

愛媛県における酸性雨調査結果について（平成 2～13 年度）

津野田隆敏

The Monitoring Results of Acid Deposition in Ehime Prefecture
(FY 1990 ~ FY 2001)

Takatoshi TSUNODA

In Ehime Prefecture, acid deposition monitoring by the filtrating bulk sampler method is conducted from fiscal 1990 (the Heisei 2 fiscal year) in Matsuyama City, Niihama City and Yawatahama City. Since more than ten years have already passed after starting monitoring, it analyzed as to transition and seasonal variation of concentration and deposition amounts of major constituents in precipitation, from April 1990 to March 2002 in Matsuyama City, from April 1991 to March 2002 in Niihama City and Yawatahama City. Furthermore, it analyzed also as to transition and seasonal variation about deposition amounts of major constituents in filter paper surface residual substances.

Consequently, the pH values of precipitation in Matsuyama City, Niihama City and Yawatahama City ranged over 3.8 to 6.8, 3.5 to 7.1 and 3.8 to 6.9, respectively. The average values of pH weighted by precipitation amounts in the monitoring period were 4.6, 4.6, and 4.8, respectively. Annual mean H^+ concentration in precipitation of Matsuyama City and Niihama City on the monitoring period showed the decrease tendency. Niihama City in fiscal 2000, and Yawatahama City in fiscal 1991 and fiscal 1992 showed the high value as to concentrations and deposition amounts of SO_4^{2-} , nss- SO_4^{2-} , Cl^- , NH_4^+ , etc. About the ratio of NO_3^- to nss- SO_4^{2-} , concentration ratio and deposition amounts ratio showed the increase tendency at all points. NH_4^+ concentration and NH_4^+ deposition amounts showed the increase tendency since fiscal 1995 at all points. Deposition amounts of nss- Ca^{2+} , Ca, Fe, Al and Mn showed the tendency which becomes high in spring at all points. It was presumed that Kosa (Asian soil dusts) has contributed as one of the causes, from monthly variations in observation days of Kosa by the Matsuyama Local Meteorological Observatory.

Keywords : acid rain, sulfate, nitrate, NO_3^- /non-sea-salt SO_4^{2-} ratio, Kosa

はじめに

環境問題が、従来の公害問題から地球温暖化をはじめとする地球規模の問題へと拡がりつつある中で、我が国においては、東アジア諸国の近代化に伴う大気汚染物質排出量の増大、中国における砂漠化の進行に伴って越境飛来する黄砂の増加による降水及び環境大気への影響が懸念されつつある。地球環境問題の一つである酸性雨問題については、環境庁が昭和 58 年度から 4 次に亘るモニタリング調査を実施しており、また、全国公害研協議会(現全国環境研協議会)酸性雨調査研究部会において

愛媛県立衛生環境研究所 松山市三番町 8 丁目 234 番地

も、平成 3 年度から 3 次に及ぶ全国共同酸性雨調査が行われている。

愛媛県における酸性雨調査は、昭和 57 年度から、松山市及び新居浜市において梅雨期と秋雨期のみ行われていたが、平成 2 年度より通年調査に改め、調査地点として新たに八幡浜市を加えた県下 3 地点において、継続して調査を行っている。本調査は、通年調査を開始して以来、既に 10 年余り経過していることから、平成 13 年度までの間における降水主要成分の濃度及び沈着量に係る推移と季節変動を解析するとともに、濾紙上残留物における主要成分沈着量についても解析を行ったので報告する。

調査の方法

1. 試料採取方法

試料は、孔径 $0.8\mu\text{m}$ 、直径 47mm のメンブランフィルター (Nuclepore ポリカーボネート) を取り付けた柴田科学(株)製 W-102 型濾過式採取装置を用い、週単位で濾液と濾紙上残留物に分けて採取した。

2. 調査地点、調査期間

調査地点は、松山市、新居浜市及び八幡浜市の 3 地点で、図 1 に示すとおりである。

なお、新居浜市及び八幡浜市については、新居浜保健所及び八幡浜中央保健所で採取しているが、庁舎の老朽化に伴って、平成 4 年 6 月に新居浜市八雲町から本郷へ、平成 9 年 7 月に八幡浜市松柏から北浜へとそれぞれ新築

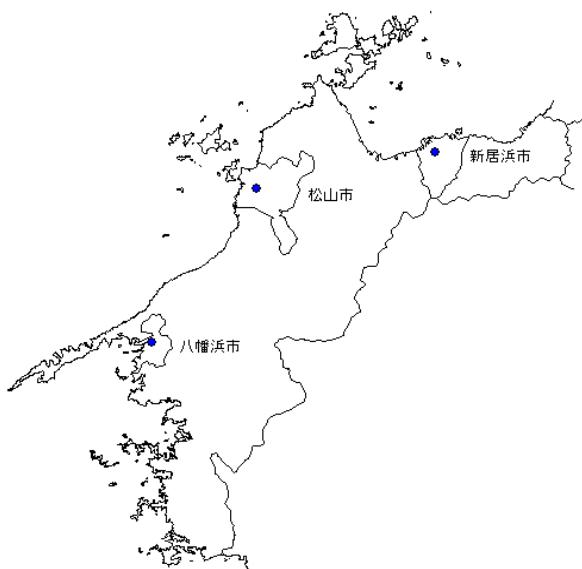


図 1 愛媛県における酸性雨調査地点

移転しており、その際に試料採取装置を移設している。

各調査地点の緯度、経度、海からの直線距離及び調査期間は、表 1 のとおりである。調査は平成 2 年度から実施したが、同年 4 月から実施したのは松山市ののみで、新居浜市と八幡浜市については同年 5 月から調査を行った。降水主要成分の年間沈着量の算定にあたっては、1 年間の調査結果を必要とするため、新居浜市と八幡浜市については平成 2 年 5 月から翌年 3 月における調査結果を棄却し、平成 3 年 4 月の調査結果から解析を行った。

3. 調査項目及び分析方法

調査は、濾過式採取装置で捕集した濾液と濾紙上残留物について行った。

調査項目は、濾液については、降水量、pH、電気伝導率 (EC)、硫酸イオン (SO_4^{2-})、硝酸イオン (NO_3^-)、塩化物イオン (Cl^-)、アンモニウムイオン (NH_4^+)、カルシウムイオン (Ca^{2+})、マグネシウムイオン (Mg^{2+})、カリウムイオン (K^+)、及びナトリウムイオン (Na^+) であり、濾紙上残留物については、カルシウム (Ca)、マグネシウム (Mg)、カリウム (K)、ナトリウム (Na)、鉄 (Fe)、アルミニウム (Al) 及びマンガン (Mn) である。

分析方法については、表 2 のとおりである。

なお、濾紙上残留物は、酸性雨調査マニュアル¹⁾に従つて濃硝酸及び過酸化水素による加熱分解処理を行った。

結果と考察

1. 降水量

各地点の調査期間における降水量の経月変化を図 2 に示す。各地点とも、梅雨期にあたる 6 月及び 7 月と、台風や秋雨期にあたる 9 月に降水量が多く、11 月から 2 月

表 1 調査地点及び調査期間

調査地点	松山市	新居浜市	八幡浜市
採取場所	愛媛県立衛生環境研究所	新居浜保健所 (旧庁舎)	八幡浜中央保健所 (旧庁舎)
緯度 (北緯)	33度50分	33度57分	33度27分
経度 (東経)	132度45分	133度17分	132度26分
海からの直線距離 (km)	5.5	1.6	1.7
調査期間	平成2年4月～14年3月 (平成4年6月新庁舎へ移転)	平成2年5月～14年3月 (平成9年7月新庁舎へ移転)	平成2年5月～14年3月 (平成9年7月新庁舎へ移転)

表 2 分析方法

調査項目	分析方法
降水量	貯水量を捕集面積で割る
pH	ガラス電極法
電気伝導率 (EC)	電気伝導率計
硫酸イオン (SO_4^{2-})	イオンクロマトグラフ法
硝酸イオン (NO_3^-)	イオンクロマトグラフ法
塩化物イオン (Cl^-)	吸光光度法 (インドフェノール法)
アンモニウムイオン (NH_4^+)	吸光光度法 (インドフェノール法)
カルシウムイオン (Ca^{2+})	フレーム原子吸光光度法
マグネシウムイオン (Mg^{2+})	フレーム原子吸光光度法
カリウムイオン (K^+)	フレーム原子吸光光度法
ナトリウムイオン (Na^+)	フレーム原子吸光光度法
鉄 (Fe)	フレーム原子吸光光度法
アルミニウム (Al)	フレーム原子吸光光度法
マンガン (Mn)	フレーム原子吸光光度法

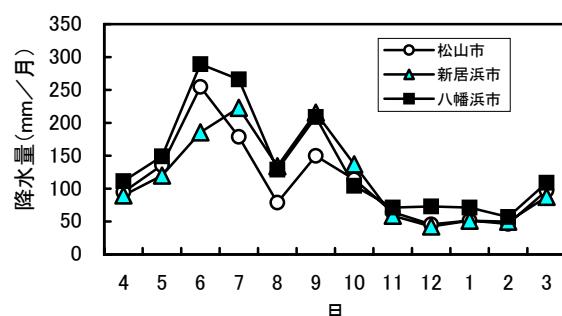


図 2 降水量の経月変化

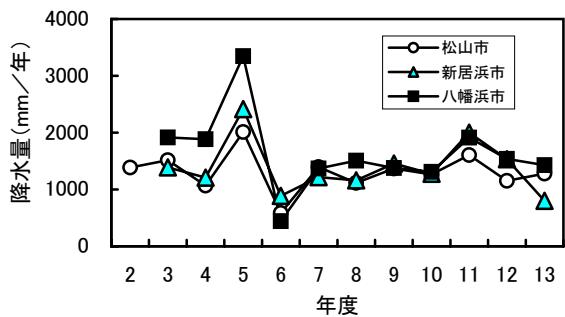


図3 降水量の経年変化

表3 平成3年度から13年度における年平均降水量

調査地点	年平均降水量(mm)	(参考)アメダス降水量(mm)
松山市	1305.1	1338.4
新居浜市	1394.7	1258.7
八幡浜市	1639.3	1509.2

における降水量は少なかった。

各地点の降水量の経年変化を図3に示す。3地点とも平成5年度に最も降水量が多く、調査期間中の平均値(以下、「平年値」と略す。)に比べ、1.6～2.5倍の降水量であった。平成6年度の降水量は、前年度とは逆に大きく減少した。平成3年度から5年度における八幡浜市の降水量は、他の2地点より400mm/年以上多かった。

表3に、平成3年度から13年度における年平均降水量を気象庁の地域気象観測システム(AMeDAS: Automated Meteorological Data Acquisition System, 以下「アメダス」と略す。)による降水量観測結果とともに示す。八幡浜市は、他の2地点より降水量が多いが、松山市と新居浜市には大きな差はみられなかった。また、年平均降水量については、酸性雨調査地点とアメダスの

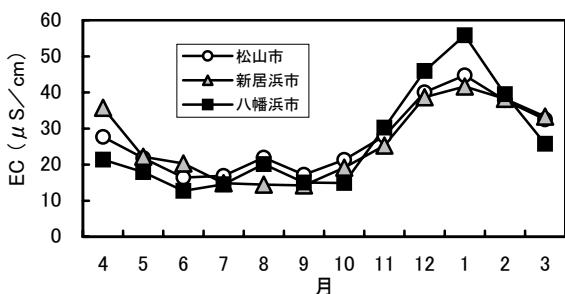


図4 ECの経月変化

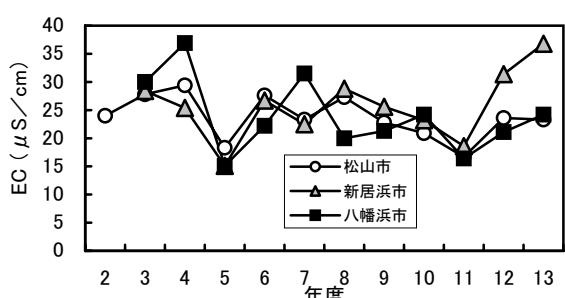


図5 ECの経年変化

観測結果に大きな差はみられなかった。

2. 電気伝導率

各地点の降水におけるECの経月変化を図4に、ECの経年変化を図5に示す。各地点とも、降水量の少ない冬季に高くなる傾向が見られた。ECの年平均値は、降水量が多かった平成5年度及び11年度に20µS/cm未満の低い値を示していた。また、松山市と八幡浜市は平成4年度が最も高く、新居浜市は平成13年度が最も高い値を示していた。ECの推移については、各地点とも統計的に有意な($p < 0.05$)増減の傾向がみられなかった。

3. pH

各地点におけるpHの年平均値と、降水量で重み付けした調査期間におけるpHの平均値を表4に示す。週単位で採取した降水のpHは、松山市が3.8～6.8、新居浜市が3.5～7.1、八幡浜市が3.8～6.9の範囲にあり、調査期間におけるpHの加重平均値は、松山市と新居浜市が4.6、八幡浜市は4.8であった。

表4 pH年平均値及び調査期間におけるpH加重平均値

年度	松山市	新居浜市	八幡浜市
2	4.4(3.9～5.6)		
3	4.3(3.8～5.7)	4.4(4.0～5.8)	4.7(4.1～6.7)
4	4.4(3.9～6.3)	4.5(3.5～5.7)	4.7(4.0～6.5)
5	4.7(4.1～6.8)	4.6(3.9～6.0)	4.9(4.2～6.1)
6	4.8(4.2～6.5)	4.6(3.9～6.0)	5.1(4.6～5.8)
7	4.5(4.0～5.9)	4.5(3.8～5.1)	4.5(3.9～5.8)
8	4.5(3.9～5.6)	4.4(3.8～5.6)	4.7(4.3～5.7)
9	4.7(4.0～6.3)	4.6(4.1～5.5)	4.9(4.3～6.6)
10	4.8(3.9～6.5)	4.7(4.0～6.7)	5.0(3.8～6.7)
11	4.8(4.0～6.7)	4.7(4.0～6.7)	5.0(4.0～6.8)
12	5.0(4.2～6.7)	4.9(4.0～7.1)	5.0(4.1～6.9)
13	4.8(4.1～6.5)	4.8(4.1～6.5)	4.9(3.9～6.8)
加重平均値	4.6	4.6	4.8

備考：括弧内の数値は、最小値及び最大値である。

調査期間におけるpHをモル濃度に換算し、降水量で加重平均したH⁺濃度の経月変化を図6に示す。松山市と新居浜市は3月に最も高い濃度を示した。八幡浜市は、降水量の少ない12月と1月に濃度が高かった。また、八幡浜市のH⁺濃度は、冬季を除いて3地点の中で最も濃度が低かった。

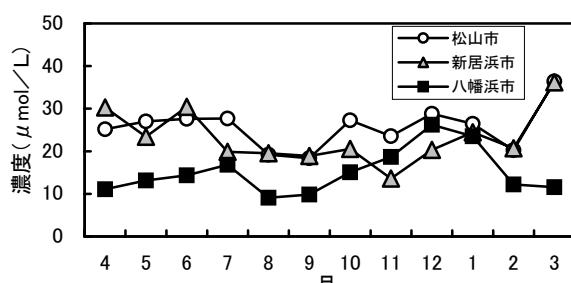


図6 H⁺濃度の経月変化

H⁺濃度の経年変化を図7に示す。松山市と新居浜市は、調査期間において有意な($p < 0.01$)減少傾向を示

していた。

4. 硫酸イオン

SO_4^{2-} 濃度（降水量で加重平均、他の項目も同じ）及び SO_4^{2-} 沈着量の経月変化を図8に示す。 SO_4^{2-} 濃度については、降水量の少ない12月から2月にかけて高く、降水量の多い6月から10月にかけて低い傾向がみられた。また、 SO_4^{2-} 沈着量が最も多かった月は、松山市と

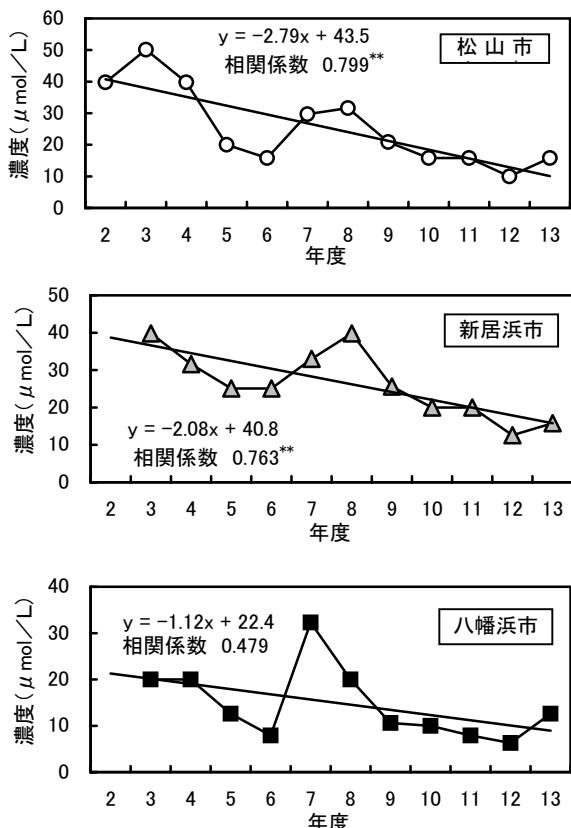


図7 H^+ 濃度の経年変化

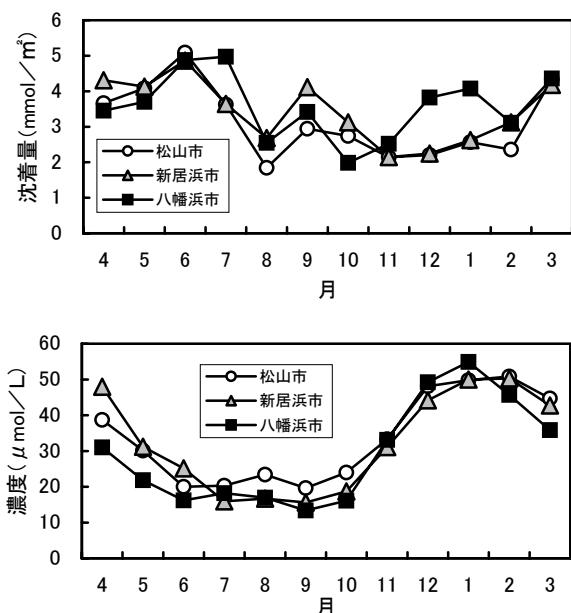


図8 SO_4^{2-} 濃度及び沈着量の経月変化

新居浜市が6月、八幡浜市が7月であった。冬季の SO_4^{2-} 沈着量は地点間で異なっており、八幡浜市における12月と1月の SO_4^{2-} 沈着量は、松山市及び新居浜市に比べ、1.6～1.7倍多かった。

SO_4^{2-} 濃度及び SO_4^{2-} 沈着量の経年変化を図9に示す。 SO_4^{2-} 年間沈着量の調査期間における平均値は、松山市では 37.6 mmol/m^2 、新居浜市では 40.7 mmol/m^2 、八幡浜市では 42.5 mmol/m^2 であり、地点間には大きな差はみられなかった。

SO_4^{2-} 濃度は、降水量が最も多かった平成5年度に低く、年降水量が最も少ない平成6年度(新居浜市は平成13年度)に高い値を示した。新居浜市における SO_4^{2-} 濃度及び沈着量は、平成12年度に最高値(平年値の約1.5倍)を示していたが、これは平年値の約1.4倍の SO_4^{2-} 濃度が寄与したもので、この年の新居浜市における降水量は平年並みであった。八幡浜市における平成3年度及び4年度の SO_4^{2-} 沈着量は、平年値の約1.8倍高い値であったが、これは平年値の約1.6倍の SO_4^{2-} 濃度と、平年値の約1.2倍の年間降水量に起因している。

降水中の Na^+ がすべて海塩に由来すると仮定し、海水組成比から算出²⁾³⁾した非海塩由来の硫酸イオン(non sea salt; nss- SO_4^{2-})濃度とnss- SO_4^{2-} 沈着量の経年変化を図10に示す。 SO_4^{2-} 沈着量に対するnss- SO_4^{2-} 沈着量の割合の調査期間における平均値は、松山市が95.2%、新居浜市が95.6%、八幡浜市が88.0%であり、nss- SO_4^{2-} 沈着量が SO_4^{2-} 沈着量のほとんどを占めていた。 SO_4^{2-} 濃度と SO_4^{2-} 沈着量の経年変化に関してみられた特徴は、図10に示したnss- SO_4^{2-} 濃度とnss- SO_4^{2-} 沈着量でも同様であった。新居浜市の平成12年度、並びに八幡浜市の平成3年度及び4年度におけるnss- SO_4^{2-} 沈着量の SO_4^{2-} 沈着量に対する割合は、それぞれ約96%，約87%，約85%であり、人為的発生源⁴⁾や火山由来⁵⁾の

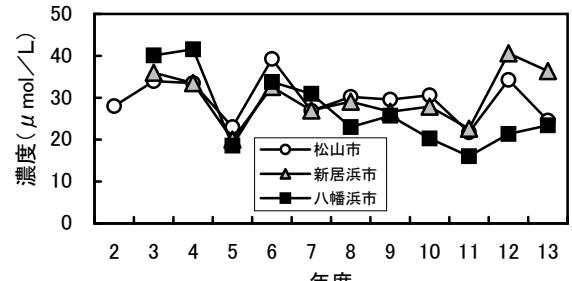
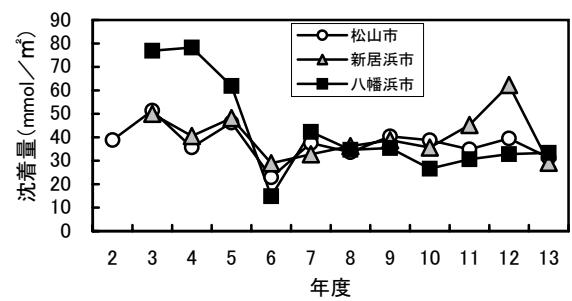


図9 SO_4^{2-} 濃度及び沈着量の経年変化

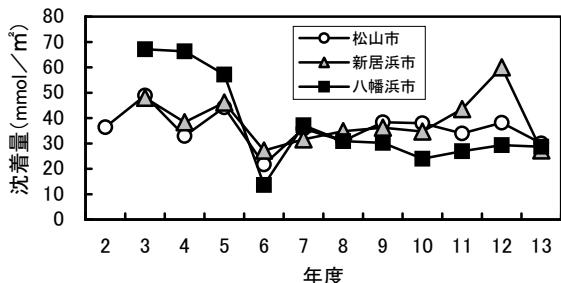


図 10 nss-SO₄²⁻濃度及び沈着量の経年変化

影響が推察された。

なお、SO₄²⁻濃度、SO₄²⁻沈着量、nss-SO₄²⁻濃度及びnss-SO₄²⁻沈着量における年平均値の推移については、有意な ($p < 0.05$) 増減傾向はみられなかった。

5. 硝酸イオン

NO₃⁻濃度及びNO₃⁻沈着量の経月変化を図11に示す。NO₃⁻濃度については、降水量の少ない12月から2月にかけて高濃度な、降水量の多い6月から9月にかけて低濃度な傾向がみられた。NO₃⁻沈着量については、松山市及び新居浜市では梅雨期にあたる6月の沈着量が多く、八幡浜市では12月の沈着量が最も多かった。また、2月から10月におけるNO₃⁻沈着量は、新居浜市が3地点の中で最も多かった。

NO₃⁻濃度及びNO₃⁻沈着量の経年変化を図12に示す。NO₃⁻年間沈着量の調査期間における平均値は、松山市では31.4mmol/m²、新居浜市では47.2mmol/m²、八幡浜市では37.0mmol/m²であり、新居浜市のNO₃⁻沈着量が最も多かった。

松山市におけるNO₃⁻の年間沈着量は20～40mmol/m²の範囲にあり、他の2地点ほど大きな変動はみられなかつた。新居浜市のNO₃⁻沈着量は、平成11年度及び12年度に多かった。平成11年度にNO₃⁻沈着量が多かったのは、降水量が平成5年度に次いで多かったことに起因しているもので、NO₃⁻濃度は平年並みであった。一方、平成12年度については、降水量は平年並みであったが、NO₃⁻濃度及び沈着量は最高値(平年値のそれぞれ約1.6倍、約1.8倍)を示しており、また、SO₄²⁻と同様に、3地点の中で最も高い値であった。なお、平成13年度の新居浜市におけるNO₃⁻濃度が調査期間の中で最も高かったのは、降水量が少なかったことによるもので、NO₃⁻沈着量は平年値並であった。八幡浜市のNO₃⁻沈着量は

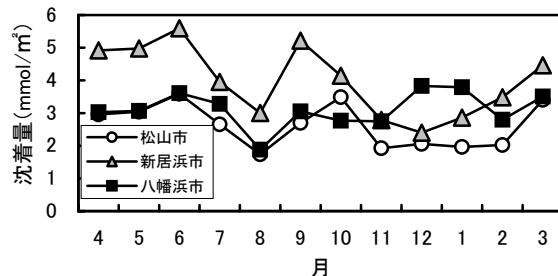


図 11 NO₃⁻濃度及び沈着量の経月変化

平成4年度が最も多く、平年値の約1.8倍であった。これは、この年のSO₄²⁻沈着量と同様、NO₃⁻濃度及び降水量の両方が平年値より高い値(平年値のそれぞれ約1.5倍、約1.2倍)であったことに起因している。また、八幡浜市は、平成3年度におけるNO₃⁻濃度、降水量及びNO₃⁻沈着量が、平年値のそれぞれ約1.2倍、約1.2倍、約1.4倍高い値を示していた。

なお、NO₃⁻濃度及びNO₃⁻沈着量の年平均値の推移については、有意な ($p < 0.05$) 増減傾向はみられなかつた。

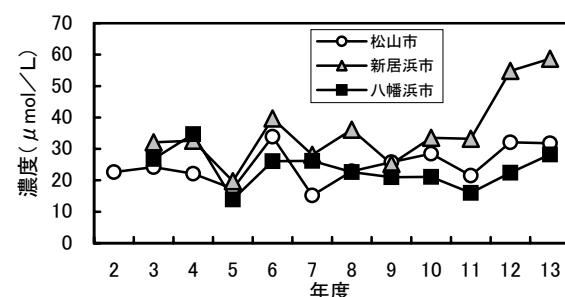
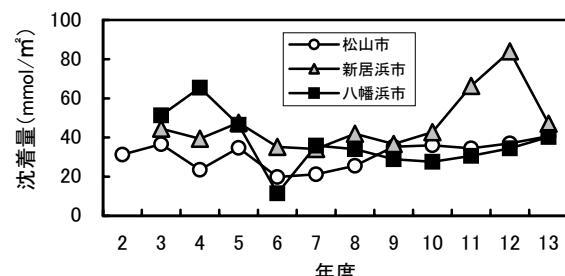


図 12 NO₃⁻濃度及び沈着量の経年変化

6. 非海塩由来硫酸イオンと硝酸イオンの比較

nss-SO₄²⁻濃度に対するNO₃⁻濃度(ともに当量濃度)

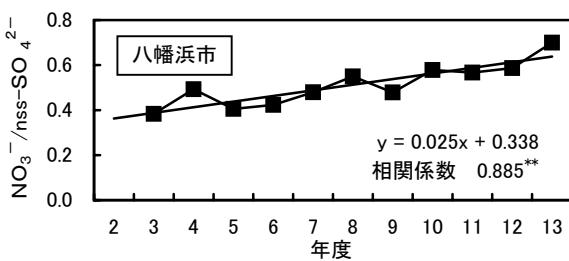
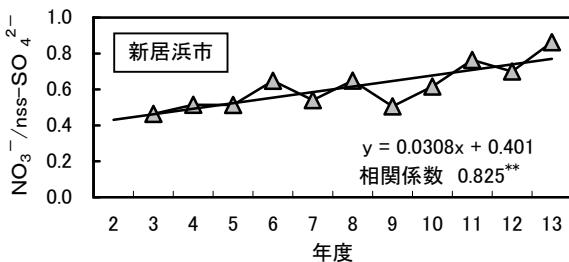
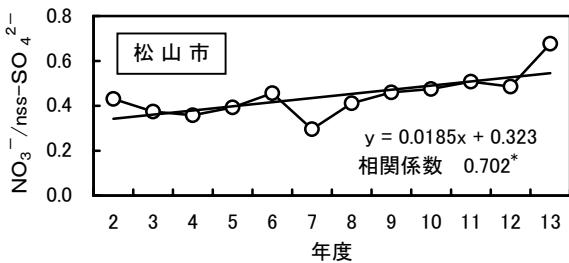


図 13 $\text{NO}_3^-/\text{nss}-\text{SO}_4^{2-}$ 当量濃度比の経年変化

の割合の経年変化を図 13 に示す。 $\text{NO}_3^-/\text{nss}-\text{SO}_4^{2-}$ 比は、3 地点とも有意な(松山市; $p < 0.05$, 新居浜市及び八幡浜市; $p < 0.01$) 減少傾向を示していた。また、3 地点の中では新居浜市が最も高い増加傾向を示していた。

$\text{nss}-\text{SO}_4^{2-}$ 沈着量に対する NO_3^- 沈着量(モル沈着量)の割合の経年変化を図 14 に示す。沈着量における $\text{NO}_3^-/\text{nss}-\text{SO}_4^{2-}$ 比も、3 地点とも有意な(松山市; $p < 0.05$, 新居浜市及び八幡浜市; $p < 0.01$) 増加傾向を示していた。また、新居浜市は濃度比と同様に最も高い増加傾向を示していた。新居浜市が最も増加傾向を示しているのは、新居浜市及びその周辺地域において固定発生源等から排出される窒素酸化物の排出量が他の地域より多いことに起因しているのではないかと推察される。また、全地点で $\text{NO}_3^-/\text{nss}-\text{SO}_4^{2-}$ 比が増加傾向を示しているが、その原因としては、地域的な発生源による影響と、越境汚染を含めた広域的な大気汚染⁶⁾⁷⁾による影響とが推察される。

松山市及び新居浜市内の大気汚染常時監視システムによる地表付近の大気中二酸化硫黄及び窒素酸化物濃度の年平均値⁸⁾の経年変化を図 15 及び図 16 に示す。地表付近の大気中二酸化硫黄及び窒素酸化物濃度のデータからは、降水のような $\text{N}/\text{S}(\text{NO}_x/\text{SO}_2)$ 比增加の傾向は明らかにならなかった。これは、酸性雨採取地点と大気汚染汚染常時監視測定局では設置場所が異なること、降水

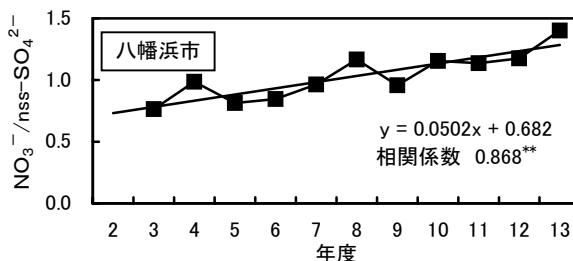
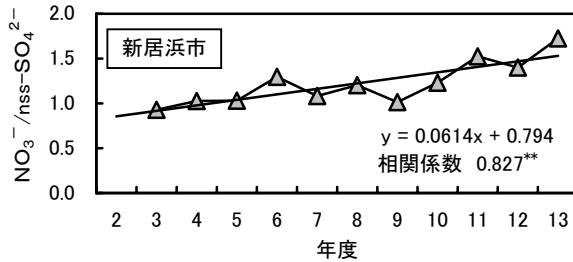
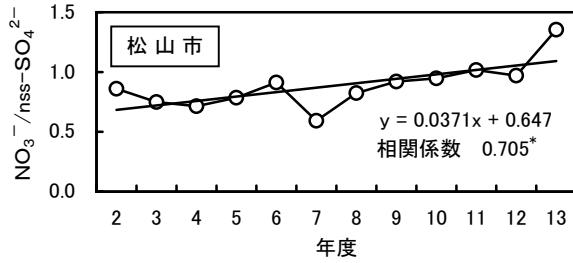


図 14 $\text{NO}_3^-/\text{nss}-\text{SO}_4^{2-}$ 沈着量比の経年変化

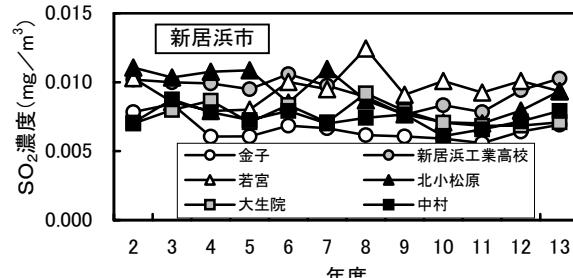
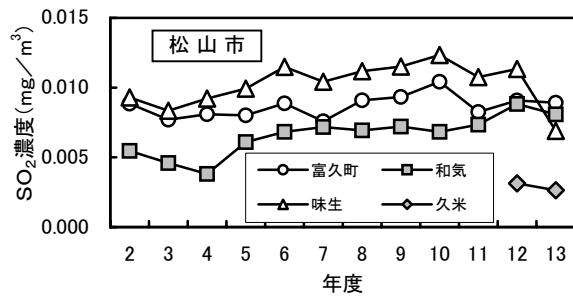


図 15 地上付近の大気中二酸化硫黄濃度の経年変化

中の酸性化物質濃度において、地表付近の大気汚染物質による寄与が、雲粒が発生、移動する上空の大気汚染物質による寄与より小さい可能性があること等が考えられる。

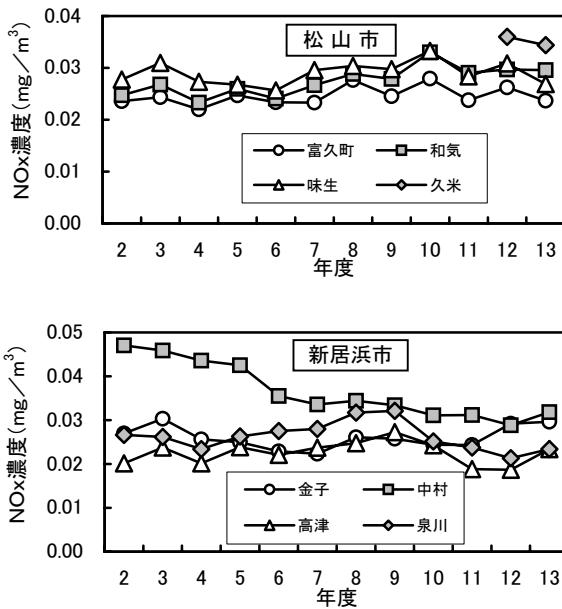


図 16 地表付近の大気中窒素酸化物濃度の経年変化

7. 塩化物イオン

Cl^- 濃度と Cl^- 沈着量の経月変化を図 17 に示す。 Cl^- 濃度は、11月から2月にかけて濃度が高い傾向がみられた。この時期は北西季節風による影響と、降水量が少ないことが影響しているものと思われる。 Cl^- 沈着量も1月を頂点とした冬季に多い傾向であった。

Cl^- 濃度と Cl^- 沈着量の経年変化を図 18 に示す。 Cl^- 年間沈着量の調査期間における平均値は、松山市では $46.7 \text{ mmol}/\text{m}^2$ 、新居浜市では $45.7 \text{ mmol}/\text{m}^2$ 、八幡浜市では $110.8 \text{ mmol}/\text{m}^2$ であり、八幡浜市の Cl^- 沈着量は、松山市や新居浜市に比べ2倍以上の値であった。八幡浜市の

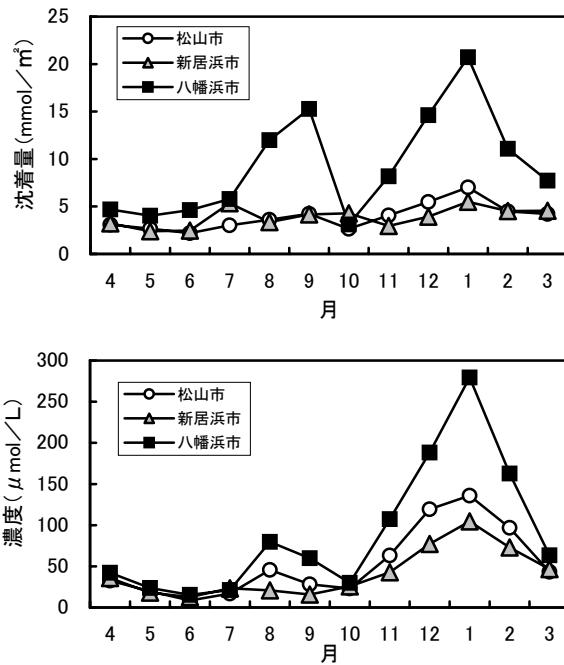


図 17 Cl^- 濃度及び沈着量の経月変化

平成3年度及び4年度における Cl^- 沈着量は、 $200 \text{ mmol}/\text{m}^2$ を超える高い値を示しており、平年値よりそれぞれ約2.0倍、約2.2倍多かった。また、 Cl^- 濃度も平年値のそれぞれ約1.8倍、約1.9倍高い値であった。

なお、各地点とも Cl^- 濃度及び Cl^- 沈着量のいずれにおいても有意な($p < 0.05$)増減傾向はみられなかった。

8. アンモニウムイオン

NH_4^+ 濃度及び NH_4^+ 沈着量の経月変化を図 19 に示す。 NH_4^+ 濃度については、降水量の少ない冬季に高濃度な、降水量の多い6月から9月に低濃度な傾向がみられた。

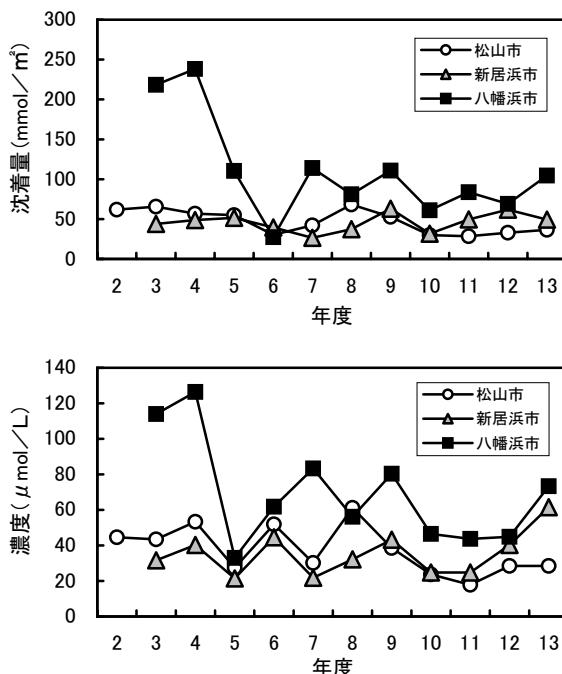


図 18 Cl^- 濃度及び沈着量の経年変化

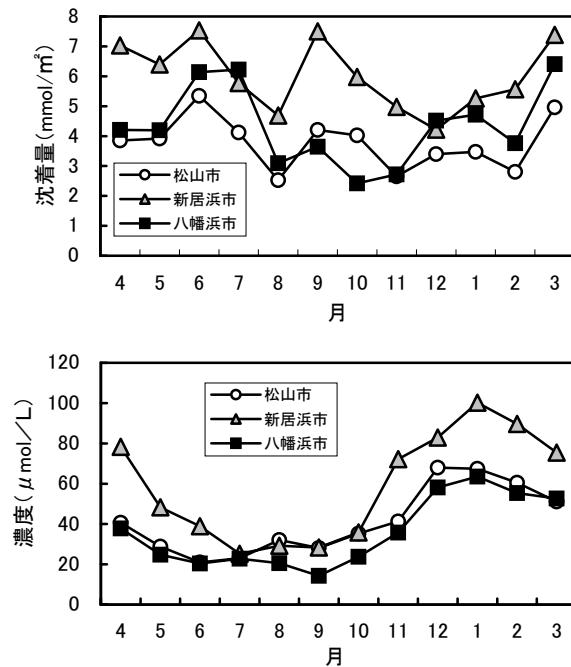


図 19 NH_4^+ 濃度及び沈着量の経月変化

新居浜市における NH_4^+ 濃度は、7月と10月を除き、3地点の中で最も多かった。 NH_4^+ 沈着量は、6月と3月に多く、また、7月と12月以外は新居浜市の NH_4^+ 沈着量が3地点の中で最も多かった。

NH_4^+ 濃度及び NH_4^+ 沈着量の経年変化を図20に示す。調査期間における NH_4^+ 年間沈着量の平均値は、松山市では 45.0 mmol/m^2 、新居浜市では 71.9 mmol/m^2 、八幡浜市では 52.0 mmol/m^2 であり、新居浜市の NH_4^+ 沈着

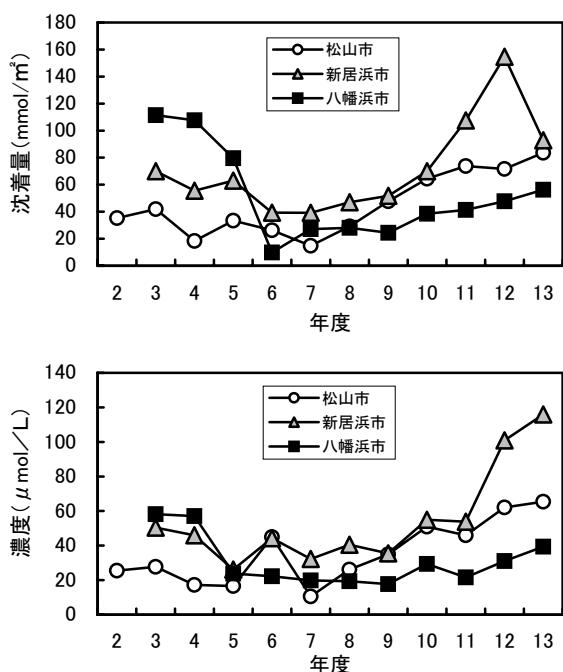


図20 NH_4^+ 濃度及び沈着量の経年変化

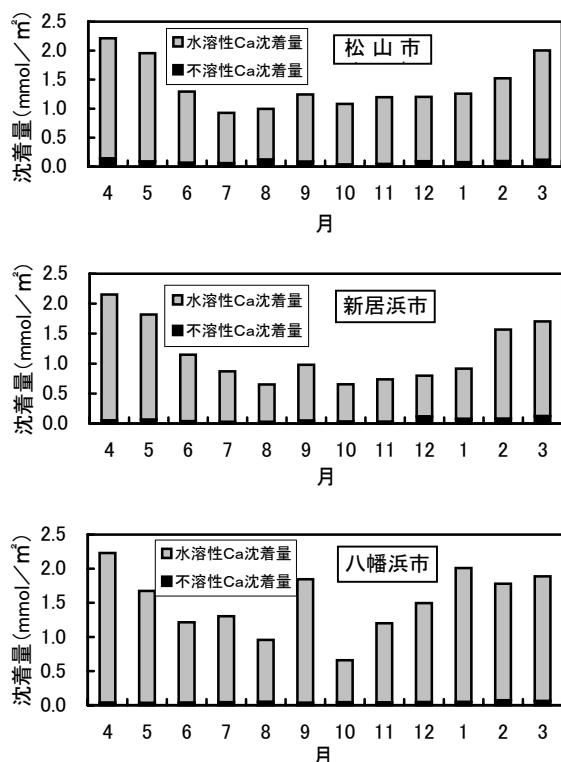


図21 Ca沈着量の経月変化

量が最も多かった。

松山市は、平成7年度以降、 NH_4^+ 沈着量、 NH_4^+ 濃度とともに有意な($p < 0.01$)增加傾向がみられた。新居浜市の NH_4^+ 沈着量は、 NO_3^- 沈着量と同様に、平成11年度及び12年度に多かった。平成11年度における NH_4^+ 沈着量は、 NH_4^+ 濃度が平年並みであるにもかかわらず、降水量の多さが寄与して高い値を示した。平成12年度における NH_4^+ 沈着量は平年値の約2.2倍高い値であったが、これは SO_4^{2-} 及び NO_3^- と同様に、高い NH_4^+ 濃度(平年値の約2倍)に起因している。平成13年度における NH_4^+ 濃度は、調査期間の中で最も高濃度であったが、降水量が少なかったため平年並みの NH_4^+ 沈着量であった。また、平成7年度以降、 NH_4^+ 沈着量及び NH_4^+ 濃度とも有意な(NH_4^+ 沈着量; $p < 0.05$, NH_4^+ 濃度; $p < 0.01$)增加傾向がみられた。八幡浜市は、平成3年度及び4年度における NH_4^+ 濃度、 NH_4^+ 沈着量が平年の約2倍であった。また、他の地点同様、平成7年度以降、 NH_4^+ 沈着量、 NH_4^+ 濃度とも有意な(NH_4^+ 沈着量; $p < 0.01$, NH_4^+ 濃度; $p < 0.05$)增加傾向がみられた。

9. カルシウムイオン

Ca, Mg, K, Naの4項目については、濾過式採取装置で採取した濾液中の濃度と濾紙上残留物における濃度を測定している。本装置が常時開放型であることを考慮し、濾液の測定結果から得られた水溶性 Ca^{2+} の沈着量と濾紙上残留物の測定結果から得られた不溶性Caの沈着量を合わせて、経月変化及び経年変化を解析した結果を図21及び図22に示す。水溶性成分及び不溶性成分を合算したCa年間沈着量の調査期間における平均値は、

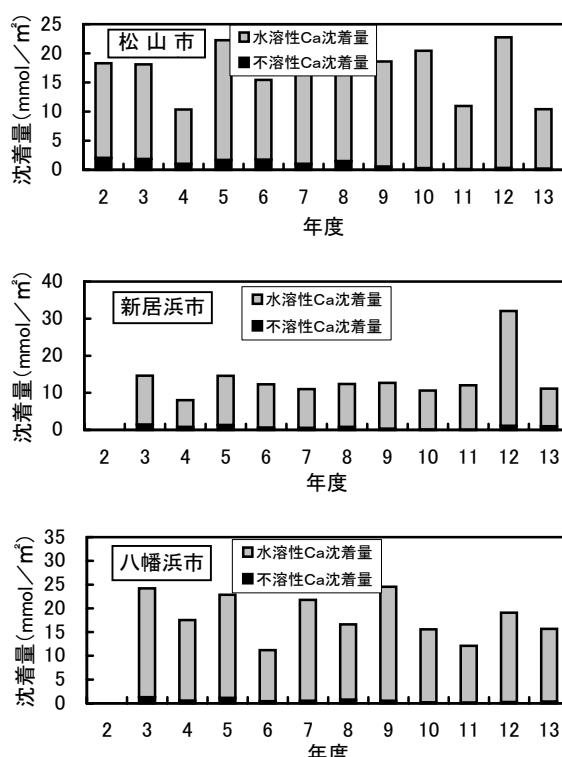


図22 Ca沈着量の経年変化

松山市では 16.7 mmol/m^2 , 新居浜市では 13.8 mmol/m^2 , 八幡浜市では 18.3 mmol/m^2 であり, 新居浜市の Ca 沈着量が最も少なかった。

松山市と新居浜市は, 2月から5月にかけて月間 1.5 mmol/m^2 以上の Ca 沈着量を示した。八幡浜市は12月から5月にかけて Ca 沈着量が多かった。Ca 年間沈着量については, 松山市及び八幡浜市が $10 \sim 25 \text{ mmol/m}^2$ の範囲に, 新居浜市は平成12年度を除き $5 \sim 15 \text{ mmol/m}^2$ の範囲にあったが, 新居浜市の平成12年度における Ca 沈着量は, 平年値の約 2.3 倍であった。この年は, 松山

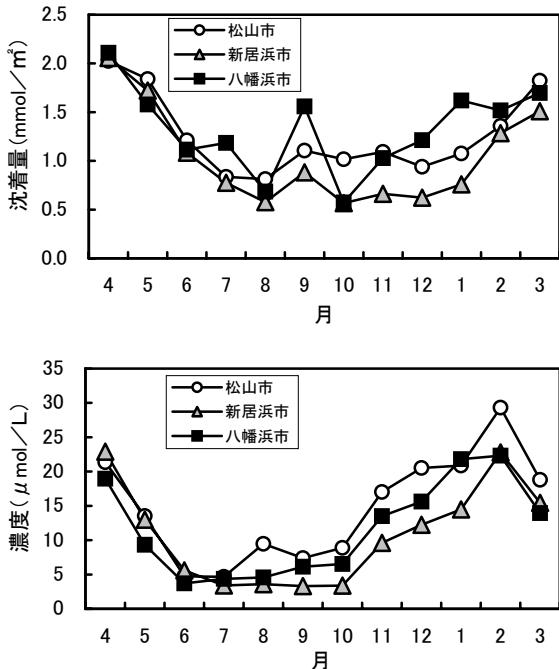


図 23 nss - Ca^{2+} 濃度及び沈着量の経月変化

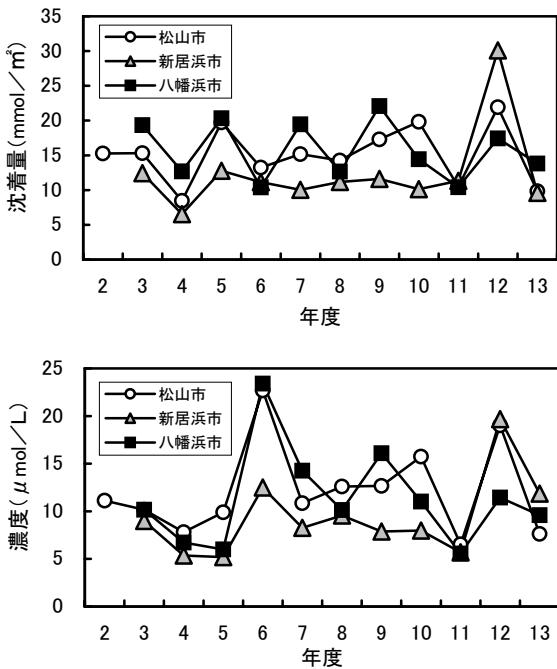


図 24 nss - Ca^{2+} 濃度及び沈着量の経年変化

市における Ca 沈着量も平年値の約 1.4 倍あり, 両地点とも調査期間における最高値を示していた。

降水中の非海塩由来カルシウムイオン ($\text{nss} - \text{Ca}^{2+}$) 濃度と $\text{nss} - \text{Ca}^{2+}$ 沈着量の経月変化を図 23 に示す。 $\text{nss} - \text{Ca}^{2+}$ 濃度は降水量の少ない冬季に高く, $\text{nss} - \text{Ca}^{2+}$ 沈着量は3月から5月の春季に多い傾向を示した。

水溶性 Ca^{2+} 沈着量に対する水溶性 $\text{nss} - \text{Ca}^{2+}$ 沈着量の割合の調査期間における平均値は, 松山市が 95.9%, 新居浜市が 95.3%, 八幡浜市が 88.7% であり, $\text{nss} - \text{SO}_4^{2-}$ と同様に, $\text{nss} - \text{Ca}^{2+}$ 沈着量がほとんどを占めていた。

$\text{nss} - \text{Ca}^{2+}$ 濃度と $\text{nss} - \text{Ca}^{2+}$ 沈着量の経年変化を図 24 に示す。松山市と八幡浜市の濃度は, 調査期間で最も降水量が少なかった平成6年度に最も高かったが, $\text{nss} - \text{Ca}^{2+}$ 沈着量は平年値以下であった。新居浜市は, $\text{nss} - \text{Ca}^{2+}$ 濃度及び $\text{nss} - \text{Ca}^{2+}$ 沈着量とも平成12年度に最も高い値を示し, 平年値のそれぞれ約 2.2 倍, 約 2.4 倍であった。この年は, 松山市も $\text{nss} - \text{Ca}^{2+}$ 沈着量が最も多く, $\text{nss} - \text{Ca}^{2+}$ 濃度及び沈着量は平年値の約 1.7 倍及び約 1.5 倍であった。

10. マグネシウムイオン

水溶性 Mg^{2+} の沈着量と濾紙上残留物の測定結果から得られた不溶性 Mg 沈着量を合わせて, 経月変化及び経年変化を解析した結果を図 25 及び図 26 に示す。水溶性成分及び不溶性成分を合算した Mg 年間沈着量の調査期間における平均値は, 松山市では 7.8 mmol/m^2 , 新居浜市では 7.9 mmol/m^2 , 八幡浜市では 14.5 mmol/m^2 であり, 八幡浜市の Mg 沈着量は他の地点の約 2 倍であった。

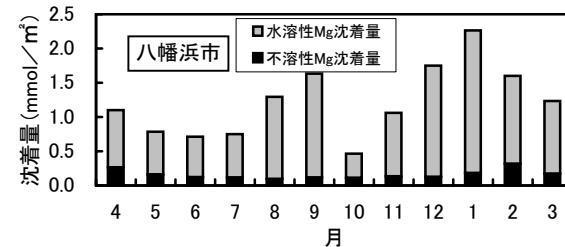
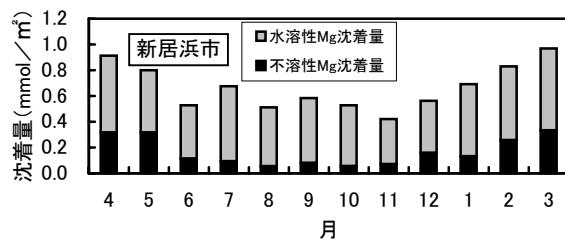
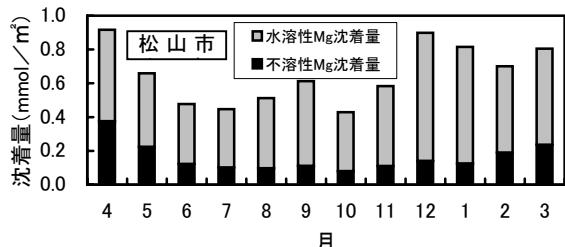


図 25 Mg 沈着量の経月変化

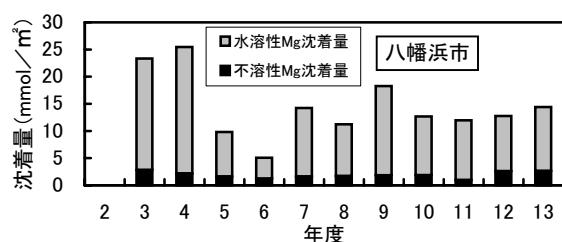
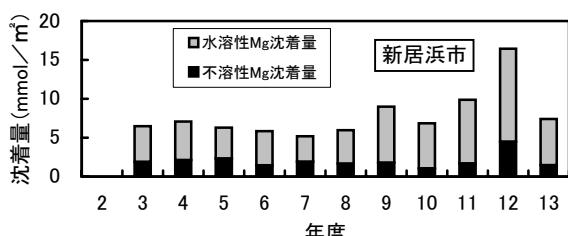
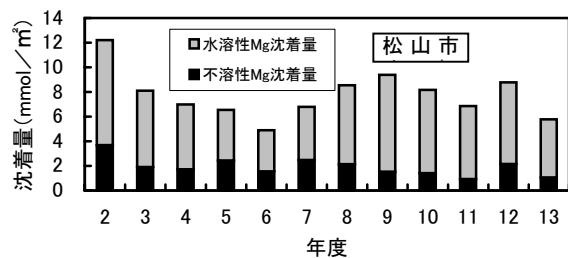


図 26 Mg 沈着量の経年変化

新居浜市は春季の Mg 沈着量が最も多く、松山市では冬季から春季にかけて Mg 沈着量が多かった。八幡浜市は冬季の Mg 沈着量が最も多く、8月と9月の Mg 沈着量も多かった。Mg の年間沈着量については、松山市では平成2年度における Mg 沈着量が平年値の約 1.6 倍であり、新居浜市は平成12年度における Mg 沈着量が平年値の約 2.1 倍であった。八幡浜市は、平成6年度における Mg 沈着量が調査期間中において最も少なく、平年値の約 3 割であった。また、平成3年度及び4年度における Mg 沈着量は、平年値のそれぞれ約 1.6、約 1.8 倍であった。

11. カリウムイオン

水溶性 K⁺の沈着量と濾紙上残留物の測定結果から得られた不溶性 K 沈着量を合算して、経月変化及び経年変化をとりまとめた結果を図 27 及び図 28 に示す。水溶性成分及び不溶性成分を合算した K 年間沈着量の調査期間における平均値は、松山市では 3.6 mmol/m²、新居浜市では 4.6 mmol/m²、八幡浜市では 7.2 mmol/m² あり、八幡浜市の K 沈着量が最も多く、松山市の K 沈着量が最も少なかった。

松山市と新居浜市は春季の K 沈着量が最も多かった。八幡浜市は9月の K 沈着量が最も多く、冬季の沈着量も多かった。新居浜市における平成5年度の K 沈着量は、平年値の約 1.9 倍であった。この年は、松山市及び八幡浜市における K 沈着量も平年値を上回っており、調査期間における降水量が最も多い年であったことから、

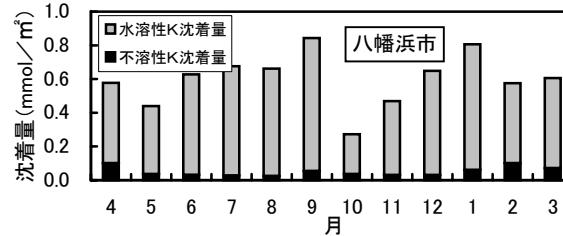
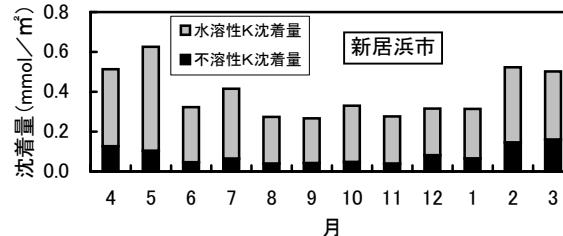
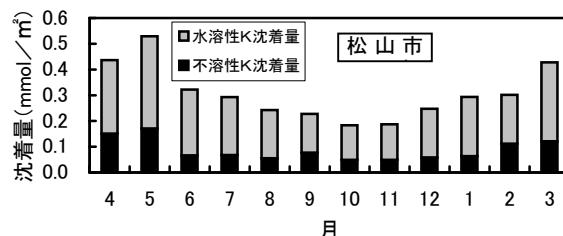


図 27 K 沈着量の経月変化

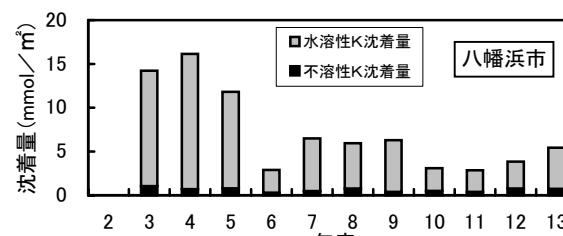
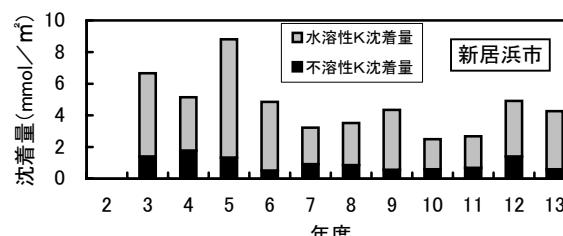
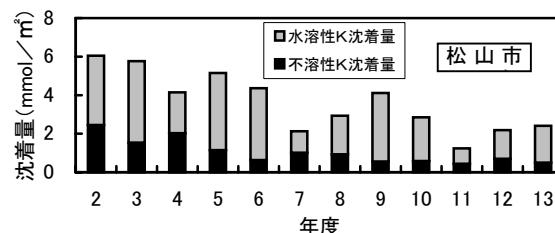


図 28 K 沈着量の経年変化

降水量がK沈着量に寄与したものと推察された。八幡浜市の平成3年度及び4年度におけるK沈着量は、平年値の2倍以上であった。

12. ナトリウムイオン

水溶性Na⁺の沈着量と濾紙上残留物の測定結果から得られた不溶性Na沈着量を合計して、経月変化及び経年変化をとりまとめた結果を図29及び図30に示す。水溶性成分及び不溶性成分を合算したNa年間沈着量の調査期間における平均値は、松山市では30.6mmol/m²、新居浜市では30.4mmol/m²、八幡浜市では84.9mmol/m²であり、八幡浜市におけるNa沈着量は他の地点の約2.8倍であった。

Na沈着量は、各地点とも冬季に最も多い傾向を示した。調査期間における各地点のNa沈着量は、松山市と八幡浜市では平成4年度に最も多く、新居浜市では平成9年度に最も多かった。八幡浜市は、平成3年度及び4年度に平年値に対して約1.9倍、約2.3倍高いNa沈着量を示した。また、八幡浜市は、平成9年7月より海から0.2kmほどの新庁舎へ移設しているが、移設前と移設後のNa沈着量を比較しても、平成3年度及び4年度を除き、特に大きな差はみられなかった。

13. 鉄、アルミニウム及びマンガン

濾過式採取装置で採取した濾紙上残留物による不溶性Fe、Al、Mnの沈着量、経月変化及び経年変化をとりまとめた結果を図31及び図32に示す。不溶性Fe年間沈着量の調査期間における平均値は、松山市では4.6mmol/m²、新居浜市では4.3mmol/m²、八幡浜市では

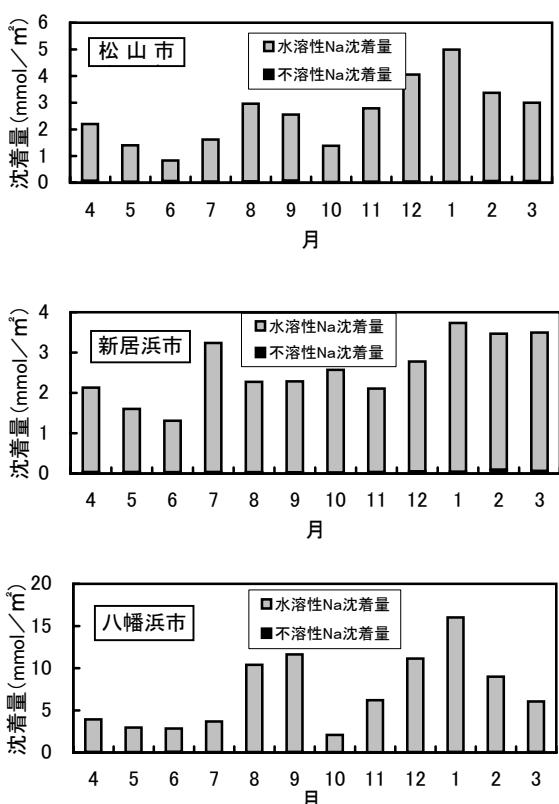


図29 Na沈着量の経月変化

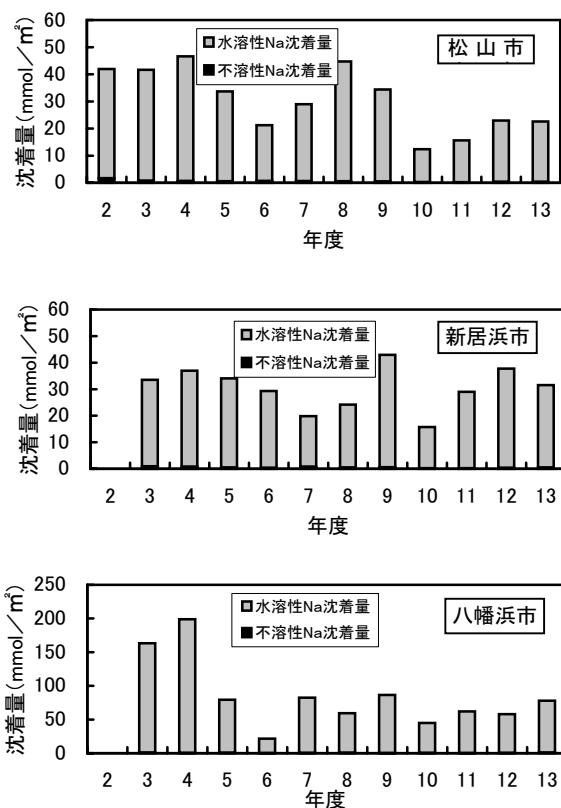


図30 Na沈着量の経年変化

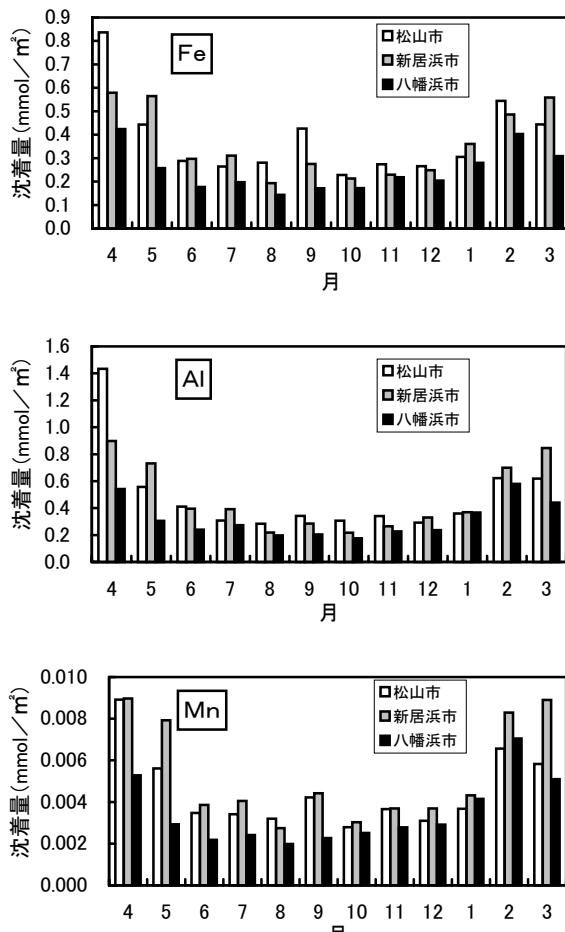


図31 Fe, Al, Mn沈着量の経月変化

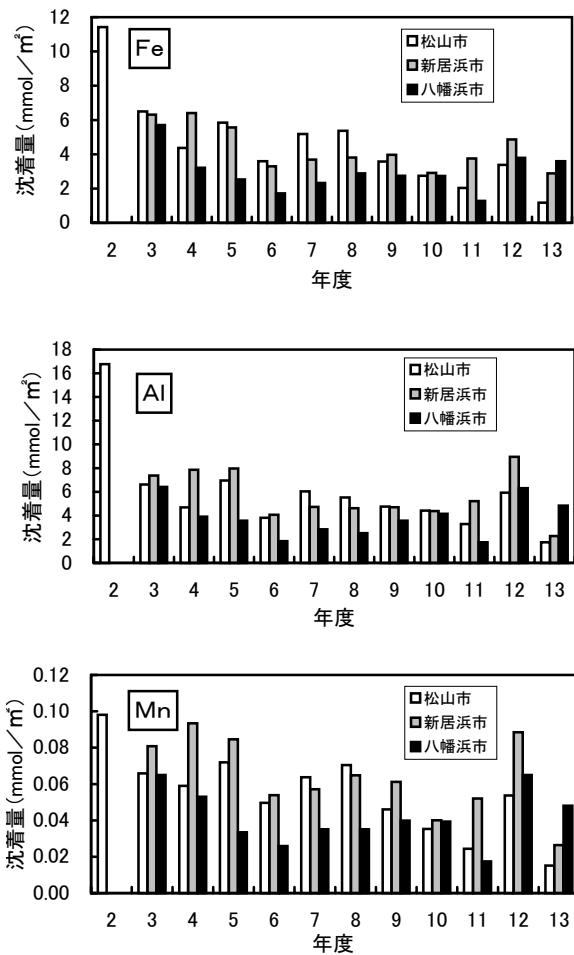


図 32 Fe, Al, Mn 沈着量の経年変化

3.0mmol / m²であり、不溶性 Al 年間沈着量の平均値は、松山市では 5.9mmol / m²、新居浜市では 5.7mmol / m²、八幡浜市では 3.8mmol / m²であった。八幡浜市における不溶性 Fe 沈着量及び不溶性 Al 沈着量は、他の地点の約 3 割であった。不溶性 Mn 年間沈着量の平均値は、松山市が 0.054mmol / m²、新居浜市が 0.064mmol / m²、八幡浜市が 0.042mmol / m²であり、Fe や Al に比べ 2 枠低い値であった。八幡浜市における不溶性 Mn 沈着量は新居浜市の約 3 割であり、松山市における不溶性 Mn 沈着量は八幡浜市に次いで少なかった。

不溶性 Fe, Al, Mn の沈着量は、3 地点とも 2 月から 5 月にかけて多かった。松山市における不溶性 Fe, Al, Mn の沈着量は平成 2 年度が最も多く、Fe と Al の沈着量は、平年値の約 2.5 倍、約 2.9 倍であった。新居浜市では、Fe と Mn の沈着量は平成 4 年度が最も多く、Al の沈着量は平成 12 年度が最も多かった。八幡浜市における Fe, Al, Mn の沈着量は平成 3 年度が最も多かった。Fe, Al, Mn は土壤由来とされ、大気浮遊粒子状物質濃度が春季に増加することへの黄砂の寄与が報告⁹⁾¹⁰⁾されている。そこで、図 33 に松山地方気象台が観測¹¹⁾した平成 2 年度から 13 年度における黄砂の月間延べ観測日数を示す。4 月をピークとして、1 月から 5 月にかけて

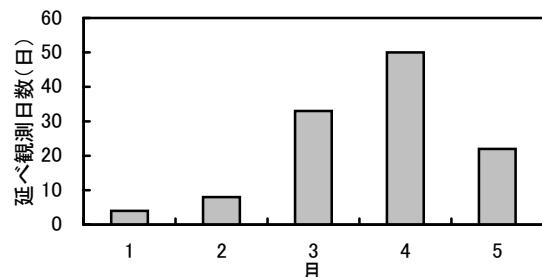


図 33 平成 2 年度から 13 年度における黄砂観測日数の経月変化

黄砂が観測されており、本調査における Ca, Fe, Al 及び Mn の沈着量が春季に高いことへの黄砂の寄与が推察された。

まとめ

松山市、新居浜市及び八幡浜市の 3 地点において実施している酸性雨調査結果について、平成 2 年度(松山市以外の地点は 3 年度)から 13 年度における降水主要成分の推移等について解析した結果、次のことが明らかとなった。

1. 週単位で採取した降水の pH は、松山市が 3.8 ~ 6.8、新居浜市が 3.5 ~ 7.1、八幡浜市が 3.8 ~ 6.9 の範囲にあり、調査期間における pH の加重平均値は、松山市と新居浜市が 4.6、八幡浜市は 4.8 であった。
2. 松山市と新居浜市における降水中 H⁺濃度の年平均値は、調査期間において減少傾向を示していた。
3. 新居浜市は、平成 12 年度に SO₄²⁻, nss-SO₄²⁻, NO₃⁻, NH₄⁺ 及び nss-Ca²⁺ における濃度及び沈着量、並びに Ca 及び Mg の沈着量が高い値を示した。八幡浜市では、平成 3 年度及び 4 年度に SO₄²⁻, nss-SO₄²⁻, Cl⁻ 及び NH₄⁺ における濃度及び沈着量、並びに Mg, K 及び Na の沈着量が高い値を示しており、また、平成 4 年度における八幡浜市は、NO₃⁻ の濃度及び沈着量についても高い値を示していた。
4. nss-SO₄²⁻ に対する NO₃⁻ の割合については、濃度比、沈着量比とも全ての地点で增加傾向が認められ、中でも新居浜市の増加傾向が最も高いことが明らかとなつた。
5. NH₄⁺ 濃度及び NH₄⁺ 沈着量は、3 地点とも平成 7 年度以降增加傾向を示していた。
6. nss-Ca²⁺ 沈着量、Ca 沈着量、Fe 沈着量、Al 沈着量及び Mn 沈着量は、春季に高くなる傾向を示した。その原因の一つとして、松山地方気象台による黄砂観測日数の経月変化から、黄砂の寄与が推察された。

謝 辞

本調査を進めるにあたり試料採取等に協力いただいた八幡浜中央保健所、並びに気象資料を提供いただいた松山地方気象台の関係各位に感謝の意を表します。

文 献

- 1) 環境庁大気保全局：酸性雨調査マニュアル(改訂版)
(1990)
- 2) 酸性雨調査法研究会編(環境庁大気保全局大気規制課監修)：酸性雨調査法, (株)ようせい, 267, 268
(1993)
- 3) 気象庁編：海洋観測指針(第1部), (財)気象業務支援センター, 31 (1999)
- 4) 全国公害研協議会酸性雨調査研究部会編：全国公害研会誌, 20 (2), 2 - 55 (1995)
- 5) 全国環境研協議会酸性雨調査研究部会編：全国環境研会誌, 27 (2), 2 - 60 (2002)
- 6) 藤田慎一：大気環境学会誌, 37, 1 - 22 (2002)
- 7) 市川陽一：大気環境学会誌, 33, A9 - A18 (1998)
- 8) 愛媛県民環境部環境局環境政策課：愛媛県環境白書, 各年版
- 9) 京谷智裕ほか：大気環境学会誌, 35, 287 - 300 (2000)
- 10) 前田泉ほか：岡山県環境保健センター年報, 26, 1 - 7 (2002)
- 11) 松山地方気象台調べ