

令和元年度湿性沈着調査結果

大気環境部

佐藤 安里紗 石原島 栄二¹

(¹ 現県南健康福祉センター)

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、令和元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31年4月1日～令和2年3月30日(1年間)

2.2 調査地点

宇都宮市(栃木県保健環境センター)

小山市(栃木県県南健康福祉センター)

日光市(丸山浄水場)・・・令和元年度は工事中のため欠測

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(㈱小笠原計器製作所製 US-330H、採取口面積314cm²)を用いて、2週間ごとに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(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

令和元年度の各調査地点における調査結果を表1～2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(mm³/m²)は式①により求め、総沈着量(mm³/m²)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。

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

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

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

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)

3.2 降水量

宇都宮市と小山市の湿性沈着調査結果及び降水量は、表1~2のとおりである。

なお、宇都宮市の10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。

月ごとにみると、大きな被害をもたらした令和元年東日本台風の影響により、宇都宮市及び小山市とも10月が最も多かった。また、最も少なかったのは、宇都宮市が12月、小山市が2月で、3月にはともに増加に転じた。

3.3 pH及びEC

pHの加重平均値は、宇都宮市が5.32、小山市が5.41であった。月ごとにみると、宇都宮市では6月、小山市では8月に最も低く、それぞれ4.62、4.81であった。一方、最も高かったのは、宇都宮市及び小山市とも3月で、それぞれ6.45、6.37であった。

ECの加重平均値は、宇都宮市で9.36 μ S/cm、小山市で8.69 μ S/cmであった。また、宇都宮市では6月、小山市で

表1 湿性沈着調査結果 (宇都宮市)

月	採取期間		降水量 mm	pH	EC μ S/cm	イオン成分濃度(mg/L)							
	開始日	終了日				SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	NH ₄ ⁺	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺
4	4/1	~ 4/26	74.0	6.42	13.20	1.60	2.00	0.59	0.87	0.33	0.08	0.30	0.06
5	4/26	~ 5/27	225.1	5.56	5.75	0.52	0.58	0.42	0.24	0.23	0.02	0.09	0.03
6	5/27	~ 6/24	200.8	4.62	23.08	2.26	2.54	0.59	0.81	0.33	0.05	0.21	0.05
7	6/24	~ 8/5	272.0	5.27	9.31	0.93	1.23	0.19	0.51	0.07	0.01	0.08	0.01
8	8/5	~ 9/2	176.6	5.45	15.08	1.62	1.77	0.47	0.74	0.27	0.04	0.15	0.04
9	9/2	~ 9/30	157.7	5.12	6.82	0.62	0.51	0.41	0.21	0.24	0.02	0.06	0.03
10	9/30	~ 10/28	514.8	6.37	4.36	0.29	0.22	0.55	0.10	0.31	0.02	0.04	0.04
11	10/28	~ 11/25	106.3	6.26	4.53	0.31	0.41	0.36	0.14	0.21	0.01	0.06	0.03
12	11/25	~ 1/6	29.0	6.17	14.58	1.50	1.45	0.92	0.57	0.56	0.05	0.15	0.08
1	1/6	~ 2/3	62.7	5.89	10.62	0.99	1.22	0.52	0.45	0.27	0.04	0.11	0.04
2	2/3	~ 3/2	34.2	5.71	19.26	2.16	3.43	1.03	1.27	0.59	0.08	0.54	0.12
3	3/2	~ 3/30	91.8	6.45	6.04	0.52	0.82	0.38	0.39	0.20	0.03	0.14	0.04
年計			1,945.0										
加重平均				5.32	9.36	0.89	1.02	0.47	0.40	0.26	0.03	0.11	0.04

表2 湿性沈着調査結果 (小山市)

月	採取期間		降水量 mm	pH	EC μ S/cm	イオン成分濃度(mg/L)							
	開始日	終了日				SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	NH ₄ ⁺	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺
4	4/1	~ 4/26	50.4	6.27	15.04	1.78	2.28	0.72	0.98	0.39	0.11	0.41	0.08
5	4/26	~ 5/27	113.6	5.66	6.04	0.51	0.59	0.51	0.28	0.28	0.03	0.10	0.04
6	5/27	~ 6/24	141.6	5.40	9.19	1.14	1.15	0.38	0.68	0.19	0.06	0.15	0.03
7	6/24	~ 8/5	167.5	5.25	7.40	0.76	0.97	0.16	0.43	0.06	0.01	0.05	0.01
8	8/5	~ 9/2	120.3	4.81	25.54	2.53	2.57	0.77	0.96	0.44	0.06	0.18	0.06
9	9/2	~ 9/30	120.7	5.23	7.34	0.63	0.70	0.41	0.29	0.22	0.03	0.06	0.03
10	9/30	~ 10/28	348.0	5.79	3.82	0.26	0.19	0.45	0.14	0.25	0.02	0.04	0.03
11	10/28	~ 11/25	86.9	6.25	5.72	0.46	0.66	0.39	0.34	0.22	0.04	0.16	0.04
12	11/25	~ 1/6	21.9	5.95	15.21	1.75	1.79	1.18	0.78	0.69	0.07	0.60	0.16
1	1/6	~ 2/3	66.4	5.80	6.45	0.50	0.70	0.38	0.37	0.21	0.02	0.13	0.05
2	2/3	~ 3/2	11.1	5.30	35.96	4.11	6.72	2.31	2.31	1.29	0.20	1.68	0.34
3	3/2	~ 3/30	81.4	6.37	7.74	0.68	0.99	0.54	0.46	0.27	0.05	0.27	0.06
年計			1,329.8										
加重平均				5.41	8.69	0.84	0.95	0.47	0.44	0.26	0.04	0.14	0.04

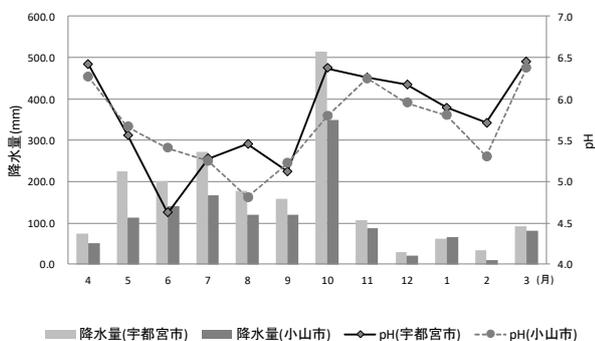


図1 降水量及びpHの経月変化

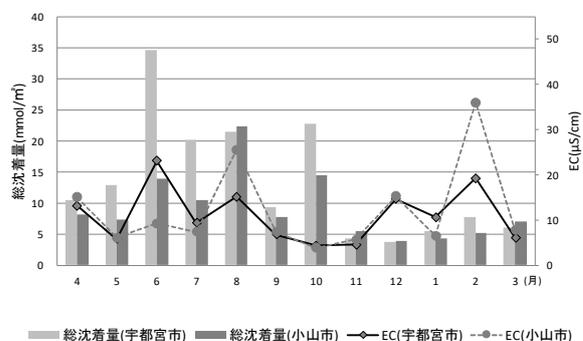


図2 総沈着量及びECの経月変化

は2月が最も高く、それぞれ23.08 μ S/cm及び35.96 μ S/cmであった。また、最も低い値は、宇都宮市及び小山市とも10

月で、それぞれ4.36μS/cm、3.82μS/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宇都宮市と小山市で同程度であった。月ごとにイオン成分濃度の推移をみると、宇都宮市ではSO₄²⁻及びNO₃⁻が4月、6~8月及び12~2月におおむね1mg/Lを超え高くなる傾向にあり、小山市の濃度推移も類似していた。小山市は2月に降水量が極めて低く宇都宮市の1/3ほどであったが、全てのイオン成分濃度が、宇都宮市の2倍程度又はそれ以上になっていた。

3.5 沈着量

イオン成分ごとの月間沈着量を表3~4に、経月変化を図3~10に示す。年間のイオン成分総沈着量は、宇都宮市では陰イオンが75.5mmol/m²、陽イオンが83.5mmol/m²、小山市では陰イオンが49.8mmol/m²、陽イオンが60.3mmol/m²で宇都宮市の方が多かった。

月ごとに沈着量をみると、宇都宮市では6月に、小山市では8月に最も多く、11月から2月に少なかった。

経月変化をみると、SO₄²⁻、NO₃⁻及びNH₄⁺は6月から8月に多く、それ以降は少なくなっていた。Cl⁻、Na⁺及びMg²⁺は、10月に多く、そのほかの月は少なめの沈着量で推移していた。残るK⁺及びCa²⁺は、6月、8月及び10月に多かった。経月変化の傾向はおおむね3つのグループに分けられた。

図11に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=0.635)があった。宇都宮市の6~8月及び小山市の8月は降水量に対して総沈着量が多く、これらを除くとr=0.885と強い相関が見られ、夏に総沈着量が多くなる、降水量とは別の要因があると示唆された。

図12にNO₃⁻当量とSO₄²⁻当量との関係を示す。宇都宮市の6月、7月及び8月並びに小山市の8月はSO₄²⁻及びNO₃⁻ともに多く、夏季における当該ガス成分の生成や大気中におけるウォッシュアウトなどの影響があるとみられた。直線の傾きであるNO₃⁻/SO₄²⁻の値は、0.84で一年を通して安定し、SO₄²⁻及びNO₃⁻の沈着量は、昨年度¹⁾と同様強い相関があった(r=0.980)。NO₃⁻/SO₄²⁻の0.84は森らの報告²⁾によると、硝酸が高い都市部の環境とされるもので、主に都市大気の影響を受けていると推察された。

表3 各イオン成分の沈着量 (宇都宮市)

月	沈着量(mmol/m ²)										総沈着量(mmol/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	1.23	2.38	1.24	3.56	1.05	0.15	0.55	0.19	0.03	4.9	5.5	10.4	
5	1.21	2.09	2.65	3.05	2.27	0.13	0.51	0.31	0.62	6.0	6.9	12.8	
6	4.72	8.21	3.32	9.03	2.87	0.25	1.04	0.40	4.76	16.3	18.4	34.6	
7	2.64	5.41	1.43	7.69	0.80	0.09	0.56	0.10	1.45	9.5	10.7	20.2	
8	2.98	5.03	2.34	7.25	2.10	0.18	0.68	0.28	0.62	10.4	11.1	21.5	
9	1.02	1.29	1.84	1.82	1.65	0.08	0.24	0.21	1.19	4.2	5.2	9.3	
10	1.53	1.79	7.94	2.80	6.91	0.23	0.47	0.86	0.22	11.3	11.5	22.8	
11	0.34	0.70	1.07	0.83	0.95	0.04	0.15	0.12	0.06	2.1	2.2	4.3	
12	0.45	0.68	0.75	0.91	0.71	0.04	0.11	0.09	0.02	1.9	1.9	3.8	
1	0.65	1.23	0.92	1.56	0.75	0.06	0.17	0.11	0.08	2.8	2.7	5.5	
2	0.77	1.90	0.99	2.41	0.88	0.07	0.46	0.17	0.07	3.7	4.1	7.7	
3	0.50	1.22	0.99	2.01	0.80	0.08	0.33	0.14	0.03	2.7	3.4	6.1	
年計	18.04	31.93	25.48	42.92	21.74	1.40	5.27	2.98	9.15	75.5	83.5	158.9	

表4 各イオン成分の沈着量 (小山市)

月	沈着量(mmol/m ²)										総沈着量(mmol/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	0.93	1.85	1.02	2.73	0.86	0.14	0.51	0.17	0.03	3.8	4.4	8.2	
5	0.61	1.08	1.63	1.76	1.39	0.10	0.28	0.19	0.25	3.3	4.0	7.3	
6	1.68	2.63	1.53	5.35	1.18	0.20	0.52	0.19	0.56	5.8	8.0	13.8	
7	1.33	2.62	0.74	3.99	0.46	0.06	0.23	0.07	0.94	4.7	5.8	10.4	
8	3.17	4.98	2.61	6.39	2.28	0.18	0.54	0.30	1.85	10.8	11.5	22.3	
9	0.79	1.36	1.39	1.93	1.15	0.08	0.18	0.16	0.72	3.5	4.2	7.8	
10	0.93	1.07	4.45	2.64	3.76	0.18	0.33	0.50	0.56	6.5	8.0	14.4	
11	0.42	0.92	0.95	1.62	0.85	0.08	0.36	0.15	0.05	2.3	3.1	5.4	
12	0.40	0.63	0.73	0.95	0.66	0.04	0.33	0.14	0.02	1.8	2.1	3.9	
1	0.35	0.75	0.72	1.37	0.61	0.03	0.21	0.12	0.11	1.8	2.5	4.3	
2	0.47	1.20	0.72	1.42	0.62	0.06	0.46	0.15	0.06	2.4	2.8	5.2	
3	0.57	1.30	1.24	2.07	0.97	0.10	0.55	0.20	0.03	3.1	3.9	7.0	
年計	11.65	20.39	17.73	32.22	14.79	1.25	4.50	2.34	5.18	49.8	60.3	110.1	

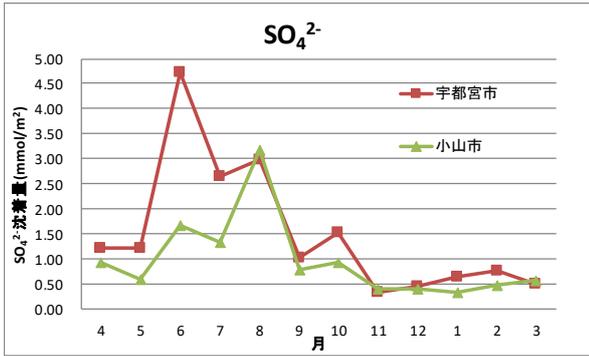


図3 SO₄²⁻沈着量の経月変化

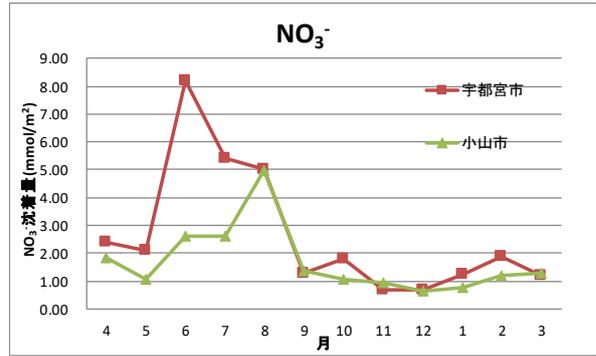


図4 NO₃⁻沈着量の経月変化

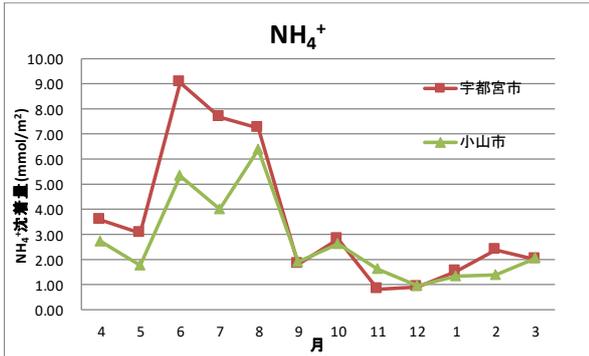


図5 NH₄⁺沈着量の経月変化

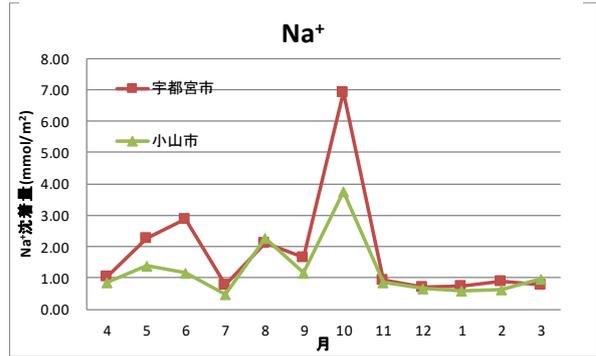


図6 Na⁺沈着量の経月変化

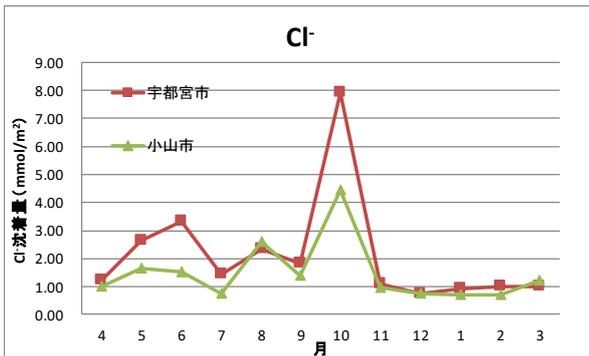


図7 Cl⁻沈着量の経月変化

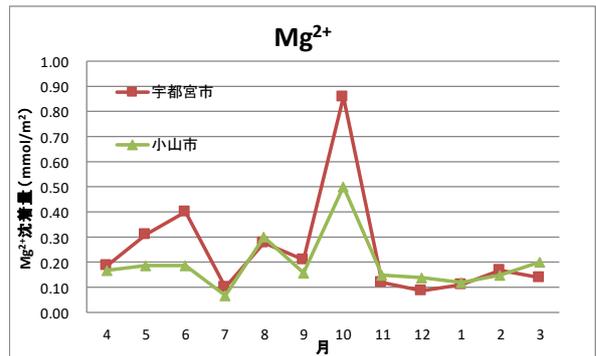


図8 Mg²⁺沈着量の経月変化

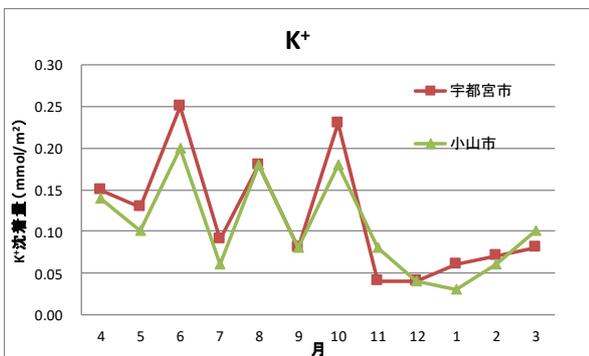


図9 K⁺沈着量の経月変化

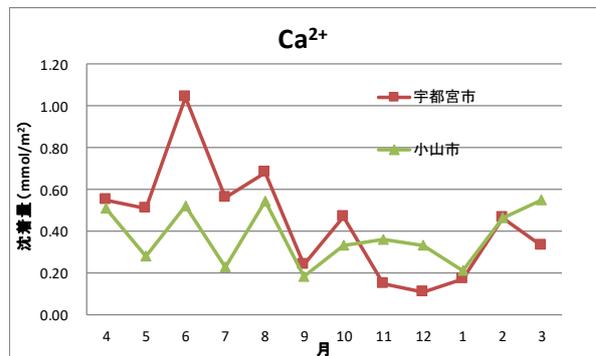
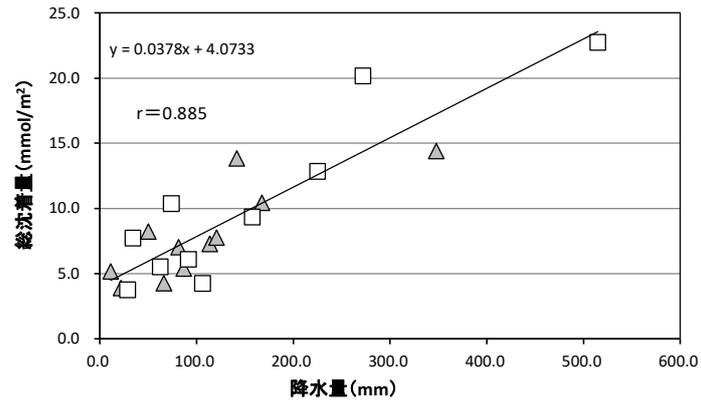
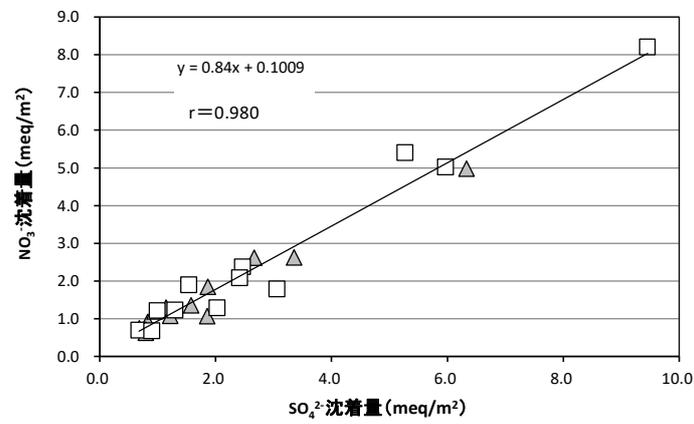


図10 Ca²⁺沈着量の経月変化



□宇都宮市 ▲小山市

図11 降水量と総沈着量
(宇都宮市6月～8月、小山市8月を除外した)



□宇都宮市 ▲小山市

図12 SO₄²⁻及びNO₃⁻月間沈着量

4 参考文献

- 1) 栃木県保健環境センター大気環境部、平成30年度湿性沈着調査結果、栃木県保健環境センター年報、第24号、136-138、2019.
- 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.