

平成30年度湿性沈着調査結果

大気環境部

飯島 史周¹ 石原島 栄二

(1 現都市整備課)

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、酸性雨が生成する。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ため、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下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、平成20年度からは日光市及び小山市でも同調査を行っている。

本報告は、平成30年度の雨水中の湿性沈着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

平成30年4月2日～平成31年4月1日（1年間）

2.2 調査地点

- ① 日光市（日光市丸山浄水場）
- ② 宇都宮市（栃木県保健環境センター）
- ③ 小山市（栃木県南健康福祉センター）

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、自動雨水採水器（株）小笠原計器製作所製US-330H、採取口面積314cm²）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

pH：ガラス電極法

EC：電気伝導率計による方法

イオン成分（SO₄²⁻、NO₃⁻、Cl⁻、NH₄⁺、Na⁺、K⁺、Ca²⁺及びMg²⁺）：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、各月ごとのデータを得た。

3 調査結果

3.1 概要

平成30年度の各調査地点における調査結果を表1～3に、降水量及びpHの経月変化を図1に、総沈着量及びECの経月変化を図2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。

なお、日光市の5月の測定結果については、虫及び木片混入の影響があったため参考値とし、pH、EC及びイオン成分における加重平均値及び年計の算出時には除外した。

$$\begin{aligned} \text{① 月間沈着量} &= \frac{C_i \times Q_i}{\text{各イオン成分の分子量}} \\ \text{② 加重平均値} &= \frac{\sum (C_i \times Q_i)}{\sum Q_i} \\ \text{③ pH加重平均値} &= -\log \frac{\sum (10^{-\text{pH}_i} \times Q_i)}{\sum Q_i} \end{aligned}$$

※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/m²である。

3.2 降水量

年間降水量は、表1～3の年計のとおりである。なお、日光市の7月から9月及び宇都宮市の9月については、採取容器から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。

年間降水量は、日光市で1,951mmと最も多く、次いで宇都宮市の1,158mm、小山市の968mmであり、日光市と小山市とでは2倍程度の差があった。

月ごとの特徴としては、日光市及び小山市では9月が最も多く、宇都宮市では8月及び9月が多かった。また、ピーク後は全地点で1月にかけて減少し、その後、3月にかけて増加した。

3.3 pH及びEC

pHの加重平均値は、日光市が5.59、宇都宮市及び小山市が5.19であった。月ごとにみると、日光市では6月、宇都宮市では10月、小山市では7月に最も低く、それぞれ5.19、4.60及び4.93であった。一方、最も高かったのは、日光市及び宇都宮市では11月で、それぞれ6.67及び6.32、小山市では1月の6.21であった。

ECの加重平均値は、日光市で4.70μS/cm、宇都宮市で11.94μS/cm、小山市で10.45μS/cmであった。月ごとに

表1 湿性沈着調査結果(日光市)

月	採取期間		降水量 mm	pH	EC μS/cm	濃度(mg/L)							
	開始日	終了日				SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	NH ₄ ⁺	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺
4	4/2	~ 5/1	108.5	5.32	8.55	0.49	0.80	0.28	0.13	0.14	0.03	0.15	0.03
5*	5/1	~ 5/28	123.4	6.60	53.58	6.18	1.57	3.83	0.07	3.34	0.69	5.54	0.99
6	5/28	~ 6/25	121.3	5.19	5.12	0.46	0.55	0.07	0.15	0.03	0.02	0.08	0.01
7	6/25	~ 8/6	366.4	5.47	2.90	0.16	0.16	0.16	0.04	0.11	0.02	0.03	0.00
8	8/6	~ 9/3	396.5	6.10	3.78	0.30	0.23	0.22	0.08	0.12	0.02	0.07	0.02
9	9/3	~ 10/1	546.2	5.57	4.21	0.26	0.23	0.40	0.04	0.23	0.05	0.06	0.03
10	10/1	~ 10/29	83.9	5.60	7.01	0.76	0.93	0.40	0.14	0.21	0.03	0.59	0.03
11	10/29	~ 11/26	45.2	6.67	4.48	0.42	0.70	0.15	0.05	0.08	0.18	0.35	0.02
12	11/26	~ 1/7	33.1	6.07	8.58	1.04	0.91	0.65	0.18	0.38	0.52	0.55	0.11
1	1/7	~ 2/4	16.9	6.49	15.45	1.80	2.51	1.34	0.33	0.86	0.40	1.35	0.14
2	2/4	~ 3/4	38.6	5.83	10.42	0.93	0.73	0.42	0.08	0.34	0.04	1.30	0.09
3	3/4	~ 4/1	71.3	6.36	9.19	1.16	1.28	0.34	0.37	0.24	0.06	0.35	0.06
年計			1,951.3										
加重平均				5.59	4.70	0.38	0.39	0.29	0.09	0.17	0.05	0.15	0.03

7、8、9月はオーバーフローがあったため、最寄の気象官署の降水量を用いて濃度を算出した。
5月は虫及び木片の混入が多かったため、参考値とする。

表2 湿性沈着調査結果(宇都宮市)

月	採取期間		降水量 mm	pH	EC μS/cm	濃度(mg/L)							
	開始日	終了日				SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	NH ₄ ⁺	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺
4	4/2	~ 5/1	85.0	5.13	17.47	1.75	2.09	1.42	0.70	0.78	0.09	0.48	0.14
5	5/1	~ 5/28	138.1	4.98	11.62	1.11	1.20	0.49	0.39	0.26	0.03	0.13	0.04
6	5/28	~ 6/25	112.5	5.10	10.25	1.03	1.33	0.40	0.53	0.21	0.03	0.14	0.04
7	6/25	~ 8/6	170.7	5.32	8.44	0.82	1.07	0.55	0.42	0.30	0.02	0.18	0.04
8	8/6	~ 9/3	230.9	5.59	11.47	1.16	1.13	0.40	0.50	0.20	0.02	0.12	0.03
9	9/3	~ 10/1	230.7	5.08	11.56	0.87	0.97	1.23	0.35	0.68	0.04	0.11	0.09
10	10/1	~ 10/29	36.4	4.60	29.32	2.25	2.63	1.75	0.64	0.98	0.06	0.24	0.14
11	10/29	~ 11/26	17.5	6.32	10.74	1.10	1.37	0.77	0.62	0.34	0.03	0.12	0.04
12	11/26	~ 1/7	16.0	5.63	12.92	1.45	1.82	0.93	0.79	0.56	0.05	0.40	0.09
1	1/7	~ 2/4	2.4	6.07	25.80	2.28	4.04	2.03	1.58	0.57	0.16	1.82	0.15
2	2/4	~ 3/4	56.6	5.81	11.06	1.31	1.65	0.51	0.75	0.25	0.04	0.47	0.07
3	3/4	~ 4/1	61.0	6.11	11.14	1.05	1.74	0.63	0.49	0.37	0.07	0.32	0.07
年計			1,157.8										
加重平均				5.19	11.94	1.12	1.31	0.75	0.49	0.40	0.04	0.20	0.06

9月はオーバーフローがあったため、最寄の気象官署の降水量を用いて濃度を算出した。

表3 湿性沈着調査結果(小山市)

月	採取期間		降水量 mm	pH	EC μS/cm	濃度(mg/L)							
	開始日	終了日				SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	NH ₄ ⁺	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺
4	4/2	~ 5/1	66.3	5.99	10.11	0.79	1.21	0.97	0.54	0.51	0.05	0.27	0.09
5	5/1	~ 5/28	126.7	5.39	7.04	0.75	0.88	0.35	0.35	0.18	0.04	0.12	0.03
6	5/28	~ 6/25	120.3	4.95	11.10	1.17	1.53	0.46	0.54	0.22	0.03	0.15	0.04
7	6/25	~ 8/6	101.7	4.93	13.28	1.14	1.82	0.55	0.54	0.27	0.04	0.26	0.04
8	8/6	~ 9/3	110.4	5.06	16.15	1.29	1.94	0.71	0.52	0.38	0.04	0.17	0.06
9	9/3	~ 10/1	222.3	5.20	7.80	0.69	0.83	0.45	0.33	0.25	0.02	0.07	0.04
10	10/1	~ 10/29	50.9	4.94	15.55	1.37	1.53	1.16	0.62	0.68	0.06	0.20	0.10
11	10/29	~ 11/26	27.7	5.77	12.72	1.25	1.84	0.75	0.67	0.28	0.06	0.17	0.07
12	11/26	~ 1/7	13.9	5.77	9.68	0.82	1.42	0.76	0.55	0.37	0.05	0.28	0.08
1	1/7	~ 2/4	8.2	6.21	14.41	1.13	2.53	0.40	1.34	0.13	0.13	0.78	0.07
2	2/4	~ 3/4	47.4	5.87	8.41	0.82	1.16	0.46	0.58	0.25	0.04	0.28	0.06
3	3/4	~ 4/1	72.5	6.15	7.72	0.72	1.10	0.44	0.45	0.22	0.07	0.20	0.06
年計			968.3										
加重平均				5.19	10.45	0.95	1.30	0.56	0.47	0.29	0.04	0.17	0.05

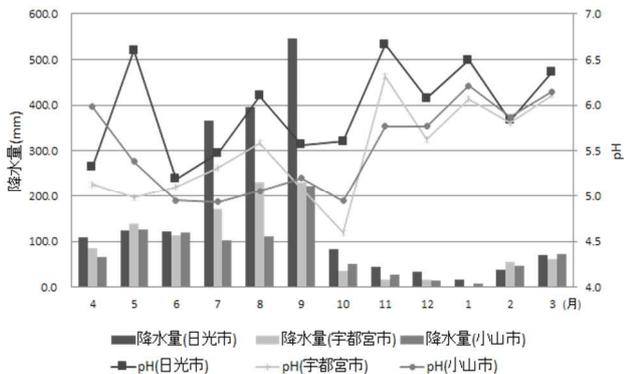


図1 各地点の降水量及びpHの経月変化

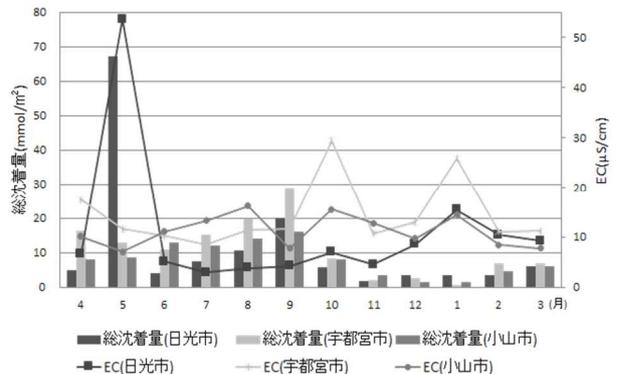


図2 各地点の総沈着量及びECの経月変化

みると、日光市では虫等の混入が多かった5月を除き1月が最も高く、15.45μS/cmであった。また、宇都宮市では10月、小山市では8月が最も高く、それぞれ29.32μS/cm及び16.15μS/cmであった。また、最も低い値は、日光市及び宇都宮市では7月に、それぞれ2.90μS/cm及び8.44μS/cm、小山市では5月に7.04μS/cmであった。

3.4 イオン成分濃度

イオン成分濃度の加重平均値は、K⁺を除き、日光市が他地点よりも低めであった。Cl⁻及びNa⁺の濃度については宇都宮市が最も高く、Cl⁻及びNa⁺を除いた成分の濃度については、宇都宮市及び小山市で同程度であった。

月ごとにみると、全地点で、降水量が増えた7月から9月にかけて濃度が低くなるイオン成分が多く、降水量の少なくなった10月及び降水量の最も少なかった1月に、濃度が高くなるイオン成分が多かった。

地点ごとにみると、日光市では、K⁺を除き、一旦濃度が低下した11月から1月にかけて濃度が上昇し、K⁺は10月から12月にかけて上昇していた。宇都宮市では、日光市と同様に全ての成分の濃度が11月から1月にかけて上昇する傾向があった。小山市は、10月のCl⁻及びNa⁺並びに1月のNO₃⁻、NH₄⁺、K⁺及びCa²⁺を除き、年間を通じて濃度の変動が少なかった。

3.5 沈着量

各調査地点における各イオン成分の月別沈着量を表4~6に示す。

年間のイオン成分総沈着量は、日光市では陰イオンが33.5nmol/m²、陽イオンが38.0nmol/m²、宇都宮市では陰イオンが62.6nmol/m²、陽イオンが68.8nmol/m²、小山市では陰イオンが45.4nmol/m²、陽イオンが51.3nmol/m²であった。いずれも多い頃に宇都宮市、小山市、日光市となっていた。

月ごとにみると、全地点において、降水量の多かった9月に沈着量が最も多く、降水量の少なかった11月から1月に沈着量が少なかったため、沈着量及び降水量の関連が示唆された。

成分ごとにみると、SO₄²⁻、NO₃⁻及びNH₄⁺並びにCl⁻、Na⁺及びMg²⁺の沈着量の経月変化は、全地点で成分ごとに類似していた。SO₄²⁻等は、8月又は9月にピークを示し、その後1月にかけて沈着量が減少し、3月にかけて上昇する傾向であった。また、Cl⁻等は、9月にピークを示し、そのほかの月は低めの沈着量で推移していた。一方で、K⁺及びCa²⁺は、地点ごとにばらつきがあった。また、NH₄⁺は地点ごとの沈着量の差が最も大きかった。

SO₄²⁻及びNO₃⁻の沈着量を比較すると、いずれの地点においても全ての月でNO₃⁻の方が高かった。NO₃⁻/SO₄²⁻の値は、日光市、宇都宮市、小山市の順に高くなる傾向が見られた。全ての地点及び月で、図3のとおりSO₄²⁻及びNO₃⁻の沈着量に、昨年度¹⁾と同様強い相関が見られた(R² = 0.824)。

4 参考文献

- 1) 栃木県保健環境センター大気環境部、平成29年度湿性沈着調査結果、栃木県保健環境センター年報、第23号、147-149、2018。

表4 各イオン成分の沈着量 (日光市)

月	沈着量(nmol/m ²)									総沈着量(nmol/m ²)		
	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	NH ₄ ⁺	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	H ⁺	陰イオン	陽イオン	合計
4	0.55	1.04	0.80	0.77	0.67	0.10	0.40	0.13	0.52	2.4	2.6	5.0
5	7.94	3.13	13.34	0.51	17.92	2.17	17.07	5.05	0.03	24.4	42.8	67.2
6	0.58	1.07	0.23	0.98	0.17	0.06	0.24	0.04	0.78	1.9	2.3	4.2
7	0.62	0.98	1.62	0.83	1.69	0.23	0.28	0.07	1.23	3.2	4.3	7.5
8	1.23	1.49	2.46	1.84	2.07	0.19	0.66	0.26	0.31	5.2	5.3	10.5
9	1.50	2.05	6.19	1.31	5.35	0.67	0.81	0.70	1.49	9.7	10.3	20.1
10	0.66	1.26	0.95	0.63	0.76	0.07	1.25	0.12	0.21	2.9	3.0	5.9
11	0.20	0.51	0.19	0.12	0.15	0.21	0.39	0.05	0.01	0.9	0.9	1.8
12	0.36	0.43	0.60	0.34	0.54	0.44	0.46	0.15	0.03	1.4	2.0	3.4
1	0.32	0.68	0.64	0.31	0.63	0.17	0.57	0.10	0.01	1.6	1.8	3.4
2	0.37	0.46	0.46	0.18	0.57	0.04	1.25	0.14	0.06	1.3	2.2	3.5
3	0.86	1.47	0.68	1.46	0.75	0.11	0.62	0.17	0.03	3.0	3.1	6.2
年計	7.25	11.47	14.82	8.77	13.35	2.29	6.93	1.93	4.68	33.5	38.0	71.5

5月は虫及び木片の混入が多かったため、参考値とする。

表5 各イオン成分の沈着量 (宇都宮市)

月	沈着量(nmol/m ²)									総沈着量(nmol/m ²)		
	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	NH ₄ ⁺	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	H ⁺	陰イオン	陽イオン	合計
4	1.54	2.86	3.41	3.28	2.87	0.19	1.01	0.48	0.63	7.8	8.5	16.3
5	1.59	2.67	1.91	2.95	1.56	0.11	0.45	0.24	1.44	6.2	6.8	12.9
6	1.21	2.42	1.28	3.31	1.04	0.08	0.39	0.17	0.89	4.9	5.9	10.8
7	1.45	2.95	2.66	3.97	2.20	0.11	0.77	0.26	0.83	7.1	8.1	15.2
8	2.79	4.22	2.63	6.44	2.03	0.12	0.70	0.29	0.59	9.6	10.2	19.8
9	2.10	3.61	8.03	4.52	6.86	0.25	0.66	0.36	1.91	13.7	15.1	28.8
10	0.85	1.55	1.80	1.29	1.55	0.06	0.21	0.21	0.92	4.2	4.2	8.4
11	0.20	0.39	0.38	0.60	0.26	0.01	0.05	0.03	0.01	1.0	1.0	1.9
12	0.24	0.47	0.42	0.70	0.39	0.02	0.16	0.06	0.04	1.1	1.4	2.5
1	0.06	0.16	0.14	0.21	0.06	0.01	0.11	0.01	0.00	0.4	0.4	0.8
2	0.77	1.51	0.81	2.34	0.62	0.06	0.66	0.17	0.09	3.1	3.9	7.0
3	0.67	1.72	1.08	1.65	0.99	0.11	0.49	0.18	0.05	3.5	3.5	6.9
年計	13.47	24.53	24.55	31.26	20.43	1.13	5.66	2.96	7.40	62.6	68.8	131.4

表6 各イオン成分の沈着量 (小山市)

月	沈着量(nmol/m ²)									総沈着量(nmol/m ²)		
	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	NH ₄ ⁺	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	H ⁺	陰イオン	陽イオン	合計
4	0.54	1.29	1.82	1.99	1.47	0.09	0.44	0.25	0.07	3.7	4.3	8.0
5	1.00	1.81	1.25	2.46	0.99	0.12	0.37	0.18	0.52	4.1	4.6	8.7
6	1.46	2.97	1.57	3.60	1.17	0.09	0.45	0.19	1.34	6.0	6.8	12.8
7	1.21	2.98	1.58	3.02	1.21	0.09	0.66	0.17	1.19	5.8	6.3	12.1
8	1.49	3.46	2.21	3.20	1.81	0.11	0.46	0.27	0.97	7.2	6.8	14.0
9	1.80	2.97	2.80	4.10	2.38	0.13	0.40	0.34	1.40	7.4	8.8	16.1
10	0.73	1.26	1.67	1.75	1.50	0.08	0.26	0.20	0.58	3.7	4.4	8.0
11	0.36	0.82	0.59	1.02	0.34	0.04	0.12	0.08	0.05	1.8	1.7	3.4
12	0.12	0.32	0.30	0.43	0.22	0.02	0.10	0.04	0.02	0.7	0.8	1.6
1	0.10	0.33	0.09	0.61	0.05	0.03	0.16	0.02	0.01	0.5	0.9	1.4
2	0.41	0.89	0.82	1.53	0.52	0.05	0.33	0.11	0.06	1.9	2.6	4.5
3	0.55	1.29	0.89	1.82	0.71	0.13	0.36	0.16	0.05	2.7	3.2	6.0
年計	9.57	20.39	15.39	25.53	12.37	0.98	4.11	2.01	6.28	45.4	51.3	96.6

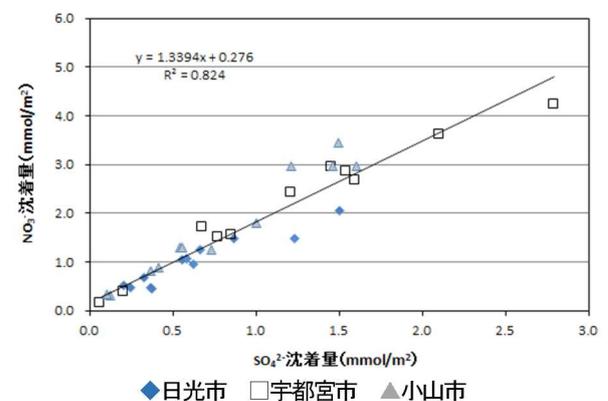


図3 全地点におけるSO₄²⁻及びNO₃⁻月間沈着量の相関