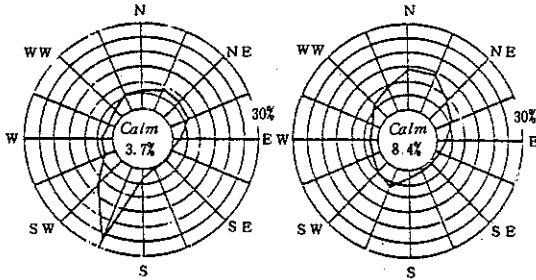
唐津市：季節にかかわらず年中東西の風が多く，冬期に北，北北西の風の出現がみられる。

（図-6）

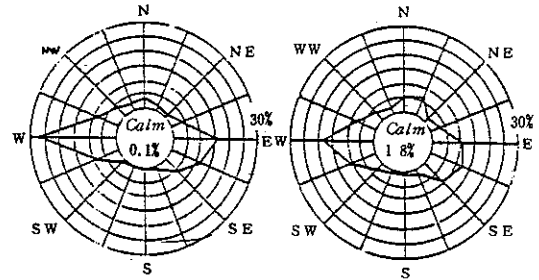


夏（昭和61年6月～8月） 秋（昭和61年9月～11月） 冬（昭和61年12月～昭和62年2月） 春（昭和62年3月～5月）

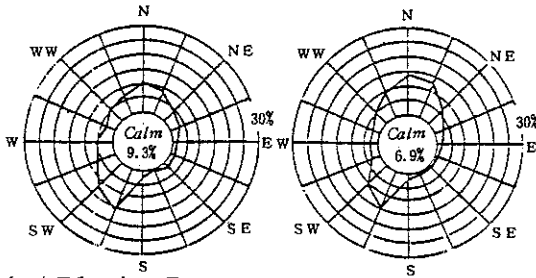
図-4 風配図：佐賀市（佐賀局）



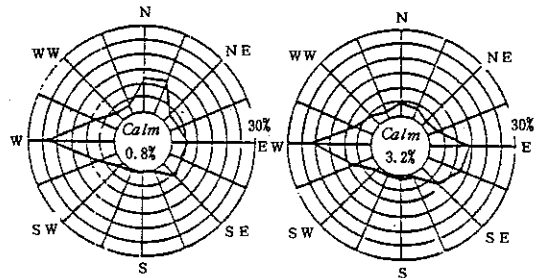
夏 (昭和61年6月～8月) 秋 (昭和61年9月～11月)



夏 (昭和61年6月～8月) 秋 (昭和61年9月～11月)



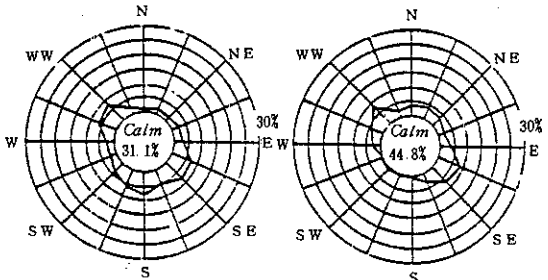
冬 (昭和61年12月～昭和62年2月) 春 (昭和62年3月～5月)



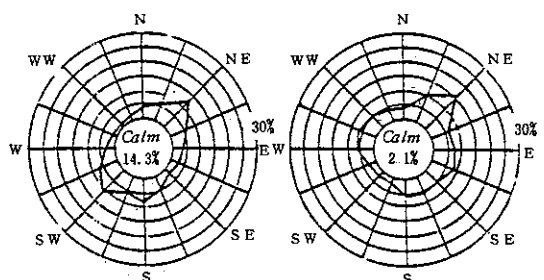
冬 (昭和61年12月～昭和62年2月) 春 (昭和62年3月～5月)

図-5 風配図：鳥栖市 (鳥栖局)

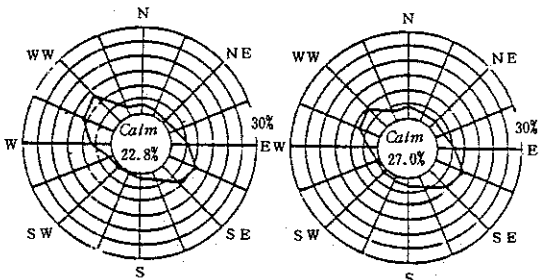
図-6 風配図：唐津市 (唐津局)



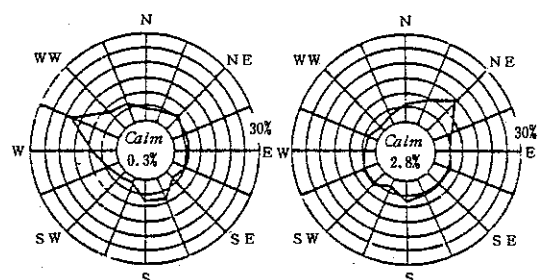
夏 (昭和61年6月～8月) 秋 (昭和61年9月～11月)



夏 (昭和61年6月～8月) 秋 (昭和61年9月～11月)



冬 (昭和61年12月～昭和62年2月) 春 (昭和62年3月～5月)



冬 (昭和61年12月～昭和62年2月) 春 (昭和62年3月～5月)

図-7 風配図：伊万里市 (大坪局)

図-8 風配図：鎮西町 (今村局)

伊万里市：一年を通して北西，東南東の風が多く，夏期に南風，秋期に北東の風が少し出現する。

(図-7)

鎮西町：夏，秋，春期は北東の風が多く，夏期は南西の風も出現する。冬期は西北西の風の出現率が高い。(図-8)

(2) 降水量と降下量の関係

降水量と各成分降下量の相関関係を表-1に示す。全地点において降水量と相関の高い(有意水準1%で有意)成分は NO_3^- であった。そのほか H^+ ， Ca^{2+} が降水量と相関がみられた地点があった。

表-1 降水量と各成分降下量の相関

| | 全量 | H^+ | SO_4^{2-} | NO_3^- | Cl^- | NH_4^+ | Ca^{2+} | Mg^{2+} | K^+ | Na^+ |
|------|--------|--------------|--------------------|-----------------|---------------|-----------------|------------------|------------------|--------------|---------------|
| 佐賀市 | 0.397 | -0.082 | 0.277 | **0.726 | 0.197 | 0.079 | *0.596 | 0.131 | 0.537 | 0.032 |
| 鳥栖市 | 0.180 | 0.079 | 0.175 | *0.539 | -0.066 | 0.462 | *0.702 | -0.157 | -0.265 | -0.170 |
| 唐津市 | -0.151 | **0.823 | -0.108 | **0.732 | -0.161 | -0.038 | 0.111 | -0.361 | -0.339 | -0.345 |
| 伊万里市 | 0.179 | *0.602 | 0.115 | *0.630 | 0.063 | 0.499 | 0.157 | -0.158 | 0.182 | -0.114 |
| 脊振村 | 0.089 | 0.008 | 0.075 | **0.901 | 0.026 | 0.338 | **0.825 | 0.094 | 0.491 | -0.036 |
| 鎮西町 | 0.099 | **0.859 | 0.120 | **0.797 | -0.003 | 0.246 | -0.102 | 0.044 | 0.109 | 0.093 |

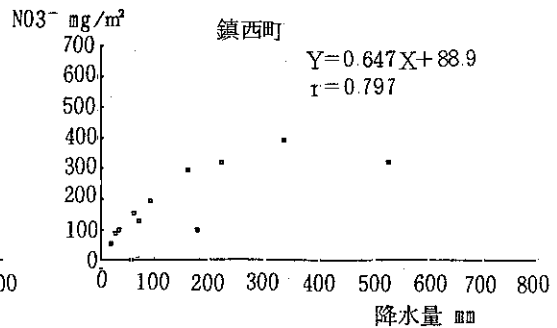
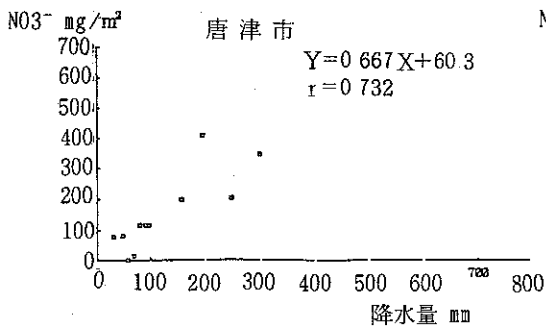
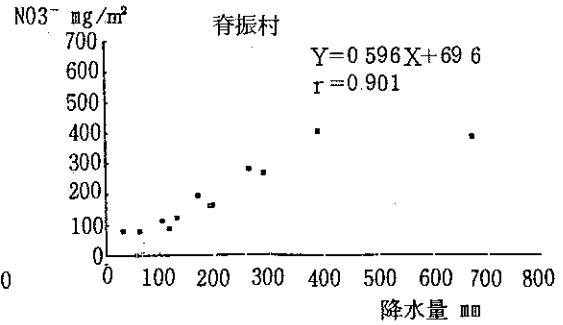
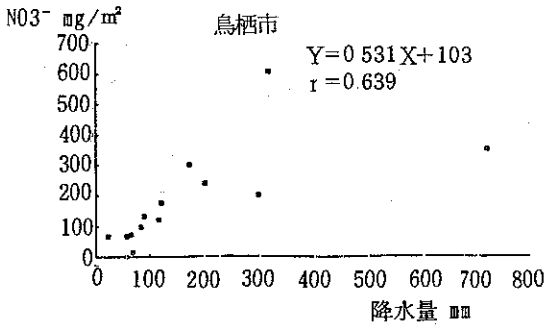
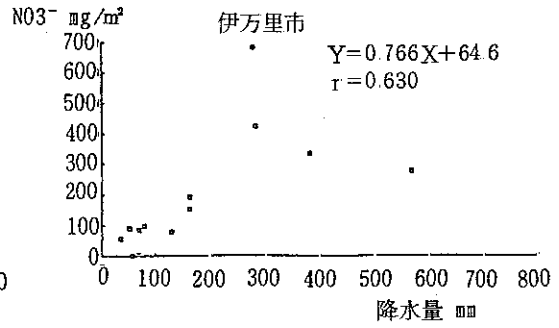
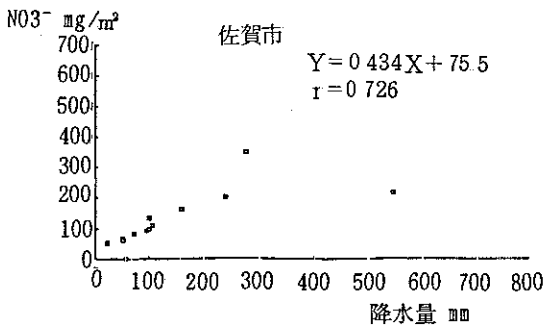
* 有意水準 5%で有意

** 有意水準 1%で有意

降水量と高い相関がみられた成分である NO_3^- について，その地域別違いをみるため降水量と降下量の一次回帰式を求め回帰係数を比較した。

地域別にみた降水量と NO_3^- 降下量の関係を図-9に示す。

係数の大きいのは伊万里市の0.766で逆に小さいのは佐賀市の0.434であった。地域差が顕著とはいえないが一次回帰係数から同程度の降水量に対し，唐津市，伊万里市，鎮西町の海岸部の方が多い，すなわち降水成分濃度が高い傾向がみられた。



図一 地域別にみた降水量とNO₃降下量の関係

(3) 水溶性成分の年間降下量

分析した成分中 H^+ 、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+ 、 Ca^{2+} の年間降下量と季節変化の特徴は以下のとおりであった。

① 年間降下量

H^+ の年間降下量を図-10に示す。

降下量の最も多かったのは脊振村(山間部)の $95mg/m^2$ 年、次いで伊万里市 $61mg/m^2$ 年、鳥栖市 $56mg/m^2$ 年の順であった。反対に少なかったのは鎮西町(波戸岬)の $21mg/m^2$ 年で、脊振村の25%以下であった。

人為発生源からの降下物量を見積る場合、日本は四方を海に囲まれた

島国であるため海塩粒子の影響を無視できない。そこで、 Na^+ をすべて海塩起源と仮定し、次式により海塩寄与率を算出すると

$$\text{海塩寄与率 (\%)} = [M/Na]_{\text{sea}} \times [Na]_{\text{rain}} \times 100 / [M]_{\text{rain}}$$

$[M/Na]_{\text{sea}}$: 海水中の Na^+ とM成分の比¹⁴⁾

$[Na]_{\text{rain}}$: 降下物中の Na^+ 量

$[M]_{\text{rain}}$: 降下物中のM成分の量

全 SO_4^{2-} 降下量に占める海塩起源 SO_4^{2-} の寄与率は図-11に示すように、鎮西町で33%、唐津市19%と海岸部に近い地域で高かった。

平木らの報告¹⁵⁾では、海塩粒子の影響は瀬戸内海側では10%程度、日本海側では年間30%以上としているが、日本海側の鎮西町波戸岬においては同様の結果が得られた。

山間部の脊振村で16%と内陸部と比

べ高いのは、日本海から吹き上げる強い季節風によって海塩粒子が多量に運ばれてきたことが考えられる。海塩粒子寄与量を除いた SO_4^{2-} 降下量($[Excess-M] = [M]_{\text{rain}} - [M/Na]_{\text{sea}} \times [Na]_{\text{rain}}$)の大部分は人為発生源と考えられるが、工場、事業場が集中し、また交通の要衝である鳥栖市で $4.9g/m^2$ 年と最も多かった。

山間部の脊振村で $4.4g/m^2$ 年と鳥栖市を除く他4地点の降下量 $2.9 \sim 3.9g/m^2$ 年と比較して多

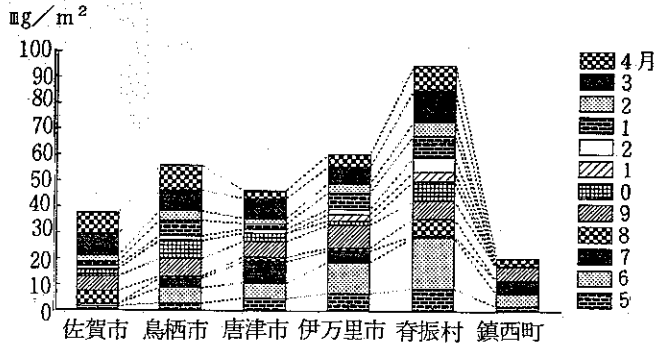


図-10 H^+ の年間降下量

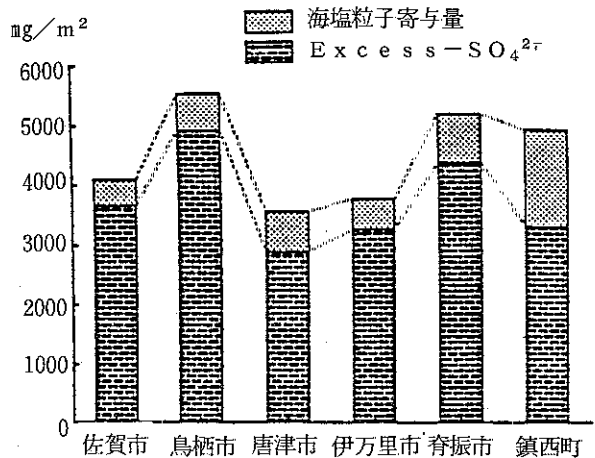


図-11 SO_4^{2-} の年間降下量

く、とくに雨の少ない冬場に多いことから雪によるウォッシュアウト（一般に雨より効果が大きいといわれる）も考えられるが明らかでない。唐津市においては $2.9\text{g}/\text{m}^2$ 年と少なかった。

NO_3^- 降下量を図-12に示す。佐賀市が $1.7\text{g}/\text{m}^2$ 年と少し低いものの他5地点の NO_3^- 降下量は $2.0\sim 2.5\text{g}/\text{m}^2$ 年の範囲で、 SO_4^{2-} の降下量の特徴とは異なり顕著な地域差はみられなかった。

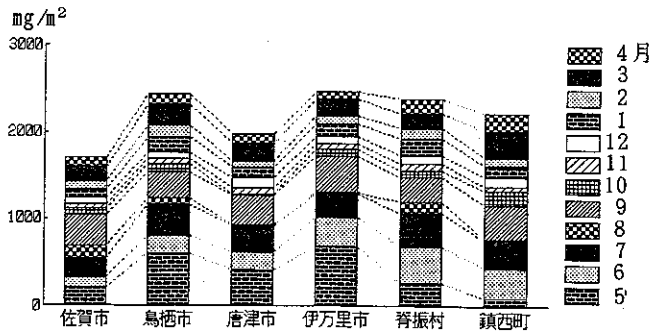


図-12 NO_3^- の年間降下量

NO_3^- と SO_4^{2-} の年間降下量の相対的な関係を調べるため、 $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ の比（当量比）を比較検討した。 NO_3^- の主な発生源が自動車排ガスで SO_4^{2-} は工場などの固定発生源であるので、 NO_3^- と SO_4^{2-} 降下量と同様 $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ 比も発生源の指標になりうると思われる。

表-2に示すように年間降下量の当量比は、佐賀市、鳥栖市、脊振村、鎮西町は同程度の $0.32\sim 0.36$ の範囲で、唐津市（ 0.43 ）、伊万里市（ 0.51 ）より低目であった。

表-2 年間降下量の当量比（ $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ ）

| 佐賀市 | 鳥栖市 | 唐津市 | 伊万里市 | 脊振村 | 鎮西町 |
|------|------|------|------|------|------|
| 0.32 | 0.34 | 0.43 | 0.51 | 0.36 | 0.35 |

このことは、佐賀市を除いて NO_3^- 降下量に目立った地域差がないことから、鳥栖市、脊振村、鎮西町における SO_4^{2-} の降下量が唐津市、伊万里市に比べて多いことを意味している。鎮西町の SO_4^{2-} 降下量は前述したように海塩粒子由来の SO_4^{2-} が多いことで説明できるが、鳥栖市においては固定発生源からの影響が他地域よりも大きいことが考えられる。脊振村の SO_4^{2-} 降下量が多い原因については今のところ不明である。佐賀市で SO_4^{2-} の降下量が少ないにもかかわらず $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ 比が小さいのは、 NO_3^- 降下量が相対的に少ないためである。

一般に、 NH_4^+ は Ca^{2+} と同様雨水の酸性化の抑制因子と考えられている。渡辺ら^{16)~19)}は Ca^{2+} がPHを高める作用があると報告している。また、中国北部では大気中の粒子状物質の大半がアルカリ土壌に起因しているので SO_2 汚染が激しい都市でも酸性雨はまったく生じていないという報告もある³⁾。

NH_4^+ 降下量の多くは人為発生源とされ、 Ca^{2+} は土壌のまきあげや黄砂などによる自然界からのもの、アスファルト道路粉じん等による人為発生源の両者がある。

図-13に NH_4^+ 降下量を、図-14に Ca^{2+} 降下量を示す。

NH_4^+ 降下量は鳥栖市が最も多く $0.8\text{g}/\text{m}^2$ 年、次いで脊振村の $0.7\text{g}/\text{m}^2$ 年でその他の地点は $0.4\sim 0.5\text{g}/\text{m}^2$ 年の範囲の同程度の降下量であった。

SO_4^{2-} の海塩寄与率を求めたのと同様の方法で海塩由来の Ca^{2+} の寄与率を求めると、唐津市、鎮西町がそれぞれ13%、脊振村10%、その他の地点は5~9%の範囲で SO_4^{2-} と同じく海岸部及び山間部で高かった。

海塩寄与量を除いたExcess- Ca^{2+} については鎮西町(1.6g/m²年)、鳥栖市(1.4g/m²年)の順で多く唐津市、伊万里市は鎮西町の50%以下のそれぞれ0.7g/m²年、0.8g/m²年であった。

② 季節変化

H^+ 降下量の季節変化を図-15に示す。伊万里市、脊振村においては6月にピークをもつが、全体的に際立った特徴はみられなかった。また、7,8,11月頃に降下量が最も少なくなる傾向にあった。降水量の変化に伊万里市、鎮西町がよく対応していた。

図-16の SO_4^{2-} 降下量の季節変化では、5月、6月の多雨期と1月から3月にかけての冬期に降下量が多いが、降水量の変化とはかならずしも対応していなかった。そのほか9月にもピークがみられ、これは降水量のピークとよく一致していた。

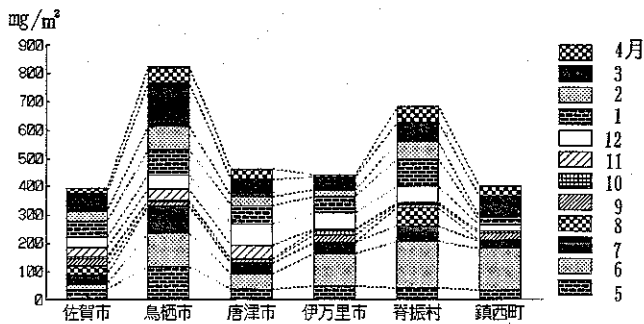


図-13 NH_4^+ の年間降下量

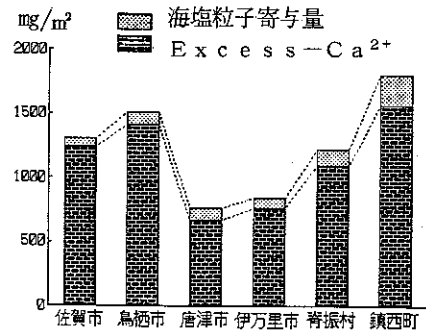


図-14 Ca^{2+} の年間降下量

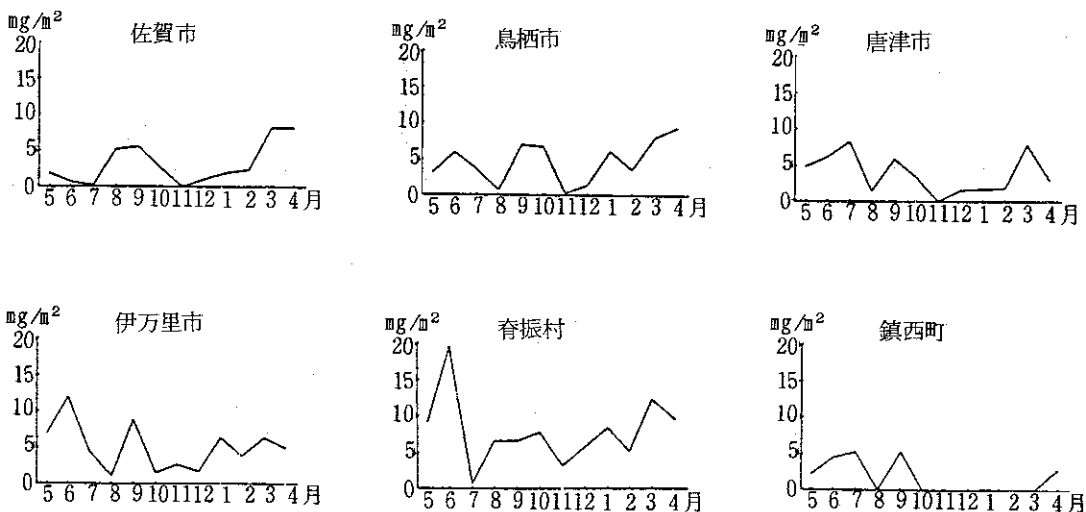


図-15 H^+ の月別降下量

20)

Blanchardは 海塩粒子の生成率は風速の3乗に比例するとしている。冬期においては日本海からの強い季節風の影響により、海塩粒子の寄与の程度が大きくなったと考えられる。

鎮西町の降水採取地点は海辺のため年間通してその寄与は大きい。しかしながら全地点についていえることだが海塩寄与量を除いたExcess-SO₄²⁻についても冬期の降水量が多いことの原因については、今後の検討課題である。

玉置²¹⁾も日本海側の地域では冬期にPHが低下することが多く、Excess-SO₄²⁻降水量も多いとしているがその原因については明らかにしていない。

図-17にNO₃⁻降水量の季節別変化を示す。いずれの地点も8月を除く5月～9月にかけて多く、

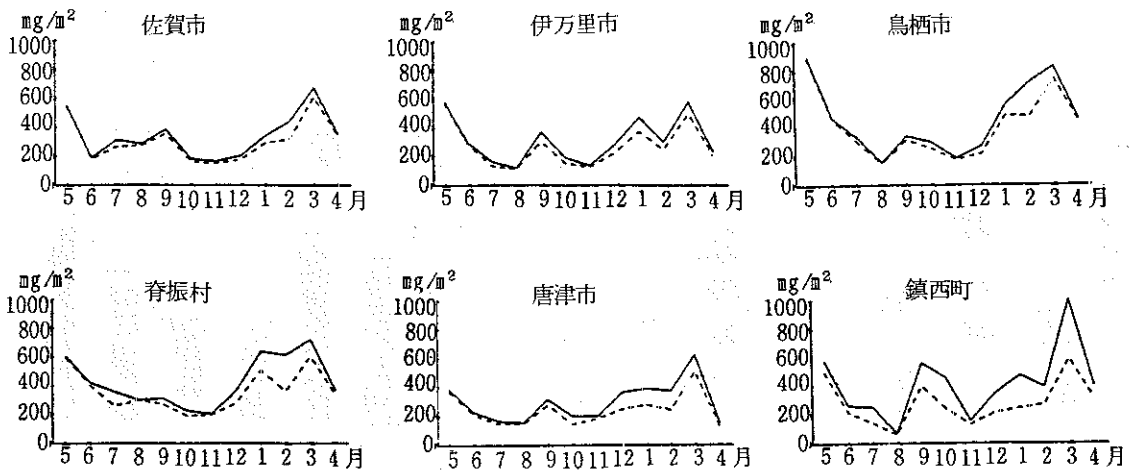


図-16 SO₄²⁻, Excess-SO₄²⁻ (点線) の月別降水量

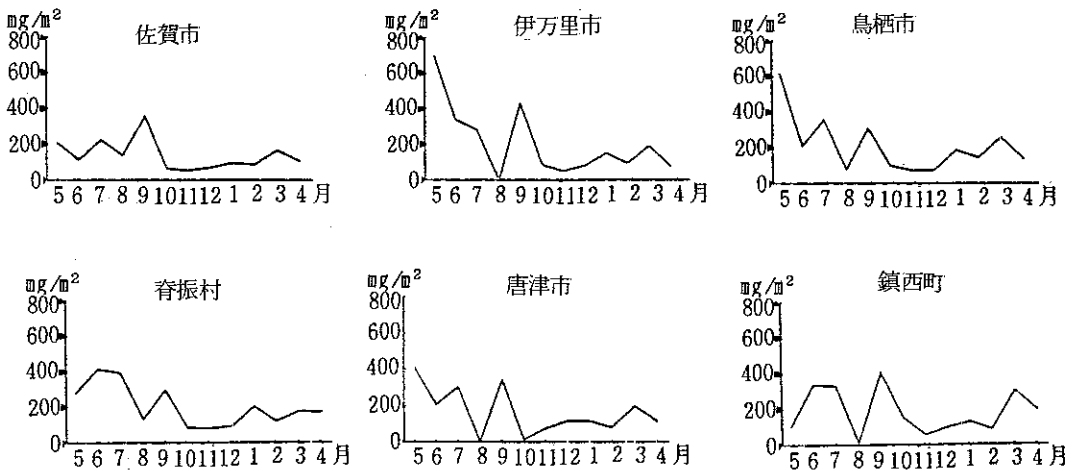


図-17 NO₃⁻の月別降水量

10月～4月は少ない。冬期 SO_4^{2-} が多いのとは反対の傾向を示した。

図-18の $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ 比の月別変化では、全地点7月と9月にピークをもち秋から春にかけては0.2前後の低い値で推移している。つまり、春から秋における NO_3^- と SO_4^{2-} 降水量の変化が類似しているのに対し、冬から春においては相反する変化をしたことを示している。

NH_4^+ 降水量は図-19に示すように佐賀市においては年間通して降水量は一定して大きな変化はみられないが、他5地点では6月と1月～3月をピークとする二峰型を示した。降水量の変化とはあまり対応していなかった。 Ca^{2+} の降水量を図-20に示す。

水溶性成分降水量は降水量と降水成分濃度に支配される。しかし、一般には降水量は降水量に大きく依存し多雨期に多いのが普通である。佐賀市、鳥栖市、脊振村では5月～7月の降水量の多い時期

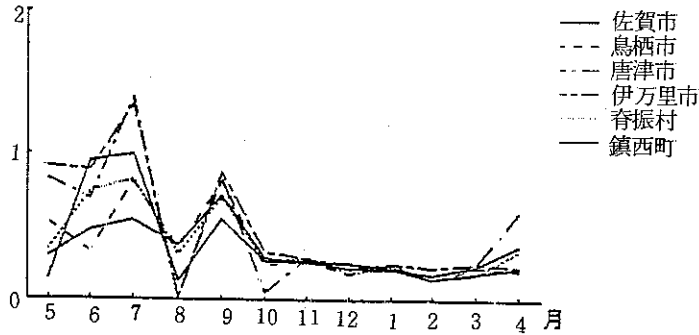


図-18 NO_3^- と SO_4^{2-} の当量比 ($\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$)

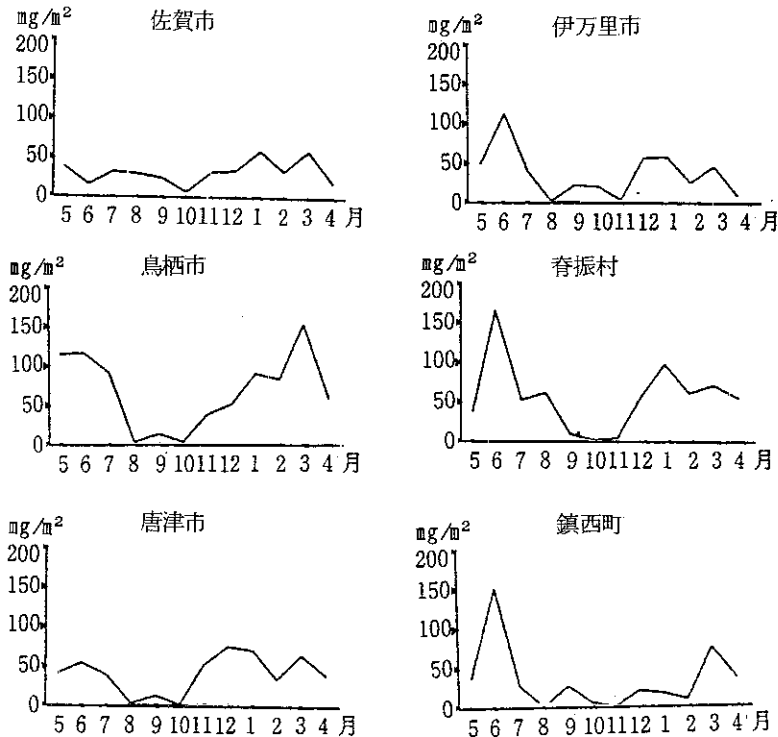


図-19 NH_4^+ の月別降水量

に Ca^{2+} 降下量が多くなる傾向を示したが、他地点においては認められなかった。

また、各地点とも1月から3月にかけて降下量が多くなる傾向がみられ、とくに鎮西町ではこの時期だけで年間降下量の約38%を占めるなど目立っていた。この1月～3月に多くなる原因としては、降水量が少ないことから雪によるウォッシュアウトや多量の大陸起源のエアロゾルの存在すなわち黄砂の影響等が考えられる。

換言すればこの時期における Ca^{2+} の降水成分濃度が高かったということがいえる。

また、海塩粒子の寄与は SO_4^{2-} と同様秋から冬にかけて大きく、春から夏にかけて小さいことがわかった。

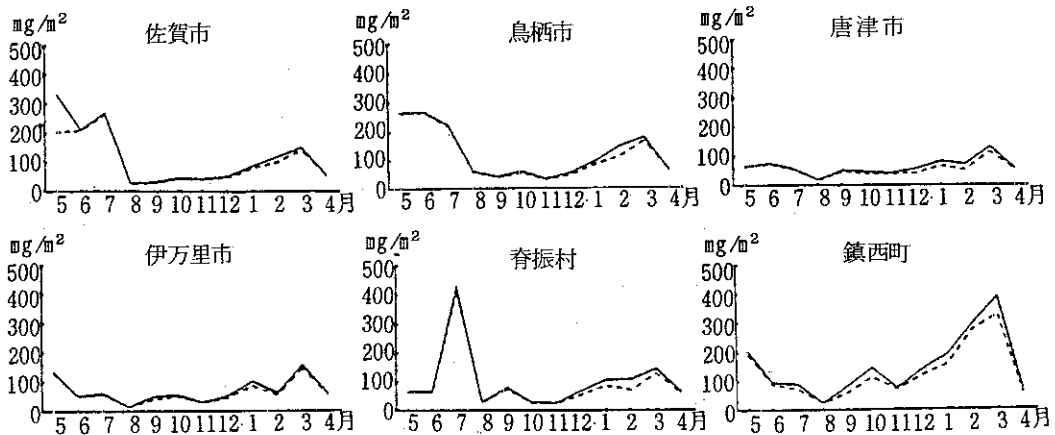


図-20 Ca^{2+} , Excess- Ca^{2+} (点線) の月別降下量

(4) 降水成分間の相関

降水の主要成分9項目について相互の関係を表-3に示す。海水の成分間で相関が高く、とりわけ

表-3 各成分間の相関係数 (n=72)

| | H^+ | SO_4^{2-} | NO_3^- | Cl^- | NH_4^+ | Ca^{2+} | Mg^{2+} | K^+ | Na^+ |
|--------------------|--------------|--------------------|-----------------|---------------|-----------------|------------------|------------------|--------------|---------------|
| H^+ | 1.000 | | | | | | | | |
| SO_4^{2-} | *0.287 | 1.000 | | | | | | | |
| NO_3^- | **0.411 | **0.427 | 1.000 | | | | | | |
| Cl^- | -0.116 | **0.613 | 0.061 | 1.000 | | | | | |
| NH_4^+ | **0.454 | **0.517 | **0.418 | 0.180 | 1.000 | | | | |
| Ca^{2+} | -0.211 | **0.558 | **0.317 | **0.447 | *0.280 | 1.000 | | | |
| Mg^{2+} | -0.187 | **0.585 | 0.028 | **0.963 | 0.118 | **0.465 | 1.000 | | |
| K^+ | -0.043 | **0.572 | 0.100 | **0.813 | 0.162 | **0.489 | **0.835 | 1.000 | |
| Na^+ | -0.172 | **0.588 | 0.012 | **0.965 | 0.119 | **0.426 | **0.990 | **0.830 | 1.000 |

* 有意水準 5%で有意

** 有意水準 1%で有意

Na⁺, Mg²⁺, Cl⁻相互の相関係数は0.9以上と強い相関がみられた。そこで、海水の主要成分であるNa⁺とSO₄²⁻, Cl⁻, Ca²⁺, Mg²⁺, K⁺の相互の関係を示す散布図上に、その回帰式と海水中の成分比を表わす直線を引き比較検討した。

散布図を図-21に示す。

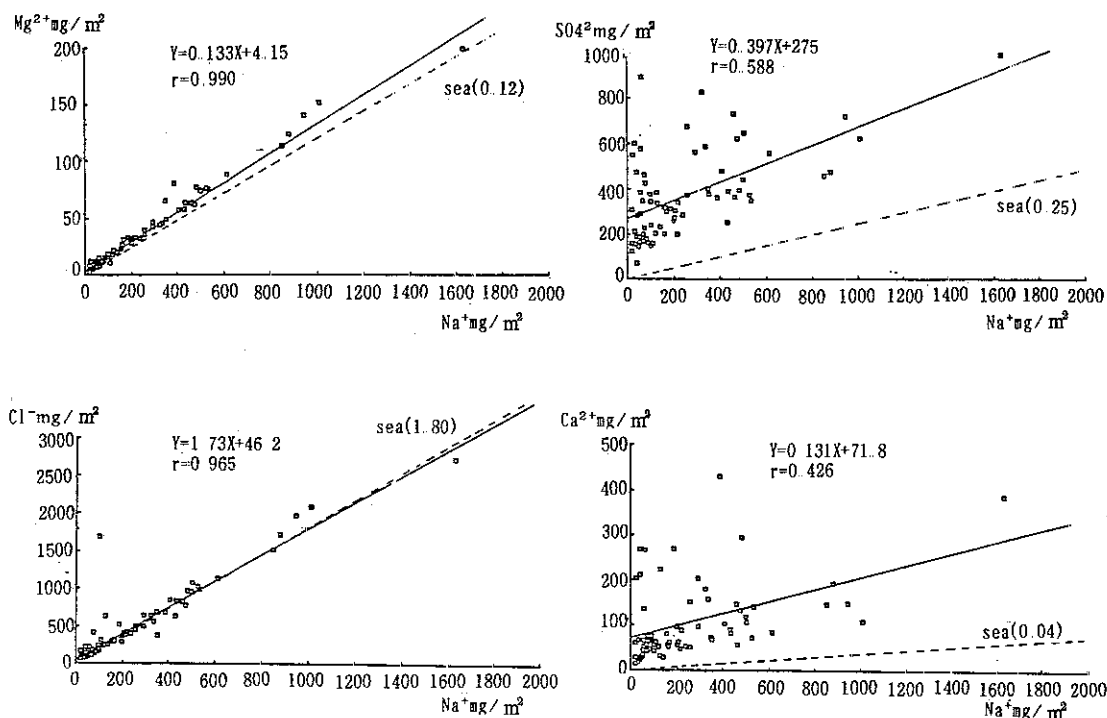


図-21 Na⁺とSO₄²⁻, Cl⁻, Ca²⁺, Mg²⁺, K⁺との関係

Na⁺とCl⁻の回帰係数(1.73)と海水の成分比(1.79)がほぼ等しく相関係数も高いことから、降水中のNa⁺とCl⁻の大部分は海塩粒子由来と考えてよいと思われた。しかしながらSO₄²⁻, Ca²⁺, K⁺については海水中の成分比を表わす直線よりもプロットが上の方に位置していることから、それ以外のすなわち地上由来のものが存在することが考えられる。

降水中のNH₄⁺はSO₄²⁻と相関がよいことが知られているが、今回の測定結果においても有意な相関を示し、大気中のNH₄⁺の多くが(NH₄)₂SO₄の形で存在していることが推測される。

次にNa⁺を基準元素として次式により全地点における濃縮率を求めた。

$$C_M = [M/Na]_{rain} / [M/Na]_{sea}$$

C_M: 濃縮率

[M/Na]_{rain}: 降水におけるNa⁺と目的成分Mの当量比

[M/Na] sea : 降水中におけるNa⁺と目的成分Mの当量比

基準元素にはNa⁺やCl⁻がよく用いられる。角皆²²⁾や菅原²³⁾らはCl⁻を基準にしている。

Na⁺は地表物質の影響をうけるし、Cl⁻は焼却炉等の人為発生源の影響が考えられ、どちらを選択するかは十分検討する必要があるがここではNa⁺を基準元素とした。

表-4に示すようにCM値はCl⁻, Mg²⁺, SO₄²⁻, Ca²⁺の順に、また、海岸から内陸に行くに従って次第に大きくなっている。つまりこの比の大きいほど海水よりもCl⁻に比べてM成分が濃縮されていることを意味し、陸

表-4

| CM 値 | 鎮西町 | 唐津市 | 脊振村 | 伊万里市 | 鳥栖市 | 佐賀市 |
|-------------------------------|------|------|------|------|------|------|
| Cl ⁻ | 0.99 | 1.06 | 1.13 | 1.12 | 1.15 | 1.18 |
| Mg ²⁺ | 1.18 | 1.27 | 1.36 | 1.27 | 1.36 | 1.36 |
| SO ₄ ²⁻ | 3.08 | 5.25 | 6.33 | 7.50 | 9.08 | 9.42 |
| Ca ²⁺ | 7.67 | 7.67 | 10.0 | 11.2 | 16.5 | 20.2 |

上で人為汚染あるいは火山などの自然発生源の影響があったことを示唆するものである。菅原²³⁾はとくにSO₄²⁻, Ca²⁺のCM値が大きいとしているが、同様の結果が得られた。

(5) 塩素イオンとナトリウムイオンの月別降下量及びCl⁻/Na⁺比

Cl⁻とNa⁺の月別降下量を図-22, 23に、Cl⁻/Na⁺比の月別変化を図-24に示す。

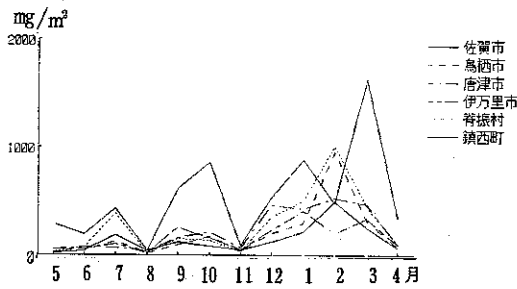


図-22 Cl⁻の月別降下量

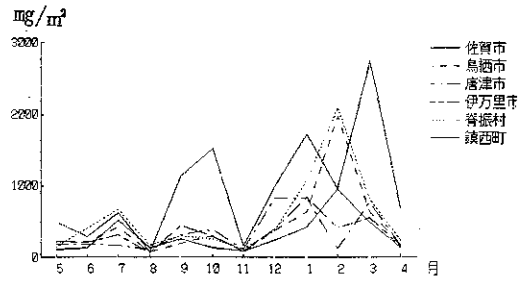


図-23 Na⁺の月別降下量

Cl⁻及びNa⁺の月別降下量をみると12月から3月にかけての冬期に多い。鎮西町では9月, 10月にも大きなピークがみられる。Cl⁻/Na⁺比¹⁴⁾は9月~4月までは海水の組成比1.80とはほぼ同じ値を示し、5月~8月はそれより高目であった。

以上のことから9月から4月におけるCl⁻, Na⁺の降下量のはぼすべてが海塩

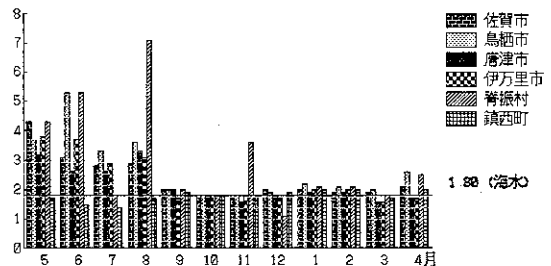


図-24 Cl⁻とNa⁺の降下量の比 (Cl⁻/Na⁺)

粒子と考えられ、とくに12月から3月にかかる冬期に多量の海塩粒子が北西の季節風(風配図に示す)によって日本海から運ばれてきているのがわかる。

ところで、海塩寄与量の算出には Na^+ を全て海塩起源と仮定して見積っているため、前述のごとく海水の組成比1.80からずれている場合は Excess-SO_4^{2-} 、 Excess-Ca^{2+} に誤差を与えることになる。

したがって鶴田²⁴⁾が指摘しているようにその量を正確に把握するためには Na^+ 、 Mg^{2+} 、 Cl^- 以外の別の指標物質が必要となる。

(6) 地点別年間水溶性降下物量

図-25に示すとおり鎮西町が最も多く $28.7\text{g}/\text{m}^2$ 年、次いで脊振村、鳥栖市の順で降下量が多い。

鎮西町は海岸部であるため海塩粒子の影響を強くうけ Na^+ 、 Cl^- の年間降下物量に占める割合が多い。

脊振村の降下量の多い理由については、前にも述べたように多雨地域であることに加え、強い季節風の影響

や雪によるウォッシュアウトなどが考えられるが明確でない。鳥栖市においては他地点に比べ SO_4^{2-} 降下量が多いのでその分年間降下量も高目になっている。

海塩粒子を除いた年間水溶性降下物量(ただし Na^+ 、 Cl^- はすべて海塩粒子と考えた)を図-26に示す。

いずれの地点も年間降下物量の3分の1またはそれ以下の量となり、しかも6地点とも同程度の降下量となった。いかに海塩粒子の影響を強くうけているかがうかがえる。

(7) 大気中の二酸化イオウ、窒素酸化物濃度と硫酸イオン、硝酸イオン降下量の関係

SO_2 、 NO_x 及び二次生成物はレインアウト、ウォッシュアウトにより降水にとりこまれるといわれている。^{22) 25) 26)}

そこで大気常時監視局で測定した SO_2 、 NO_x 濃度と SO_4^{2-} 、 NO_3^- 降下量との関係について検討した。図-27から NO_x 濃度と NO_3^- 降下量の月別変化をみると両者はまったく逆の変化を示している。すなわち NO_x 濃度の低い春期から夏期に NO_3^- 降下量が多く、 NO_x 濃度の高い秋期から冬期に NO_3^- 降下量が少ないというパターンである。つまり多雨期において、 NO_x が低濃度で NO_3^- 降下量が多く、少雨期には NO_x が高濃度で NO_3^- 降下量が少ないということは、大気中の汚染物質が雨水に捕捉され降下していることを物語っている。しかし図-28の SO_2 濃度と降下量との関係では、 SO_2 濃度の高い地域で降下量が多く、 SO_2 濃度の低い地域で降下量が少ないという傾向はみられるが、両者

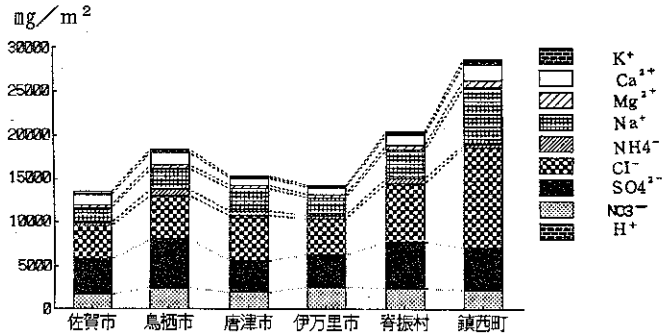


図-25 年間水溶性降下物量

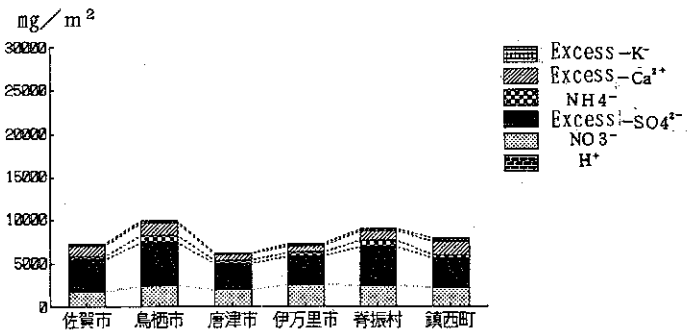


図-26 年間水溶性降下物量(海塩粒子寄与量を除く)

の明確な関係は見い出せなかった。

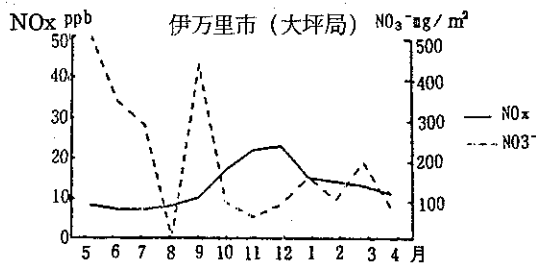
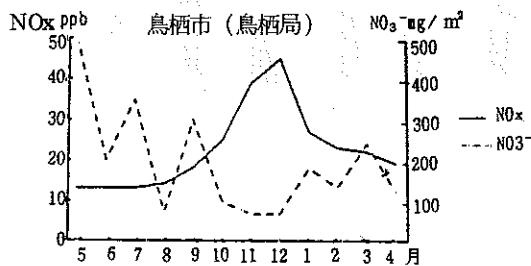
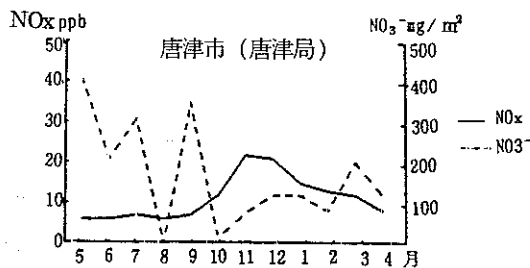
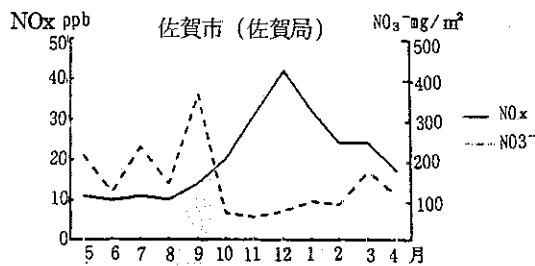


図-27 NO_x 濃度(月平均値)とNO₃⁻ 降下量の関係

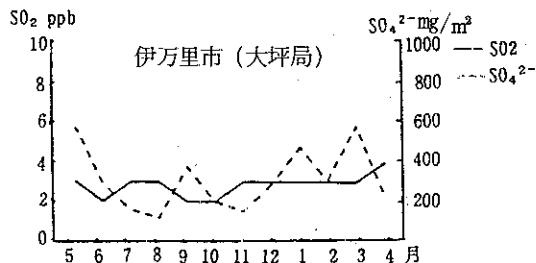
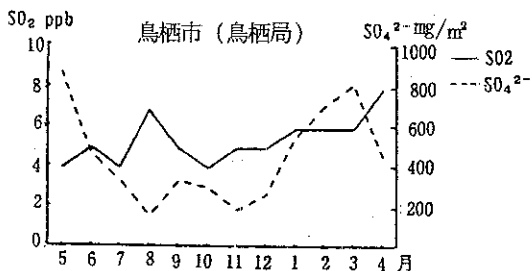
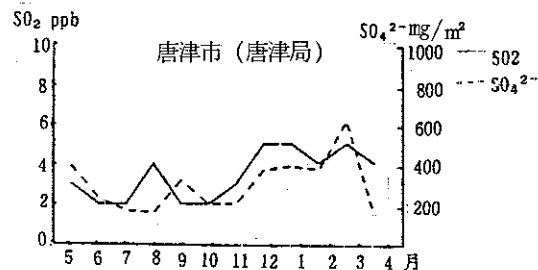
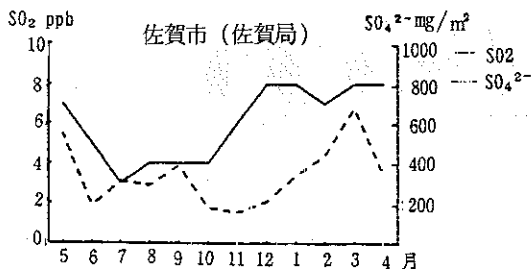


図-28 SO₂濃度(月平均値)とSO₄²⁻降下量の関係

4 ま と め

県内6地点において降水の水溶性成分の降下量調査を昭和61年5月から昭和62年4月までの1年間実施した結果、以下のことがわかった。

(1) 降水量と降下量の関係

降水量と相関の高い成分は NO_3^- で他の成分はあまり相関はなかった。

また、降水量と NO_3^- 降下量の一次回帰式の回帰係数から同程度の降水量に対し内陸部より海岸部の方が NO_3^- 降下量が多い傾向がみられた。

(2) 水素イオンの降下量

降下量の最も多かったのは脊振村の $95\text{mg}/\text{m}^2$ 年、次いで伊万里市、鳥栖市の順であった。

季節別ではいずれの地点も際立った特徴はみられなかった。

(3) 硝酸イオン、硫酸イオンの降下量

SO_4^{2-} 降下量における海塩粒子の寄与率は海岸に近い地域や山間部の脊振村で大きかった。Excess- SO_4^{2-} （海塩粒子を除いた量）は工場、事業場の集中する鳥栖市で $4.9\text{g}/\text{m}^2$ 年と6地点中最も多かった。季節変化では5月、6月及び1月から3月にかけての冬期に多いが降水量との対応はよくなかった。

NO_3^- 降下量は顕著な地域差はみられなかった。また、冬期では SO_4^{2-} 降下量が多いのとは反対に少なかった。

(4) 硝酸イオンと硫酸イオンの降下量の比（当量比）

年間降下量の当量比は、伊万里市0.51、唐津市0.43、他地点は0.32~0.36の範囲であった。

季節別にみるといずれの地点も7月と9月にピークをもち、秋から春にかけては0.2前後の横ばいであった。

(5) アンモニウムイオンの降下量

鳥栖市と脊振村に多くそれぞれ $0.8\text{g}/\text{m}^2$ 年、 $0.7\text{g}/\text{m}^2$ 年であった。その他の地点は同程度の降下量であった。

季節別では、佐賀市においては年間通して大きな変化はなく、他5地点は6月と1月~3月をピークとする二峰型を示した。

(6) カルシウムイオンの降下量

海塩粒子の寄与率は SO_4^{2-} 同様海岸部、山間部で大きかった。Excess- Ca^{2+} は鎮西町の $1.6\text{g}/\text{m}^2$ 年が最も多く、唐津市、伊万里市はその50%以下であった。

季節別では5月~7月と1月~3月に降下量が多かった。鎮西町ではとくに2月、3月に多く、年間降下量の約38%を占めていた。

(7) 降水成分間の相関

海水の成分間でとくに相関が高かった。中でも Na^+ 、 Cl^- の相関が高いこと、また、その回帰係数が海水の成分比にはほぼ等しいことから降下した Na^+ 、 Cl^- の大部分は海塩粒子由来と考えてよいと思われた。しかしながら SO_4^{2-} 、 Ca^{2+} 、 K^+ については地上由来のものの存在が考えられた。

(8) C_M 値 (濃縮率)

Cl^- , Mg^{2+} , SO_4^{2-} , Ca^{2+} の順に、また、海岸から内陸にいくにしたがって次第に大きくなった。とくに、 SO_4^{2-} , Ca^{2+} の C_M 値は大きかった。

(9) 塩素イオンとナトリウムイオンの月別降下量と Cl^-/Na^+ 比

9月から4月における Cl^- , Na^+ の降下量のほぼすべてが海塩起源と考えられ、とくに、12月から3月にかけての冬期に多量の海塩粒子が北西の季節風によって日本海から運ばれてきていることがわかった。

(10) 地点別年間水溶性降下物量

鎮西町が最も多く $28.7g/m^2$ 年、次いで脊振村、鳥栖市の順であった。海塩粒子寄与量を除けば全体の3分の1またはそれ以下の量となった。

(11) 大気中の二酸化イオウ、窒素酸化物濃度と硫酸イオン、硝酸イオン降下量の関係

NO_2 濃度と NO_3^- 降下量の月別変化をみると、多雨期においては NO_x が低濃度で NO_3^- 降下量が多く、小雨期には NO_x が高濃度で NO_3^- 降下量が少なかった。すなわち NO_x の降水中へのとりこみが示唆された。

SO_2 濃度と SO_4^{2-} 降下量の間には明確な関係は見い出せなかった。

おわりに、本県における酸性雨調査は端緒についたばかりで詳細な解析するには十分なデータの蓄積が必要となる。降水の採取方法や試料の安定性など問題点^{29)~31)}はあるものの今後も同様の調査を続け生態系への影響評価のための基礎資料としたい。

また現在、酸性雨は広域的な現象であるという認識のもとに九州各県との共同調査を行うべく準備をしているところである。

引用文献

- 1) 菱田 一雄：中国における酸性雨の現状と原因について (I)，第29回大気汚染学会講演要旨集，P339 (1988)
- 2) 菱田 一雄：中国における酸性雨の現状と原因について (II)，第29回大気汚染学会講演要旨集，P340 (1988)
- 3) 趙 殿吾，申 葆誠，竹本 和彦訳：中国における大気汚染と酸性雨，公害と対策，Vol23No.6 (1987)
- 4) 大喜多敏一：欧州における酸性雨問題の現状と動向，公害と対策，Vol23No.1，15-21(1987)
- 5) 酸性雨対策検討会：酸性雨に係る情報収集整理結果報告書 (1983)
- 6) 環境庁：酸性雨対策調査中間報告書，昭和62年3月
- 7) 関口 恭一，原 善彦，氏家 淳雄：関東地方における酸性降下物とスギ枯れについて，第26回大気汚染学会講演要旨集，P349 (1985)

- 8) 関口 恭一：大気中の酸性汚染物質とその環境影響，群馬県衛生公害研究所年報，第19号，121—172 (1987)
- 9) 高橋 啓二：関東地方におけるスギの衰退と酸性降下物の影響の可能性，第1回公害研究所交流シンポジウム要旨集(1986)
- 10) 末次 綱雄，山崎 忠，武田 裕二，松瀬 紀子：酸性雨の実態調査，佐賀県公害センター所報，第1号 (1976)
- 11) 武田 裕二：酸性雨の実態調査(第2報)，佐賀県公害センター所報，第2号 (1978)
- 12) 環境庁大気保全局大気規制課：昭和59年度酸性雨成分分析調査実施細目 (1984)
- 13) 山崎 道夫：佐賀の天気，佐賀新聞社 (1977)
- 14) 半谷 高久，小倉 紀雄：水質調査法，丸善，P76 (1985)
- 15) 平木 隆年，玉置 元則，鳥橋 義和：大気降下量におよぼす海塩粒子の影響，第29回大気汚染学会講演要旨集，P309 (1988)
- 16) 渡辺 善徳，草野 一，鶴田 治雄：酸性降水に関する調査研究(第2報)，横浜市公害研究所報，第9号 (1984)
- 17) 草野 一，渡辺 善徳，鶴田 治雄：降水成分に関する調査研究(Ⅱ)，第25回大気汚染学会講演要旨集，P303 (1984)
- 18) 渡辺 善徳，草野 一，新井 久雄，鈴木 正雄，太田 正雄，鶴田 治雄：降水成分に関する調査研究(Ⅲ)，第25回大気汚染学会講演要旨集，P304 (1984)
- 19) 渡辺 善徳，草野 一，鶴田 治雄：関東地方の酸性雨に関する研究(第7報)，第26回大気汚染学会講演要旨集，P344 (1985)
- 20) *D. C. Blanchard, Progress in Oceanography, Vol1, P73, Pergamon press (1963)*
- 21) 玉置 元則：わが国の酸性雨問題の現状，環境技術，Vol17No.11 (1988)
- 22) 角皆 静男：雨水の分析，講談社 (1972)
- 23) 菅原 健，半谷 高久：地球化学入門，丸善 (1964)
- 24) 鶴田 治雄：酸性雨の調査研究の現状，環境研究，No.61 (1986)
- 25) 大喜多敏一：酸性雨の物理と化学，酸性物質の湿性沈着(Ⅰ)，公害と対策，Vol20No.10 (1984)
- 26) 大喜多敏一：酸性雨の物理と化学，酸性物質の湿性沈着(Ⅱ)，公害と対策，Vol20No.11 (1984)
- 27) 佐賀県保健環境部公害対策課：大気環境測定結果，昭和61年度
- 28) 佐賀県保健環境部公害対策課：大気環境測定結果，昭和62年度
- 29) 玉置 元則：濾過式大気降下物採取装置の評価，兵庫県公害研究所研究報告，第19号 (1987)
- 30) 玉置 元則：濾過式大気降下物採取装置の基本的性能，第26回大気汚染学会講演要旨集，P308(1988)
- 31) 環境庁：酸性雨対策調査中間報告書，昭和62年7月