

1 大 気 課

(1) 佐賀県における酸性雨調査 (第7報)

大気課 庄野 節子、穴井 功一
高柳 幹男、福地 新

1. はじめに

酸性雨調査に関して当センターは昭和63年から降水調査を継続実施しており、酸性降下物調査(第1~6報)として所報に報告しているところである^{1)~3)}。

現在、酸性雨の降水調査に関しては多くの調査研究が報告されている^{4)~10)}。それによると降水中pHは全国的には変化がないこと、また九州・沖縄地域の酸性雨共同調査においては SO_4^{2-} 降下物の発生源由来として、活火山、特に桜島の噴出ガスによる SO_2 が大きく寄与している事や、また SO_2 の長距離輸送による広域汚染に関して冬季における大陸由来の SO_4^{2-} 降下物の予測等も試みられている所である。一方県内の酸性雨調査におけるイオン成分組成の特長としては NH_4^+ 降下量が九州の中でも多い事である。

今回、平成4年度、平成5年度における県内6地点の調査結果と、降水中イオン成分組成や湿性沈着量について若干の考察を加えたもので報告する。

また第7報からは酸性降下物調査を佐賀県における酸性雨調査と表題を変更した。

2. 調査方法

1) 調査地点 調査地点は図1のとおり、採水器の設置場所は表1のとおりである。

表1 採水場所等

No.	地 点	採水器設置場所	標 高 m	地上高 m	区 分	備考
1	佐 賀	佐賀県環境センター 敷地内	5	1.5	市街地	
2	富 士	富士町森林学習館 1階屋上	400	5	大気環境清浄地域	
3	多 久	多久市役所別館 1階屋上	75	5	市街地	*
4	唐 津	唐津市役所 3階屋上	5	11	〃	
5	伊 万 里	伊万里市役所 3階屋上	38	11	〃	**
6	鹿 島	鹿島市役所 駐車場芝地	8	1.5	〃	

*九州・沖縄酸性雨共同調査地点 **伊万里市委託

2) 採水方法と分析方法

採水方法：ろ過式採水器(0.8 μ mミリポアフィルター)にて1カ月毎の降水を採取

分析方法：イオン成分分析はイオンクロマトグラフィによる

カラムと溶離液：

カチオン用(Shodex IC I524A) 酒石酸、ジピコリンサンにより作製

アニオン用(Shodex IC YD521) フタル酸により作製

イオンクロマトグラフ機種：Shimadzu HIC6A-SCL6B(オートインジェクター)

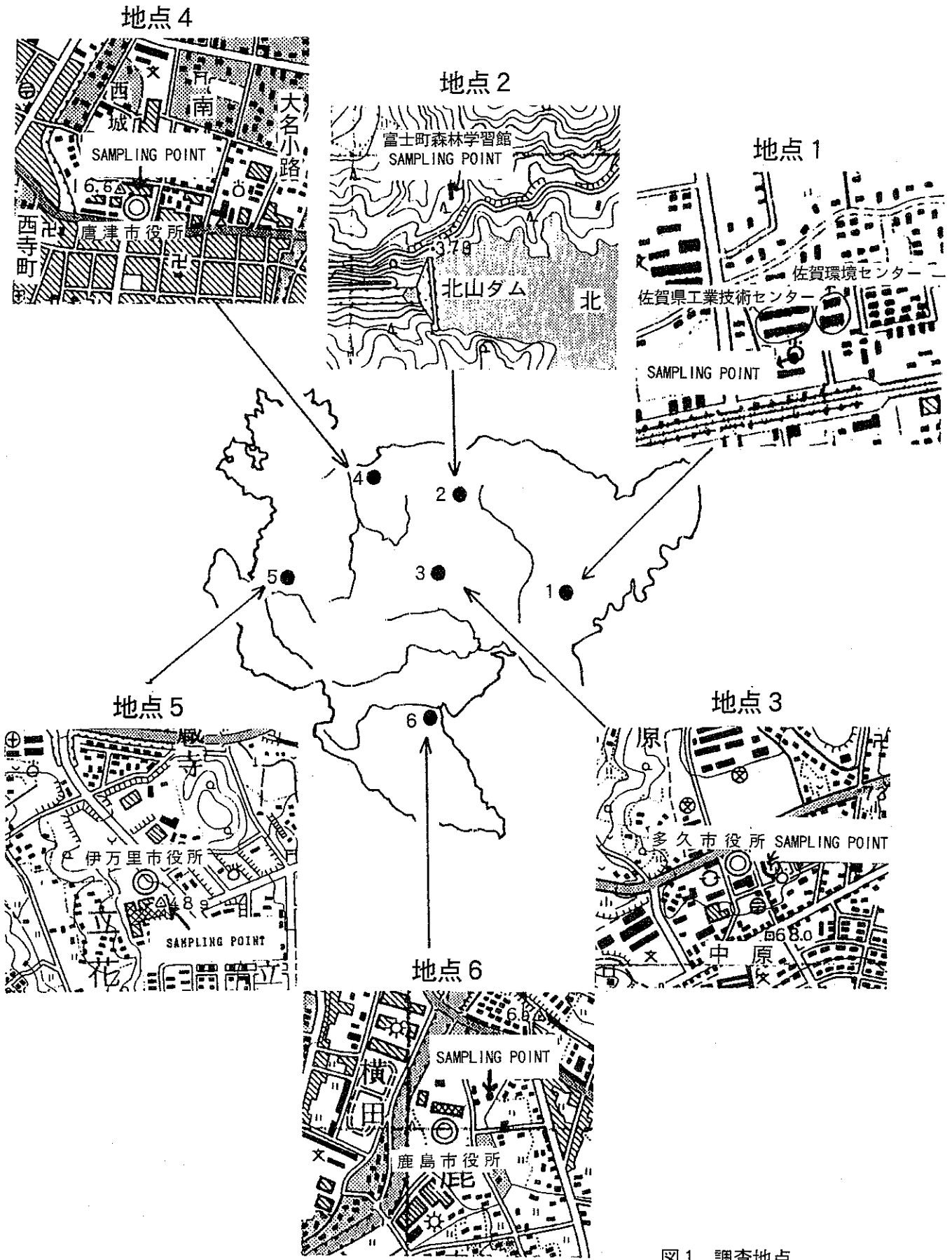


図1 調査地点

3. 結果と考察

1) 降水量

平成4、5年度の季節毎降水量は表2のとおりである。ただし降水量は採水量からの換算値である。平成4年度は年降水量は2480（富士）～1360（唐津）mmであった。平成5年度の場合、梅雨前線の終了時期がはっきりしないままに8月を迎えたため夏季の降水量が多く、年降水量は2870（富士）～2100（佐賀）mmを記録している。

富士が両年とも6地点中最も降水量が多かった。また暖侯季（4～9月）、寒侯季（10～翌3月）の降水量を比較してみると、両年とも前者が年降水量の75%程度である。

台風に関しては平成4年には8月、9月に3回佐賀県に接近し、8月は県内全域に雨をもたらし、平成5年には7月から9月に4回接近そのうち1回は通過した（表3¹²⁾）。

表2 降水量（平成4、5年度）

地点	年度	暖 侯 季		寒 侯 季		年 mm	比 率 %	
		春	夏	秋	冬		暖侯季	寒侯季
佐 賀	平成4	603	542	116	206	1,467	78.0	22.0
	5	719	893	330	159	2,101	76.7	23.3
富 士	4	674	1,153	278	372	2,477	73.8	26.2
	5	794	1,389	370	323	2,875	75.9	24.1
多 久	4	555	720	253	321	1,849	75.9	24.1
	5	687	1,361	344	225	2,616	78.3	21.7
唐 津	4	477	494	206	182	1,359	71.4	28.6
	5	564	1,146	267	192	2,168	78.9	21.1
伊 万 里	4	549	567	159	251	1,526	73.1	26.9
	5	717	1,417	304	243	2,681	79.6	20.4
鹿 島	4	533	614	125	255	1,528	75.1	24.9
	5	648	1,254	388	187	2,477	76.8	23.2

表3 台風について 気象月報¹²⁾ より抜粋

番号	台 風	年 月 日	時 刻	経 緯	降 雨 量 (mm)		
					佐 賀	和多田	伊万里
1	第9号	H4 8. 4	19:30	福岡県行橋市付近に上陸。	13	24	13
2	第10号	H4 8. 8	9:30	熊本県玉名市付近に上陸。暴風雨。	46	99	56
3	第11号	H4 8 18 19	21:00	宮崎県と大分県の県境付近に上陸。日本海南部で弱い熱帯低気圧となる。	13	9	1
					1	8	4
4	第19号	H4 9 24 25		大陸東岸から朝鮮半島へ進む。寒冷前線通過。	5	36	46
					8	8	6
1	第4号	H5 7 24		四国の南海上を北上。	—	—	—
2	第5号	H5 7 27		大隅半島に上陸。大分市付近から山陰沖へ抜ける。	29	9	6
3	第6号	H5 7 28 29 30	0:00	太平洋高気圧周辺部で発生。九州西海上を北上。長崎市に上陸。佐賀県を通過。	9	6	8
					18	25	43
					2	42	58
4	第7号	H5 8 9 10		九州の南海上を北上。九州西海上を北上。暴風雨。平戸付近を通過。	6	12	13
					59	88	130
5	第13号	H5 9 2 3 4		沖縄西方海上を北上。薩摩半島に上陸、北東進。大雨。（鹿児島、宮崎、大分を通過）日本海中部を北東進。	20	13	16
					47	68	48
					1	18	6

2) 降水中のpHとイオン成分組成

(1) pHについて

6地点の降水中のpHは表4-1、2、3のとおりである。平成4年度(H4)が4.6~5.1(平均4.8)で、5年度(H5)が4.9~5.1(平均5.0)であった。H5は前年よりpHが高かった。暖候季はH4が4.6~5.1で、H5は5.0~5.1であった。寒候季は富士、多久、鹿島は兩年pH4.6~4.9であったが、佐賀はH4が4.8、H5が5.2、伊万里H4が4.7、H5が5.1であった(唐津は平成5年11月が採水器設置場所の屋上工事中のため異常値があり比較しなかった)。

(2) イオン成分組成と濃度について

年、暖候季、寒候季の地点別イオン組成、濃度は表4-1、2、3のとおりである。

表4-1 イオン成分組成の年平均濃度

地点	年度降水量		pH	H ⁺ μeq/l	Na ⁺ μeq/l	NH ₄ ⁺ μeq/l	K ⁺ μeq/l	Ca ²⁺ μeq/l	Mg ²⁺ μeq/l	Cl ⁻ μeq/l	NO ₃ ⁻ μeq/l	SO ₄ ²⁻ μeq/l	非海塩				
	平成	mm											nss-K μeq/l	nss-Ca μeq/l	nss-Mg μeq/l	nss-Cl μeq/l	nssSO ₄ μeq/l
佐賀	4	1,467	4.7	21.6	30.3	37.9	5.3	25.9	9.3	44.5	15.7	56.5	4.6	24.6	2.4	9.2	52.8
	5	2,101	5.0	9.2	27.4	28.5	7.7	17.0	7.4	38.7	10.2	35.4	7.1	15.8	1.2	6.9	32.1
富士	4	2,477	4.6	23.1	53.6	18.9	2.5	15.0	13.3	68.5	11.5	40.5	1.4	12.7	1.0	6.1	34.1
	5	2,875	4.9	13.7	44.6	11.6	4.2	11.3	8.9	51.4	8.1	27.1	3.2	9.4	-1.3	-0.5	21.7
多久	4	1,849	4.7	20.0	46.9	34.1	3.0	24.1	12.0	59.6	16.1	57.3	2.1	22.0	1.3	5.0	51.7
	5	2,616	5.1	8.7	39.1	20.6	4.0	17.6	8.1	48.8	10.5	38.9	3.1	15.9	-0.8	3.3	34.2
唐津 *(11月削除)	4	1,359	4.7	21.1	166.8	28.6	6.7	32.1	43.0	221.5	20.9	71.5	3.1	24.8	5.0	27.2	51.5
	5*	2,060	5.0	9.4	55.6	22.1	4.4	20.4	11.8	68.7	13.3	39.4	3.2	18.0	-0.8	3.9	32.7
伊万里	4	1,526	4.8	14.5	49.4	27.0	3.2	28.3	13.1	59.0	17.6	51.1	2.2	26.1	1.9	1.4	45.1
	5	2,681	5.0	10.5	40.3	23.4	4.9	16.1	7.5	46.5	9.3	32.4	4.1	14.4	-1.7	-0.4	27.6
鹿島	4	1,528	5.1	8.8	30.6	47.9	8.1	25.1	10.7	41.0	14.1	50.6	7.4	23.8	3.8	5.4	47.0
	5	2,477	5.0	10.5	27.7	24.8	3.4	13.3	5.5	37.0	10.8	31.5	2.8	12.1	-0.8	4.7	28.2

表4-2 イオン成分組成の年平均暖候季

地点	年度降水量		pH	H ⁺ μeq/l	Na ⁺ μeq/l	NH ₄ ⁺ μeq/l	K ⁺ μeq/l	Ca ²⁺ μeq/l	Mg ²⁺ μeq/l	Cl ⁻ μeq/l	NO ₃ ⁻ μeq/l	SO ₄ ²⁻ μeq/l	非海塩				
	平成	mm											nss-K μeq/l	nss-Ca μeq/l	nss-Mg μeq/l	nss-Cl μeq/l	nssSO ₄ μeq/l
佐賀	4	1,145	4.63	23.6	14.4	34.1	3.3	23.0	5.1	25.4	13.7	49.5	3.0	22.4	1.8	8.6	47.8
	5	1,613	5.00	10.0	17.0	20.7	4.1	12.8	4.7	24.5	7.6	26.2	3.7	12.0	0.8	4.7	24.2
富士	4	1,827	4.68	21.1	23.6	15.9	1.4	10.8	5.6	33.6	7.9	30.5	0.9	9.8	0.2	6.1	27.6
	5	2,183	4.97	10.8	26.4	9.4	4.0	5.2	4.0	28.6	4.5	15.9	3.4	4.0	-2.0	-2.1	12.7
多久	4	1,275	4.72	19.2	17.4	27.2	1.9	18.1	4.6	23.8	12.3	44.2	1.6	17.4	0.7	3.5	42.2
	5	2,048	5.14	7.3	22.5	16.6	3.5	9.5	3.0	27.3	7.5	27.0	3.0	8.5	-2.2	1.1	24.3
唐津 *(11月削除)	4	971	4.65	22.3	159.2	24.4	5.4	25.2	41.8	219.6	17.2	63.5	2.0	18.3	5.5	34.1	44.4
	5*	1,710	4.98	10.4	35.0	19.2	2.4	11.6	7.1	43.1	10.4	29.1	1.7	10.0	-0.9	2.3	24.9
伊万里	4	1,116	4.88	13.1	26.2	24.2	2.1	23.9	7.2	31.8	14.5	42.0	1.6	22.7	1.2	1.3	38.8
	5	2,134	4.96	11.0	18.9	23.4	2.5	7.6	2.9	19.5	6.8	21.9	2.1	6.7	-1.4	-2.6	19.6
鹿島	4	1,147	5.11	7.7	13.9	49.7	7.2	15.2	4.6	21.9	11.2	43.0	6.9	14.6	1.4	5.7	41.4
	5	1,901	5.05	8.8	20.4	22.7	3.1	7.7	3.4	26.7	8.6	23.3	2.7	6.8	-1.2	2.9	20.9

表4-3 イオン成分組成の年平均寒候季

地点	年度降水量		pH	H ⁺ μeq/l	Na ⁺ μeq/l	NH ₄ ⁺ μeq/l	K ⁺ μeq/l	Ca ²⁺ μeq/l	Mg ²⁺ μeq/l	Cl ⁻ μeq/l	NO ₃ ⁻ μeq/l	SO ₄ ²⁻ μeq/l	非海塩				
	平成	mm											nss-K μeq/l	nss-Ca μeq/l	nss-Mg μeq/l	nss-Cl μeq/l	nssSO ₄ μeq/l
佐賀	4	322	4.84	14.5	86.6	51.3	12.2	38.2	24.3	112.4	22.7	81.1	10.4	32.4	4.5	11.6	70.7
	5	489	5.19	6.5	61.5	54.4	19.8	30.9	16.4	85.5	19.0	65.7	18.5	28.2	2.3	13.9	58.3
富士	4	650	4.54	28.8	137.9	27.6	5.4	26.8	34.8	166.8	21.6	68.7	2.5	20.8	3.4	6.2	52.1
	5	692	4.64	23.0	102.1	18.7	4.9	30.7	24.4	123.4	19.2	62.3	2.7	26.2	1.1	4.4	50.0
多久	4	574	4.66	21.7	112.5	49.5	5.5	37.3	28.4	139.2	24.7	86.3	3.1	32.4	2.7	8.2	72.8
	5	568	4.86	13.8	98.9	35.0	5.6	47.1	26.7	126.4	21.7	81.5	3.5	42.8	4.1	11.2	69.6
唐津 *(11月削除)	4	388	4.74	18.0	185.9	39.1	9.9	49.2	46.2	226.3	30.3	91.4	5.9	41.1	3.7	9.7	69.0
	5*	351	5.32	4.8	155.8	36.1	13.8	63.6	35.1	193.3	27.4	89.5	10.5	56.9	-0.4	11.8	70.8
伊万里	4	410	4.74	18.4	112.4	34.6	6.3	40.2	29.2	132.9	26.0	75.7	3.9	35.3	3.6	1.9	62.2
	5	547	5.06	8.7	123.5	23.2	14.3	49.5	25.6	151.9	18.9	73.7	11.7	44.1	-2.6	8.0	58.9
鹿島	4	381	4.92	12.2	80.9	42.6	10.8	54.9	29.3	98.6	22.8	73.6	9.1	51.3	10.8	4.3	63.9
	5	575	4.79	16.1	51.8	31.4	4.3	32.0	12.5	71.0	17.8	58.6	3.2	29.8	0.7	10.7	52.3

2-1) 年平均値について非海塩性成分をみると、 H^+ はH4が23.1(富士)~8.8 $\mu eq/l$ 、H5が13.7(富士)~8.7 $\mu eq/l$ (多久)、 NH_4^+ はH4が47.9(鹿島)~18.9(富士) $\mu eq/l$ で、H5は28.5(佐賀)~11.6(富士) $\mu eq/l$ であった。 $nssCa^{2+}$ はH4が26.1(伊万里)~12.7(富士) $\mu eq/l$ で、H5は18.0(唐津)~9.4(富士) $\mu eq/l$ であった。次に NO_3^- はH4が20.9(唐津)~11.5(富士) $\mu eq/l$ 、H5が13.3(唐津)~8.1(富士) $\mu eq/l$ 、 $nssSO_4^{2-}$ はH4が52.8(佐賀)~34.1(富士) $\mu eq/l$ で、H5が34.2(多久)~21.7(富士) $\mu eq/l$ であった。海塩性成分は平成4年度台風の影響で Na^+ は唐津が167 $\mu eq/l$ 、 Cl^- は221 $\mu eq/l$ であった。

2-2) 暖候季の非海塩性成分

H^+ はH4が23.6(佐賀)~7.7(鹿島) $\mu eq/l$ 、H5が11.0(伊万里)~7.3(多久) $\mu eq/l$ 、 NH_4^+ はH4が49.7(鹿島)~15.9(富士) $\mu eq/l$ 、H5が23.4(伊万里)~9.4(富士)、 $nssCa^{2+}$ はH4が22.7(伊万里)~9.8(富士) $\mu eq/l$ 、H5が12.0(佐賀)~4.0(富士) $\mu eq/l$ 、 NO_3^- はH4が17.2(唐津)~4.5(富士) $\mu eq/l$ 、H5が10.4(唐津)~4.5(富士) $\mu eq/l$ 、 $nssSO_4^{2-}$ はH4が47.8(佐賀)~27.6(富士) $\mu eq/l$ 、H5が24.9(唐津)~12.7(富士) $\mu eq/l$ であった。平成5年度は H^+ 、 $nssSO_4^{2-}$ 等成分によっては平成4年度の5割程度の濃度になっている地点があった。

2-3) 寒候季の非海塩性成分

H^+ はH4が28.8(富士)~12.2(鹿島) $\mu eq/l$ 、H5が23.0(富士)~6.5(佐賀) $\mu eq/l$ 、 NH_4^+ はH4が51.3(佐賀)~27.6(富士) $\mu eq/l$ 、H5が54.4(佐賀)~18.7(富士)、 $nssCa^{2+}$ はH4が51.3(鹿島)~20.8(富士) $\mu eq/l$ 、H5が44.1(伊万里)~26.2(富士) $\mu eq/l$ 、 NO_3^- はH4が30.3(唐津)~21.6(富士) $\mu eq/l$ 、H5が21.7(多久)~17.8(鹿島) $\mu eq/l$ 、 $nssSO_4^{2-}$ はH4が72.8(多久)~52.1(富士) $\mu eq/l$ 、H5が69.6(多久)~50.0(富士) $\mu eq/l$ であった。

(3) アルカリ成分の寄与度について

イオン組成成分の中で、アルカリ成分の中和に対する寄与度をみるために、pHを横軸に、 pA_i^* (図2)を縦軸にして、地点毎に、月データをプロットした(図2、①~⑥)。

佐賀、唐津、伊万里、鹿島をみるとpH4.4~7付近までに幅広く分布しているが、縦軸は $pA_i = 4$ あたりに分布しており中和成分の寄与度が大きいことを示している。⑥富士はpH6付近には1ポイントだけであり、 $pH = pA_i$ の線上に9ポイントも分布して中和成分の寄与が少ない。多久は中和成分の寄与度が佐賀地点と富士地点の間であった。また各地点毎にpHの低い値と高い値の2ポイントにA~Lの記号を入れ、そのポイントの降水量、pH、イオン組成等は図3(A~F、G~L)のとおりである。pHの低いポイントA、C、E、G、I、Kのカチオンは H^+ 、 NH_4^+ 、 $nssCa^{2+}$ が非海塩の主成分になっている。一方pHが高いポイントB、D、F、H、J、Lでは NH_4^+ 、 $nssCa^{2+}$ が主成分になりアニオンの NO_3^- 、 $nssSO_4^{2-}$ と当量存在している。このことから中和にたいする寄与度は NH_4^+ 、 $nssCa^{2+}$ であることが判る。

そこで NH_4^+ 濃度が高い鹿島と $nssCa^{2+}$ 濃度が高い伊万里について、 pA_i に対応する $p[NH_4^+]$ 、 $p[nssCa^{2+}]$ をプロットすると図4の通りで、鹿島は $pA_i = p[NH_4^+]$ の線上に数個のポイントがあり、 NH_4^+ が中和に寄与度が深いことを示唆している。伊万里の場合 $pA_i = p[NH_4^+]$ 、

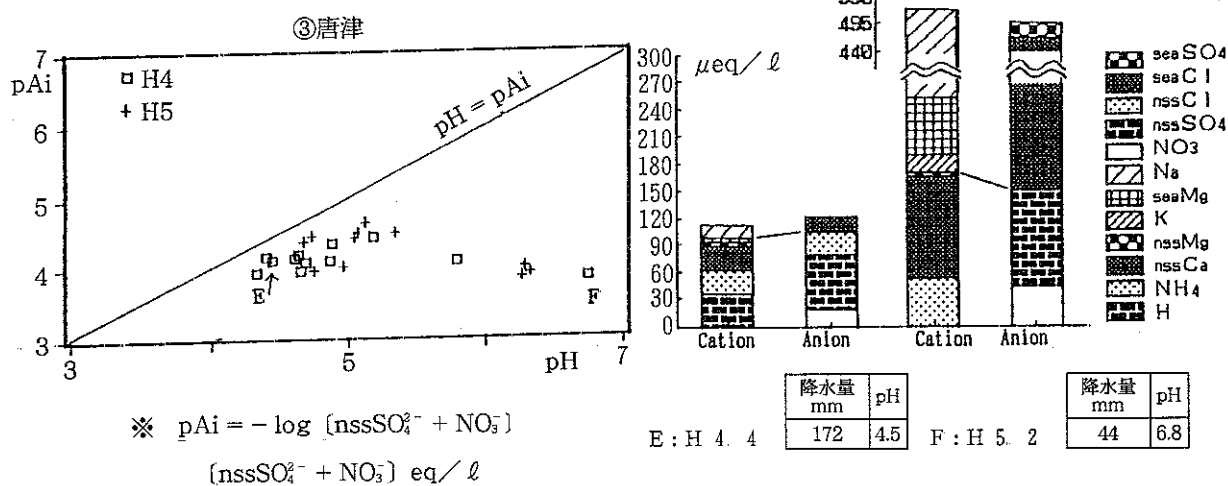
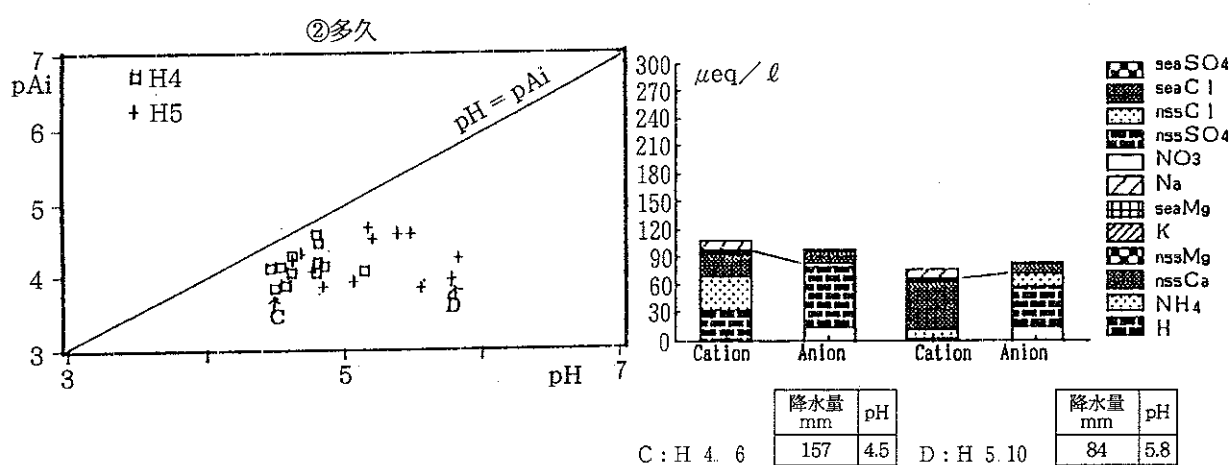
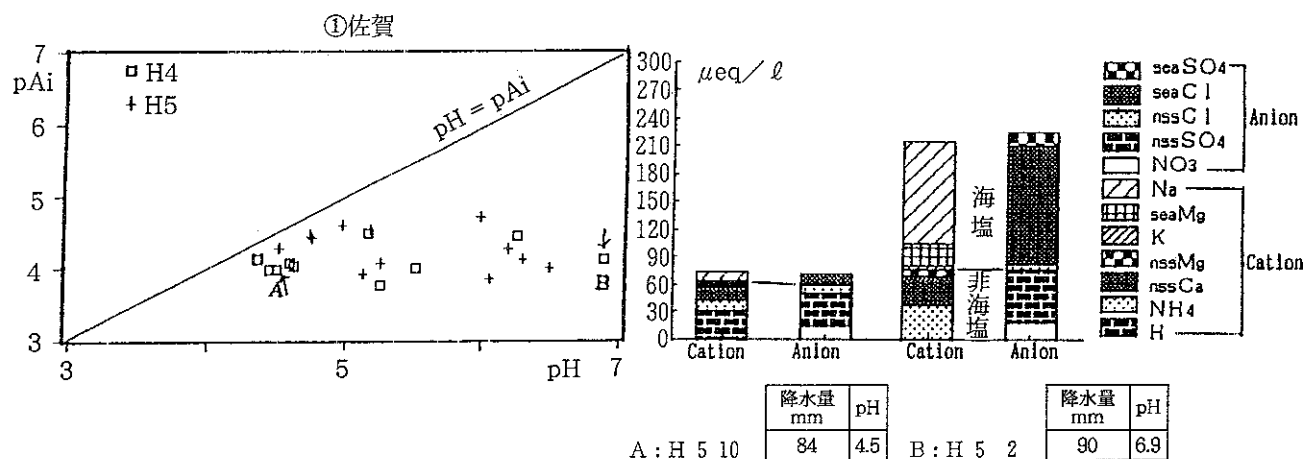
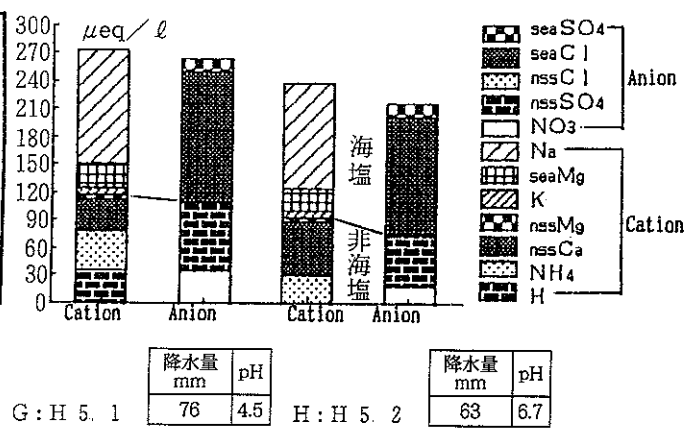
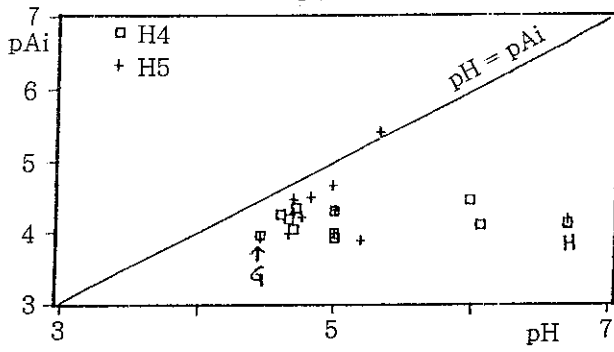


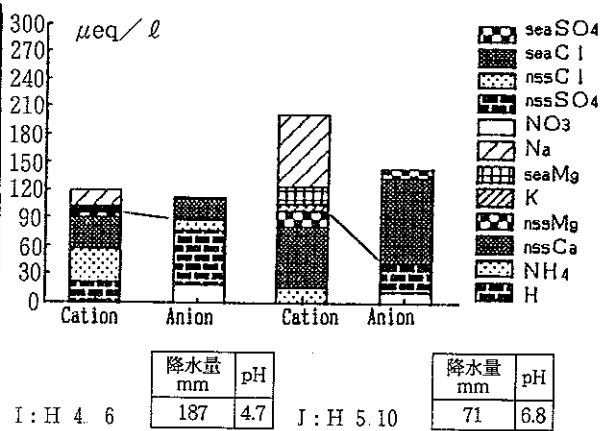
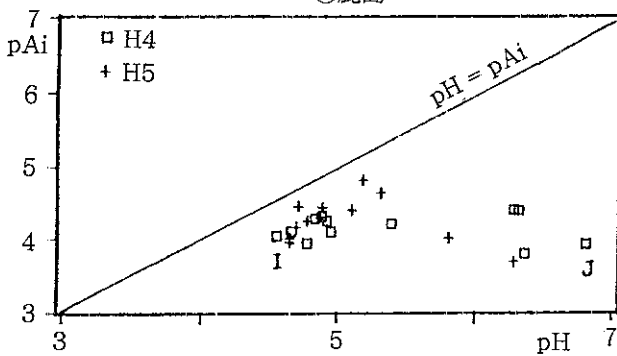
図2 pHとpAi

図3 イオン組成等 (A~F)

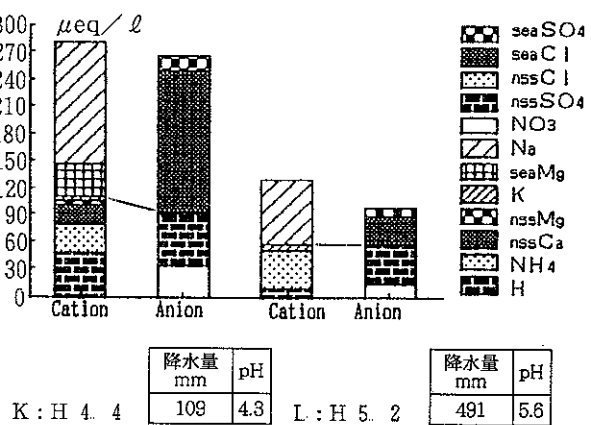
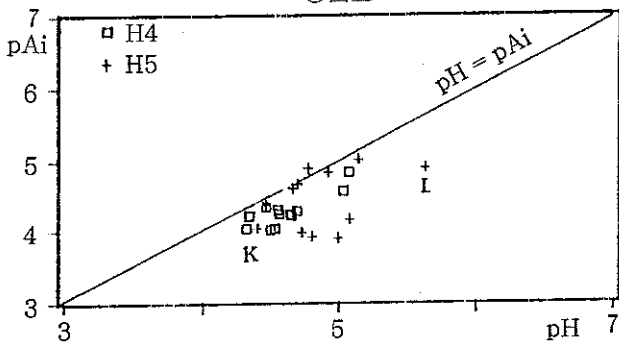
④伊万里



⑤鹿島



⑥富士



※ $pAi = -\log \frac{[nssSO_4^{2-} + NO_3^-]}{[nssSO_4^{2-} + NO_3^-] \text{ eq/l}}$

図2 pH と pAi

図3 イオン組成等 (G~L)

p [nssCa²⁺] の線上にどちらも存在しているが p Ai の低い時は nssCa²⁺ の寄与が大きいことを示唆している。

nssCa²⁺ については図1の調査地点の周辺地図でわかるように、富士以外の5地点は市街地で幹線道路も近く、砂ぼこりや道路粉じん等の土壌成分も nssCa²⁺ 供給要因に成っていることがうかがえる。

NH₄⁺ が多いことについては、これまでの共同調査においても佐賀、熊本、太宰府等が多い地域として既知のことであるが、富士を除く5地点とも同様の結果である。

このことはエアロゾル調査⁸⁾ (九州、沖縄地方共同調査の一環) においても同様の結果が出ている。1994年2月～3月実施した結果⁹⁾ の中から4成分については図5のとおりである。NH₄⁺ 発生源由来については家畜のし尿、肥料、下水道の未整備等の要因が考えられている。

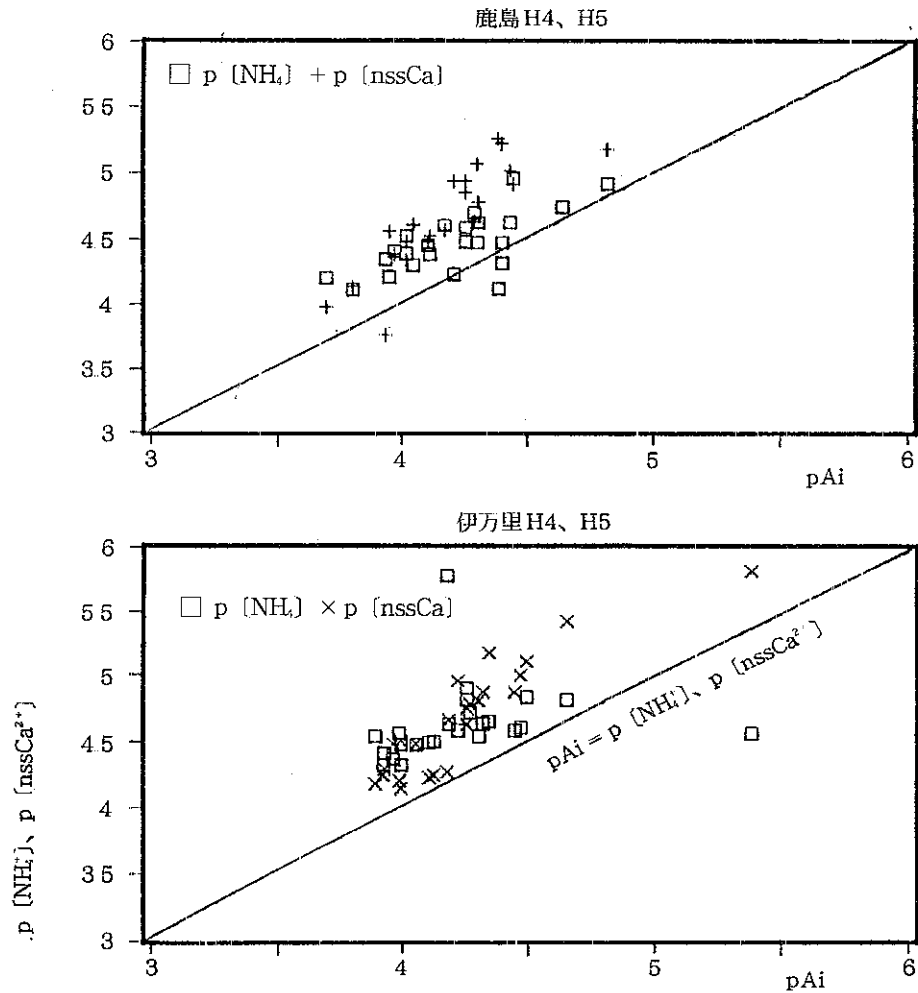


図4 pAi と p [NH₄⁺], p [nssCa²⁺]

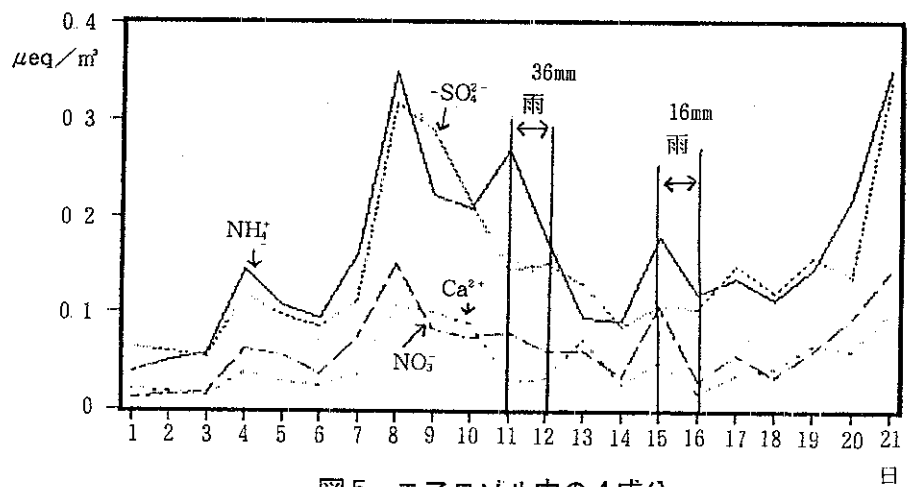


図5 エアロゾル中の4成分
佐賀 (H6. 2. 15/3. 17)

3) イオン成分降下量 (湿性沈着量)

年、暖候季、寒候季毎のイオン成分降下量は表5-1、2、3のとおりである。総降下量はH4が832 (唐津) ~ 362 meq/m² (佐賀、鹿島)、H5が520 (富士) ~ 382 (佐賀) meq/m²であり、非海塩成分降下量はH4が281 (多久) ~ 207 (伊万里) meq/m²でH5が252 (多久) ~ 195 (富士) meq/m²である。富士はH4とH5の降下量の差が大きく5年度は4年度の65%である。唐津は平成5年11月分を削除したために比較は出来なかった。

(1) 非海塩性成分について

表5の非海塩成分のカチオン主成分3項目とアニオン主成分3項目について、降下量は図6-①1、2のとおりである。カチオン、アニオンについて暖候季が90~40 meq/m² (平均70 meq/m²) で寒候季が60~30 meq/m² (平均40 meq/m²) で約3:2の割合になるが、降水量が3:1の割合から比較すると寒候季の降下量は暖候季よりも多いと言える。

表5-1 イオン成分の年降下量

地点	年度 平成	降水量 mm	pH	H ⁺	Na ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	nss-k	nss-Ca	nss-Mg	nss-cl	nss-SO ₄	総降下量	非海塩	海塩	海塩
				meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²
佐賀	4	1 467	4.67	31.6	44.4	55.6	7.7	38.0	13.7	65.3	23.0	82.8	6.8	36.1	3.5	13.6	77.5	362.2	247.7	114.5	31.6
	5	2,101	5.04	19.3	57.5	60.0	16.2	35.7	15.6	81.4	21.5	74.4	15.0	33.2	2.5	14.4	67.5	381.6	233.3	148.2	38.8
富士	4	2 477	4.64	57.3	132.7	46.9	6.2	37.2	32.9	169.8	28.4	100.3	3.4	31.4	2.6	15.2	84.4	611.7	269.6	342.1	55.9
	5	2,875	4.86	39.5	128.3	33.4	12.1	32.5	25.6	147.9	23.2	77.8	9.3	27.0	-3.7	-1.5	62.4	520.3	194.8	325.5	62.6
多久	4	1 849	4.70	36.9	86.7	63.1	5.6	44.5	22.2	110.2	29.8	106.0	3.8	40.7	2.4	9.2	95.5	505.0	281.4	223.6	44.3
	5	2,616	5.06	22.9	102.3	53.9	10.4	46.2	21.3	127.7	27.6	101.7	8.2	41.7	-2.1	8.5	89.4	513.9	252.2	261.7	50.9
唐津 *(11月欠測)	4	1 359	4.68	28.6	226.7	38.8	9.1	43.6	58.5	301.1	28.4	97.2	4.3	33.7	6.8	36.9	69.9	832.0	247.5	584.5	70.3
	5*	2,060	5.03	19.4	114.5	45.5	9.0	42.1	24.4	141.5	27.4	81.1	6.6	37.1	-1.7	8.1	67.3	504.8	211.4	293.5	58.1
伊万里	4	1 526	4.84	22.1	75.4	41.2	4.9	43.1	20.1	90.0	26.8	77.9	3.3	39.9	2.9	2.2	68.8	401.6	207.3	194.3	48.4
	5	2,681	4.98	28.2	108.0	62.6	13.2	43.2	20.2	124.7	24.9	87.0	10.9	38.5	-4.5	-1.2	74.0	512.0	239.1	272.9	53.3
鹿島	4	1 528	5.05	13.5	46.8	73.2	12.3	38.3	16.4	62.7	21.6	77.4	11.3	36.3	5.7	8.2	71.8	362.2	241.6	120.5	33.3
	5	2,477	4.98	26.0	68.7	61.3	8.4	33.0	13.7	91.7	26.7	78.0	6.9	30.0	-1.9	11.7	69.8	407.4	232.4	175.1	43.0

*海塩、非海塩の総量計算時 - (マイナス) の数値は0とした

表5-2 暖候季の地点毎イオン成分降下量

地点	年度 平成	降水量 mm	pH	H ⁺	Na ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	nss-k	nss-Ca	nss-Mg	nss-cl	nss-SO ₄	総降下量	非海塩	海塩	海塩
				meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²
佐賀	4	1 145	4.63	27.0	16.5	39.0	3.8	26.4	5.9	29.1	15.6	56.7	3.4	25.6	2.1	9.8	54.7	219.9	177.4	42.6	19.4
	5	1,613	5.00	16.1	27.4	33.4	6.6	20.6	7.6	39.6	12.2	42.3	6.0	19.4	1.3	7.6	39.0	205.8	135.0	70.7	34.4
富士	4	1 827	4.68	38.5	43.1	29.0	2.6	19.8	10.2	61.3	14.4	55.7	1.7	17.9	0.4	11.1	50.5	274.6	163.6	111.0	40.4
	5	2,183	4.97	23.6	57.6	20.5	8.7	11.3	8.7	62.5	9.9	34.7	7.5	8.8	-4.4	-4.6	27.8	237.4	98.0	139.4	58.7
多久	4	1 275	4.72	24.5	22.2	34.7	2.5	23.1	5.9	30.3	15.6	56.4	2.0	22.2	0.9	4.5	53.8	215.3	158.0	57.2	26.6
	5	2,048	5.14	15.0	46.1	34.0	7.2	19.4	6.1	55.9	15.3	55.4	6.2	17.4	-4.4	2.2	49.8	254.3	139.8	114.5	45.0
唐津	4	971	4.65	21.6	154.6	23.7	5.2	24.5	40.6	213.2	16.7	61.7	2.0	17.8	5.3	33.2	43.1	561.7	163.3	398.5	70.9
	5*	1,710	4.98	17.7	59.8	32.8	4.2	19.8	12.1	73.7	17.8	49.7	2.9	17.2	-1.6	4.0	42.5	287.5	134.8	152.7	53.1
伊万里	4	1,116	4.88	14.6	29.3	27.0	2.4	26.6	8.1	35.5	16.2	46.8	1.7	25.4	1.4	1.4	43.3	206.5	131.0	75.4	36.5
	5	2,134	4.96	23.4	40.4	49.9	5.3	16.1	6.2	41.6	14.5	46.6	4.5	14.4	-3.0	-5.5	41.8	244.2	148.5	95.6	39.2
鹿島	4	1,147	5.11	8.8	15.9	57.0	8.2	17.5	5.2	25.1	12.9	49.4	7.9	16.8	1.6	6.5	47.5	200.1	159.0	41.1	20.5
	5	1,901	5.05	16.8	38.9	43.2	5.9	14.6	6.5	50.8	16.4	44.3	5.1	12.9	-2.3	5.6	39.6	237.3	139.5	97.8	41.2

表5-3 寒候季の地点毎イオン成分降下量

地点	年度 平成	降水量 mm	pH	H ⁺	Na ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	nss-k	nss-Ca	nss-Mg	nss-cl	nss-SO ₄	総降下量	非海塩	海塩	海塩
				meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²	meq/m ²
佐賀	4	322	4.84	4.7	27.9	16.5	3.9	11.7	7.8	36.2	7.3	26.1	3.4	10.5	1.5	3.7	22.8	142.2	70.3	44.0	30.9
	5	489	5.19	3.2	30.1	26.6	9.7	15.1	8.0	41.8	9.3	32.1	9.0	13.8	1.1	6.8	28.5	175.8	98.3	77.5	44.1
富士	4	650	4.54	18.7	89.6	17.9	3.5	17.4	22.6	108.5	14.1	44.7	1.6	13.5	2.2	4.1	33.9	337.1	106.0	231.1	68.6
	5	692	4.64	15.9	70.7	12.9	3.4	21.2	16.9	85.4	13.3	43.1	1.9	18.2	0.8	3.1	34.6	282.8	100.6	182.3	64.4
多久	4	574	4.66	12.4	64.5	28.4	3.1	21.4	16.3	79.9	14.2	49.5	1.8	18.6	1.6	4.7	41.8	289.8	123.4	166.4	57.4
	5	568	4.86	7.9	56.2	19.9	3.2	26.8	15.2	71.9	12.3	46.3	2.0	24.3	2.3	6.4	39.6	259.6	114.7	144.9	55.8
唐津 *(11月欠測)	4	388	4.74	7.0	72.2	15.2	3.8	19.1	17.9	87.9	11.8	35.5	2.3	15.9	1.5	3.8	26.8	270.3	84.2	186.1	68.9
	5*	351	5.32	1.68	54.7	12.7	4.8	22.3	12.3	67.8	9.6	31.4	3.7	19.9	-0.2	4.1	24.8	217.3	76.5	140.8	64.8
伊万里	4	410	4.74	7.6	46.1	14.2	2.6	16.5	12.0	54.5	10.7	31.1	1.6	14.5	1.5	0.8	25.5	195.2	76.3	118.9	60.9
	5	547	5.06	4.7	67.6	12.7	7.8	27.1	14.0	83.1	10.3	40.3	6.4	24.2	-1.4	4.4	32.2	267.8	94.9	172.9	64.6
鹿島	4	381	4.92	4.6	30.8	16.2	4.1	20.9	11.1	37.5	8.7	28.0	3.4	19.5	4.1	1.6	24.3	162.0	82.6	79.4	49.0
	5	575	4.79	9.3	29.8	18.1	2.5	18.4	7.2	40.9	10.3	33.7	1.9	17.1	0.4	6.2	30.1	170.1	93.3	76.8	45.2

平成4年の唐津のnssCl⁻ 降下量が多いことについては8月の台風の影響を強く受けているため海塩換算時の誤差が大きいことによると考えている（表6参照）。

図6-①の暖候季において平成4、5年度で5年度の降下量の減少が富士、佐賀が大きい。暖候季が寒候季に比較してカチオン／アニオンのイオンバランスが良くないのは降水量が多く、希薄であるための測定誤差が要因としてあげられる。

図6-②の寒候季において降下量は多久に次いで富士が多いことが判る。

(2) nssSO₄²⁻ の長距離移送について

2-1) 暖候季において

降水量とnssSO₄²⁻ 降下量（暖候季、4-9月）とを月毎にプロットすると、図7-①、②、③の通りである。

清浄地域の富士地点については図7-①のとおりで、+マークは平成4年度、□マークは平成5年度であるが、両年に対照的な傾向が出ている。4年度の降水量は200mm前後でnssSO₄²⁻ 降下量は4~12meq/m²に分布し、5年度は降水量200~600mmの範囲にありnssSO₄²⁻ 降下量は4~6meq/m²に横並び分布している。このことから4年度、5年度のSO₄²⁻ 降下量の違いは異なる発生源由来のものであると推測される。

次に他の5地点について同様の分布が図7-②であるが、図中の×マークは（ $y = 0.012x + 4$, $n = 47$, $r = 59$ ）でnssSO₄²⁻ は降水量と相関関係にある。しかし◇グループの分布は×グループと異なっており、図7-③に挿入すると富士のnssSO₄²⁻ 降下量8~12meq/m²と同様に分布をしていることがわかる。これらはいずれも平成4年4~6月のデータであり、伊万里は該当するものはなかった。特に10~12meq/m²に分布するnssSO₄²⁻ の発生源について推定すると、桜島の噴火が平成4年は4月~6月が活発であったこと、また平成5年度はこの時期に1回も噴火がなかったことが報告されている事¹⁾と関連があると思われる。その根拠を共同調査⁴⁾の解析においた。

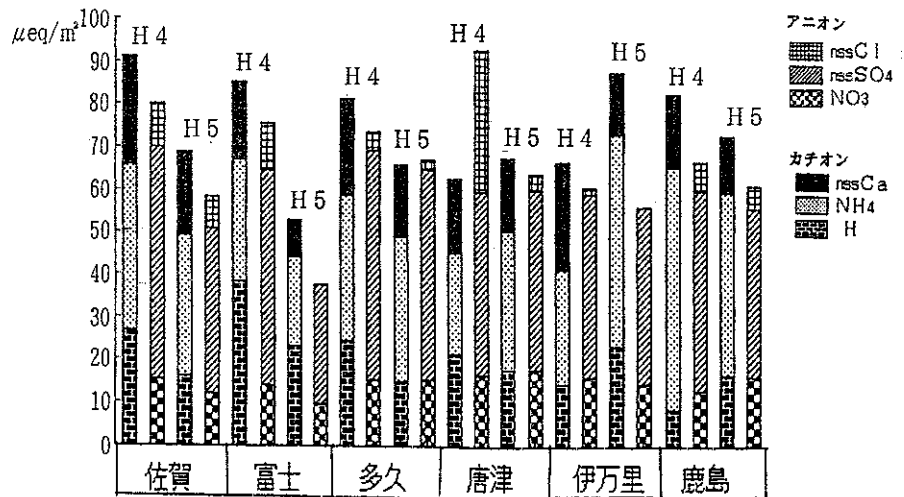


図6-① 非海塩6成分の降下量（暖候季）

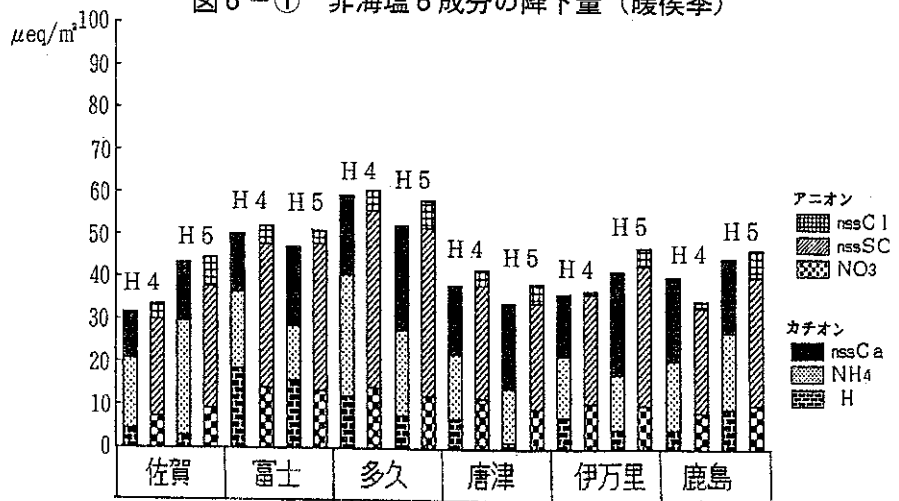


図6-② 非海塩6成分の降下量（寒候季）

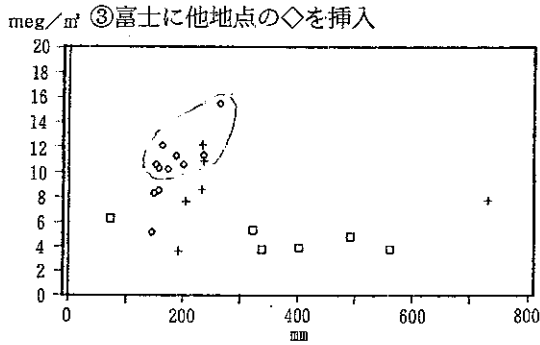
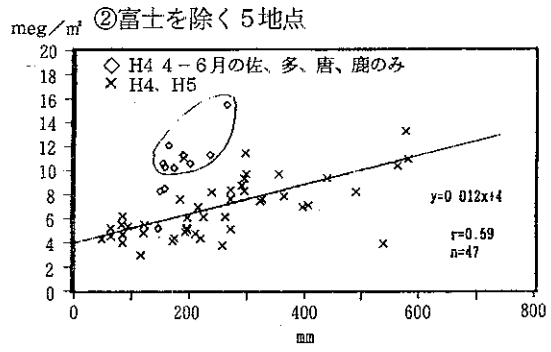
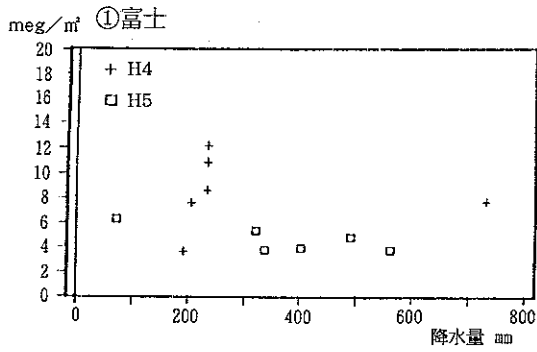


図7 降水量と nssSO_4^{2-} 降下量 (暖侯季 平成4、5年度)

① 上層の風向が南風で、特に有明海へう回して入ってくると SO_2 が九州北部へ移流すること、移流する間に雨水に SO_4^{2-} としてとけ込むこと。

② 九州北部への噴火ガスの移流で $\text{nssSO}_4^{2-}/\text{NO}_3^-$ 比が高い。

今回 nssSO_4^{2-} 降下量が $10\sim 12 \text{ meq/m}^2$ の範囲のものは南～南西風の多い4～6月のものであること、図7-③の $10\sim 12 \text{ meq/m}^2$ 中の7割は $\text{nssSO}_4^{2-}/\text{NO}_3^-$ 比が4～5、6であり他のデータに比較し $\text{nssSO}_4^{2-}/\text{NO}_3^-$ 比は高い傾向にあることで、 nssSO_4^{2-} が桜島噴火ガス由来によると推定した。

2-2) 寒侯季 (特に12、1、2月) について

寒侯季の中でも北西～北北西の季節風の影響が強い冬季における降水中的海塩成分と NO_3^- 、 nssSO_4^{2-} 降下量の間関係を見ると図8の通りである。

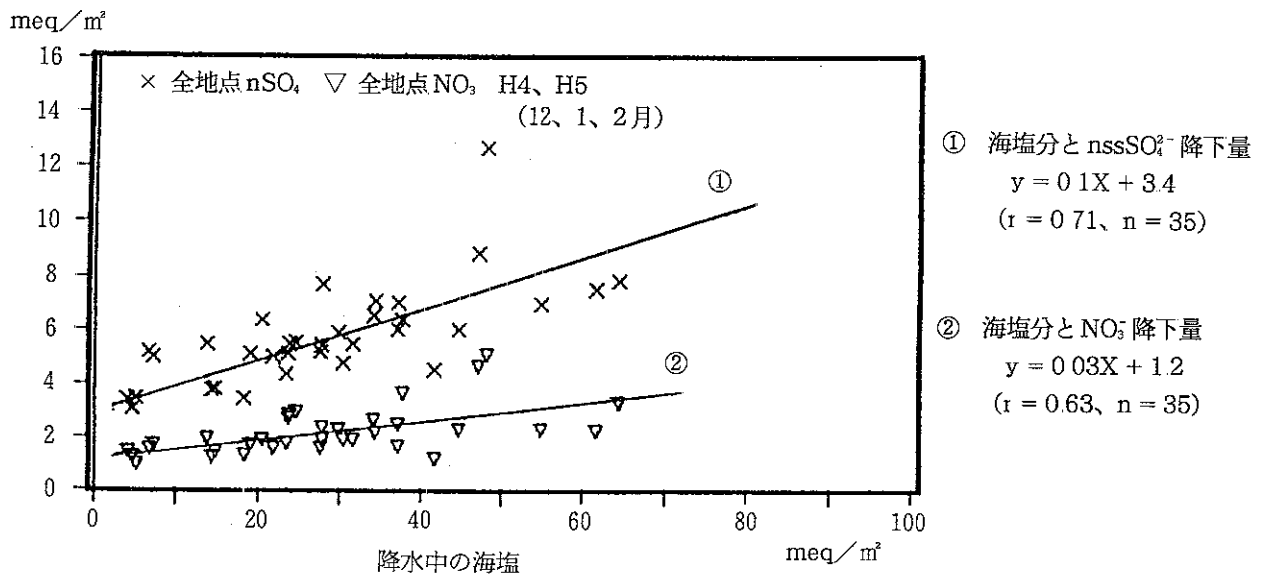


図8 海塩分と nssSO_4^{2-} 、 NO_3^- 降下量

nssSO₄²⁻、NO₃ 降下量は共に海塩分との良い相関関係を示している。これは季節風の影響を受け海塩分が増加すること、気象要因として冬季に大気安定度が良いため強い逆転層¹⁴⁾の頻度が多くなること、また寒気の深まりにより燃料消費量が増加することなどとも関連があると思われる。

このことは酸性雨調査地点に近い大気常時監視局、自排局のデータによっても示唆される。図9、図10でわかるように大気中NO_x、SO_x濃度は冬季が高くなり、またNO_x、SO_x発生源である燃料の販売高を統計年報¹³⁾で見るとA重油、灯油が夏場の2.7倍ある。

図8における回帰直線①の0.1xと②の0.03xのxの係数の差を前述のことと重ねあわせて、nssSO₄²⁻降下量の増加分こそ季節風による長距離移送のSO₂由来のものであると推定される。

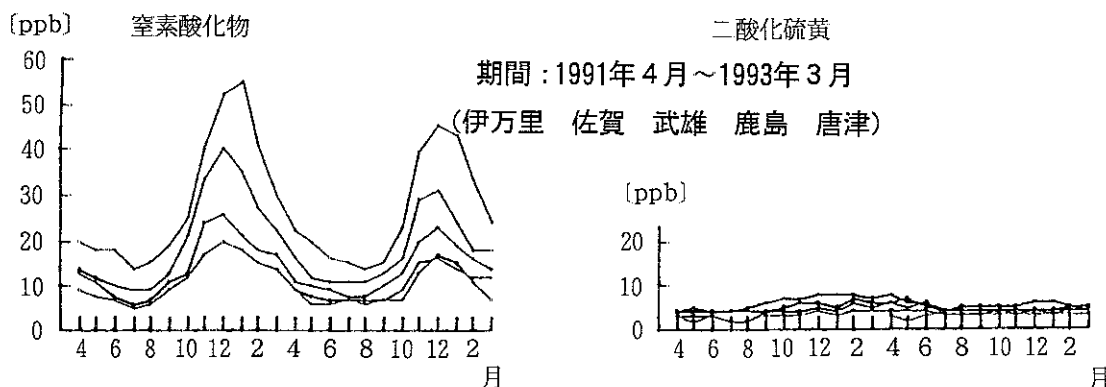


図9 大気常時監視局（一般局）のNO_x、SO₂の月変化

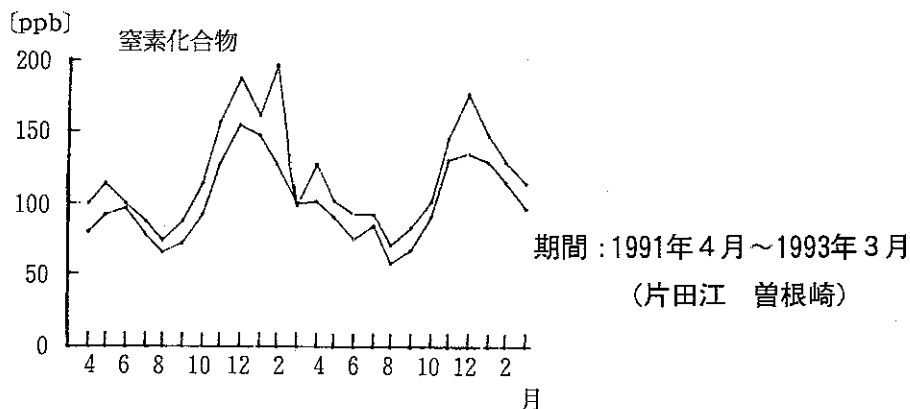


図10 大気常時監視局（自排局）のNO_xの月変化

(3) 清浄地域の富士のnssSO₄²⁻、NO₃ 降下量

富士の場合、先に報告したが⁹⁾、NO₂、SO₃をTEA簡易法により同じ場所で測定しており、いずれも大気中の濃度は低いけれども湿性沈着量が他の地点と変わらないことは雨により搬入されたものと言える。標高が400mあることが豊富な降水量をもたらし、清浄地域であっても寒候季の沈着量が多量の次に多いことは興味深い所である。

4 ま と め

- (1) 県内6地点(佐賀、富士、多久、唐津、伊万里、鹿島)の降水中pHは平成4年度が4.6~5.1(平均4.8)で平成5年度が4.9~5.1(5.1)であった。
- (2) 平成4年度における非海塩性成分の年平均値は H^+ 23.1~8.8 $\mu eq/l$ 、 NH_4^+ が47.9~18.9 $\mu eq/l$ 、 $nssCa^{2+}$ 26.1~12.7 $\mu eq/l$ で、 NO_3^- が20.9~11.5 $\mu eq/l$ 、 $nssSO_4^{2-}$ が52.8~34.1 $\mu eq/l$ であった。
- (3) 平成5年度における非海塩性成分の年平均値は H^+ 13.7~8.7 $\mu eq/l$ で、 NH_4^+ が28.5~11.6 $\mu eq/l$ 、 $nssCa^{2+}$ が18.0~9.4 $\mu eq/l$ であり、 NO_3^- が13.3~8.1 $\mu eq/l$ 、 $nssSO_4^{2-}$ が34.2~21.7 $\mu eq/l$ であった。
- (4) 湿性沈着量は非海塩成分がH4が281~207 meq/m^2 でH5が252~195 meq/m^2 である。H4、H5のカチオン、アニオンについてそれぞれ暖侯季が90~40 meq/m^2 (平均70 meq/m^2)で寒侯季が60~30 meq/m^2 (平均40 meq/m^2)であった。
- (5) $nssSO_4^{2-}$ 沈着量について暖侯季には平成4年度54.7~43.1 meq/m^2 、5年度49.8~27.8 meq/m^2 、寒侯季には平成4年度41.8~22.8 meq/m^2 、5年度39.6~28.5 meq/m^2 であった。
- (6) NO_3^- 沈着量について暖侯季には平成4年度16.7~12.9 meq/m^2 、5年度17.8~9.9 meq/m^2 、寒侯季には平成4年度14.2~7.3 meq/m^2 、5年度13.3~9.3 meq/m^2 であった。
- (7) H^+ 沈着量について暖侯季には平成4年度38.5~8.8 meq/m^2 、5年度23.6~15.0 meq/m^2 、寒侯季には平成4年度18.7~4.6 meq/m^2 、5年度15.9~3.2 meq/m^2 であった。
- (8) NH_4^+ 沈着量について暖侯季には平成4年度16.7~12.9 meq/m^2 、5年度17.8~9.9 meq/m^2 、寒侯季には平成4年度28.4~14.2 meq/m^2 、5年度26.6~12.9 meq/m^2 であった。

謝辞 この調査に協力していただいた伊万里市役所環境衛生課交通対策室織田氏ほか職員の皆様に深謝致します。

参考文献

- 1) 酸性降下物の実態調査(第1~2報)、佐賀県公害センター所報 第7報、昭和63年
- 2) 酸性降下物の実態調査(第3~4報)、" 第8報、平成2年
- 3) 酸性降下物の実態調査(第5~6報)、" 第9報、平成4年
- 4) 九州・沖縄地方酸性雨共同調査報告書、平成元年度、九州衛生公害技術協議会 大気分科会
- 5) " 平成2年度 "
- 6) " 平成3年度 "
- 7) 九州衛生公害技術協議会 第19回 大気分科会講演要旨集(平成5年)
- 8) 九州衛生公害技術協議会 第20回 大気分科会講演要旨集(平成6年)
- 9) 大気汚染学会 第34回 講演要旨集
- 10) 大気汚染学会 第35回 講演要旨集
- 11) 九州・沖縄地域におけるエアロゾル組成調査、'92 IGAC/APARE/PEACAMPOT
航空機・地上観測データ集 国立環境研究所
- 12) 佐賀県気象月報 佐賀地方気象台 平成4年3月~平成6年3月
- 13) 佐賀県統計年鑑 平成5年版
- 14) 環境汚染と気象 p128 朝倉書店 1990年