

# 平成28年度湿性沈着調査結果

大気環境部

篠崎 絵美<sup>1</sup> 石原島 栄二

(1 前保健環境センター)

## 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）で、平成20年度からは日光市及び小山市でも、湿性沈着調査を行っている。

本報告は、平成28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28年4月4日～平成29年4月3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（榊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

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

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	4/4	～ 5/2	137.4	6.05	4.67	0.55	0.41	0.23	0.16	0.14	0.06	0.13	0.03
5	5/2	～ 5/30	90.3	5.91	4.84	0.45	0.40	0.13	0.18	0.07	0.27	0.11	0.04
6	5/30	～ 6/27	143.1	6.01	6.21	0.66	0.60	0.09	0.14	0.04	0.11	0.25	0.04
7	6/27	～ 7/25	112.5	5.05	10.10	0.91	0.73	0.08	0.32	0.03	0.02	0.04	0.00
8	7/25	～ 9/5	536.1	5.16	4.22	0.31	0.26	0.11	0.07	0.07	0.01	0.02	0.01
9	9/5	～ 10/3	411.6	5.14	5.51	0.44	0.39	0.07	0.07	0.03	0.02	0.02	0.00
10	10/3	～ 10/31	89.0	5.41	6.33	0.62	0.50	0.33	0.04	0.19	0.27	0.17	0.05
11	10/31	～ 11/28	89.3	5.78	3.91	0.42	0.17	0.13	0.02	0.08	0.18	0.22	0.03
12	11/28	～ 12/26	54.7	5.83	3.58	0.37	0.22	0.15	0.04	0.09	0.08	0.15	0.03
1	12/26	～ 2/6	63.7	6.38	8.50	0.82	0.31	0.99	0.08	0.58	0.05	0.16	0.08
2	2/6	～ 3/6	27.5	5.06	17.39	2.30	0.94	1.34	0.32	0.55	0.08	0.67	0.12
3	3/6	～ 4/3	47.9	5.06	8.95	0.75	0.92	0.17	0.21	0.09	0.03	0.16	0.02
年計			1,803.1										
加重平均				5.29	5.65	0.51	0.40	0.17	0.11	0.09	0.06	0.09	0.02

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。

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	4/4	～ 5/2	136.8	5.46	13.99	1.54	1.85	0.81	0.67	0.49	0.10	0.35	0.10
5	5/2	～ 5/30	92.5	5.50	11.43	1.14	1.24	0.57	0.47	0.31	0.06	0.18	0.06
6	5/30	～ 6/27	97.4	4.62	26.75	2.55	2.88	0.78	0.81	0.44	0.13	0.33	0.08
7	6/27	～ 7/25	93.6	5.12	22.46	2.61	3.06	0.41	1.34	0.23	0.05	0.17	0.04
8	7/25	～ 9/5	402.5	5.00	9.78	0.82	0.83	0.43	0.28	0.24	0.02	0.06	0.03
9	9/5	～ 10/3	457.5	5.00	9.59	0.81	1.00	0.24	0.32	0.12	0.01	0.04	0.01
10	10/3	～ 10/31	63.5	5.04	13.85	1.14	1.14	1.22	0.34	0.73	0.05	0.16	0.10
11	10/31	～ 11/28	103.7	5.50	5.98	0.60	0.54	0.36	0.22	0.22	0.02	0.11	0.03
12	11/28	～ 12/26	67.4	5.59	6.64	0.48	0.61	0.54	0.25	0.34	0.02	0.08	0.05
1	12/26	～ 2/6	24.1	5.62	10.99	1.32	0.91	0.37	0.52	0.18	0.02	0.20	0.04
2	2/6	～ 3/6	20.6	5.29	22.83	2.43	4.19	1.14	1.24	0.62	0.10	1.07	0.14
3	3/6	～ 4/3	62.7	5.19	12.89	1.40	1.55	0.68	0.72	0.30	0.08	0.27	0.06
年計			1,622.3										
加重平均				5.06	12.02	1.14	1.30	0.49	0.46	0.27	0.04	0.14	0.04

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。

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	4/4	~ 5/2	112.2	5.43	13.01	1.49	1.78	0.69	0.74	0.41	0.09	0.32	0.08
5	5/2	~ 5/30	88.5	5.00	12.11	2.12	2.06	0.69	0.78	0.33	0.06	0.20	0.06
6	5/30	~ 6/27	90.8	4.85	19.42	2.32	2.27	0.70	0.87	0.35	0.05	0.43	0.07
7	6/27	~ 7/25	83.6	5.32	17.07	2.08	2.63	0.38	0.98	0.21	0.10	0.52	0.05
8	7/25	~ 9/5	249.6	5.32	7.78	0.71	0.60	0.52	0.30	0.30	0.02	0.12	0.06
9	9/5	~ 10/3	297.0	5.36	7.29	0.73	0.83	0.38	0.41	0.19	0.03	0.12	0.03
10	10/3	~ 10/31	69.6	5.83	14.02	1.33	1.59	1.28	0.71	0.75	0.07	0.35	0.12
11	10/31	~ 11/28	101.2	5.85	7.37	0.77	0.77	0.50	0.30	0.29	0.05	0.29	0.07
12	11/28	~ 12/26	52.4	5.94	9.09	0.70	0.87	0.44	0.45	0.25	0.04	0.61	0.09
1	12/26	~ 2/6	12.4	4.88	19.31	3.15	2.09	1.30	1.10	0.66	0.32	1.71	0.18
2	2/6	~ 3/6	13.2	5.96	32.75	3.25	4.33	1.44	1.13	0.71	0.18	3.03	0.28
3	3/6	~ 4/3	55.3	5.64	12.87	1.48	1.62	0.70	0.69	0.36	0.09	0.68	0.11
年計			1,225.8										
加重平均				5.30	10.94	1.23	1.31	0.58	0.55	0.32	0.05	0.32	0.07

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濃度を算出した。

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。

### 3 調査結果

#### 3.1 概要

平成28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。

$$\text{① 沈着量} = \frac{\text{各月のイオン成分濃度} \times \text{Qi}}{\text{各イオン成分の分子量}}$$

$$\text{② 加重平均値} = \frac{\sum (\text{各月のイオン成分濃度} \times \text{Qi})}{\sum \text{Qi}}$$

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

※pHi：各月のpH値, Qi：各月の降水量

#### 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、日光市及び宇都宮市の8月と全地点の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。

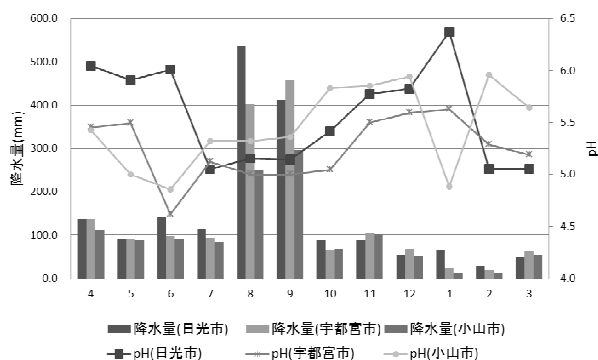


図1 各地点の降水量及びpHの経月変化

平成28年度の年間降水量は、日光市で1,803mmと最も多く、次いで宇都宮市の1,622mm、小山市の1,226mmであり、日光市と小山市とでは1.5倍程度の差があった。

月ごとの特徴としては、日光市では8月、宇都宮市及び小山市では9月に降水量が最も多く、小山市では1月、日光市及び宇都宮市では2月が最も少なかった。ただし、日光市以外では1月と2月の降水量は同程度であった。

#### 3.3 pH及びEC

平成28年度のpH加重平均値は、日光市が5.29、宇都宮市が5.06、小山市は5.30であった。pHは日光市では7月、宇都宮市及び小山市では6月に最も低く、それぞれ5.05、4.62及び4.85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1月の6.38及び5.62、小山市では2月の5.96であった。

ECの加重平均値は、日光市で5.65μS/cm、宇都宮市で12.02μS/cm、小山市で10.94μS/cmであった。月ごとにみると、日光市及び小山市で2月が最も高く、それぞれ17.39μS/cm及び32.75μS/cm、宇都宮市では6月が最も高く、26.75μS/cmであった。また、最も低い値となったのは、日光市では12月、宇都宮市では11月、小山市では9月で、それぞれ3.58μS/cm、5.98μS/cm及び7.29μS/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、日光市でK<sup>+</sup>以外のイオン成分が、他地点よりも低めであり、宇都宮市と小山市は、Ca<sup>2+</sup>及びMg<sup>2+</sup>を除き同程度であった。

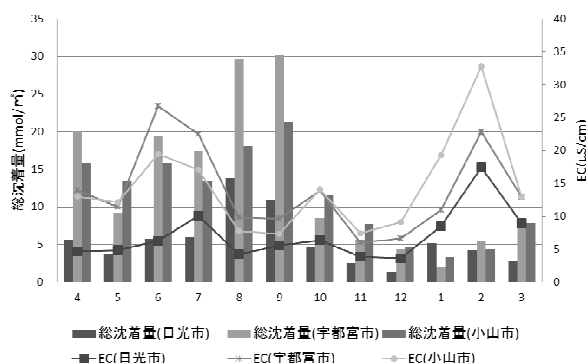


図2 各地点の総沈着量及びECの経月変化

年間の経月変化をみると、全地点で、降水量が多かった8月または9月に、濃度が低くなるイオン成分が多く、降水量の少なかった1月または2月に、濃度が高くなるイオン成分が多かった。また、日光市と宇都宮市においては、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>及びNH<sub>4</sub><sup>+</sup>は11月に、宇都宮市と小山市のSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>は12月に濃度が低下していた。

また、宇都宮市ではSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>が6月から7月にかけて、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>が7月に、宇都宮市と小山市ではCl<sup>-</sup>とNa<sup>+</sup>が10月に、それぞれ濃度が上昇していた。

また、日光市のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>は0.17~0.94mg/Lの範囲で推移しており、年間を通して他の2地点よりも変動が少なく、低い濃度であった。K<sup>+</sup>は、地点ごとに固有の変動が見られ、日光市では5月と10月、宇都宮市では6月、小山市では1月に高い値を示した。

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。

平成28年度のイオン成分総沈着量は、日光市では陰イオンが30.1mmol/m<sup>2</sup>、陽イオンが36.1mmol/m<sup>2</sup>、宇都宮市では陰イオンが75.4mmol/m<sup>2</sup>、陽イオンが84.7mmol/m<sup>2</sup>、小山市では陰イオンが61.8mmol/m<sup>2</sup>、陽イオンが75.3mmol/m<sup>2</sup>であった。いずれも日光市、小山市、宇都宮市の順で多くなっていたが、宇都宮市と小山市とでは差は小さかった。ただし成分ごとにみると、Na<sup>+</sup>とNH<sub>4</sub><sup>+</sup>以外の陽イオン成分の沈着量は、この順位とは一致していなかった。

比較的降水量が多かった8月または9月に、各地点でSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、Cl<sup>-</sup>、Na<sup>+</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>及びH<sup>+</sup>の沈着量が高い値を示していたことから、これらの沈着に降水量が関係していることが示唆された。なおK<sup>+</sup>は、日光市では5月、6月、10月及び11月に、宇都宮市では4月と6月に、小山市では4月にそれぞれ沈着量が多くなっていた。

SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>とNO<sub>3</sub><sup>-</sup>の沈着量を比較すると、日光市の11~2月を除き、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>の方が多かった。日光市は8月と3月を除いて、他の2地点よりもNO<sub>3</sub><sup>-</sup>/SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の値が低くなる傾向が見られた。すべての地点及び月について、図3のとおりSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>とNO<sub>3</sub><sup>-</sup>の沈着量非常に強い相関が見られた(R = 0.977)。

4 参考文献

- 1) 栃木県保健環境センター大気環境部, 平成27年度湿性沈着調査結果, 栃木県保健環境センター年報, 第21号, 120-122, 2016.

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	0.79	0.90	0.89	1.23	0.87	0.21	0.45	0.15	0.12
5	0.43	0.58	0.34	0.91	0.28	0.62	0.24	0.15	0.11
6	0.98	1.38	0.34	1.09	0.23	0.39	0.91	0.25	0.14
7	1.07	1.33	0.24	2.01	0.16	0.06	0.11	0.02	1.00
8	1.74	2.28	1.68	2.09	1.61	0.15	0.32	0.19	3.74
9	1.90	2.60	0.81	1.52	0.53	0.22	0.22	0.08	2.95
10	0.58	0.72	0.84	0.21	0.72	0.62	0.37	0.17	0.34
11	0.39	0.24	0.33	0.08	0.33	0.41	0.50	0.12	0.15
12	0.21	0.19	0.22	0.12	0.21	0.11	0.20	0.06	0.08
1	0.55	0.31	1.77	0.27	1.62	0.09	0.26	0.22	0.03
2	0.66	0.42	1.04	0.49	0.66	0.05	0.46	0.13	0.24
3	0.38	0.71	0.23	0.56	0.18	0.03	0.19	0.05	0.42
年計	9.68	11.66	8.73	10.58	7.40	2.96	4.23	1.59	9.32

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	2.20	4.08	3.12	5.08	2.92	0.36	1.21	0.55	0.48
5	1.10	1.85	1.48	2.43	1.24	0.14	0.42	0.21	0.30
6	2.59	4.53	2.15	4.37	1.86	0.33	0.79	0.34	2.34
7	2.54	4.63	1.07	6.94	0.94	0.13	0.39	0.14	0.71
8	3.44	5.38	4.87	6.33	4.22	0.25	0.61	0.51	4.03
9	3.85	7.37	3.15	8.11	2.29	0.15	0.44	0.27	4.57
10	0.76	1.17	2.18	1.19	2.01	0.09	0.26	0.26	0.57
11	0.65	0.90	1.07	1.28	1.01	0.05	0.28	0.13	0.33
12	0.34	0.67	1.02	0.94	1.01	0.03	0.14	0.13	0.17
1	0.33	0.36	0.25	0.69	0.19	0.02	0.12	0.04	0.06
2	0.52	1.39	0.66	1.42	0.56	0.05	0.55	0.12	0.11
3	0.92	1.57	1.21	2.50	0.83	0.13	0.43	0.16	0.41
年計	19.24	33.90	22.23	41.28	19.08	1.73	5.64	2.86	14.08

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	1.75	3.22	2.19	4.63	1.98	0.27	0.91	0.38	0.42
5	1.95	2.94	1.72	3.82	1.27	0.14	0.45	0.22	0.88
6	2.19	3.33	1.80	4.40	1.39	0.11	0.97	0.28	1.27
7	1.81	3.54	0.90	4.54	0.77	0.20	1.08	0.18	0.40
8	1.84	2.41	3.66	4.19	3.23	0.15	0.77	0.61	1.20
9	2.25	3.97	3.15	6.70	2.46	0.22	0.87	0.41	1.30
10	0.97	1.79	2.51	2.73	2.27	0.13	0.60	0.35	0.10
11	0.81	1.25	1.44	1.66	1.29	0.12	0.73	0.29	0.14
12	0.38	0.73	0.65	1.32	0.56	0.05	0.79	0.19	0.06
1	0.41	0.42	0.46	0.76	0.35	0.10	0.53	0.09	0.16
2	0.45	0.92	0.54	0.83	0.40	0.06	1.00	0.15	0.01
3	0.85	1.45	1.10	2.12	0.86	0.13	0.94	0.25	0.13
年計	15.66	25.97	20.12	37.70	16.83	1.68	9.64	3.40	6.07

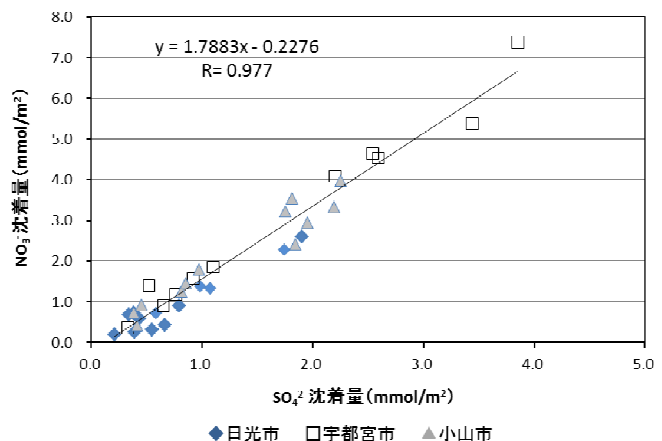


図3 全地点におけるSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>とNO<sub>3</sub><sup>-</sup>月間沈着量の相関