

# 福岡市における湿性沈着調査

宮地夏海・山崎誠

福岡市保健環境研究所環境科学課

## Investigation of Wet Deposition in Fukuoka City

Natsumi MIYACHI, Makoto YAMASAKI

Environmental Science Division, Fukuoka City Institute for Hygiene and the Environment

### 要約

市内2箇所で行っている酸性雨調査のうち湿性沈着物について、平成16年度から平成20年度の調査結果をまとめた。降雨のpH加重平均値は16～20年度にかけて曲淵はやや低下傾向、城南はほぼ横ばい状態であり、地点間の大きな差はみられなかった。降雨のpHの分布は、pH4.8以下の割合が増加傾向で、20年度には、両地点ともpH4.8以下の降雨の割合が約85%を占めていた。イオン成分濃度の加重平均値は年度によりばらつきがあるが、非海塩性イオンは増加傾向、海塩性イオンは減少傾向がみられた。非海塩性イオンの沈着量は、冬期および春期に多く、大陸からの影響が示唆された。また、20年度は黄砂が観測された期間の降雨でもpHが低かった。

**Key Words** : 酸性雨 acid rain, 福岡市 Fukuoka City, 湿性沈着物 wet deposition

## 1 はじめに

福岡市では市域における酸性雨の状況を把握するために、平成4年度から調査を実施している。今回は、市内2箇所で行っている湿性沈着調査地点について、平成16年度から平成20年度までの調査結果をまとめた。

## 2 調査方法

### 2.1 調査地点

福岡市では、曲淵ダム（以下「曲淵」という。）および城南区役所（以下「城南」という。）で湿性沈着物の調査を実施している（図1）。

曲淵は、福岡市の中心部から南西へ約13km、室見川上流の谷間標高約170m地点に位置している。南側約300mに国道263号が通っているが、林に遮られて直接の影響は見られない。城南は、福岡市の中心部から南西約3kmの福岡市城南区鳥飼に位置し商業地域に属する。南東約130mに国道202号が通り、周囲にはマンションや商業ビルが多く建ち並んでいる。

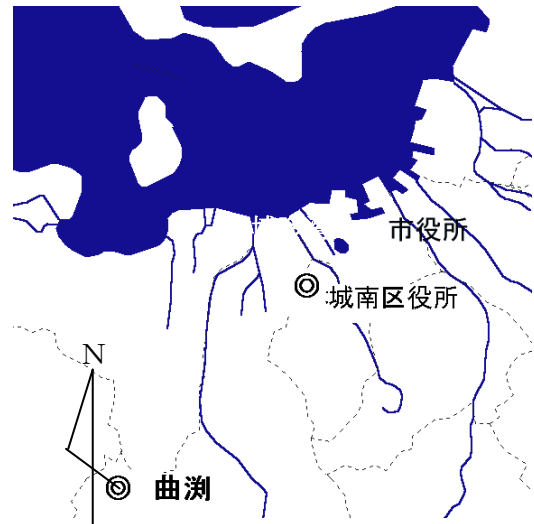


図1 湿性沈着調査地点

### 2.2 試料採取方法および分析方法

降雨の採取は、降雨時開放型自動雨水採水装置により原則1週間ごとの湿性沈着物を採取する方法を用いた。

分析項目は、曲淵では降水量、pH、電気伝導率、イオン成分（ $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{Cl}^-$ 、 $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{Na}^+$ 、 $\text{K}^+$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ 、 $\text{H}^+$ ）、城南では降水量、pH、電気伝導率と

した。なお、降水量は貯水量と捕集面積から算出した。

採取した試料は貯水量を計量後、湿性沈着モニタリング手引き書（第2版）<sup>1)</sup> に準じて測定・分析を行った。

### 3 分析結果および考察

#### 3.1 降水量の経年変化

曲淵における降水量、pH、電気伝導率およびイオン成分濃度の年加重平均値を表1に、城南における降水量、pH、電気伝導率および水素イオン濃度の年加重平均値を表2に示す。表示桁数については、降水量、電気伝導率は小数点以下1桁、pH、イオン成分濃度は小数点以下2桁に統一した。表1の平均値は、降水量は単純平均値、電気伝導率およびイオン成分濃度は加重平均値とした。

降水量については、両地点とも同様の変動がみられ、17年度は少雨であった。曲淵のほうが山間部に位置するため降水量が多かった。また、20年度の7～8月の2ヶ月間は、曲淵において降雨時開放型自動雨水採水装置のふた開閉装置が故障したことにより欠測したが、この期間の降水量は水道局曲淵水源事務所の降水量を参考にした。

#### 3.2 pHおよび電気伝導率の経年変化

降雨のpHの年加重平均値は、曲淵はやや減少傾向、城南はほぼ横ばい状態であった（表1、2）。地点間における大きな差は見られなかった。

曲淵および城南の各年度のpHの分布状況を図2および図3に、20年度の黄砂観測日を含む期間における降雨のpHを表3に示す。曲淵では、16～17年度はpH4.4～5.0の範囲の降雨が多いが、pH4.0未満からpH5.6まで幅広く分布していた。18～20年度にはpH4.4～4.6の降雨の割合が増加した。また、18～19年度にはpH6.0以上の降雨も観測されたが、20年度は観測されず、すべての降雨がpH5.6以下だった。20年度には黄砂が4回観測されたが、観測日を含む期間の降雨でもpHが低かった。このことは、従来酸性雨を中和するといわれてきた黄砂が、近年は大気汚染物質を多く含んで飛来するようになったことを示唆している。

城南のpHは、16～17年度はpH4.0未満からpH6.0超まで幅広く分布していた。18年度以降は降雨のpHに低下傾向がみられ、曲淵と同様、20年度は全ての降雨がpH5.6以下でpH6.0以上の降雨が観測されなかった。

なお、電気伝導率は調査年度により変動しており、明確な傾向はみられなかった。

表1 曲淵における降水量、pH、電気伝導率およびイオン成分濃度の年加重平均値

年度	降水量 mm	pH	電気 伝導率 μS/cm	成分濃度								
				nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	nss-Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	H <sup>+</sup>
				μeq/L	μeq/L	μeq/L	μeq/L	μeq/L	μeq/L	μeq/L	μeq/L	μeq/L
16	2668.3	4.81	22.1	23.56	13.51	78.46	14.82	68.97	1.97	4.22	14.59	15.36
17	1623.2	4.63	27.8	41.91	20.81	78.21	23.74	69.25	2.94	12.20	17.06	23.63
18	2995.2	4.65	21.9	35.46	16.24	49.30	20.16	43.34	2.00	6.68	11.00	22.54
19	2114.8	4.59	26.5	46.75	22.46	55.54	26.13	53.46	2.18	18.24	12.90	25.64
20	1914.6	4.49	26.9	38.50	22.41	55.95	18.70	49.52	1.98	8.17	11.84	32.58
平均値	2263.2	4.65	24.5	36.20	18.46	62.61	20.28	56.04	2.16	9.30	13.21	23.28

20年度7～8月の降水量は、水道局曲淵水源事務所の降水量を参考にした。

表2 城南における降水量、pH、電気伝導率および水素イオン濃度の年加重平均値

年度	降水量	pH	電気 伝導率	H <sup>+</sup>
	mm		μS/cm	μeq/L
16	1793.2	4.81	29.8	15.66
17	1089.0	4.59	33.7	25.42
18	2033.6	4.65	22.8	22.60
19	1367.6	4.65	27.9	22.25
20	1901.8	4.55	21.3	28.42

### 3.3 イオン成分濃度の経年変化

曲淵の各イオン成分濃度の加重平均値は年度により変動があるが、海塩性イオン ( $\text{Cl}^-$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ) 濃度は減少傾向、非海塩性イオン ( $\text{nss-SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{nss-Ca}^{2+}$ ,  $\text{H}^+$ ) 濃度はやや増加傾向がみられた (表 1, 2). 環境省の大気環境モニタリング結果 (<http://www.env.go.jp/air/osen/monitoring.html>) を見ても、国内の  $\text{SO}_2$ ,  $\text{NO}_x$  等の大気汚染物質は減少傾向にあるなかで、これら非海塩性イオン濃度が上昇していることから、大陸からの影響を受けていると考えられた。

酸性イオン成分である  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  は、 $23.56\sim 46.75\mu\text{eq/L}$  の範囲で、加重平均濃度は  $36.20\mu\text{eq/L}$  であった。 $\text{NO}_3^-$  は、 $13.51\sim 22.46\mu\text{eq/L}$  の範囲で、加重平均濃度は  $18.46\mu\text{eq/L}$  であった。全国環境研協議会の第 4 次調査の全国平均値 (16~19 年度)<sup>2~5)</sup> は、 $\text{nss-SO}_4^{2-}$  は  $35.3\mu\text{eq/L}$ ,  $\text{NO}_3^-$  は  $19.0\mu\text{eq/L}$  でほぼ同程度であり、経年変化の傾向も似ていた。

また塩基性成分である  $\text{NH}_4^+$  は、 $14.82\sim 26.13\mu\text{eq/L}$  の範囲で、加重平均濃度は  $20.28\mu\text{eq/L}$  であった。 $\text{nss-Ca}^{2+}$  は、年度によりばらつきがあり  $4.22\sim 18.24\mu\text{eq/L}$  の範囲で、加重平均濃度は  $9.30\mu\text{eq/L}$  であった。全国平均値は、 $\text{NH}_4^+$  は  $21.6\mu\text{eq/L}$ ,  $\text{nss-Ca}^{2+}$  は  $9.53\mu\text{eq/L}$  でほぼ同程度だった。

### 3.4 酸性化に寄与する成分について

酸性化に寄与する主な成分は  $\text{HNO}_3$  と  $\text{H}_2\text{SO}_4$  であり、 $\text{NO}_3^-/\text{nss-SO}_4^{2-}$  の当量濃度比を調べることで酸性化に寄与する成分の推定ができる。

曲淵および全国の年度別の  $\text{NO}_3^-/\text{nss-SO}_4^{2-}$  当量濃度比を表 4 に示す。全国平均値は 16~19 年度にかけてほぼ横ばいで  $0.52\sim 0.55$  の範囲であった。曲淵においては、18 年度までは酸性化に対する  $\text{NO}_3^-$  の寄与は減少傾向であったが、19 年度以降増加していることが示唆された。

また、年度ごと、季節別の  $\text{NO}_3^-/\text{nss-SO}_4^{2-}$  当量濃度比を図 4 に示す。季節別ではデータ数が比較的少ないため、加重平均値ではなく中央値を用いた。季節区分は、九州・沖縄・山口地方酸性雨共同調査研究<sup>6)</sup> を参考に 3~5 月を春期、6~8 月を夏期、9~11 月を秋期、12~2 月を冬期とした。

降水の酸性化に対して、春期には  $\text{SO}_4^{2-}$ , 冬期には  $\text{NO}_3^-$  の寄与率が高い傾向がみられた。特に 17 年度以降の  $\text{NO}_3^-/\text{nss-SO}_4^{2-}$  当量濃度比は、春期は  $0.27\sim 0.42$  の範囲で平均値は 0.33 であり、全国平均値より低かった。また、冬期は  $0.51\sim 0.65$  の範囲で平均値は 0.60 であり、全国平均値より高かった。

### 3.5 中和に寄与する塩基性成分について

主な塩基性成分には  $\text{CaCO}_3$  や  $\text{NH}_3$  がある。 $\text{NH}_4^+$  および  $\text{nss-Ca}^{2+}$  と  $\text{NO}_3^- + \text{nss-SO}_4^{2-}$  の年度ごと、季節別の当

量濃度比を図 5 および図 6 に示す。図 4 同様、中央値を用いた。

$\text{NH}_4^+ / (\text{NO}_3^- + \text{nss-SO}_4^{2-})$  は、 $0.25\sim 0.58$  の範囲で、年度によりばらつきがあった。19 年度、20 年度は同様の傾向があり、春期が高く、冬期が低かった。

$\text{nss-Ca}^{2+} / (\text{NO}_3^- + \text{nss-SO}_4^{2-})$  は、 $0.02\sim 0.32$  の範囲であり、春期および冬期に多い傾向がみられ、特に 17 年度冬期、18 年度春期が高かった。表 5 に季節別の黄砂および煙霧の観測日数を示す。観測日数は気象庁の気象統計情報 (<http://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/index.php>) から抽出した。年度によりばらつきはあるが、5 年間で平均して黄砂は 9.6 日/年、煙霧は 45.2 日/年観測された。 $\text{nss-Ca}^{2+} / (\text{NO}_3^- + \text{nss-SO}_4^{2-})$  の高い冬期および春期は、黄砂および煙霧が比較的多く観測されていた。

降水の中和には  $\text{nss-Ca}^{2+}$  より  $\text{NH}_4^+$  による影響が大きいと考えられるが、冬期・春期には  $\text{nss-Ca}^{2+} / (\text{NO}_3^- + \text{nss-SO}_4^{2-})$  が高い傾向があることから、大陸側から吹く季節風に乗って飛来した黄砂の影響を受けていると考えられた。

### 3.6 pAi の季節変化

pH は酸と塩基の中和の結果を示す量で、酸と塩基のバランスで決まる。大気汚染の影響度を見るには降水中の pH だけでなく、中和がなかったと仮定したときの pH (「pAi」と記す。)も重要である。

夏期および冬期における pH と pAi の関係を図 7 に示す。冬期には、pH, pAi とともに低くなっており、pAi は  $3.8\sim 4.1$  の範囲まで低下していた。大気汚染による酸性物質濃度の上昇が示唆された。

### 3.7 イオン成分の年間沈着量について

イオン成分の年間総沈着量を図 8 に示す。年度により年間当量沈着量は変動しており明確な傾向はみられなかった。19 年度は 18 年度に比べて総沈着量は減少したが、非海塩性イオンの沈着量は同程度であった。

### 3.8 季節ごとの成分沈着量について

図 9 に季節別の降水量、図 10 に成分ごとの沈着量の季節変化を示す。降水量の少ない冬期でも海塩性イオンの沈着量が多く、大陸側から吹く季節風の影響を受けていると考えられた。 $\text{nss-SO}_4^{2-}$  および  $\text{NO}_3^-$  は夏期の沈着量が増加傾向であった。さらに、 $\text{nss-SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{nss-Ca}^{2+}$  は春期および冬期の沈着量が多く、大陸からの影響が考えられた。

## 4 まとめ

降雨の pH 加重平均は 16 年度～20 年度にかけて、曲淵はやや減少傾向、城南はほぼ横ばい状態であった。地点間での大きな差はみられなかった。年度ごとの降雨の pH の分布をみると、pH4.8 以下の割合が増加傾向で、20 年度には、両地点とも pH4.8 以下の降雨の割合が 85%を占めていた。

イオン成分濃度の年加重平均値は年度によりばらつきがあるが、非海塩性イオンは増加傾向がみられ、大陸からの影響を受けていることが示唆された。一方、海塩性イオンは減少傾向だった。季節別に  $\text{NO}_3^- / \text{nss-SO}_4^{2-}$  の当量濃度比をみると、春期には  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 、冬期には  $\text{NO}_3^-$  が

降雨の酸性化に寄与していることが示唆された。また、降雨の中和には  $\text{nss-Ca}^{2+}$  より  $\text{NH}_4^+$  による影響が大きい。冬期および春期には  $\text{nss-Ca}^{2+} / \text{NO}_3^- + \text{nss-SO}_4^{2-}$  が高く、大陸からの黄砂の影響が考えられた。

季節別のイオン成分沈着量については降水量の少ない冬期でも多い傾向があり、 $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$  については夏期の沈着量が増加傾向であった。 $\text{nss-Ca}^{2+}$  は春期および冬期に多く、大陸からの黄砂の影響を受けていると考えられた。従来黄砂によって酸性雨は中和されるといわれていたが、20 年度は黄砂が観測された期間の降雨でも pH が低かった。曲淵で実施している乾性沈着調査も含めて、大陸からの影響について今後も検討が必要であると考える。

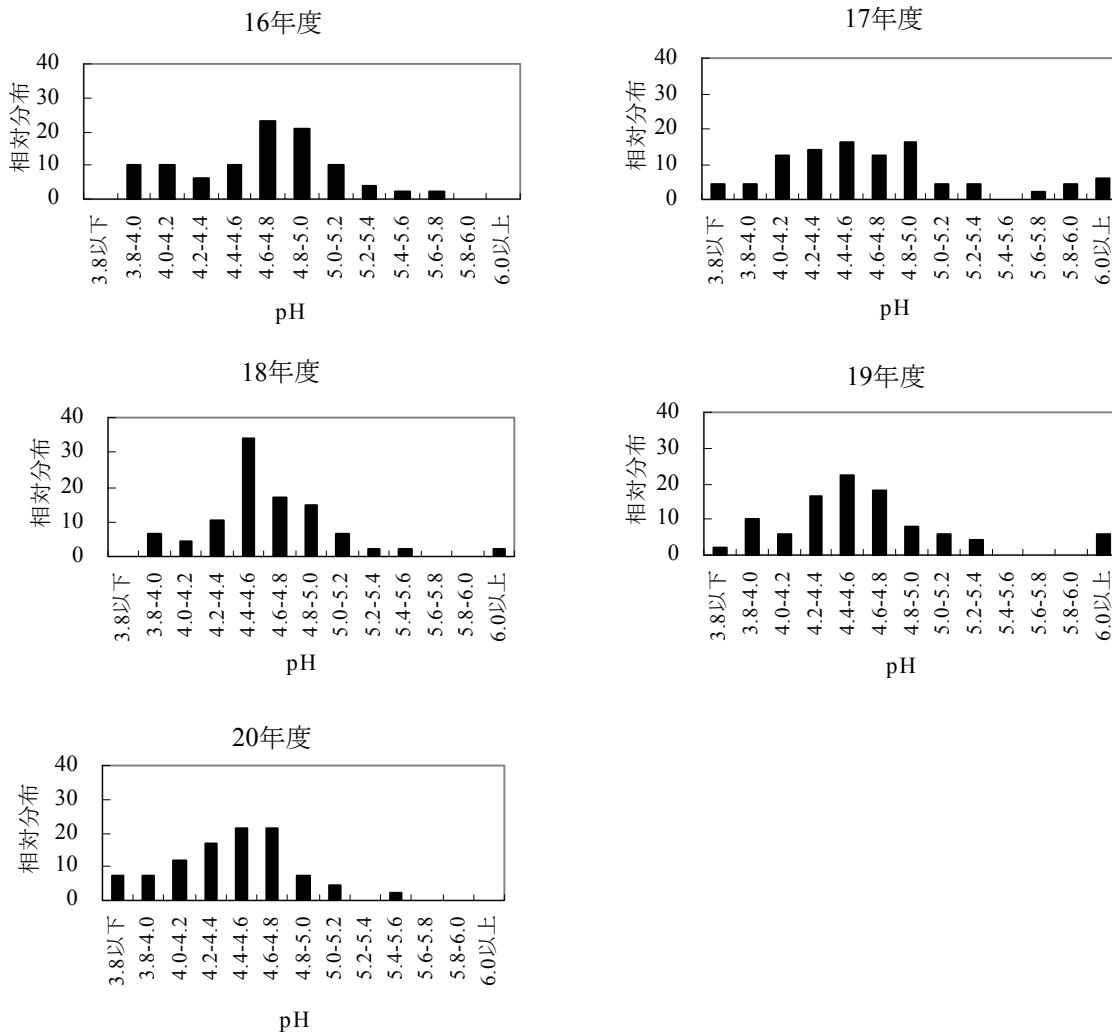


図2 曲淵における湿性沈着物の年度別 pH 分布

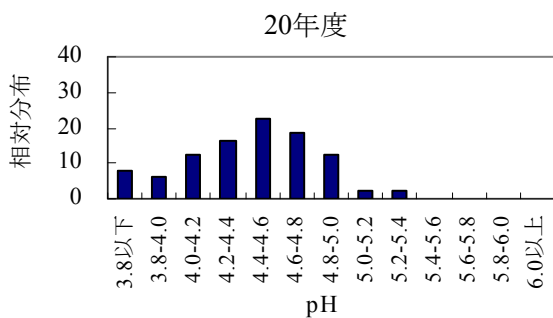
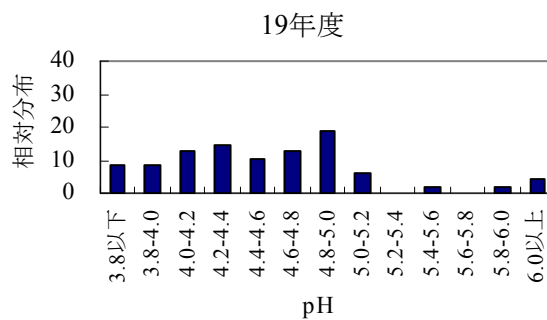
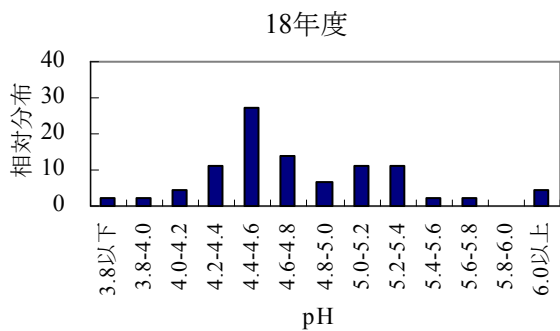
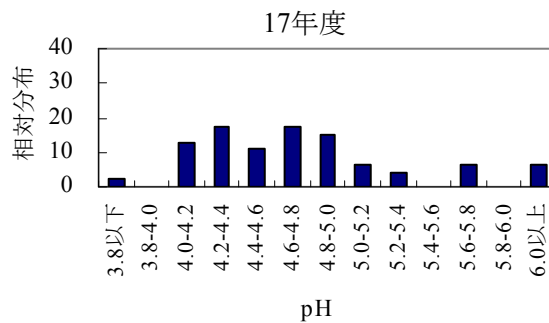
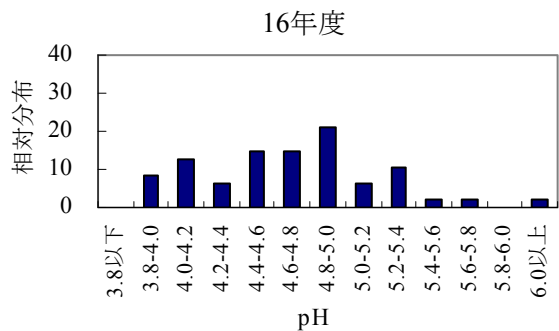


表3 20年度の黄砂観測日を含む期間における降雨のpH

採取期間	黄砂観測日	pH
2/9-2/16	2/12	4.45
2/16-2/23	2/20,21	4.46
3/16-3/23	3/17	4.30

図3 城南における湿性沈着物の年度別 pH 分布

表4  $\text{NO}_3^-/\text{nss-SO}_4^{2-}$  の経年変化

年度	曲淵	全国平均
16	0.57	0.55
17	0.50	0.52
18	0.46	0.53
19	0.48	0.55
20	0.58	0.55
平均値	0.52	0.54

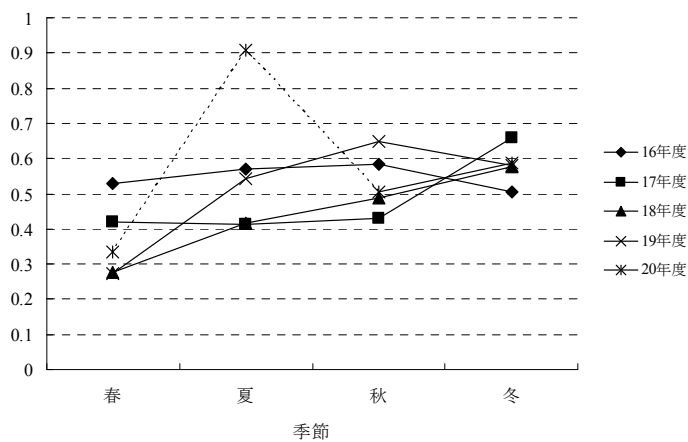


図4  $\text{NO}_3^-/\text{nss-SO}_4^{2-}$  当量濃度比の季節変化  
(20年度7~8月は欠測)

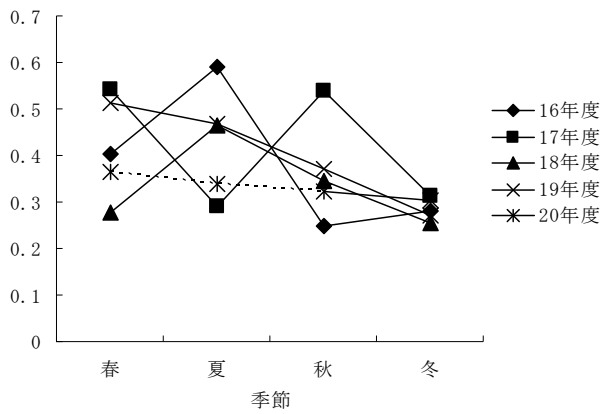


図5  $\text{NH}_4^+ / (\text{NO}_3^- + \text{nss-SO}_4^{2-})$  当量濃度比の季節変化

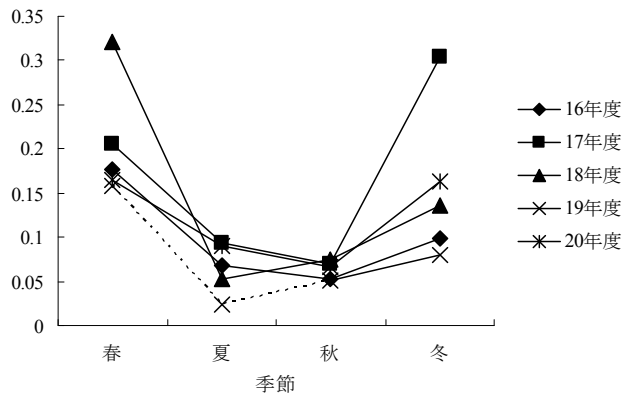


図6  $\text{nss-Ca}^{2+} / (\text{NO}_3^- + \text{nss-SO}_4^{2-})$  当量濃度比の季節変化

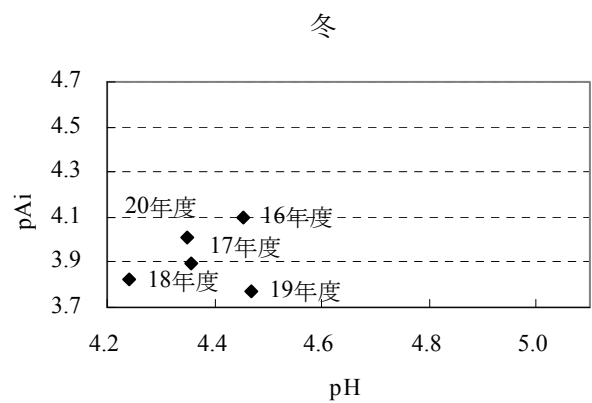
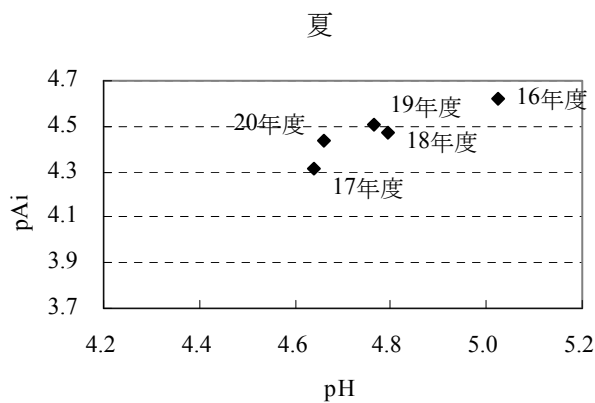


図7 夏期および冬期の pH と pAi の関係

表5 季節別の黄砂および煙霧の観測日数

年度	季節	黄砂	煙霧
16	春	3	11
	夏	0	15
	秋	0	11
	冬	0	5
17	春	7	10
	夏	0	27
	秋	3	12
	冬	0	7
18	春	13	13
	夏	0	12
	秋	0	9
	冬	2	11
19	春	14	8
	夏	0	13
	秋	0	9
20	春	2	11
	夏	0	10
	秋	0	8
	冬	3	11

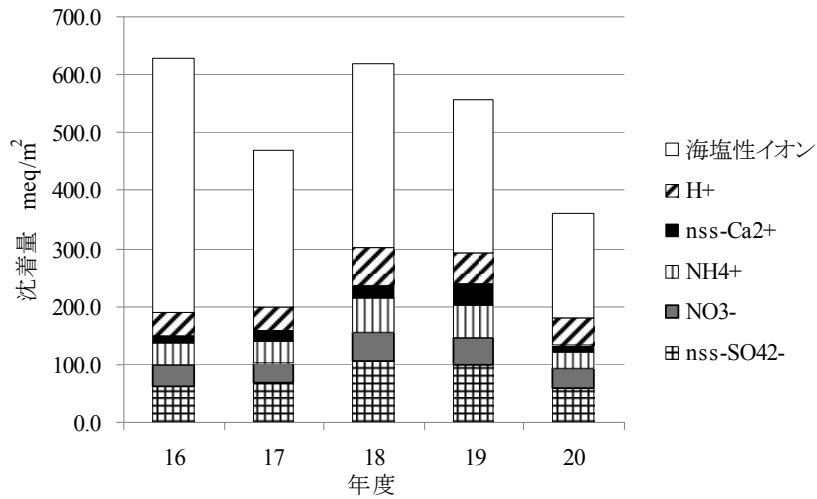


図8 年間総沈着量  
(20年度 7～8月は欠測)

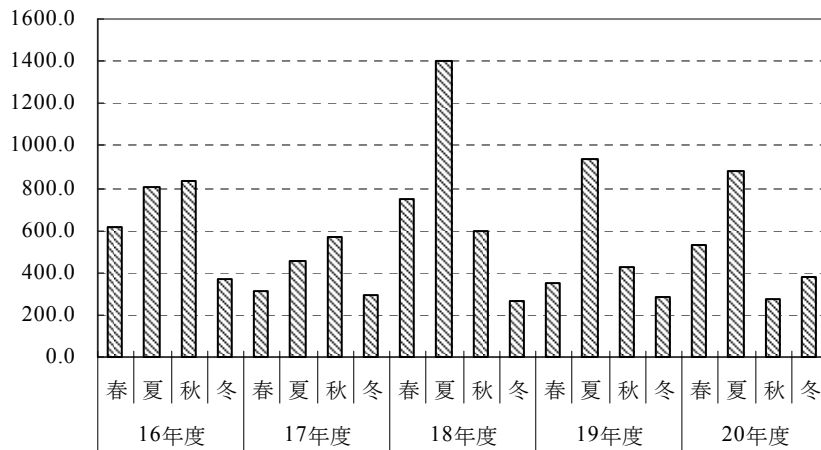


図9 季節別降水量  
(20年度 7～8月は水道局曲淵水源事務所の降水量)

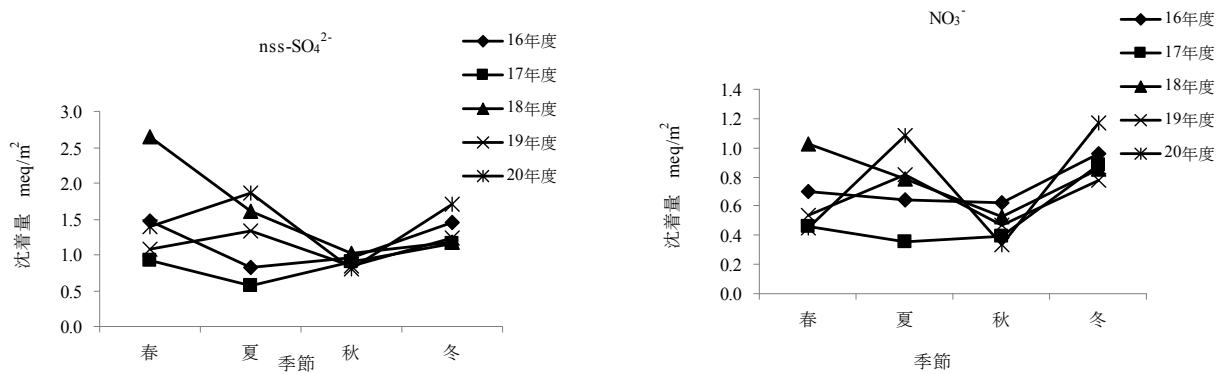


図10-1 各イオン成分沈着量の季節変化

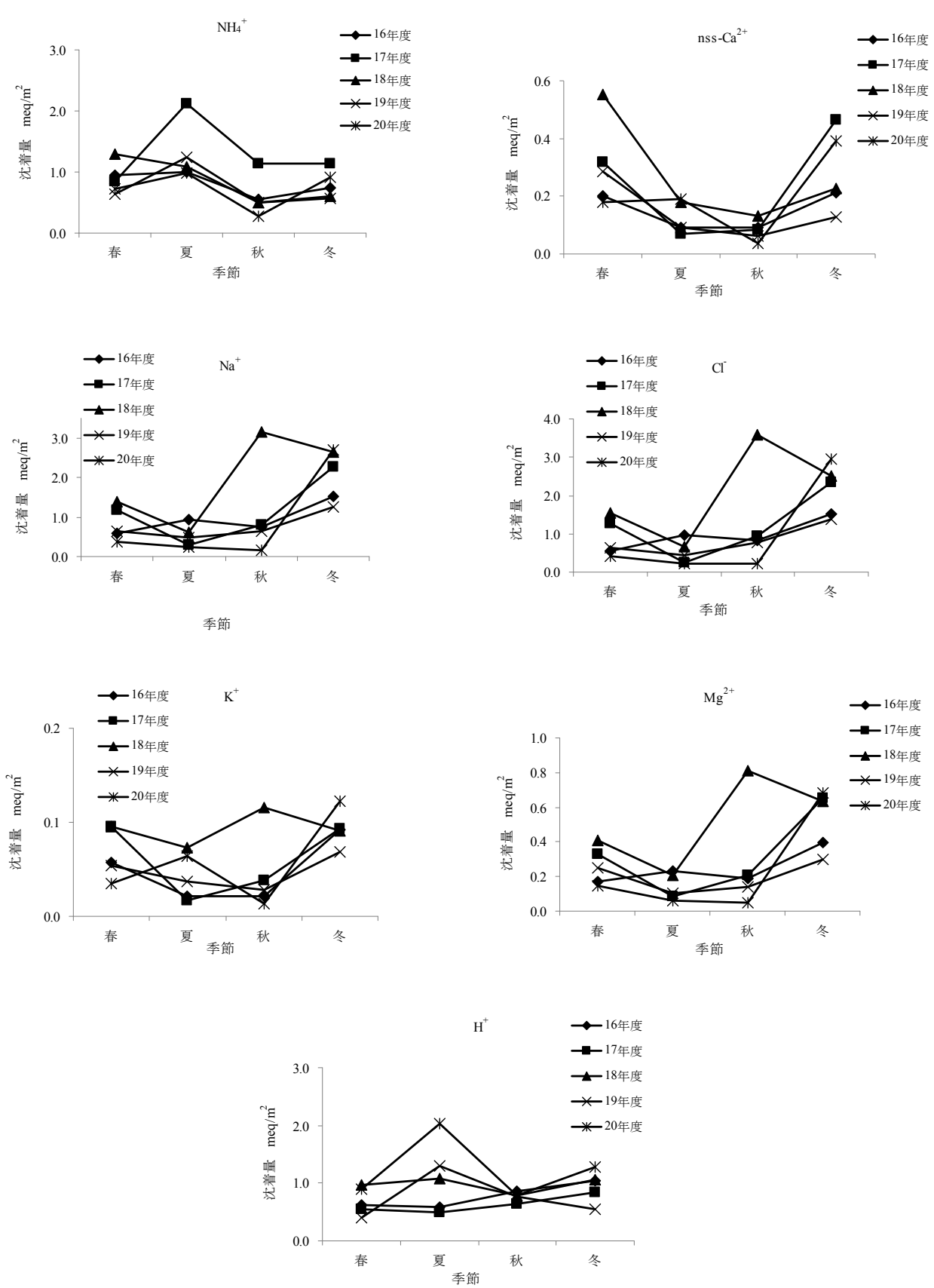


図 10-2 各イオン成分沈着量の季節変化



## 文献

- 1) 環境省：湿性沈着モニタリング手引き書（第2版），2001
- 2) 全国環境研協議会：第4次酸性雨全国調査報告書（平成16年度），全国環境研会誌，31，3，118～149，2006
- 3) 全国環境研協議会：第4次酸性雨全国調査報告書（平成17年度），全国環境研会誌，32，3，78～107，2007
- 4) 全国環境研協議会：第4次酸性雨全国調査報告書（平成18年度），全国環境研会誌，33，3，126～144，2008
- 5) 全国環境研協議会：第4次酸性雨全国調査報告書（平成19年度），全国環境研会誌，34，3，193～211，2009
- 6) 九州衛生環境技術協議会大気分科会：九州・沖縄・山口地方酸性雨協同調査研究，第I期調査報告書，2009