

降水における酸性成分の動態に関する調査研究（第2報）

重岡昌代¹・渡邊政彦¹・篠塚正義¹

後藤隆久²・古川滝雄³

A Study of Movement Acid Composition in Rainfall (Part II)

Masayo SHIGEOKA, Masahiko WATANABE, Masayoshi SHINOZUKA
Takahisa GOTO and Takio FURUKAWA

要旨

平成9年度から酸性雨の調査地点を、研究所所在地の福岡市中央区地行浜に変更した。そこで、地行浜地区について本市都心部を代表する地点としての適性を見るため各種指標値等を用いて検討を行った。その結果、地行浜地区は海塩成分の影響を多く受けているため都心部を代表する地点として適当でないことが判明した。

Key Words : 酸性雨 Acid rain, 湿性沈着物 Wet deposition, 乾性沈着物 Dry deposition
ろ過式採取装置 Rainwater sampler with filtration unit, 非海塩性 non sea salt
自動採取装置 Automatic lid opening rainwater sampler, 海塩性 sea salt

I はじめに

平成9年度に保健環境研究所が福岡市博多区吉塚の衛生試験所（以下衛試という）から本市中央区地行浜に名称を変更して移転したことにより、保健環境研究所及び研究所から約240m南に位置する教育委員会・発達教育センターにおける測定結果から、地行浜地区が本市都心部の酸性雨調査地点として適しているか否かを検討した。また、各種指標値を用いて調査地点における降水の特徴を考察した。

さらに、平成8年度に行なったろ過式採取装置と自動式採取装置（湿性降下物のみ）の比較に引き続き、平成9年度は、11月からろ過式採取装置と自動式採取装置（湿性降下物と乾性降下物の分別採取、以下Wet, Dryという）の比較も行った。

II 調査方法

調査期間は平成9年3月31日から平成10年3月30日である。ただし、各種指標値を用いた検討に関しては平成4～8年度の調査結果も用いた。また、比較データとして平成10年4月分データも用いた。

調査地点は、本市保健環境研究所（中央区地行浜、以下保環研という）及び教育委員会・発達教育センター（同区地行浜、以下発達教育センターという）、国民宿舎千石荘（早良区石釜、以下千石荘という）である。保環研の西には福岡ドーム、東には芦川を挟んで高層住宅が立ち並ぶ。また、千石荘は脊振・雷山県立自然公園の中にあり、全般的に清浄な地域に立地している。

調査試料の採取は、1週間単位でろ過式及びWetとDryを分別採取できる自動式で行った。今回用いた自動式の採取装置は、図1のとおりである。

測定項目はpH, EC(導電率)と、SO₄²⁻, NO₃⁻, Cl⁻, Na⁺, NH₄⁺, K⁺, Ca²⁺, Mg²⁺のイオン成分及び降下量とした。各項目の測定・分析方法は酸性雨等調査マニュアルに基づいて行った。

1. 福岡市保健環境研究所 環境科学課
2. 福岡市環境局環境保全部 啓発推進課
3. 福岡市環境局環境保全部 啓発推進課

(現所属：福岡市環境局管理部 産業廃棄物指導課)

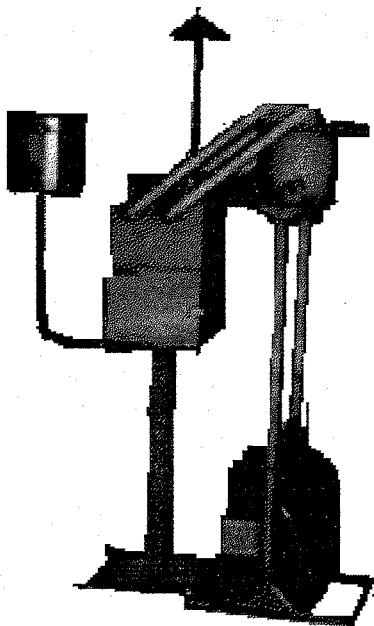


図1. 自動式採取装置

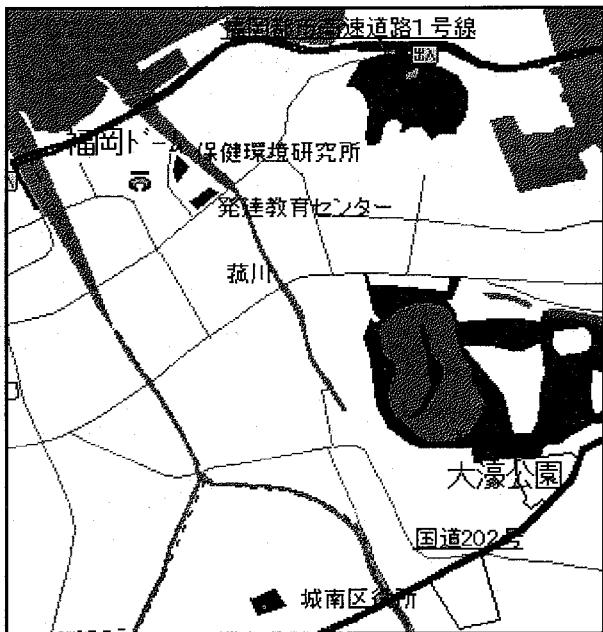


図2. 調査地點

III 結果及び考察

1. 調査地点の検討

保環研は、本市の中心部から西に約3kmの埋め立て地に位置し、海岸線から400mの位置にある。また、北西約300mに福岡都市高速道路1号線が、南東約300mには、幹線道路がある。(図2)

保環研、千石荘及び衛試の測定結果を表1に示す。表1より、保環研は千石荘や衛試に比べ Na^+ , Cl^- , Mg^{2+} 濃度が高く、海塩成分の影響を多く受けている。

さらに、保環研は酸性成分のうち NO_3^- と SO_4^{2-} のどちらの寄与が大きいかを見る指標である $\text{NO}_3^-/\text{nss-SO}_4^{2-}$ が、0.61と衛試よりもかなり高く、 NO_3^- と nss-SO_4^{2-} のバランスが衛試とは異なっている。一般的に

は $\text{NO}_3^-/\text{nss-SO}_4^{2-}$ が高いほど都市化が進んでいると言われているが¹⁾、今回この値が高くなっているのは NO_3^- の増加によるものではなく、 nss-SO_4^{2-} の減少によるものであり、かつ、 NO_3^- , SO_4^{2-} の沈着量は、千石荘より少ないとから都心部の性格を表したものとはいえない。

これらのことから保環研は、本市都心部の代表地点としては問題があると思われる。

そこで、平成9年10月からは、保環研より約240m南に位置する発達教育センターにおいても酸性雨調査を行った。10月～3月における発達教育センター、保環研、千石荘及び衛試の測定結果を表2に示す。表2より、発達教育センターは保環研、千石荘より Na^+ , Cl^- , Mg^{2+} の沈着量が少なく、海塩成分の影響が少ないことがわかった。

表1. 各採取地点における測定結果(年間)

4月～3月	pH	降水量 mm	H	Na^+	NH_4^+	K	Mg^{2+} meq/m ³	Ca	Cl	NO_3^-	SO_4^{2-}	nss-SO_4^{2-} meq/m ³	NO_3^- nss-SO_4^{2-}
衛試 H2	4.71	851.5	16.5	77.1	14.7	3.8	19.5	33.3	97.4	14.3	51.9	42.7	0.34
衛試 H3	4.66	1891.7	41.4	90.4	23.7	5.9	23.5	29.2	131.4	23.4	68.4	57.6	0.41
衛試 H4	4.91	1220.7	15.1	79.2	32.0	4.6	20.9	36.7	104.8	21.3	68.7	59.2	0.36
衛試 H5	4.87	1970.1	26.5	66.9	44.7	4.6	19.3	40.0	74.9	25.7	72.7	64.6	0.40
衛試 H6	4.79	908.0	14.7	56.6	17.9	2.7	15.1	31.7	74.1	18.6	43.8	37.0	0.50
衛試 H7	4.75	1326.9	23.7	70.1	28.7	5.9	19.2	37.2	82.7	28.3	71.1	62.7	0.45
衛試 H8	4.68	1343.7	27.9	148.4	43.8	9.0	37.9	46.4	179.9	34.4	86.6	68.8	0.50
保環研 H9	4.91	2217.9	27.3	171.1	37.9	7.2	40.3	38.0	213.1	35.8	79.1	58.6	0.61
千石荘 H4	4.69	1835.8	37.3	82.9	18.9	4.3	21.6	17.3	110.0	18.1	67.5	57.5	0.32
千石荘 H5	4.81	2564.1	39.8	102.2	20.6	6.2	30.5	32.6	112.0	19.3	65.6	53.3	0.36
千石荘 H6	4.69	1276.1	26.2	114.2	11.6	5.0	28.5	22.5	148.3	17.7	51.9	38.2	0.46
千石荘 H7	4.69	1895.6	39.1	93.2	27.1	9.3	24.1	29.3	106.2	29.9	76.8	65.6	0.46
千石荘 H8	4.63	1980.6	46.1	119.6	28.6	7.7	31.7	28.0	138.7	31.9	78.4	64.0	0.50
千石荘 H9	4.82	3115.1	47.1	117.2	42.7	8.2	29.2	24.3	143.9	37.1	84.1	70.0	0.53

表2. 各採取地

10月～3月	pH	降水量 mm	H	Na	NH4	K	Mg meq/m ²	Ca	Cl	NO3	SO4	nss-SO4 meq/m ²	$\frac{NO_3}{nss-SO_4}$	-log $nS + N + nCl$
衛試H2	4.69	602.6	12.3	94.4	15.7	4.2	23.2	39.5	118.7	15.7	60.8	35.0	0.32	4.06
衛試H3	4.51	551.5	17.0	40.5	7.6	2.1	11.4	11.3	62.7	7.8	29.0	24.1	0.32	4.07
衛試H4	4.95	466.8	5.2	51.2	19.0	2.2	12.6	14.7	64.8	11.0	32.2	26.0	0.42	4.04
衛試H5	4.85	466.8	6.6	36.9	18.9	1.4	10.4	16.7	40.9	10.7	29.7	25.2	0.42	4.11
衛試H6	4.64	275.6	6.3	26.0	8.9	1.3	6.8	13.5	34.3	9.3	21.2	18.1	0.51	3.94
衛試H7	4.60	306.3	7.7	53.7	14.9	4.7	13.6	20.4	61.3	13.9	33.4	27.0	0.52	3.87
衛試H8	4.43	439.0	16.3	112.2	25.6	6.6	27.7	26.6	134.8	18.1	52.2	38.7	0.47	3.86
保環研H9	4.76	601.0	10.4	80.3	16.5	3.1	19.9	16.6	105.1	15.9	35.8	26.1	0.61	4.05
教育センターH9	4.83	462.4	6.8	49.7	13.0	2.2	12.2	12.2	63.2	11.0	24.1	18.2	0.60	4.13
千石荘H4	4.71	586.7	11.4	49.9	8.5	2.1	13.3	8.0	64.8	8.2	27.2	21.2	0.39	4.21
千石荘H5	4.63	740.5	17.4	52.3	7.5	2.9	15.1	18.8	56.3	12.6	33.7	27.4	0.46	4.27
千石荘H6	4.59	377.7	9.7	37.4	6.1	2.1	9.5	11.2	46.0	9.5	23.0	18.5	0.51	4.09
千石荘H7	4.32	328.1	15.7	69.2	11.0	6.5	16.7	14.6	77.6	14.7	34.5	28.2	0.56	3.90
千石荘H8	4.38	535.0	22.3	88.3	14.5	5.3	22.7	16.1	103.1	15.6	42.1	31.5	0.50	4.05
千石荘H9	4.58	905.7	23.8	69.0	19.3	4.2	17.3	13.1	89.2	19.4	42.0	33.7	0.58	4.16

表3. 各採取地点における測定結果(4月)

4月	pH	降水量 mm	H	Na	NH4	K	Mg meq/m ²	Ca	Cl	NO3	SO4	nss-SO4 meq/m ²	$\frac{NO_3}{nss-SO_4}$	千石荘のNa に対する比率
衛試H3	4.55	140.4	4.0	3.0	2.2	0.4	1.1	2.9	3.9	1.9	6.8	6.4	0.29	
衛試H4	4.37	55.5	2.4	1.5	0.5	0.1	0.5	2.9	2.8	0.9	3.9	3.7	0.23	
衛試H5	4.96	27.4	0.3	1.5	1.0	0.1	0.5	1.5	1.7	0.7	1.9	1.7	0.40	0.72
衛試H6	4.62	157.4	3.8	4.4	3.2	0.3	1.4	4.9	5.1	2.6	7.7	7.1	0.37	1.05
衛試H7	4.54	156.8	4.5	3.3	2.6	0.3	1.7	3.8	4.7	3.7	9.9	9.5	0.39	0.90
衛試H8	5.03	107.9	1.0	4.9	1.9	0.4	1.6	5.0	5.5	3.2	6.3	5.7	0.56	1.10
保環研H9	4.53	144.0	4.3	7.7	3.5	0.5	1.9	3.1	9.0	4.0	7.1	6.1	0.66	3.14
城南H10	4.74	188.6	3.4	8.5	5.0	0.8	2.1	7.3	9.6	4.6	9.8	8.8	0.52	0.81
千石荘H5	5.32	42.1	0.2	2.1	3.7	0.7	0.8	2.0	2.7	0.7	2.4	2.2	0.32	
千石荘H6	4.54	236.3	6.8	4.2	1.3	0.4	1.3	2.5	5.5	2.2	7.5	7.0	0.32	
千石荘H7	4.70	204.9	4.1	3.7	2.4	0.5	1.5	3.0	4.0	3.4	8.5	8.0	0.42	
千石荘H8	5.34	113.2	0.5	4.4	2.1	0.4	1.3	3.8	3.9	2.6	5.0	4.5	0.59	
千石荘H9	4.59	190.6	4.9	2.4	5.2	0.9	0.8	1.3	3.4	3.7	6.3	6.0	0.61	
千石荘H10	4.90	253.5	3.2	10.5	4.8	1.2	2.6	5.7	12.4	4.0	9.1	7.9	0.51	

NO_3^- , SO_4^{2-} の沈着量については、保環研よりも少なく、保環研と同様に $NO_3^-/nss-SO_4^{2-}$ は、0.60と衛試よりもかなり高くなっている。

また、pHは保環研より高くなっている。その理由として、 $nss-SO_4^{2-}$, NO_3^- 及び $nss-Cl^-$ の当量濃度の和から、中和に働く成分がない時の潜在的pH値を計算によって求めた $-\log(nss-SO_4^{2-} + NO_3^- + nss-Cl^-)$ が、4.13と保環研よりも高いことに起因していると考えられる。

以上のことから発達教育センターは、本市都心部を代表する地点とは言い難い。

そこで平成10年度は、本市の中心部から南西約3km, 海岸線から約2.5kmの位置にあり、南東約130mに国道202号が通っている城南区役所(3階建)屋上(本市城南区鳥飼)にろ過式採取装置を設置し、酸性雨調査を行っている。

参考として、平成10年4月のデータを表3に示す。表1, 2に比べ都心部を代表する衛試と同様の傾向が見える。また、過去5年間の千石荘の Na^+ に対する同年の比率(衛試/千石荘)を見ると、保環研の3.14に対し、城南区役所は0.81となり、平成5年度～8年度の衛試の

平均値0.94に近い比率となっている。このことは、城南区役所における海塩成分の影響が保環研に比べ衛試に近いことを示していると考えられる。

2. 各種指標値を用いた千石荘における経年変化

各イオン成分の当量濃度等から指標値を求め、千石荘における経年変化を検討し、表4に示した。^{2) 3)}

1) pH

年々低くなっていく傾向にあったpHが、平成9年度は4.82と0.2程高く、 H^+ 濃度が15.1 $\mu eq/l$ と低くなっている。これは、降水量が多かったために濃度が低くなっているだけであり、沈着量としては47.1 meq/m²と増加傾向にある。

2) $NH_4^+/nss-Ca^{2+}$

中和成分のうちどちらの成分が主に関与しているかを見るこの指標は、平成4年度から平成8年度までは0.6～1.4の間で推移してきたが、平成9年度は2.22と高くなっている。これは、 $nss-Ca^{2+}$ が例年と同程度の値であったのに対して、 NH_4^+ が高くなっているためであ

る。一般的に、 NH_4^+ は雨水中では中和成分として働くが、土壤生態系では NO_3^- に酸化されるとき、 H^+ を放出するために潜在的な酸で

あるといわれている⁴⁾。そのため、今後 NH_4^+ の発生源等についての調査をしていく必要があると思われる。

3) $\text{NO}_3^-/\text{nss-SO}_4^{2-}$

NO_3^- 、 SO_4^{2-} は、降水量が多いことに伴い、沈着量が増加している。大気中の SO_2 については、使用燃料中の硫黄分削減の指導によって、一般環境大気測定局のデータは、10年前より減少しているが⁵⁾、降水中の SO_4^{2-} を見ると表1に示すように、渴水年の平成6年

度以外はほぼ横這い傾向にある。この原因については今後検討していく必要があると思われる。

都市化の指標である $\text{NO}_3^-/\text{nss-SO}_4^{2-}$ については、調査を始めた平成4年度は0.32であったが、年々上昇し平成9年度には0.53であった。これは SO_4^{2-} と同様に、 nss-SO_4^{2-} がほぼ同程度の値で推移しているのに対して、 NO_3^- が年々増加していることによるものと考えられる。従って、千石荘においても、自動車排ガスや、事業場の冷暖房等による NO_x 汚染の影響にも注目していく必要があると思われる。

表4. 千石荘における各種指標値を用いた経年変化

	pH	降水量 mm	H $\mu\text{eq/l}$	H meq/m^2	nss-Ca meq/m^2	NH4 $\frac{\text{nss-Ca}}{\text{nss-SO}_4}$	NO3 $\frac{\text{nss-SO}_4}{(\text{A})}$	NO3+ $\frac{\text{nss-Ca}}{(\text{N})}$	NH4+ $\frac{\text{nss-Ca}}{\text{nS+N+nC}}$	-log $\frac{\text{nS+N+nC}}{\text{N+nS}}$	H $\frac{(\text{A})-(\text{N})}{\text{D値}}$	($\mu\text{eq/l}$) Cl $\frac{\text{Na}}{\text{Cl}}$	
千石荘H4	4.69	1835.8	20.3	37.3	13.7	1.38	0.32	41.20	17.74	4.31	0.49	23.46	1.33
千石荘H5	4.81	2564.1	15.5	39.8	28.2	0.73	0.36	28.34	19.03	4.55	0.55	9.31	1.10
千石荘H6	4.69	1276.1	20.5	26.2	17.5	0.66	0.46	43.80	22.85	4.25	0.47	20.95	1.30
千石荘H7	4.69	1895.6	20.6	39.1	25.3	1.07	0.46	50.37	27.63	4.30	0.41	22.74	1.14
千石荘H8	4.63	1980.6	23.3	46.1	22.8	1.26	0.50	48.44	25.94	4.31	0.48	22.50	1.16
千石荘H9	4.82	3115.1	15.1	47.1	19.2	2.22	0.53	34.36	19.87	4.43	0.44	14.49	1.23

3. ろ過式 (Wet+Dry) と自動式との比較

1) 採水量の比較

採水量についてろ過式と自動式とによる比較を行った。(図3)

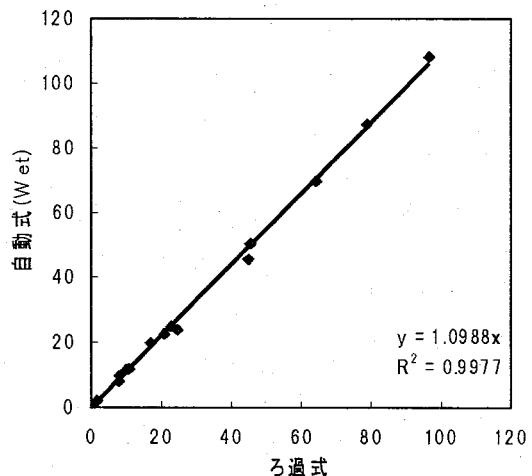


図3. 採水量の比較 (ml)

今回用いた自動式とろ過式は、捕集および保存の性能にほとんど差がないと思われるため、採水量の相関の傾きは1が得られるはずであるが、得られた傾きは1.10であった。両採取装置は保健環境研究所3階広場に設置していたが、この場所は仰角30度以内に高さ約15m

の障害物（研究所の建物）があり、風が舞う構造となっているためその影響を受けている可能性があり、調査地点としては適当でないと思われる。

2) 沈着量の比較

採水量の違いから、沈着量も自動式の方が多く捕集していることをふまえて、ろ過式と自動式 (Wet, Dry) の総沈着量を比較したグラフを図4に示す。

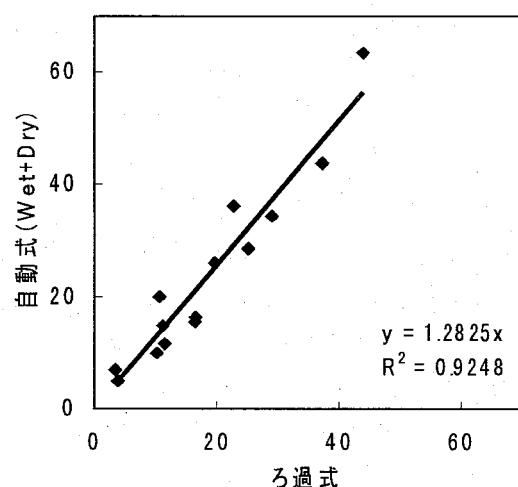
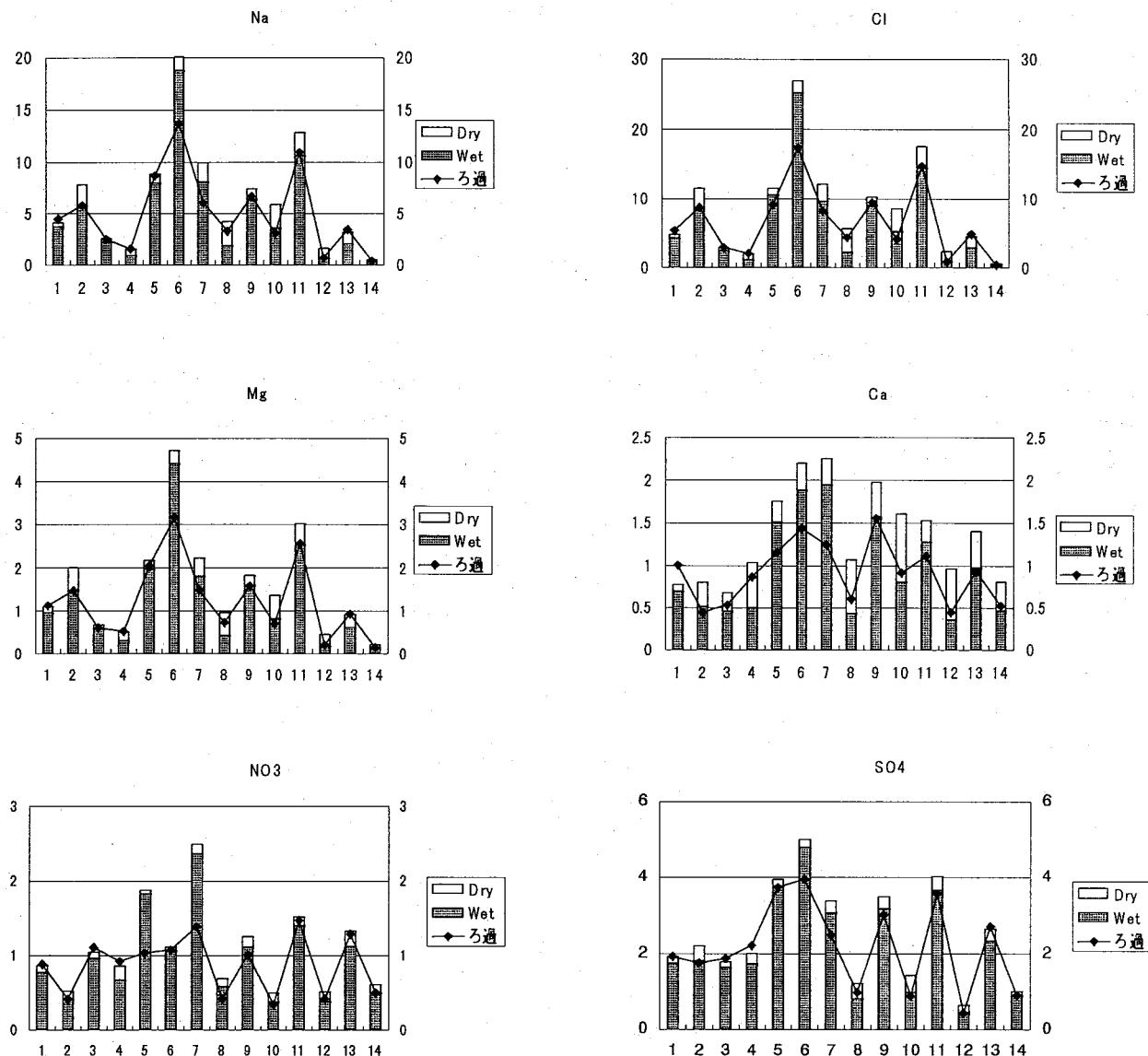


図4. 総沈着量の比較

総沈着量の比較で得られた傾きは、1.28であった。このことから、ろ過式は自動式 (Wet, Dry) で捕集

図5. 各イオン成分の沈着量の比較 (m eq/m²/週)

される全沈着量のうち8割弱しか捕集できていなかったことがわかった。

次に、各イオン成分について、1週間毎の沈着量の比較を行い、その特徴を検討した。(図5)

図5中のNO₃⁻, SO₄²⁻はWetに対するDryの占める割合が低くなっている。第1報でろ過式に対するWetの寄与が大きいと推測したが、それを裏付ける同様の結果が得られた。

また、Ca²⁺については、総沈着量に対するDryの割合が他のイオン成分に比べて高い結果が得られた。これも、第1報での総沈着量に対してDryの寄与が大きいという推測を裏付ける結果となった。

IV まとめ

1. 調査地点の検討

保環研は、pHが高く、Na⁺, Cl⁻, Mg²⁺濃度が高いなど、海塩成分の影響を多く受けている。また、同じ地行浜地区の発達教育センターは、衛試や千石荘及び保環研と比較して、NO₃⁻, SO₄²⁻の濃度は低く、また、保環研よりもさらにpHが高いことから、本市都心部を代表する地点として適当でないと思われる。

以上のことから、平成10年度からは、保環研より内陸部にあり、より都心部の影響を受けやすいと推察される本市城南区役所にろ過式採取装置を設置し、調査を行っている。

2. 各種指標値を用いた千石荘における経年変化

平成9年度は、pHが高くH⁺濃度が低くなっているが、これは降水量が多かったため、沈着量としては増加傾向にある。

また、NH₄⁺/nss-Ca²⁺が、2.22と高くなっているが、今後、発生源等について調査していく必要がある。

NO₃⁻/nss-SO₄²⁻は、年々増加しており、千石荘においても自動車排ガスや事業場の冷暖房等によるNO_x汚染の広がりに注目していく必要がある。

3. ろ過式(Wet+Dry)と自動式との比較

採水量の比較によって、ろ過式と自動式の相関から得られた傾きは、1.10であった。捕集効率、蒸発損失にほとんど差がないと考えられることから、設置場所の構造上の問題と考えられる。また、総沈着量の比較からこれまで用いていたろ過式は、自動式の8割弱しか捕集できていないことがわかった。

各イオン成分の比較では、NO₃⁻、SO₄²⁻はWet

に対するDryの占める割合が低く、Ca²⁺は、総沈着量に対するDryの割合が他のイオン成分に比べて高くなっているということがわかった。

文 献

- 1) 金子弥四郎他：平成4年度酸性雨全国調査結果報告書、全国公害研究誌、19、2～66、1994
- 2) 古賀公泰他：全国規模から見た福岡市における酸性雨の特徴について、福岡市衛生試験所報、20、177～182、1995
- 3) 大江慎他：降水における酸性成分の動態に関する調査研究(第1報)、福岡市保健環境研究所報、22、87～91、1997
- 4) 村野健太郎著：酸性雨と酸性霧、1～46、裳華房、1993
- 5) 篠塚正義他：福岡市の燃料規制による二酸化硫黄濃度の低減効果、第38回大気環境学会講演