

# 令和3(2021)年度湿性沈着調査結果

大気環境部

平野 真弘 齋藤 康司<sup>1</sup>

(<sup>1</sup> 現県西環境森林事務所)

## 1 はじめに

石油や石炭の燃焼等に伴って大気中に放出された二酸化硫黄や窒素酸化物などの汚染物質は、光化学反応などにより硫酸や硝酸などの酸性物質に変化する。これらの酸性物質は雲や雨に取り込まれ、酸性雨が生成される。一般に、酸性雨による影響は長い期間を経て現れると考えられているので、将来、その影響が顕在化する可能性がある。そのため、広域的かつ長期的な酸性雨モニタリングが重要である。

日本における酸性雨問題は、昭和40年代後半頃から社会問題化し、さまざまな調査が実施されてきた。また、平成3年度からは、その広域汚染の実態を把握するため、酸性雨に関する全国調査が実施されている。

本県では独自のモニタリング調査として、昭和60年度から、ろ過式採取装置を用いた酸性降水物調査を実施してきた。平成15年度からは、雨水中に溶解している物質について把握するため、河内町（現宇都宮市）で湿性沈着調査を開始した。また、平成20年度から令和元年度までは、日光市及び小山市でも調査を実施した。

湿性沈着調査は、pHが改善傾向にあることから令和3年度末で終了したため、本報告は、最終年度の調査結果をとりまとめたものである。

## 2 調査方法

### 2.1 調査期間

令和3年3月29日～令和4年3月28日

### 2.2 調査地点

宇都宮市（栃木県保健環境センター）

### 2.3 採取方法

環境省の「湿性沈着モニタリング手引き書（第2版）」に従い、図1に示す自動雨水採水器（株小笠原計器製作所製 US-330H、採取口面積314cm<sup>2</sup>）を用いて、2週間単位で試料の採取を行った。

### 2.4 分析項目及び分析方法

降水量

pH：ガラス電極法

EC：電気伝導率計による方法

イオン成分（SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、Cl<sup>-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、Na<sup>+</sup>、K<sup>+</sup>、Ca<sup>2+</sup>及びMg<sup>2+</sup>）：イオンクロマトグラフ法

なお、各試料の測定結果について、おおむね月単位となるように4～6週間分をまとめ、降水量による加重平均等の操作により平均化し、各月単位のデータを得た。



図1 自動雨水採水器

## 3 調査結果

### 3.1 概要

令和3年度の調査結果を表1に、降水量及びpHの経月変化を図2に、総沈着量及びECの経月変化を図3に示す。

各イオン成分の月間沈着量は式①により求め、総沈着量はそれらを合計して求めた。各イオン成分濃度及びECの加重平均値は、降水量で重み付けした平均値として、次式②により求め、pHの加重平均値は、式③により算出した。

$$\textcircled{1} \text{ 月間沈着量} = \frac{C_i \times Q_i}{\text{各イオン成分の分子量}}$$

$$\textcircled{2} \text{ 加重平均値} = \frac{\sum (C_i \times Q_i)}{\sum Q_i}$$

$$\textcircled{3} \text{ pH加重平均値} = -\log \frac{\sum (10^{-\text{pH}_i} \times Q_i)}{\sum Q_i}$$

※Ci : 各月のイオン成分濃度(mg/L)、pHi : 各月のpH値、Qi : 各月の降水量(mm)  
 なお、沈着量の単位はmmol/m<sup>2</sup>である。

### 3.2 降水量

年間降水量は、表1の年計に示すとおり1598.6mmであり、前年度の1357.3mmより241.3mm多かった。また、6月と8月にオーバーフローしたため、最寄りの気象官署が公表した降水量を用いた。

月ごとの特徴としては、8月が最も多く282.5mm、1月は5.8mmと最も少なかった。また、11月から1月にかけて減少し、その後、2月から増加に転じた。

### 3.3 pH及びEC

pHの加重平均値は、6.08であった。経月変化をみると、6月が最も低く、5.73であった。一方、最も高かったのは12月で、6.77であった。

ECの加重平均値は、7.87μS/cmであった。最も高い値は4月で、12.40μS/cmであった。また、最も低い値は、12月で、2.60μS/cmであった。

### 3.4 イオン成分濃度

月ごとに見ると、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>は4月、5月、9月、2月、3月に、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>及びNH<sub>4</sub><sup>+</sup>は5月、7月、2月に高めの濃度となった。また、Cl<sup>-</sup>、Na<sup>+</sup>は4月、9月、11月、1月に比較的高い濃度を示した。

### 3.5 沈着量

調査地点における各イオン成分の月間沈着量を表2に、経月変化を図4~6に示す。

年間のイオン成分総沈着量は、陰イオンが53.6mmol/m<sup>2</sup>、陽イオンが57.5mmol/m<sup>2</sup>であった。また、経月変化をみると、5月に25.6mmol/m<sup>2</sup>と沈着量が最も多く、12月と1月はいずれも1mmol/m<sup>2</sup>未満と沈着量が少なかった。

成分ごとにみると、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>及びNH<sub>4</sub><sup>+</sup>の多原子イオンとCl<sup>-</sup>、Na<sup>+</sup>、Mg<sup>2+</sup>、K<sup>+</sup>及びCa<sup>2+</sup>の単原子イオンの沈着量の経月変化では、イオン成分ごとに傾向が類似していた。多原子イオンは、5月にピークを示し、その後1月にかけて沈着量が減少し、2月から増加する傾向であった。また、単原子イオンの中で、Cl<sup>-</sup>、Na<sup>+</sup>、Mg<sup>2+</sup>では、5月、9月、11月に沈着量が多くなり、12月にいずれのイオンも最低値を示した後、1月から3月にかけて徐々に増加が見られた。K<sup>+</sup>及びCa<sup>2+</sup>は5月に最も沈着量が多くなり、その後、一旦濃度が低下した後は、変動が少なかったが、2月から3月にかけてやや増加した。

図7に月ごとの降水量と総沈着量の関係を示す。降水量と総沈着量の間に正の相関(r=0.953)があった。

図8にSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>及びNO<sub>3</sub><sup>-</sup>の各月間沈着量のモル当量の関係を示す。直線の傾きであるNO<sub>3</sub><sup>-</sup>/SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の値は1.24であり、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>及びNO<sub>3</sub><sup>-</sup>の沈着量は、前年度の相関(r=0.990)<sup>1)</sup>と同様に強い相関があった(r=0.980)。森らの報告<sup>2)</sup>によると、関東地方及び首都圏では、他の地点に比べて大気中の窒素酸化物濃度が高く、それに伴って湿性沈着物のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度が上昇し、東京都武蔵野市においては、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>/SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>が全国平均値(0.26)に比べ極めて高い値(0.85)となること示されている。このことから、本県の大気環境も同様の雰囲気であることが予想され、得られた結果とも整合するため、主に関東地方特有の高窒素成分や都市大気の影響を受けていると推察された。

表1 湿性沈着調査結果

月	採取期間		降水量 mm	pH	EC μS/cm	イオン成分濃度(mg/L)							
	開始日	終了日				SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>
4	3/29	~ 4/26	59.3	5.89	12.40	0.95	1.23	1.27	0.50	0.69	0.06	0.24	0.09
5	4/26	~ 6/7	259.0	5.86	9.83	0.87	1.35	0.50	0.59	0.26	0.04	0.23	0.05
6	6/7	~ 7/5	221.0	5.73	7.49	0.66	1.09	0.28	0.49	0.16	0.01	0.08	0.02
7	7/5	~ 8/2	206.9	6.08	8.33	0.71	1.26	0.19	0.54	0.09	0.02	0.06	0.01
8	8/2	~ 8/30	282.5	6.48	3.99	0.28	0.47	0.10	0.17	0.05	0.01	0.02	0.01
9	8/30	~ 9/27	195.1	6.26	10.80	0.82	1.07	0.70	0.34	0.40	0.01	0.05	0.04
10	9/27	~ 10/25	87.6	6.49	8.50	0.67	0.86	0.33	0.28	0.18	0.02	0.04	0.02
11	10/25	~ 12/6	138.7	6.56	6.95	0.46	0.46	0.76	0.17	0.42	0.02	0.03	0.04
12	12/6	~ 1/4	45.6	6.77	2.60	0.18	0.18	0.07	0.12	0.03	0.01	0.01	0.01
1	1/4	~ 1/31	5.8	6.42	7.73	0.63	0.77	0.59	0.30	0.34	0.02	0.07	0.04
2	1/31	~ 2/28	24.7	6.32	9.44	0.77	1.57	0.37	0.62	0.22	0.02	0.13	0.03
3	2/28	~ 3/28	72.4	6.54	7.93	0.85	0.94	0.40	0.41	0.26	0.03	0.21	0.04
年計			1,598.6										
加重平均				6.08	7.87	0.64	0.95	0.41	0.39	0.22	0.02	0.09	0.03

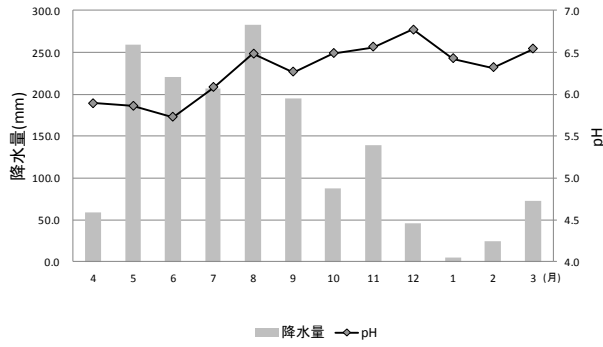


図2 降水量及びpHの経月変化

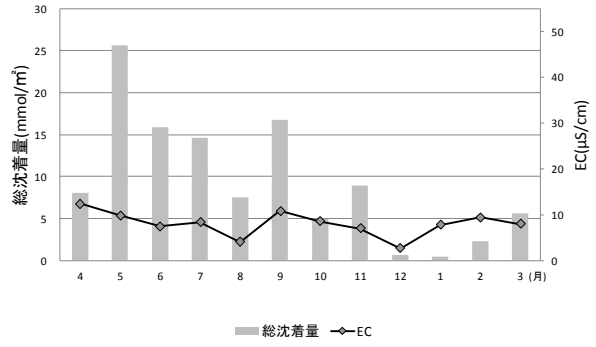


図3 総沈着量及びECの経月変化

表2 各イオン成分の月間沈着量

月	沈着量 (mmol/m <sup>2</sup> )									総沈着量 (mmol/m <sup>2</sup> )		
	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	H <sup>+</sup>	陰イオン	陽イオン	合計
4	0.59	1.17	2.12	1.66	1.78	0.09	0.35	0.22	0.08	3.9	4.2	8.1
5	2.35	5.65	3.64	8.50	2.89	0.25	1.48	0.51	0.36	11.6	14.0	25.6
6	1.53	3.90	1.72	6.06	1.54	0.06	0.43	0.19	0.41	7.2	8.7	15.8
7	1.53	4.19	1.12	6.22	0.80	0.13	0.31	0.12	0.17	6.8	7.8	14.6
8	0.83	2.14	0.82	2.64	0.66	0.07	0.15	0.09	0.09	3.8	3.7	7.5
9	1.67	3.36	3.88	3.64	3.39	0.07	0.26	0.35	0.11	8.9	7.8	16.7
10	0.61	1.21	0.81	1.36	0.69	0.03	0.09	0.07	0.03	2.6	2.3	4.9
11	0.66	1.02	2.96	1.33	2.51	0.06	0.10	0.24	0.04	4.6	4.3	8.9
12	0.09	0.13	0.09	0.29	0.07	0.01	0.01	0.01	0.01	0.3	0.4	0.7
1	0.04	0.07	0.10	0.10	0.08	0.00	0.01	0.01	0.00	0.2	0.2	0.4
2	0.20	0.62	0.26	0.85	0.23	0.01	0.08	0.03	0.01	1.1	1.2	2.3
3	0.64	1.10	0.82	1.63	0.83	0.05	0.38	0.13	0.02	2.6	3.0	5.6
年計	10.74	24.56	18.34	34.28	15.47	0.83	3.65	1.97	1.33	53.6	57.5	111.2

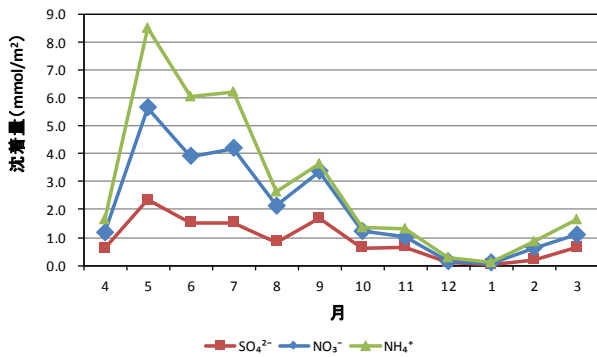


図4 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>沈着量の経月変化

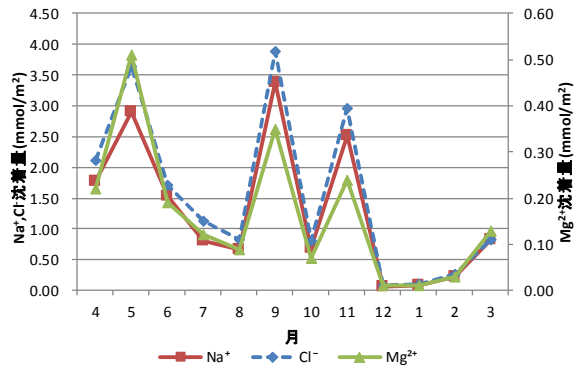


図5 Na<sup>+</sup>, Cl<sup>-</sup>, Mg<sup>2+</sup>沈着量の経月変化

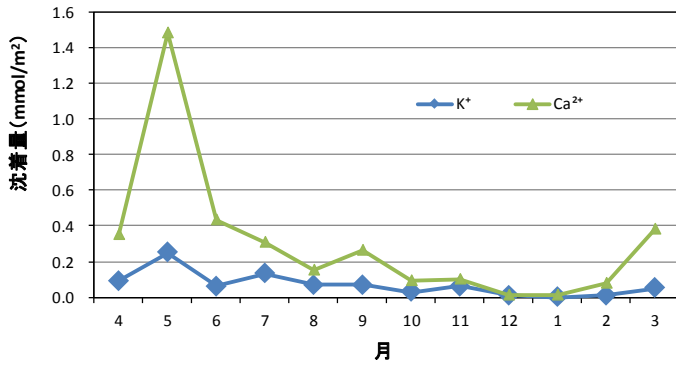


図6 K<sup>+</sup>, Ca<sup>2+</sup>沈着量の経月変化

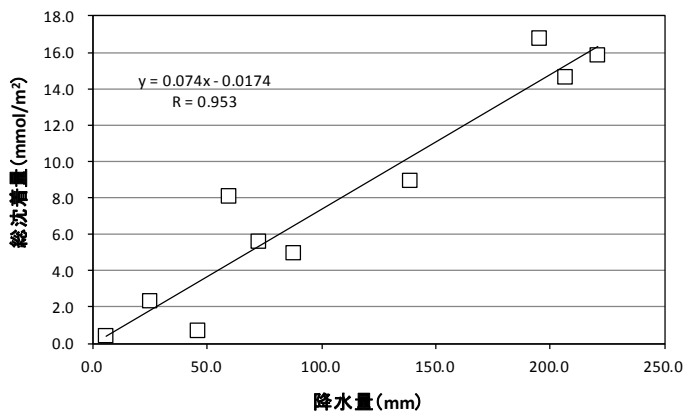


図7 月ごとの降水量と総沈着量の関係

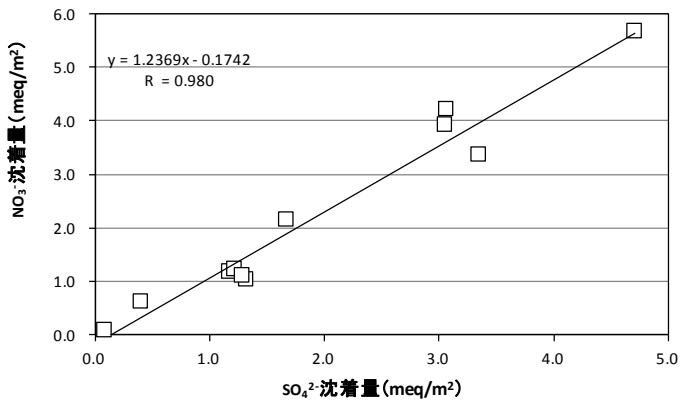


図8 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>及びNO<sub>3</sub><sup>-</sup>月間沈着量のモル当量の関係

#### 4 参考文献

- 1) 栃木県保健環境センター大気環境部、令和元年度湿性沈着調査結果、栃木県保健環境センター年報、第26号、111-114、2021。
- 2) 酸性沈着物における硝酸イオンと硫酸イオンの当量比に関する考察、日本化学会誌、(6)、920-929、1991。