

## ノート

# 四日市地域における酸性雨の状況について (平成16年度調査結果全国比較)

西山 亨, 佐来栄治, 塚田 進

## Acid Deposition Survey in Yokkaichi Area of Mie Prefecture (Comparison with 2004 Fiscal Year Data on Nationwide Monitoring Network by Environmental Laboratories Association)

Tooru NISHIYAMA, Eiji SARAI and Susumu TSUKADA

平成16年度に四日市市内の2地点(新正, 桜町)で実施した降水の調査結果を, 昨年度公表された全国環境研協議会の平成16年度酸性雨全国調査結果と比較した。その結果, 水素イオン濃度, 初期酸度については中央値よりは酸性側にあるものの, 相対的な酸性度の低下が確認できた。また, 全国環境研協議会が新しく設定した地域区分(表2)の中では, 両地点とも中央部と日本海側の中間付近に位置する傾向を示した。非海塩成分沈着量に関しては, 新地域区分と比較すると特に桜町の沈着量が多く, また, 全無機態窒素沈着量と潜在水素イオン沈着量に関しては, 減少はしたものの, 桜町では平成15年度と同様に全国で5番以内の多い沈着量であった。

キーワード: 酸性雨, 第4次酸性雨全国調査, 初期酸度, 全無機態窒素, 潜在水素イオン, 全国環境研協議会

### はじめに

我が国における酸性雨の全国的な調査は, 主に2種類あり, 一つは, 昭和58年度から行われている環境省の酸性雨モニタリングであり, もう一つは, 平成3年度から行われている地方自治体の全国環境研協議会酸性雨全国調査である。

当部では, 昭和60年から酸性雨調査を実施しており<sup>1)-18)</sup>, 地方自治体として全国環境研協議会酸性雨全国調査に参加してきた<sup>19)-27)</sup>。今回は昨年度に平成16年度酸性雨全国調査結果<sup>26)27)</sup>(以降, H16全国調査)が公表されたことを受けて, 当部で調査していた2地点(H16全国調査での参加地点及び独自地点)についての調査結果<sup>16)</sup>との比較検討を行ったところ, 若干の知見が得られたので報告する。

### 方 法

#### 1. 比較データについて

比較を行った対象は, 既報<sup>16)</sup>の調査結果とH16全国調査<sup>26)27)</sup>で報告された表1に示す期間のデータである。当部では2地点(四日市市新正: 準工業地域(参加地点)及び四日市市桜町: 原野(独自地点))での調査<sup>16)</sup>の内, H16全国調査とサンプリング方法が同じである降水時開放型捕集装置(Wet-Only サンプラー)で採取した試料を測定したデータを採用した。また, 比較対象の全国データとしては, H16全国調査で年平均値が解析対象となっている58地点<sup>26)</sup>のデータを採用した。

なお, 分析項目と分析方法は既報<sup>16)</sup>及び

H16 全国調査と同様に「酸性雨調査法」<sup>28)</sup>、「湿性沈着モニタリング手引き書」<sup>29)</sup>に従い、採取した試料を捕集量の計量後、測定・分析を行うと共に、捕集面積から降水量を算出(単位 mm)した。

## 2. 比較項目

比較項目としては、各種イオン濃度や(水素イオン濃度、初期酸度、硝酸、非海塩性硫酸、全無機態窒素、潜在水素イオン)の濃度及び沈着量を対象とした。

表1 酸性雨調査期間

| 季節 | 月   | 期間(平成16年度)            | 週   |
|----|-----|-----------------------|-----|
| 春  | 4月  | 3月29日(月) ~ 4月26日(月)   | 4週間 |
|    | 5月  | 4月26日(月) ~ 5月31日(月)   | 5週間 |
|    | 6月  | 5月31日(月) ~ 6月28日(月)   | 4週間 |
| 夏  | 7月  | 6月28日(月) ~ 8月2日(月)    | 5週間 |
|    | 8月  | 8月2日(月) ~ 8月30日(月)    | 4週間 |
|    | 9月  | 8月30日(月) ~ 9月27日(月)   | 4週間 |
| 秋  | 10月 | 9月27日(月) ~ 11月1日(月)   | 5週間 |
|    | 11月 | 11月1日(月) ~ 11月29日(月)  | 4週間 |
|    | 12月 | 11月29日(月) ~ 12月27日(月) | 4週間 |
| 冬  | 1月  | 12月27日(月) ~ 1月31日(月)  | 5週間 |
|    | 2月  | 1月31日(月) ~ 2月28日(月)   | 4週間 |
|    | 3月  | 2月28日(月) ~ 3月28日(月)   | 4週間 |

## 3. 新地域区分

H16 全国調査では、今までの全国環境研協議会酸性雨全国調査で行われていた地域区分に代わり、重要なイオン成分( $nss-SO_4^{2-}$ 、 $NO_3^-$ 、 $NH_4^+$ および  $nss-Ca^{2+}$ )のそれぞれについて、月データにおける地点間の相関を検討した上で新しい地域区分<sup>26)</sup>が採用された。比較対象の58地点の新地域区分別地点数は表2に示すとおりである。なお、新正・桜町はCJ(中央部)に区分される。

表2 新地域区分

| 略称 | 名称     | 地点数  |
|----|--------|------|
| NJ | 北部     | 7地点  |
| JS | 日本海側   | 12地点 |
| EP | 東部太平洋側 | 12地点 |
| CJ | 中央部    | 11地点 |
| WJ | 西部     | 16地点 |

## 結果及び考察

### 1. 濃度の比較

#### 1) 主要イオン成分濃度比較

全国加重平均濃度を1とした時の主要イオン成分濃度比を図1に示した。新正・桜町ともに  $H^+$ 、 $NO_3^-$ 、 $NH_4^+$ 、 $nss-SO_4^{2-}$ が全国加重平均濃度より高かった。また、JS(日本海側)とNJ(北部)は海塩成分の影響を強く受けているが、新正・桜町は比較的海塩成分の影響が少なかった。特に桜町は、 $NO_3^-$ 、 $NH_4^+$ がEP(東部太平洋側)に次いで高く、 $nss-Ca^{2+}$ を除いてEPに似た傾向を示した。

#### 2) pHとpAiについて

図2にH16全国調査と新正・桜町のpHとpAi(初期酸度<sup>30)31)</sup>との関係を示した。平成15年度と比較<sup>16)24)25)</sup>すると全国的に酸性度は低下し、同様に新正・桜町でも酸性度が低下した(表3)。新正・桜町について、平成15年度の比較<sup>16)</sup>では、pHは低い方から2番目、pAiは低い方から7番目であったが、平成16年度は両地点とも低い方からpHは25%付近、pAiは30%付近に位置した。全国的な順位は下がったものの全国的には中央値よりも酸性度は依然として高く、

中和成分は少ないという傾向を示しているが、平成15年度と比較すると相対的には酸性度は低くなった。

また、新地域区分に着目すると、新正・桜町ともにCJの中でも酸性度の高い方に位置し、むしろCJとJSの中間付近に位置した。

#### 3) $nss-SO_4^{2-}$ 濃度と $NO_3^-$ 濃度について

図3にH16全国調査と新正・桜町の $nss-SO_4^{2-}$ と $NO_3^-$ との関係を示した。平成15年度と比較<sup>16)</sup>すると全国的に濃度は低下しており、また、新正・桜町ともに、 $nss-SO_4^{2-}$ が比較的高濃度であるという特徴はなくなっている。

また、新地域区分に着目すると、新正・桜町ともにCJの中では高濃度付近に位置し、むしろCJとJSの中間付近に位置した。

#### 4) $\Sigma N$ 濃度とHeff濃度について

全無機態窒素( $\Sigma N$ )は湖沼の富栄養化の指標として、また、潜在水素イオン(Heff)は土壤の酸性化の指標としてよく用いられる<sup>30)32)</sup>。

図4にH16全国調査と新正・桜町の $\Sigma N$ 濃度とHeff濃度の関係を示した。平成15年度と同様<sup>17)</sup>に $\Sigma N$ 濃度とHeff濃度間には、新正・桜町を含んで全地点を通じて、高い正の相関があ

り、そのことは新正・桜町ともいえる (n=59, r=0.970). 平成15年度と比較<sup>17)</sup>すると全国的に濃度が低下したが、新正・桜町とも低下したので、全国的な位置付けは殆ど同じであった。

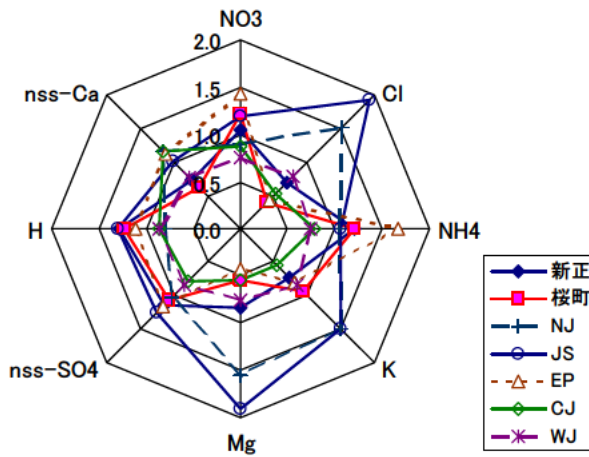


図1 全国加重平均を1とした時の主要イオン成分の濃度比

平成16年度において新正・桜町より高濃度な地点は、EPに多く、低濃度側の塊の高濃度側に位置した。

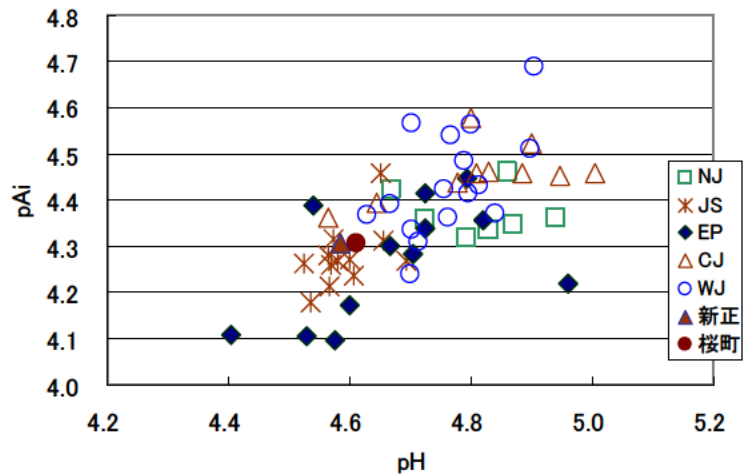


図2 pHとpAiの関係

表3 新正、桜町、全国加重平均のpHとpAi

|        | 新正pH | 桜町pH | 全国pH | 新正pAi | 桜町pAi | 全国pAi |
|--------|------|------|------|-------|-------|-------|
| 平成15年度 | 4.44 | 4.44 | 4.63 | 4.09  | 4.12  | 4.27  |
| 平成16年度 | 4.59 | 4.61 | 4.70 | 4.31  | 4.31  | 4.36  |

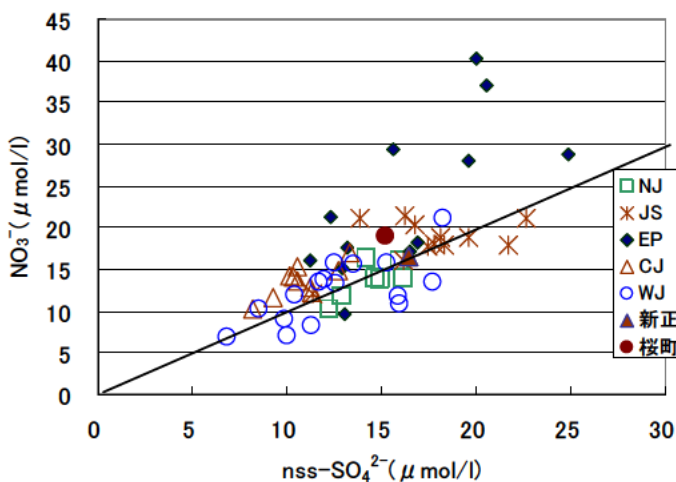


図3 nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度とNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度の関係

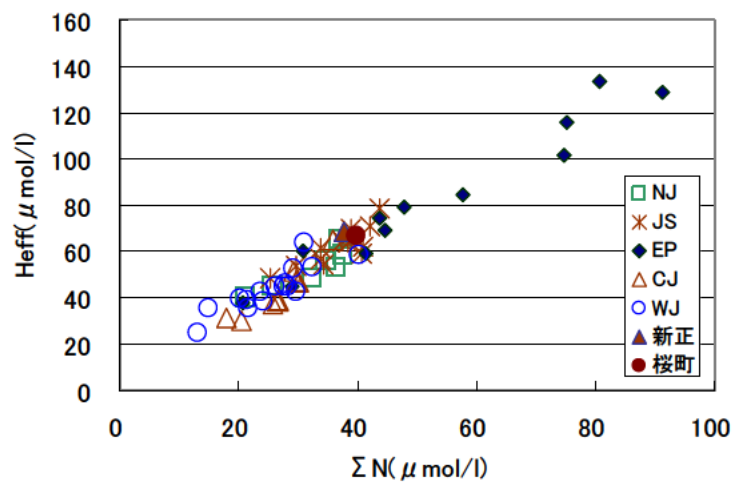


図4 ΣN濃度とHeff濃度の関係

## 2. 沈着量の比較

### 1) 新地域区分の非海塩成分沈着量

図5にH16全国調査と新正・桜町の非海塩成分沈着量を新地域区分別に示した。図5中のx軸ラベルの“-a”はanionを“-c”はcationを表す。非海塩成分沈着量合計に注目すると、新正は、新地域区分の中で一番沈着量の多いJSより少し少ない位で、桜町はどの地域区分よりも多かった。また、それら沈着量の成分比を表5に示す。陰イオンについては、新正はJSと似ており、桜町はよりNO<sub>3</sub><sup>-</sup>沈着量が多くCJと類似であった。また、陽イオンについては、新正・桜町ともにどの地域区分よりもnss-Ca<sup>2+</sup>沈着量が少なく、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>沈着量はEP、NJに次いで多かった。

### 2) H<sup>+</sup>沈着量とAi沈着量について

図6にH16全国調査と新正・桜町のH<sup>+</sup>沈着量とAi沈着量の関係を示した。全国的な分布には平成15年度の分布<sup>16)</sup>と似た傾向が見られ、新正・桜町の沈着量は平成15年度よりは少なくなったが、相対的な位置には引き続き平成16年度も同様の傾向があり、CJの中で伊自良湖を除いて沈着量が多く、JSに近い傾向があった。

### 3) nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>沈着量とNO<sub>3</sub><sup>-</sup>沈着量について

図7にH16全国調査と新正・桜町のnss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>沈着量とNO<sub>3</sub><sup>-</sup>沈着量の関係を示した。新正・桜町ともにnss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>沈着量が多い方から15%位であるが、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>沈着量については、新正が多い方から30%位であるのに対して桜町は多い方から10%以内であった。

### 4) ΣN沈着量とHeff沈着量について

図8に平成16年度の新正・桜町と全国の調査におけるΣN沈着量とHeff沈着量の関係を示した。ΣN沈着量とHeff沈着量間には、新正・桜町を含んだ全地点を通じて、また地域区分別においても、高い正の相関がみられた(全地点r=0.964, NJ r=0.980, JS r=0.951, EP r=0.969, CJ r=0.987, WJ r=0.913)。全地点中の順位については、平成15年度の比較では、新正は両沈着量とも上位20%以内、桜町はΣN沈着量で2位、Heff沈着量でトップであった<sup>16)</sup>。一方、平成16年度には、両沈着量とも全国的に減少しているなか、新正・桜町においても同様に減少し、新正はΣN沈着量が多い方から30%位で、Heff沈着量が多い方から25%位で少し順位を下げたものの、桜町は依然としてΣN沈着量で4番目、Heff沈着量で5番目であった。相対的な順位は下落したものの、依然として全国的にトップないし上位レベルにあるため、湖沼の富栄養化、土壌の酸性化への影響に対して、引き続き注目していく必要があると考えている。

参考) 以下にpAi, ΣN及びHeffの式を示す。

$$pAi = -\log_{10}([NO_3^-] + [nss-SO_4^{2-}] \times 2)$$

$$\Sigma N = [NO_3^-] + [NH_4^+]$$

$$Heff = [H^+] + [NH_4^+] \times 2$$

表4 非海塩成分沈着量の成分比

|   | NJ  | JS  | EP  | CJ  | WJ  | 新正  | 桜町  |
|---|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|
| NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> /(NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> +nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> )    | 33% | 34% | 41% | 38% | 33% | 34% | 38% |
| nss-Ca <sup>2+</sup> /(NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> +H <sup>+</sup> +nss-Ca <sup>2+</sup> )         | 20% | 14% | 14% | 22% | 16% | 10% | 9%  |
| NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> /(NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> +H <sup>+</sup> +nss-Ca <sup>2+</sup> ) | 43% | 35% | 49% | 35% | 36% | 40% | 42% |

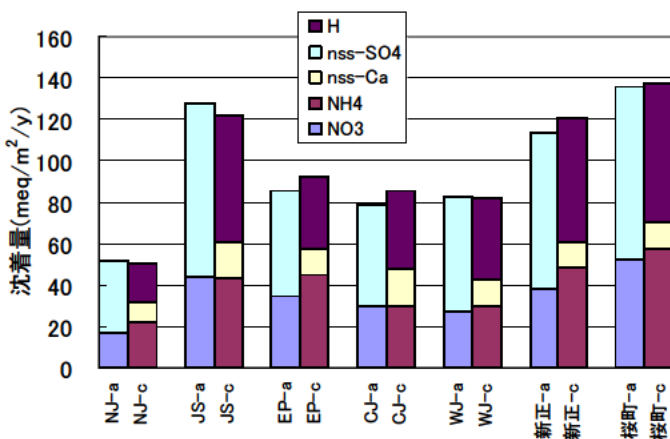


図5 地域区分別の非海塩成分沈着量

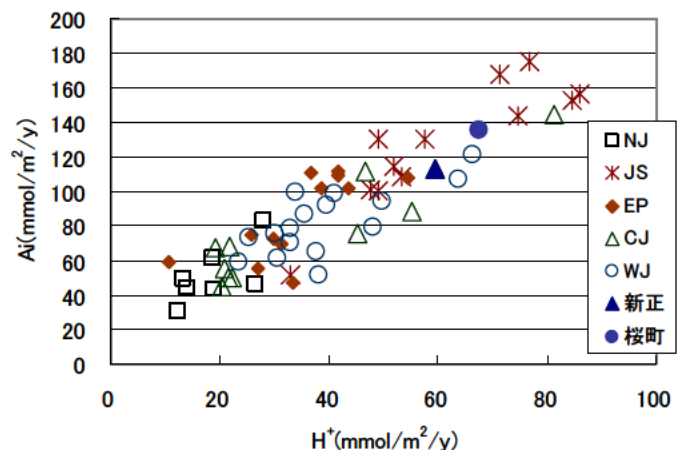


図6 H<sup>+</sup>沈着量とAi沈着量の関係

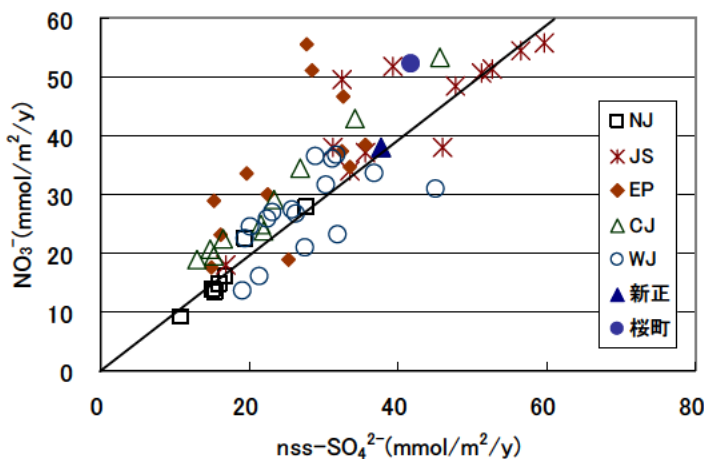


図7 nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>沈着量とNO<sub>3</sub><sup>-</sup>沈着量の関係

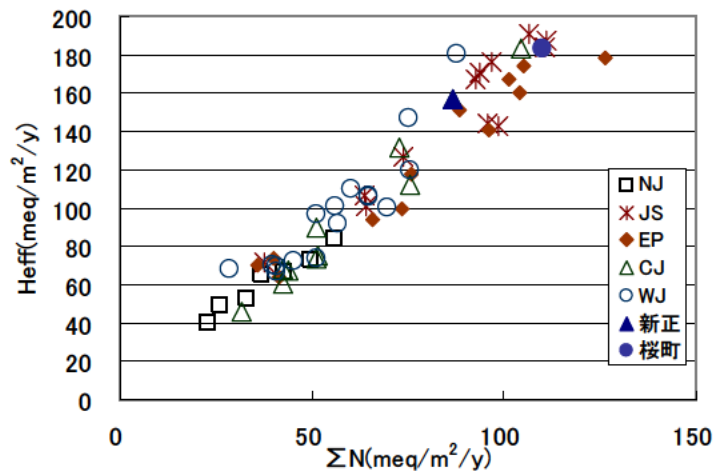


図8 ΣN沈着量とHeff沈着量の関係

### まとめ

平成16年度に四日市市内2カ所で実施した降水の調査結果と全国環境研協議会の平成16年度酸性雨全国調査結果とを比較したところ、以下の知見が得られた。なお、H16全国調査では新地域区分が発表されている。

- 1) 主要イオン成分濃度比は、桜町が東部太平洋側に似た傾向にあった。
- 2) pHとpAi(初期酸度)については、平成15年度よりも酸性度は下がった。
- 3) 平成15年度のnss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>が比較的高濃度であった傾向は、平成16年度には両地点ともみられなかった。
- 4) 非海塩成分沈着量を新地域区分で比較すると新正は日本海側の次に多く、桜町はどの地域区分の加重平均よりも多かった。
- 5) 新地域区分では、新正は中央部に分類されるが、両地点とも中央部と日本海側の間付近の傾向が多く見られた。
- 6) 桜町は、全無機態窒素沈着量と潜在水素イオン沈着量が平成15年度に引き続き全国順位で5番目以内に多かった。

### 文献

- 1) 塚田 進, 内田郁夫, 渡辺将隆, 中川喜明, 山本晃道, 松井孝悦, 広部 宏, 上田俊夫: (資料) 県内の酸性降雨の現況について(第1報), 三重県環境科学センター研究報告, No.7, 57-61(1987).
- 2) 塚田 進, 山本晃道, 渡辺将隆, 岩崎誠二, 高橋正昭, 長井喜久: (研究報告) 県内の酸性雨について(第2報), 三重

県環境科学センター研究報告, No.9, 21-33 (1989).

- 3) 塚田 進, 岩崎誠二, 吉岡 理, 仲邦 熙, 長井喜久, 山本晃道, 地主照博, 松井孝悦, 高橋正昭: (資料) 県内の酸性雨の現状について(第3報), 三重県環境科学センター研究報告, No.10, 57-62(1990).
- 4) 小山善丸, 稲垣卓次, 松井孝悦, 市岡高男, 加藤 進, 吉岡 理, 辻静夫: (研究報告) 県内の酸性雨の現状について, 三重県環境科学センター研究報告, No.13, 25-33 (1993).
- 5) 加藤 進, 松岡行利, 永楽通宝, 藤田修造, 河口直樹, 小山善丸, 金丸 豪: (研究報告) 環境の酸性化に関する研究—付着珪藻からみた三重県湖沼の現状—, 三重県環境科学センター研究報告, No.14, 1-9 (1994).
- 6) 小山善丸, 加藤 進, 永楽通宝, 辻 静夫, 稲垣卓次: (ノート) 県内の酸性雨の現状について, 三重県環境科学センター研究報告, No.14, 33-43 (1994).
- 7) 小山善丸, 永楽通宝, 吉岡 理, 加藤進: (ノート) 三重県下におけるコンクリートつららの化学組成および構造について: No.15, 99-105(1995)
- 8) 小山善丸, 前田雅也, 藤田修造, 永楽通宝, 菅瀬宗博, 田中久郎: (ノート) 三重県における酸性雨の実態について, 三重県環境科学センター研究報告, No.16, 63-80 (1996).
- 9) 鳥居成幸, 永楽通宝: (研究報告) 統計

- 的手法を用いた降水特性の検討，三重県環境科学センター研究報告，No.17，35-47（1997）。
- 10) 鳥居成幸，永楽通宝，奥田哲也，高橋康三，橋倉清和：(研究報告)大理石板の大気暴露調査結果について(第1報) - 暴露による大理石の光沢度，重量変化 - ，三重県環境科学センター研究報告，No.18，29-35（1998）。
  - 11) 鳥居成幸，奥田哲也，高橋康三，橋倉清和：(ノート)三重県内における露水の性状について(第1報)，三重県環境科学センター研究報告，No.18，45-49(1998)。
  - 12) 高桑三明，岩崎誠二，地主昭博，松井孝悦，山下 晃，吉岡 理，宮田 守，伊東友夫：(ノート)県内の酸性雨の現状について，三重県保健環境研究所年報(環境部門)，No.1，71-90（1999）。
  - 13) 川上正純，佐来栄治：(ノート)三重県の酸性雨の状況について，三重県科学技術振興センター保健環境研究部年報，No.4，129-139(2002)
  - 14) 西山 亨，佐来栄治，塚田 進，川上正純：(ノート)四日市地域における酸性雨の状況について(平成14年度調査)，三重県科学技術振興センター保健環境研究部年報，No.5，116-125(2003)
  - 15) 西山 亨，佐来栄治，塚田 進：(資料)四日市地域における酸性雨の状況について(平成15年度調査)，三重県科学技術振興センター保健環境研究部年報，No.6，95-107(2004)
  - 16) 西山 亨，佐来栄治，塚田 進，山川雅弘：(ノート)四日市地域における酸性雨の状況について(平成14-16年度調査)，三重県科学技術振興センター保健環境研究部年報，No.7，69-79(2005)。
  - 17) 西山 亨，佐来栄治，塚田 進，山川雅弘，川上正純：(ノート)四日市地域における酸性雨の状況について(平成14-17年度調査結果)，三重県科学技術振興センター保健環境研究部年報，No.8，74-100(2006)。
  - 18) 加藤 進，松岡行利，志賀恵司，藤田修造，河口直樹，小山善丸，辻川照之：<報文>環境の酸性化に関する研究 - 付着性珪藻からみた三重県湖沼の現状 - ，季刊全国公害研究会誌，Vol.18，No.3，33-38(1993)。
  - 19) 全国公害研協議会・酸性雨調査研究部会：平成4年度酸性雨全国調査結果報告書，季刊全国公害研究会誌，Vol.19，No.2，2-66(1994)。
  - 20) 全国公害研協議会・酸性雨調査研究部会：酸性雨全国調査結果報告書(平成3年度から平成5年度)，季刊全国公害研究会誌，Vol.20，No.2，2-74(1995)。
  - 21) 全国環境研協議会・酸性雨調査研究部会事務局：<特集>第3次酸性雨全国調査報告書(平成11年度)，季刊全国環境研究会誌，Vol.26, No.2，2-52(2001)。
  - 22) 全国環境研協議会・酸性雨調査研究部会事務局：<特集>第3次酸性雨全国調査報告書(平成12年度)，季刊全国環境研究会誌，Vol.27，No.2，2-60(2005)。
  - 23) 全国環境研協議会・酸性雨調査研究部会事務局：<特集>第3次酸性雨全国調査報告書(平成11~13年度のまとめ)，季刊全国環境研究会誌，Vol.28，No.3，2-72(2003)。
  - 24) 全国環境研協議会・酸性雨調査研究部会事務局：<特集>第4次酸性雨全国調査報告書(平成15年度)，季刊全国環境研究会誌，Vol.30，No.2，2-79(2005)。
  - 25) 全国環境研協議会・酸性雨調査研究部会事務局：第4次酸性雨全国調査報告書(平成15年度)付表編，季刊全国環境研究会誌，Vol.30，No.3，29-49(2005)。
  - 26) 全国環境研協議会・酸性雨調査研究部会事務局：第4次酸性雨全国調査報告書(平成16年度)，季刊全国環境研究会誌，Vol.31，No.3，2-70(2006)。
  - 27) 全国環境研協議会・酸性雨調査研究部会事務局：第4次酸性雨全国調査報告書(平成16年度) - ( )付表編 - ，季刊全国環境研究会誌，Vol.31，No.4，34-56(2006)。
  - 28) 酸性雨調査法研究会編：酸性雨調査法，株式会社ぎょうせい，(1993)。
  - 29) 環境庁大気規制課：湿性沈着モニタリング手引き書(1998)
  - 30) 原 宏：酸性雨とフィールドサイエンス( )，フィールドサイエンス，1,1-13(2002)。
  - 31) 原 宏：酸性雨とフィールドサイエンス( )，フィールドサイエンス，2,1-12(2002)。
  - 32) 酸性雨対策検討会：酸性雨対策調査総合取りまとめ報告書，平成16年6月(2004)。