

# 平成 27 年度湿性沈着調査結果

大気環境部

篠崎 絵美 石原島 栄二

## 1 はじめに

酸性雨は、原因物質が長距離にわたって移動し、その影響は原因が発生した国内にとどまらず、国境を越えて広がる恐れがあることから、地球規模の環境問題の一つとして位置付けられている。

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）において、平成20年度からは日光市及び小山市においても、湿性沈着調査を行っている。

本報告は、平成27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。

平成 27 年 4 月 6 日～平成 28 年 3 月 22 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（㈱小笠原計器製作所製 US-330H、採取口面積 314cm<sup>2</sup>）を用いて、1～3 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：電気導電率計による方法

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、概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、各月のデータを得た。

## 2 調査方法

### 2.1 調査期間

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 <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	4/6	～ 4/20	105.3	5.52	6.51	0.71	0.70	0.11	0.21	0.04	0.02	0.11	0.02
5	5/7	～ 6/1	82.8	4.99	10.04	1.34	1.10	0.20	0.30	0.11	0.07	0.23	0.04
6	6/1	～ 6/29	241.5	4.71	13.58	1.54	0.86	0.25	0.31	0.09	0.04	0.10	0.02
7	6/29	～ 7/27	314.6	4.95	5.95	0.51	0.22	0.29	0.06	0.14	0.01	0.03	0.02
8	7/27	～ 9/7	280.1	4.49	21.50	2.14	1.05	0.23	0.31	0.06	0.02	0.05	0.01
9	9/7	～ 10/5	606.6	5.79	2.22	0.15	0.16	0.05	0.01	0.04	0.02	0.03	0.01
10	10/5	～ 11/2	40.8	5.76	11.12	1.34	0.43	0.43	0.06	0.15	0.88	0.89	0.11
11	11/2	～ 11/30	138.7	5.15	5.32	0.48	0.34	0.11	0.05	0.05	0.01	0.04	0.00
12	11/30	～ 12/28	87.3	5.14	5.43	0.48	0.37	0.22	0.07	0.12	0.02	0.05	0.02
1	12/28	～ 1/25	53.8	5.80	4.04	0.28	0.22	0.35	0.03	0.22	0.04	0.17	0.03
2	1/25	～ 3/7	65.6	5.63	6.12	0.70	0.61	0.25	0.53	0.14	0.04	0.14	0.03
3	3/7	～ 4/5	72.3	4.99	17.41	1.08	1.20	0.18	0.44	0.06	0.07	0.17	0.02
年計			2,089.4										
加重平均				4.98	8.41	0.82	0.51	0.18	0.15	0.08	0.04	0.08	0.02

7、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沈着量を算出した。

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 <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	4/6	～ 4/20	92.0	5.52	8.87	0.84	1.27	0.22	0.47	0.09	0.03	0.14	0.03
5	5/7	～ 6/2	90.0	4.93	15.26	1.89	1.73	0.49	0.69	0.24	0.05	0.33	0.06
6	6/1	～ 6/29	144.2	4.64	21.69	2.41	2.20	0.58	0.84	0.28	0.05	0.23	0.05
7	6/29	～ 7/27	363.7	4.89	11.29	0.96	1.15	0.31	0.41	0.13	0.01	0.05	0.02
8	7/27	～ 9/7	333.8	4.51	25.97	2.64	2.17	0.53	0.77	0.26	0.03	0.16	0.04
9	9/7	～ 10/5	410.4	5.63	5.79	0.45	0.45	0.55	0.16	0.30	0.03	0.05	0.04
10	10/5	～ 11/2	47.5	5.40	8.18	0.83	0.91	0.42	0.34	0.28	0.03	0.20	0.05
11	11/2	～ 11/30	109.1	4.97	10.90	0.92	0.88	0.63	0.36	0.34	0.02	0.08	0.04
12	11/30	～ 12/28	62.7	4.85	11.98	0.79	0.96	1.01	0.30	0.58	0.04	0.10	0.07
1	12/28	～ 1/25	46.3	5.59	5.79	0.57	0.50	0.19	0.25	0.12	0.02	0.10	0.02
2	1/25	～ 3/7	78.8	5.10	17.71	2.02	1.79	1.19	0.52	0.53	0.07	0.33	0.09
3	3/7	～ 4/5	67.4	5.66	16.01	2.25	2.51	0.63	1.25	0.33	0.15	0.41	0.09
年計			1,845.9										
加重平均				4.89	13.84	1.37	1.33	0.52	0.49	0.26	0.03	0.14	0.04

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沈着量を算出した。

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 <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	4/6	~ 4/20	75.0	5.32	10.11	1.19	1.39	0.52	0.40	0.28	0.04	0.35	0.06
5	5/7	~ 6/2	80.4	4.98	13.21	1.73	1.60	0.40	0.59	0.20	0.04	0.29	0.05
6	6/1	~ 6/29	166.5	4.71	17.16	1.73	1.76	0.42	0.68	0.20	0.04	0.14	0.04
7	6/29	~ 7/27	184.2	5.01	11.30	1.01	1.35	0.51	0.54	0.24	0.02	0.06	0.03
8	7/27	~ 9/7	72.8	4.66	24.41	2.55	2.32	1.01	0.98	0.52	0.05	0.18	0.08
9	9/7	~ 10/5	419.4	5.66	5.79	0.42	0.42	0.56	0.22	0.31	0.02	0.04	0.04
10	10/5	~ 11/2	59.3	5.32	8.28	0.82	0.85	0.42	0.35	0.27	0.03	0.14	0.05
11	11/2	~ 11/30	104.0	5.32	9.97	0.99	0.93	0.72	0.46	0.41	0.03	0.11	0.06
12	11/30	~ 12/28	41.2	4.80	19.20	1.46	2.36	1.51	0.85	0.81	0.07	0.23	0.13
1	12/28	~ 1/25	36.2	5.79	5.21	0.50	0.58	0.25	0.40	0.15	0.02	0.08	0.03
2	1/25	~ 3/7	52.9	5.10	17.81	2.05	1.92	1.30	1.31	1.29	0.16	0.93	0.26
3	3/7	~ 3/22	60.3	5.22	21.44	2.82	3.08	0.91	1.47	0.58	0.15	0.52	0.14
年計			1,352.2										
加重平均				5.09	11.62	1.16	1.24	0.62	0.54	0.36	0.04	0.17	0.06

9月はオーバーフローがあったため、最寄りの気象官署の降水量を用いて沈着量を算出した。

### 3 調査結果

各調査地点の調査結果(降水量、pH、EC並びに各イオン成分濃度)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により求めた。総沈着量は、各イオン成分濃度と降水量から各成分の沈着量を算出し、それらの値を合計して求めた。

$$\text{加重平均値} = \frac{\sum((\text{各月のイオン成分濃度}) \times Q_i)}{\sum Q_i}$$

また、pHの加重平均値は、以下の式により算出した。

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

※pHi : 各月の pH 値, Qi : 各月の降水量

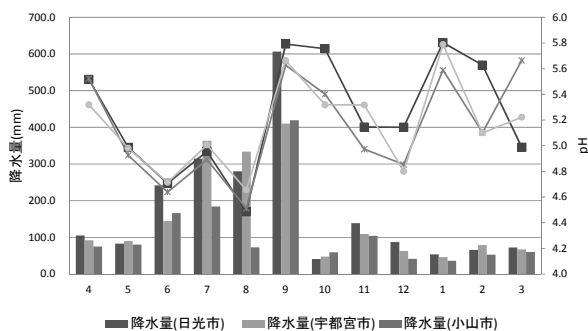


図1 各地点の降水量及びpHの経月変化

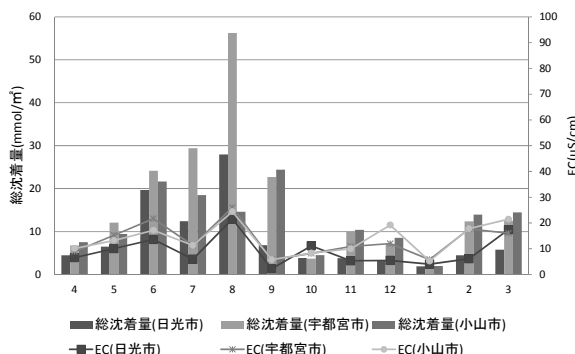


図2 各地点の総沈着量及びECの経月変化

#### 3.1 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月及び9月、宇都宮市及び小山市の9月については、オーバーフローがあったため、最寄りの気象官署の降水量を用いた。

平成27年度の年間降水量は日光市で2,089mmと最も多く、次いで宇都宮市の1,846mm、小山市の1,352mmであり、日光市と小山市とでは1.5倍程度の差があった。

四半期ごとにみると、すべての地点で第2四半期が最大となり、第4四半期にかけて減少傾向を示していた。

月ごとの特徴としては、全地点とも9月に降水量が最も多く、1月に最も少なかった。また、ピーク後は10月に降水量が減少し、11月に再び増加、その後1月にかけて漸減していた。

#### 3.2 pH及びEC

平成27年度のpHの加重平均値は、日光市が4.98、宇都宮市が4.89、小山市は5.09であった。pHはすべての地点で8月に最も低い値となり、それぞれ日光市が4.49、宇都宮市が4.51、小山市が4.66であった。一方、最も高い値であったのは、日光市及び小山市でそれぞれ1月に5.80及び5.79、宇都宮市で3月に5.66であった。

ECの加重平均値は、日光市で8.41μS/cm、宇都宮市で13.84μS/cm、小山市で11.62μS/cmであった。

月ごとにみると、ECが最も高い値になったのはいずれの地点も8月で、日光市では21.50μS/cm、宇都宮市では25.97μS/cm、小山市では24.41μS/cmであった。また一方で最も低い値となったのは、日光市では9月、宇都宮市では9月と1月、また小山市では1月であり、それぞれ2.22μS/cm、5.79μS/cm及び5.21μS/cmであった。

#### 3.3 イオン成分濃度

イオン成分濃度の加重平均値は、日光市で低めの濃度であり、宇都宮市と小山市はNa<sup>+</sup>、K<sup>+</sup>、Mg<sup>+</sup>を除き同程度の濃度であった。

年間の経月変化をみると、降水量が最大となった9月

に各地点とも濃度が低下した成分が多かった。

SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>及びNO<sub>3</sub><sup>-</sup>は、全地点で5月、6月、8月及び3月の濃度が高く、宇都宮市及び小山市では2月も同様であった。さらに、日光市では10月にもSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度が高めであった。

Cl<sup>-</sup>は、日光市で0.05~0.43mg/Lの範囲で比較的年間を通して変動が少なかった。宇都宮市及び小山市では12月及び2月の値が高めであり、小山市では8月も高めであった。9月は日光市で特に値が低く、その他の地点とでは異なった動向を示していた。

NH<sub>4</sub><sup>+</sup>は、地点により濃度が上昇する月が異なり、日光市では2月及び3月、宇都宮市では6月、8月及び3月、小山市では8月、12月、2月及び3月の濃度が高めであった。特に、全地点を通じて2月または3月に濃度が上昇し、また、9月には濃度が最も低くなる傾向がみられた。

Na<sup>+</sup>は、各地点ともCl<sup>-</sup>と類似した動向を示していた。

K<sup>+</sup>、Ca<sup>2+</sup>及びMg<sup>2+</sup>は、日光市は10月に、宇都宮市では3月に、小山市では2月に最高濃度となった。なおK<sup>+</sup>は、小山市で3月も高めの濃度となった。全地点ともに前述した以外の月では低めの値で推移していた。また、日光市のK<sup>+</sup>の最高濃度は、他の地点よりも、顕著に高かった。

### 3.4 沈着量

各調査地点の各成分の月別沈着量を表4~6に示す。

平成27年度のイオン成分の総沈着量は、日光市では陰イオンが45.7mmol/m<sup>2</sup>、陽イオンが55.1mmol/m<sup>2</sup>、宇都宮市では陰イオンが92.9mmol/m<sup>2</sup>、陽イオンが106.2mmol/m<sup>2</sup>、小山市では陰イオンが67.0mmol/m<sup>2</sup>、陽イオンが83.0mmol/m<sup>2</sup>であり、日光市、小山市、宇都宮市の順で多くなっていた。

月ごとにみると、宇都宮市及び小山市において、降水量が最大となった9月にCl<sup>-</sup>、Na<sup>+</sup>、K<sup>+</sup>及びMg<sup>2+</sup>の沈着量が最大の値を示していた。しかし日光市では、これらの成分の降下量は、K<sup>+</sup>を除き、最大降水量の9月ではなく、7月に最も多くなっており、降水量との関連については、宇都宮市や小山市よりも薄いと考えられた。なおK<sup>+</sup>は、日光市では10月に、他の地点でも降水量が比較的少なかった2月または3月にも、それぞれ沈着量が多くなっていた。日光市以外の地点では、Cl<sup>-</sup>、Na<sup>+</sup>及びMg<sup>2+</sup>の沈着量の増加が降水量に依存していることが示唆され、これらのイオン成分は相互に関連し、海塩に由来している可能性が伺われた。

SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>及びNH<sub>4</sub><sup>+</sup>の沈着量は、日光市及び宇都宮市ではいずれも8月に、小山市では6月に最も多かった。前者の2地点では、pHが8月にそれらの沈着量と連動して最も低かったが、小山市でも8月が最も低い値であった。8月に小山市でそれらの沈着量が少なかったのは、降水量が他の地点よりもかなり少なかったことが影響したと考えられた。

SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>とNO<sub>3</sub><sup>-</sup>の沈着量を比較すると、概ねNO<sub>3</sub><sup>-</sup>の方が多か

ったが、日光市の6~8月及び10月に限っては、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の方が多くなっていた。これは、大気中に存在するNO<sub>3</sub><sup>-</sup>が、乾性沈着等、湿性沈着以外の機構により除去されたためと考えられた。その4か月を除くと、すべての地点及び月について、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>とNO<sub>3</sub><sup>-</sup>の沈着量の相関は非常に強く(R=0.979)、概ねSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>とNO<sub>3</sub><sup>-</sup>の沈着量は、ほぼ一定の比率で推移していた。

## 4 参考文献

- 1) 栃木県保健環境センター大気環境部, 平成26年度湿性沈着調査結果, 栃木県保健環境センター年報, VI, 8, 108-110, 2015.

表4 各イオン成分の沈着量 (日光市)

月	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>
4	0.77	1.20	0.34	1.22	0.19	0.06	0.29	0.07	0.32
5	1.16	1.47	0.47	1.40	0.39	0.16	0.47	0.14	0.85
6	3.88	3.35	1.68	4.09	0.93	0.25	0.58	0.16	4.74
7	1.65	1.12	2.61	1.02	1.95	0.11	0.22	0.22	3.49
8	6.23	4.74	1.84	4.74	0.67	0.16	0.33	0.08	9.16
9	0.94	1.54	0.91	0.42	0.95	0.39	0.51	0.19	0.98
10	0.57	0.28	0.50	0.15	0.27	0.92	0.91	0.18	0.07
11	0.70	0.76	0.43	0.42	0.29	0.04	0.15	0.03	0.99
12	0.44	0.53	0.53	0.33	0.44	0.04	0.11	0.07	0.63
1	0.16	0.19	0.53	0.09	0.52	0.06	0.23	0.06	0.08
2	0.48	0.65	0.46	1.93	0.40	0.07	0.24	0.08	0.15
3	0.82	1.40	0.36	1.76	0.20	0.12	0.31	0.07	0.74
年計	17.80	17.23	10.66	17.57	7.20	2.38	4.35	1.35	22.20
加重平均	2.01	1.91	1.23	1.67	0.87	0.22	0.38	0.14	2.76

表5 各イオン成分の沈着量 (宇都宮市)

月	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>
4	0.81	1.88	0.56	2.38	0.37	0.06	0.31	0.12	0.28
5	1.77	2.52	1.24	3.45	0.95	0.12	0.74	0.21	1.07
6	3.62	5.12	2.35	6.74	1.73	0.18	0.82	0.28	3.32
7	3.64	6.77	3.15	8.22	2.10	0.11	0.46	0.28	4.68
8	9.17	11.66	4.97	14.22	3.83	0.25	1.29	0.59	10.27
9	1.92	2.98	6.31	3.62	5.44	0.30	0.53	0.64	0.97
10	0.41	0.70	0.57	0.90	0.57	0.04	0.23	0.10	0.19
11	1.04	1.54	1.95	2.17	1.63	0.06	0.21	0.19	1.16
12	0.51	0.97	1.79	1.04	1.57	0.06	0.15	0.19	0.88
1	0.28	0.38	0.25	0.63	0.24	0.02	0.11	0.03	0.12
2	1.66	2.28	2.64	2.27	1.83	0.15	0.65	0.29	0.62
3	1.58	2.73	1.19	4.66	0.96	0.25	0.69	0.26	0.15
年計	26.41	39.53	26.97	50.30	21.22	1.60	6.19	3.18	23.71
加重平均	3.44	5.07	3.55	6.28	2.80	0.18	0.64	0.39	3.46

表6 各イオン成分の沈着量 (小山市)

月	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>
4	0.93	1.69	1.09	1.65	0.91	0.07	0.65	0.19	0.36
5	1.45	2.07	0.90	2.64	0.70	0.08	0.58	0.16	0.84
6	2.99	4.73	1.95	6.29	1.47	0.19	0.58	0.26	3.21
7	1.95	4.00	2.64	5.51	1.93	0.11	0.29	0.23	1.82
8	1.93	2.72	2.08	3.96	1.64	0.10	0.33	0.24	1.61
9	1.85	2.86	6.65	5.07	5.69	0.25	0.45	0.67	0.91
10	0.51	0.81	0.71	1.15	0.69	0.04	0.21	0.11	0.28
11	1.07	1.57	2.10	2.66	1.85	0.09	0.28	0.28	0.50
12	0.63	1.57	1.76	1.93	1.46	0.08	0.24	0.23	0.65
1	0.19	0.34	0.25	0.79	0.23	0.02	0.07	0.04	0.06
2	1.13	1.64	1.94	3.85	2.96	0.22	1.23	0.56	0.42
3	1.77	2.99	1.55	4.92	1.52	0.24	0.78	0.34	0.36
年計	16.40	26.99	23.62	40.42	21.05	1.49	5.69	3.31	11.02
加重平均	1.70	2.79	3.29	4.26	2.80	0.16	0.46	0.38	1.19