

2. 高知県における酸性雨調査

第12報 県単独測定所（香美市香北町）の湿性沈着について

山村貞雄・武市佳子

Acid Precipitation Survey in Kochi Prefecture (XII)

Trends of acid deposition in Kami City

Sadao YAMAMURA Yosiko TAKECHI

1. はじめに

わが国における酸性雨調査は、1980年代から地方自治体や国等の研究機関によって盛んに行われ始めた。高知県でも1983年から県内3ヶ所（香北町、高知市、越知町）での測定が始まり¹⁾、高知市及び越知町では採取地点の変更や地点の廃止があったが、香北町では現在までほぼ一貫して測定を継続している。²⁻¹¹⁾

香北町における測定方法は、1983年から1999年7月までの16年間開放型ろ過式捕集器により行ってきたが、1999年8月に湿性降下物のみを採取し、冷蔵保存が可能なwet only型採取器に変更した。

ろ過式とwet only型とでは乾性降下物による影響が無視できないので、第10報では1999年までのろ過式について報告した。¹⁰⁾

本報では1999年以降のwet only型採取器による酸性雨調査について取りまとめたのでここに報告する。

2. 調査方法

2.1 調査地点

高知県香美市香北町永瀬1328-1

(市町村合併により住居表示に変更があった。)

永瀬ダム管理事務所屋上

採取機器は県中央部から北東へ約30km、海岸線から23kmに位置する、永瀬ダム管理事務所の屋上(地上約11m)に設置した。

調査地点は標高211mの物部川の河畔に位置し、周辺はスギ、ヒノキを主とする森林である。南西約10kmに年排出量SO_x約4 t、NO_x約0.6 tの温水プールがあるだけで、その他には半径10km以内に大きな発生源はない。

2.2 採取方法

採取機器 小笠原計器 US-330

2週または1週ごとに雨水を回収した。

2.3 調査及び調査試料

調査期間は平成1999年8月から2006年度まで7年8ヶ月の期間。

調査試料は原則2週間ごとに採取したが、月単位の集計が可能になるよう、1週間での採取をはさんで調整した。今回のデータ取りまとめでは、月、年毎の解析は各データの加重平均値を使用した。

2.4 調査項目及び分析方法

回収した試料を湿性沈着モニタリング手引き書²⁾に従い、表1の項目・方法により分析を行った。

表1

調査項目	分析方法
pH	ガラス電極法
EC	電気伝導度法
Na ⁺	イオンクロマト法
K ⁺	イオンクロマト法
NH ₄ ⁺	イオンクロマト法
Ca ²⁺	イオンクロマト法
Mg ²⁺	イオンクロマト法
NO ₃ ⁻	イオンクロマト法
Cl ⁻	イオンクロマト法
SO ₄ ²⁻	イオンクロマト法

3. 結果及び考察

3.1 経年変化

主要項目の年平均値の変化を図1～3及び表2、3に示す。

表2 主要成分の年平均濃度

年度	降水量 (mm)	PH	モ ル 濃 度 (μmol/L)					
			NO ₃ ⁻	NH ₄ ⁺	nss-SO ₄ ²⁻	nss-Ca ²⁺	nss-Mg ²⁺	nss-K ⁺
2000	2126	4.71	9.06	7.97	11.60	3.61	0.30	0.60
2001	2392	4.71	7.74	6.47	10.59	1.84	0.47	0.29
2002	2559	4.79	10.09	10.23	10.74	1.68	0.53	0.37
2003	2931	4.70	8.54	8.07	10.45	1.90	0.29	0.33
2004	4145	4.89	7.05	6.46	7.07	1.16	0.05	1.06
2005	2244	4.71	8.99	9.18	10.54	1.72	0.10	0.51
2006	3422	4.76	9.42	10.04	12.04	2.50	0.25	0.43
平均	2831	4.76	8.50	8.27	10.21	1.98	0.27	0.55

表3 主要成分の年間沈着量

年度	降水量 (mm)	沈 着 量 (mmol/m ²)					
		NO ₃ ⁻	NH ₄ ⁺	nss-SO ₄ ²⁻	nss-Ca ²⁺	nss-Mg ²⁺	nss-K ⁺
2000	2126	19.26	16.95	24.67	7.68	0.64	1.28
2001	2392	18.51	15.47	25.33	4.40	1.12	0.69
2002	2559	25.82	26.18	27.48	4.30	1.36	0.95
2003	2931	25.03	23.65	30.63	5.57	0.85	0.97
2004	4145	29.22	26.77	29.30	4.81	0.21	4.39
2005	2244	20.17	20.60	23.65	3.86	0.22	1.14
2006	3422	32.24	34.36	41.21	8.56	0.86	1.47
平均	2831	25.30	24.43	29.70	5.65	0.72	1.79

硫酸イオン、カルシウムイオン、マグネシウムイオン、カリウムイオンは海塩の影響を除いた後の値（以下nss-を付する）を用いた。

wet only型採取器での測定開始は1999年8月であり、1999年は1年間のデータがそろっていないため、経年の評価からは外した。

降水量は採取した水量から算出した値と、採取器を設置したダム管理事務所が雨量計により観測した降水量のうち、大きな値のものを用いた。雨量計のデータは1日単位であるため、採取日に降雨がある場合は、正午前の採取が多いことを勘案し、降水量を2等分し、前後の期間に加えた。

降水量は期間の前半は2000～2500mmで緩やかな増加傾向にあった。これに伴い、主要イオンの沈着量も緩やかな増加傾向を示している。

2004年度は数多くの台風が日本に到来した年で、6月から10月にかけて9個の台風が香北地区の降水に影響を与えた。このため、総降水量も大幅に増加したが、主要

イオン濃度は全て低下し、降水量の増加の割合に比べ沈着量の増加は少ない。

続く2005年度は、西日本を中心に春から夏にかけて少雨の状態が続いた。このため、主要イオンの濃度は全て増加したが、沈着量は少ない状態となっている。

2006年度は年間を通じて降雨量が多く、総雨量は3000mmを越えている。一方、主要イオンの濃度は少雨であった2005年度に比べても増加しており、結果として調査期間最高の沈着量となっている。

pHは降水量が大変多くなった2004年度を除き4.7台とほぼ安定していた。

主要イオンの沈着量は、NO₃⁻、NH₄⁺、nss-SO₄²⁻で緩やかな上昇傾向が見られるが、モル濃度では明らかな傾向は無く、降水量の増加による影響が大きいと思われる。

3.2 月別変化

主要成分の月別平均を図4～6及び表4、5に示す。

ここでは1999年度のデータも集計に加えた。

表4 主要成分の月別平均濃度

	平均 降水量 (mm)	PH	モ ル 濃 度 (μmol/L)					
			NO ₃ ⁻	NH ₄ ⁺	nss-SO ₄ ²⁻	nss-Ca ²⁺	nss-Mg ²⁺	nss-K ⁺
4月	216.8	4.84	13.82	14.90	15.70	8.03	1.00	1.02
5月	317.7	4.78	9.11	9.19	10.79	2.47	0.22	0.41
6月	305.2	4.76	7.73	7.33	9.11	1.26	0.06	0.30
7月	413.5	4.65	7.84	8.07	10.83	0.84	0.13	0.25
8月	428.0	4.82	6.80	7.89	8.76	1.10	0.23	0.38
9月	376.1	4.87	4.84	4.01	5.52	0.56	0.11	1.25
10月	234.9	4.73	5.88	4.05	7.97	0.34	0.20	0.08
11月	125.6	4.85	6.98	4.37	5.85	1.02	0.34	0.22
12月	81.1	4.81	14.21	9.19	11.92	3.11	0.18	0.36
1月	59.5	4.58	18.21	14.64	15.00	3.88	0.43	0.76
2月	124.9	4.66	13.55	14.24	15.50	3.19	0.38	1.16
3月	145.5	4.78	13.60	15.77	16.48	6.71	0.61	0.95

表5 主要成分の月別平均沈着量

	平均 降水量 (mm)	沈 着 量 (mmol/m ²)					
		NO ₃ ⁻	NH ₄ ⁺	nss-SO ₄ ²⁻	nss-Ca ²⁺	nss-Mg ²⁺	nss-K ⁺
4月	216.8	3.00	3.23	3.40	1.74	0.22	0.22
5月	317.7	2.89	2.92	3.43	0.78	0.07	0.13
6月	305.2	2.36	2.24	2.78	0.39	0.02	0.09
7月	413.5	3.24	3.34	4.48	0.35	0.05	0.10
8月	428.0	2.91	3.38	3.75	0.47	0.10	0.16
9月	376.1	1.82	1.51	2.08	0.21	0.04	0.47
10月	234.9	1.38	0.95	1.87	0.08	0.05	0.02
11月	125.6	0.88	0.55	0.74	0.13	0.04	0.03
12月	81.1	1.15	0.74	0.97	0.25	0.01	0.03
1月	59.5	1.08	0.87	0.89	0.23	0.03	0.04
2月	124.9	1.69	1.78	1.94	0.40	0.05	0.15
3月	145.5	1.98	2.29	2.40	0.98	0.09	0.14

降水量は夏に多く冬に少ない傾向を示している。特に7～9月に多く、台風の影響を強く受けている。pHは大きな変動は見られないが、降水量の少ない冬に低下する傾向が見られる。

nss-Ca²⁺の濃度は12月から上昇し始め、3月と4月に急激に大きな値となる。黄砂の飛来時期と重なっており、大陸からの影響を受けていると思われる。

NO₃⁻、NH₄⁺及びnss-SO₄²⁻の濃度は同様の季節変動を示している。夏から秋にかけて低濃度で推移し、冬から春にかけて高濃度となる。

降水量との負の相関が考えられるが、10、11月は降水量の減少にもかかわらず低濃度のままであり、また3、4月は降水量の増加に比して高濃度を維持している。3、4月の高濃度に関してはnss-Ca²⁺と同様に大陸からの影響を受けている可能性が示唆される。

主要成分の総沈着量は4月と7月にピークがある二山構造となっている。

4月は各成分とも多くの沈着量を記録しており、

特にnss-Ca²⁺、nss-Mg²⁺、nss-K⁺は他の月に比べて大変大きい値となっている。

これらは、黄砂に多く含まれる成分であり、ここでも大陸からの影響が示唆される。

7月のピークは降水量の増大によるものであるが、主にNO₃⁻、NH₄⁺及びnss-SO₄²⁻の寄与によるものであり、nss-Ca²⁺、nss-Mg²⁺、nss-K⁺は目だった変化は無い。

3. 3 主要成分の相関

期間中の全試料を対象とした主要成分の相関を図7～12及び表6、7に示す。

降水量は各主要イオンの濃度と負の弱い相関を示す。一方、各沈着量とは正の相関を示し、中でもNO₃⁻、NH₄⁺、nss-SO₄²⁻とは中程度の相関を示す。水素イオン濃度はNO₃⁻、NH₄⁺、nss-SO₄²⁻と強い正の相関を示す。他のプラスイオン濃度とも正の相関を示していることから、直接的な関係ではなく、水の汚れ具合といった指標を介しての相関と思われる。

表6 イオン濃度の相関

	降水量 mm	H ⁺ (μmol/L)	NO ₃ ⁻ (μmol/L)	NH ₄ ⁺ (μmol/L)	nss-SO ₄ ²⁻ (μmol/L)	nss-Ca ²⁺ (μmol/L)	nss-Mg ²⁺ (μmol/L)	nss-K ⁺ (μmol/L)
降水量	1.000							
H ⁺	** -0.366	1.000						
NO ₃ ⁻	** -0.285	** 0.737	1.000					
NH ₄ ⁺	** -0.301	** 0.761	** 0.958	1.000				
nss-SO ₄ ²⁻	** -0.372	** 0.897	** 0.854	** 0.914	1.000			
nss-Ca ²⁺	** -0.272	** 0.399	** 0.724	** 0.723	** 0.659	1.000		
nss-Mg ²⁺	** -0.194	** 0.218	** 0.440	** 0.495	** 0.490	** 0.819	1.000	
nss-K ⁺	* -0.170	** 0.210	** 0.374	** 0.390	** 0.413	** 0.514	** 0.659	1.000

表7 沈着量の相関

	降水量 mm	NO ₃ ⁻ mmol/m ²	NH ₄ ⁺ mmol/m ²	nss-SO ₄ ²⁻ mmol/m ²	nss-Ca ²⁺ mmol/m ²	nss-Mg ²⁺ mmol/m ²	nss-K ⁺ mmol/m ²
降水量	1.000						
NO ₃ ⁻	** 0.586	1.000					
NH ₄ ⁺	** 0.553	** 0.925	1.000				
nss-SO ₄ ²⁻	** 0.585	** 0.917	** 0.917	1.000			
nss-Ca ²⁺	* 0.149	** 0.471	** 0.507	** 0.407	1.000		
nss-Mg ²⁺	** 0.213	** 0.363	** 0.439	** 0.390	** 0.639	1.000	
nss-K ⁺	0.055	* 0.162	** 0.190	0.137	0.119	* 0.169	1.000

母相関の帰無検定 * : 両側確率5%以下 ** : 同 1%以下

NO_3^- , NH_4^+ , nss-SO_4^{2-} は、濃度・沈着量とも、お互いに対して大変強い正の相関関係に有るだけでなく、他の成分に対しても大変よく似た相関を示している。また、図2, 5のとおり季節変動や経年変化でも良く似た挙動を示していることから、同一の汚染源、若しくは同一の汚染経路を有することが示唆される。一般的に NO_3^- は自動車排気ガス、 nss-SO_4^{2-} は重油若しくは石炭を原料とする固定発生源からの排出ガスが主な原因であることが知られている。これらの排出ガスはそれぞれ独立して変動することが多く、今回のデータの様に季節変動や経年変化でも良く似た挙動を示し、相互の相関も大変強いことを考え合わせると、個別発生源の変動を飲み込むほどの大規模・複合的な発生源からの長距離影響が考えられる。

nss-Ca^{2+} , nss-Mg^{2+} , nss-K^+ 濃度は互いに比較的良好な相関を示している。土壌由来の成分であり、黄砂の影響や土壌の巻上げなどによる影響が考えられる。一方、沈着量では nss-K^+ が他の2成分とは有意な相関が無く、 nss-K^+ は降水量に対する変動が他の成分とは異なる挙動を示すことがわかる。

4. まとめ

- (1) 香美市香北町におけるwet only型採取における降水の変動は、pHはほぼ安定しており、 NO_3^- , NH_4^+ および nss-SO_4^{2-} は沈着量が増加傾向にある。
- (2) 主要成分の濃度はおおむね夏から秋にかけて低く、冬から春にかけて高くなっており、降水量や黄砂等の影響が考えられる。
- (3) 主要成分の総沈着量は4月と7月にピークがある二山構造となっている。

4月のピークは黄砂の影響が見られ、7月のピークは降水量の増大によるものである。

- (4) NO_3^- , NH_4^+ , nss-SO_4^{2-} は、濃度・沈着量とも、お互いに対して大変強い正の相関関係にある。季節変動、経年変化も良く似た変動を示しており、大規模・複合的な発生源からの長距離影響が考えられる。

文献

- 1) 川村速雄ら：高知県における酸性雨調査（第1報），高知県公害防止センター所報，1，105-112，1984
- 2) 門田泰昌ら：高知県における酸性雨調査（第2報），高知県公害防止センター所報，4，23-32，1987
- 3) 樋口美和ら：高知県における酸性雨調査（第3報），高知県公害防止センター所報，5，29-35，1988
- 4) 岡林理恵ら：高知県における酸性雨調査（第4報），高知県公害防止センター所報，6，29-31，1989
- 5) 岡林理恵ら：高知県における酸性雨調査（第5報），高知県公害防止センター所報，7，34-41，1990
- 6) 岡林理恵ら：高知県における酸性雨調査（第6報），高知県公害防止センター所報，8，29-34，1991
- 7) 岡林理恵ら：高知県における酸性雨調査（第7報），高知県公害防止センター所報，9，35-39，1992
- 8) 鎮西正道ら：高知県における酸性雨調査（第8報），高知県公害防止センター所報，11，49-68，1994
- 9) 植松広子ら：高知県における酸性雨調査（第9報），高知県環境研究センター所報，15，117-124，1998
- 10) 植松広子：高知県における酸性雨調査（第10報），高知県環境研究センター所報，19，27-35，2002
- 11) 武市佳子ら：高知県における酸性雨調査（第11報），高知県環境研究センター所報，20，23-31，2003
- 12) 環境省：湿性沈着モニタリング手引き書（第2版）

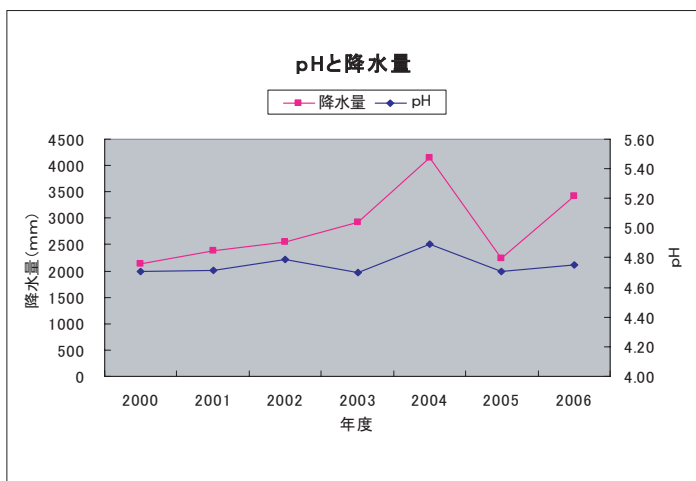


図 1

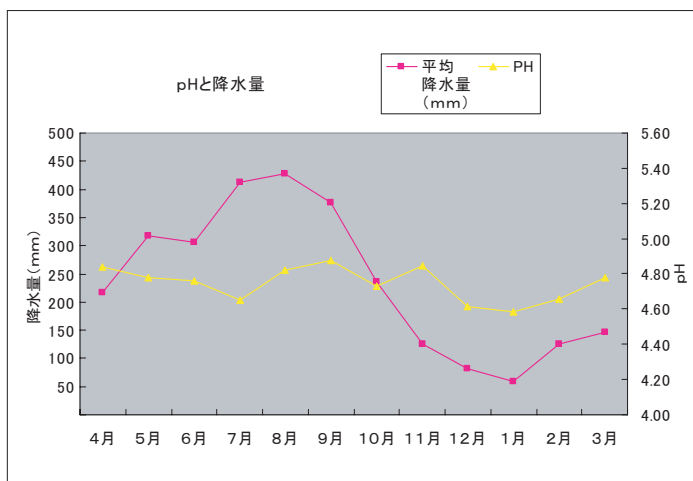


図 4

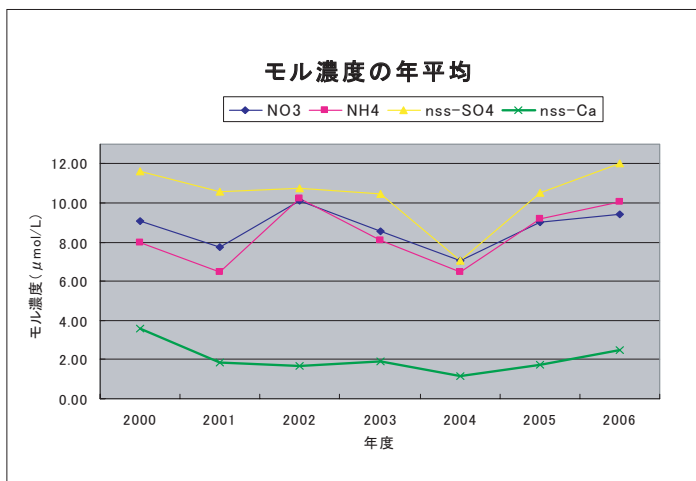


図 2

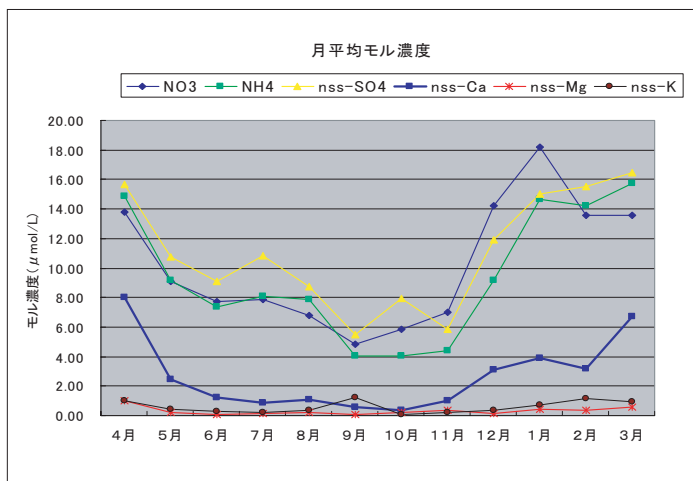


図 5

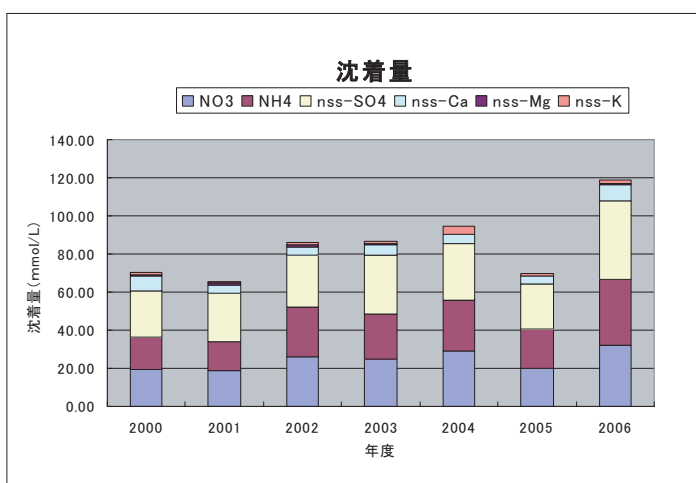


図 3

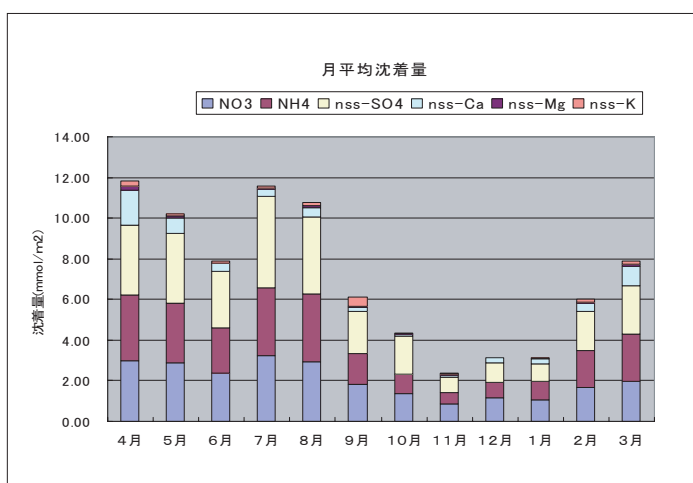


図 6

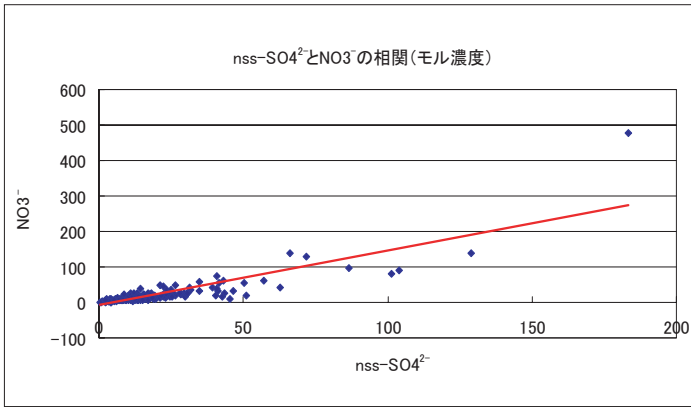


図 7

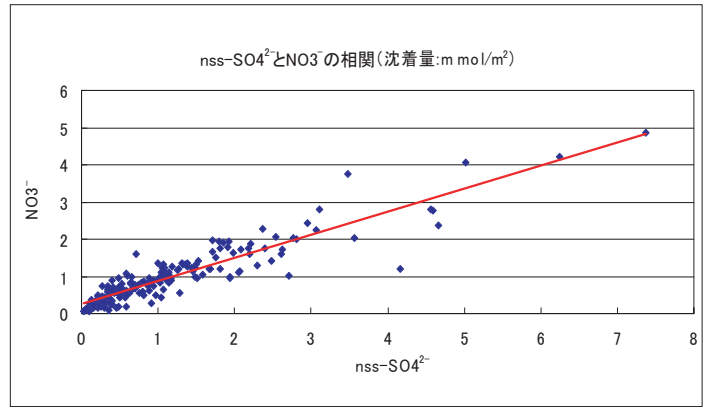


図10

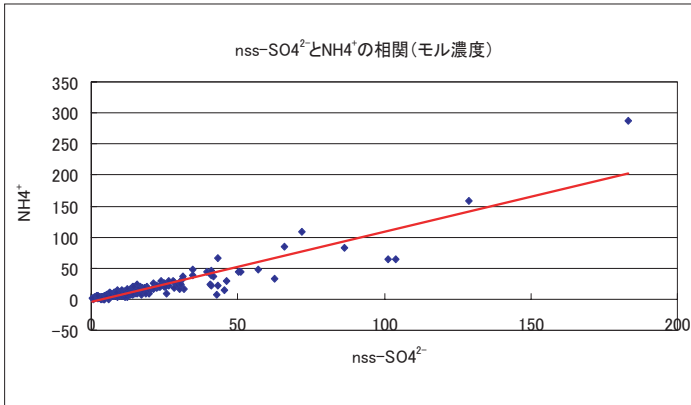


図 8

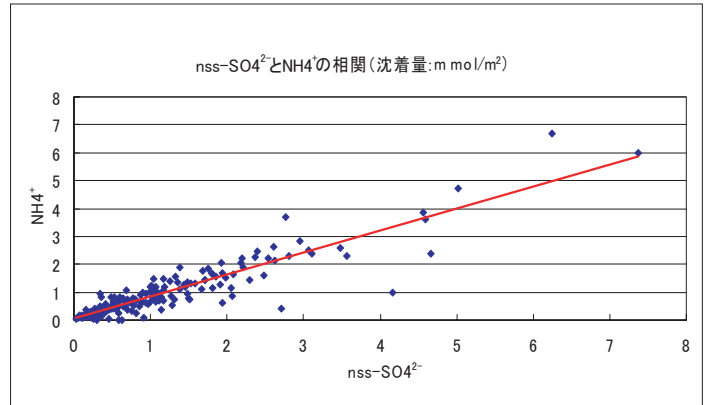


図11

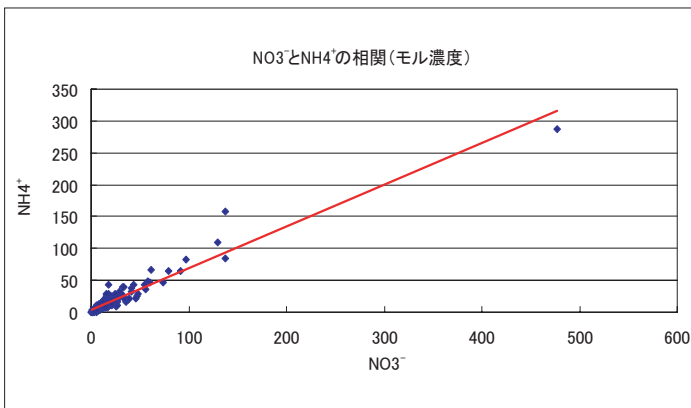


図 9

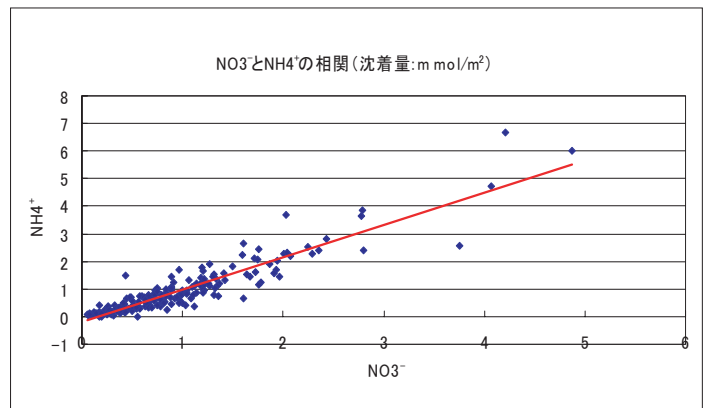


図12