

# 平成29年度湿性沈着調査結果

大気環境部

大塚 香穂里<sup>1</sup> 石原島 栄二

(1 現下水道管理事務所)

## 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29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29年4月3日～平成30年4月2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	4/3	～ 5/1	118.3	5.81	7.78	0.91	0.63	0.27	0.24	0.10	0.05	0.25	0.03
5	5/1	～ 5/29	130.9	4.58	20.32	2.12	2.05	0.24	0.61	0.11	0.06	0.25	0.03
6	5/29	～ 6/26	111.6	4.97	8.98	0.85	0.83	0.12	0.23	0.07	0.12	0.10	0.02
7	6/26	～ 8/7	248.5	4.74	10.24	1.00	0.55	0.09	0.14	0.03	0.01	0.03	0.00
8	8/7	～ 9/4	464.2	5.06	6.86	0.59	0.42	0.17	0.12	0.08	0.01	0.03	0.01
9	9/4	～ 10/2	219.1	5.14	4.38	0.29	0.28	0.20	0.05	0.10	0.01	0.04	0.01
10	10/2	～ 10/30	433.4	5.31	3.79	0.26	0.17	0.07	0.03	0.04	0.02	0.03	0.01
11	10/30	～ 11/27	20.4	5.15	10.24	0.91	0.70	0.82	0.09	0.44	0.10	0.30	0.09
12	11/27	～ 12/25	15.1	5.32	12.35	1.64	1.25	0.45	0.32	0.34	0.12	0.51	0.08
1	12/25	～ 2/5	74.8	5.56	10.51	0.74	0.42	1.51	0.09	0.83	0.05	0.25	0.11
2	2/5	～ 3/5	52.2	5.48	9.33	0.83	0.77	0.83	0.24	0.44	0.06	0.29	0.08
3	3/5	～ 4/2	185.1	5.75	2.92	0.20	0.23	0.05	0.04	0.05	0.02	0.07	0.01
年計			2,073.6										
加重平均				5.06	7.29	0.65	0.51	0.21	0.14	0.11	0.03	0.09	0.02

8、10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	4/3	～ 5/1	115.1	5.51	12.40	1.41	1.48	0.64	0.65	0.38	0.07	0.35	0.08
5	5/1	～ 5/29	83.0	4.84	21.75	2.57	2.83	0.54	1.21	0.31	0.08	0.43	0.08
6	5/29	～ 6/26	120.6	4.93	18.57	1.88	2.33	0.70	0.84	0.40	0.06	0.39	0.07
7	6/26	～ 8/7	219.8	4.76	16.03	1.56	1.51	0.27	0.62	0.12	0.03	0.13	0.02
8	8/7	～ 9/4	219.6	5.00	9.99	0.97	0.84	0.42	0.35	0.22	0.02	0.07	0.03
9	9/4	～ 10/2	105.1	5.09	12.86	1.21	1.41	0.83	0.59	0.46	0.10	0.18	0.07
10	10/2	～ 10/30	347.4	5.30	6.54	0.51	0.38	0.45	0.18	0.24	0.02	0.04	0.03
11	10/30	～ 11/27	36.7	4.98	13.00	1.21	1.39	0.46	0.48	0.25	0.02	0.20	0.05
12	11/27	～ 12/25	22.9	4.77	21.06	1.60	2.55	0.94	0.67	0.43	0.04	0.23	0.09
1	12/25	～ 2/5	42.2	5.47	9.08	0.75	1.18	0.55	0.45	0.31	0.02	0.22	0.04
2	2/5	～ 3/5	35.5	5.32	16.27	1.40	1.97	1.60	0.53	0.64	0.05	0.37	0.13
3	3/5	～ 4/2	94.9	5.21	12.50	1.18	1.38	0.68	0.53	0.39	0.08	0.18	0.07
年計			1,442.8										
加重平均				5.04	12.42	1.20	1.28	0.54	0.51	0.29	0.04	0.17	0.05

10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	4/3	~ 5/1	73.6	5.57	16.66	1.89	2.27	0.89	0.93	0.52	0.13	0.85	0.14
5	5/1	~ 5/29	50.7	5.32	24.65	3.38	4.05	0.89	1.56	0.52	0.15	1.20	0.16
6	5/29	~ 6/26	75.5	5.46	13.72	1.67	1.83	0.57	0.65	0.32	0.08	0.55	0.08
7	6/26	~ 8/7	279.4	4.86	13.48	1.29	1.42	0.23	0.51	0.11	0.03	0.11	0.01
8	8/7	~ 9/4	125.4	4.83	14.89	1.40	1.63	0.37	0.52	0.19	0.03	0.18	0.04
9	9/4	~ 10/2	102.8	5.39	10.60	1.01	1.43	0.73	0.49	0.42	0.05	0.28	0.07
10	10/2	~ 10/30	355.5	5.54	11.44	0.72	0.38	1.61	0.35	0.87	0.06	0.09	0.11
11	10/30	~ 11/27	21.1	5.14	16.04	0.82	2.48	1.22	0.41	0.42	0.04	0.34	0.21
12	11/27	~ 12/25	17.5	4.72	25.40	2.27	2.71	1.12	0.84	0.59	0.07	0.54	0.13
1	12/25	~ 2/5	27.9	6.09	14.50	1.03	1.83	1.09	0.57	0.60	0.05	0.73	0.12
2	2/5	~ 3/5	44.2	6.08	20.30	1.29	1.36	1.20	0.45	0.40	0.07	2.57	0.14
3	3/5	~ 4/2	98.8	5.47	10.14	0.72	1.34	0.89	0.50	0.32	0.09	0.20	0.09
年計			1,272.4										
加重平均				5.16	13.67	1.22	1.37	0.89	0.54	0.46	0.06	0.35	0.08

10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、各月ごとのデータを得た。

### 3 調査結果

#### 3.1 概要

平成 29 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。

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

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

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

※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 1~3 の年計のとおりである。なお、日光市の8月と全地点の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。

平成 29 年度の年間降水量は、日光市で 2,074mm と最も多く、次いで宇都宮市の 1,443mm、小山市の 1,273mm であり、日光市と小山市とは 1.6 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 10 月に降水量が最も多く、全ての地点で 12 月が最も少なかった。

#### 3.3 pH 及び EC

平成 29 年度の pH 加重平均値は、日光市が 5.06、宇都

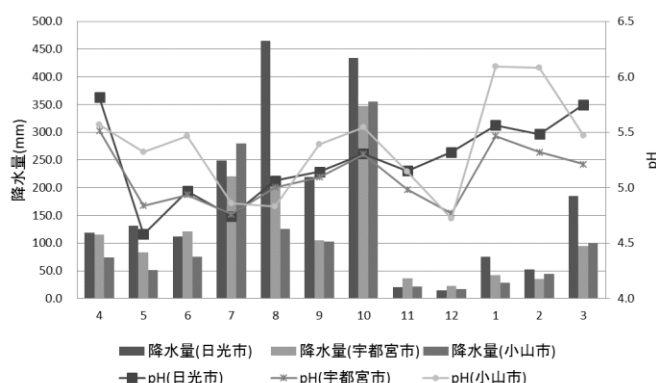


図1 各地点の降水量及び pH の経月変化

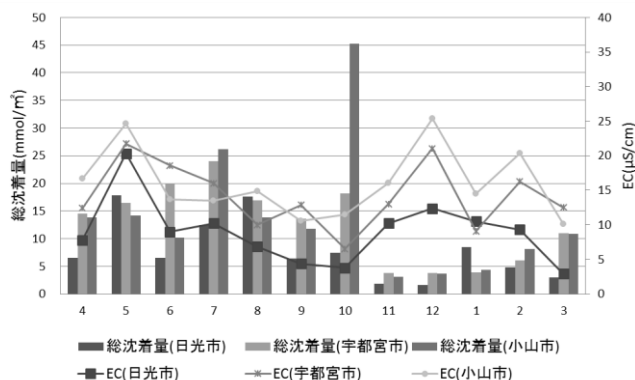


図2 各地点の総沈着量及び EC の経月変化

宮市が 5.04、小山市は 5.16 であった。月ごとにみると、日光市では 5 月、宇都宮市では 7 月、小山市では 12 月に最も低く、それぞれ 4.58、4.76 及び 4.72 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 4 月の 5.81 及び 5.51、小山市では 1 月の 6.09 であった。

EC の加重平均値は、日光市で 7.29 μS/cm、宇都宮市で 12.42 μS/cm、小山市で 13.67 μS/cm であった。月ごとにみると、日光市及び宇都宮市では 5 月が最も高く、それぞれ 20.32 μS/cm 及び 21.75 μS/cm、小山市では 12 月が最も高く、25.40 μS/cm であった。また、最も低い値は、日光市と小山市では 3 月に、それぞれ 2.92 μS/cm 及び 10.14 μS/cm、宇都宮市では 10 月に 6.54 μS/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、日光市が他地点よりも低めであった。SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>及びNH<sub>4</sub><sup>+</sup>においては宇都宮市と小山市は同程度であったが、その他の成分においては小山市が他地点よりも高めであった。

年間の経月変化をみると、全地点で、降水量が多かった10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5月や12月に、濃度が高くなるイオン成分が多かった。特に、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>及びNH<sub>4</sub><sup>+</sup>は全地点で、かつ各成分が相互に類似した経月変化が見られた。また、日光市ではCl<sup>-</sup>、Na<sup>+</sup>及びCa<sup>2+</sup>が11月から2月にかけて、小山市ではCl<sup>-</sup>及びNa<sup>+</sup>が10月に、Ca<sup>2+</sup>が2月に濃度が上昇していた。

宇都宮市では、9月に全イオン成分が若干の濃度上昇傾向が見られた。

日光市のNH<sub>4</sub><sup>+</sup>は0.03~0.61mg/Lの範囲で推移しており、年間を通して他の2地点よりも低い濃度であった。K<sup>+</sup>は、いずれの地点においても低い濃度で推移していたが、地点ごとに固有の変動が見られ、日光市では6月と12月、宇都宮市では9月、小山市では5月に高めの値を示した。

### 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29年度のイオン成分総沈着量は、日光市では陰イオンが43.6mmol/m<sup>2</sup>、陽イオンが50.7mmol/m<sup>2</sup>、宇都宮市では陰イオンが69.8mmol/m<sup>2</sup>、陽イオンが82.6mmol/m<sup>2</sup>、小山市では陰イオンが75.9mmol/m<sup>2</sup>、陽イオンが89.5mmol/m<sup>2</sup>であった。いずれも日光市、宇都宮市、小山市の順で多くなっていたが、日光市は特に低かった。

日光市では8月、宇都宮市では7月、小山市では10月に沈着量が多く、8月から10月は比較的降水量が多かったことから、沈着量と降水量の関連が示唆された。また、10月の小山市では、Cl<sup>-</sup>、Na<sup>+</sup>、K<sup>+</sup>及びMg<sup>2+</sup>が顕著に多かったことから、台風によって海塩性の成分が内陸部まで運ばれてきた可能性が示唆された。なおK<sup>+</sup>は、日光市では6月に、宇都宮市では9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7月及び1月、小山市の10月を除き、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>の方が多かった。日光市は10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>の沈着量に昨年度<sup>1)</sup>と同様強い相関が見られた(R = 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28年度湿性沈着調査結果, 栃木県保健環境センター年報, 第22号, 101-103, 2017.

表4 各イオン成分の沈着量 (日光市)

月	沈着量(mm <sup>2</sup> /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	1.12	1.20	0.91	1.56	0.51	0.15	0.75	0.14	0.18
5	2.89	4.33	0.90	4.41	0.62	0.21	0.83	0.16	3.45
6	0.99	1.49	0.37	1.45	0.32	0.34	0.27	0.09	1.20
7	2.58	2.19	0.66	1.94	0.28	0.05	0.17	0.05	4.51
8	2.86	3.13	2.25	2.96	1.68	0.14	0.36	0.20	4.02
9	0.67	0.99	1.26	0.57	0.91	0.08	0.21	0.10	1.57
10	1.16	1.22	0.83	0.65	0.80	0.19	0.33	0.17	2.14
11	0.19	0.23	0.47	0.10	0.39	0.05	0.15	0.07	0.14
12	0.26	0.30	0.19	0.27	0.22	0.05	0.19	0.05	0.07
1	0.58	0.51	3.18	0.35	2.70	0.09	0.46	0.34	0.20
2	0.45	0.65	1.22	0.69	1.01	0.08	0.37	0.17	0.17
3	0.39	0.69	0.27	0.38	0.41	0.10	0.32	0.04	0.33
年計	14.14	16.93	12.51	15.33	9.85	1.53	4.41	1.58	17.98

表5 各イオン成分の沈着量 (宇都宮市)

月	沈着量(mm <sup>2</sup> /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	1.69	2.75	2.09	4.16	1.91	0.21	1.00	0.37	0.35
5	2.22	3.80	1.25	5.55	1.12	0.16	0.89	0.26	1.21
6	2.36	4.53	2.37	5.59	2.08	0.19	1.18	0.35	1.40
7	3.58	5.37	1.65	7.50	1.11	0.16	0.70	0.16	3.82
8	2.22	2.96	2.58	4.22	2.09	0.10	0.37	0.26	2.18
9	1.32	2.40	2.45	3.41	2.11	0.27	0.46	0.29	0.85
10	1.84	2.10	4.42	3.54	3.61	0.14	0.38	0.41	1.75
11	0.46	0.82	0.48	0.98	0.40	0.02	0.18	0.07	0.38
12	0.38	0.94	0.61	0.84	0.43	0.02	0.13	0.09	0.39
1	0.33	0.80	0.65	1.05	0.58	0.03	0.23	0.08	0.14
2	0.52	1.13	1.60	1.04	0.99	0.05	0.33	0.19	0.17
3	1.16	2.11	1.81	2.80	1.59	0.20	0.44	0.27	0.58
年計	18.08	29.71	21.96	40.68	18.02	1.55	6.29	2.80	13.22

表6 各イオン成分の沈着量 (小山市)

月	沈着量(mm <sup>2</sup> /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	1.45	2.69	1.86	3.78	1.65	0.24	1.56	0.42	0.20
5	1.78	3.31	1.28	4.38	1.16	0.20	1.52	0.33	0.24
6	1.31	2.23	1.21	2.74	1.06	0.15	1.04	0.24	0.26
7	3.74	6.39	1.80	7.95	1.35	0.18	0.75	0.17	3.85
8	1.82	3.30	1.30	3.62	1.05	0.10	0.58	0.19	1.85
9	1.08	2.37	2.13	2.77	1.88	0.14	0.71	0.31	0.42
10	2.68	2.16	16.14	6.89	13.44	0.55	0.83	1.54	1.02
11	0.18	0.84	0.73	0.48	0.38	0.02	0.18	0.18	0.15
12	0.41	0.77	0.55	0.81	0.45	0.03	0.24	0.09	0.33
1	0.30	0.82	0.86	0.88	0.72	0.04	0.51	0.14	0.02
2	0.59	0.97	1.49	1.11	0.76	0.08	2.84	0.26	0.04
3	0.74	2.14	2.49	2.72	1.36	0.24	0.48	0.36	0.33
年計	16.08	27.99	31.84	38.13	25.26	1.97	11.24	4.23	8.71

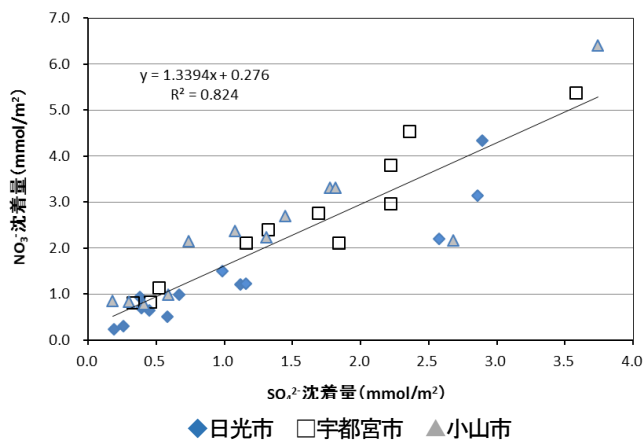


図3 全地点におけるSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>とNO<sub>3</sub><sup>-</sup>月間沈着量の相関