富山と門前における降水中フッ化物イオンの季節変化と起源

鈴木 悟郎

世界各地で酸性雨の被害が報告され、多くの人が関心を寄せている。日本での酸性雨の研究は、そのpHや大陸からのNOx SOxの輸送についてのものが多い。しかし、降水中に含まれるそれ以外の成分、特にFについてはあまり報告されていない。大気中のフッ素は生体に対して毒性が強い HF としても存在しており高小倉 1995 () 生物圏におけるその動態が注目される。

本研究では、富山市 (人口30万)と門前町 (人口8千)の3年間 (1999-2001)の降水中 Fの濃度を測定し、その季節変化や起源を調べた。また、2001年の降水試料については他のイオン成分、酸素・水素安定同位体比を測定した。

月平均 F 濃度は富山では4月に最大 (3.6 μ eq/L)、9月に最小 (1.0 μ eq/L)となった。門前では4月に最大 (3.4 μ eq/L)、11月に最小 (0.8 μ eq/L)であった。このように降水中の F 濃度には、富山 門前ともに春に高く秋から冬にかけて低くなる季節変化が見られた。3 年間の平均 F 濃度は富山 1.6 μ eq/L、門前 1.4 μ eq/L であり、平均沈着量(降水中濃度×降水量)は、富山 13.2 μ eq/m²/day、門前 4.0 μ eq/m²/day であった。

降水の化学組成は、海水主成分であるNa⁺ Cl が50%以上を占めている。降水中Fの海塩寄与率を求めると富山・門前ともに年間を通して2%以下であ以 Fの海塩からの寄与は無視できる程度だった。次に、非海塩成分 (ss)について nss-Fと他の成分の相関を見たところ、nss-SO₄²及び nss-Ca²⁺との間によい相関関係がみられた。降水中nss-Ca²⁺の主な起源は土壌であるため、一般的な土壌中のF/Ca²⁺比 (0.013)から降水中Fの土壌寄与率を求めた。その結果、富山 21%、門前 85%と門前の土壌寄与率が大きかった。春にF沈着量が増すことから、春先の黄砂によってもF がもたらされることが考えられる。そこで、土壌中F/Ca²⁺比 (大陸0.021 国内0.003)から大陸土壌寄与率を求めると富山・門前で大陸土壌寄与率は冬から春に高く、40%を超えた。

次に、Fとnss-SO $_4$ 2 との関係をみた。SOx が冬季に大陸側から長距離輸送されること下沈着量が冬から春にかけて多かったことから、Fも大陸から輸送されることが考られる。そこで、大陸からの物質輸送の指標となる nss-SO $_4$ 2 /NO $_3$ 3 当量比(S/N 比)を取ってみると S/N 比が増加するとF沈着量も増加する傾向が見られた。そこで、大陸 (4.8)と国内 (1.4)の S/N 比 佐竹 2001)からFの大陸人為起源の割合を求めた。その結果、富山で 30%、門前で 5%が大陸人為起源であり、冬から春に増加する傾向が見られた。よって、降水中 Fも大陸から輸送されることがわかった。また富山で国内人為起源が 46%であるのに対し、門前では 10%であり、富山の降水のFは国内の人為活動にも影響を受けていることがわかった。 以上のことから、1999 年から 2001 年の富山と門前における降水中 F起源の割合を求めることができた。

1999年-2001年 富山と門前における降水中ドの起源の割合

72	大陸人為起源	国内人為起源	大陸土壌起源	国内土壤起源
富山	33%	46%	18%	3%
門前	5%	10%	8%	77%