

# 大分県における湿性沈着中の成分調査 (2023年度)

河野 公亮、安藤 大生

## Investigation of components in Wet Deposition in Oita Prefecture (2023)

Kosuke Kawano, Daiki Ando

Key Words : 湿性沈着wet deposition, 酸性降下物acid deposition, 水素イオン濃度pH

### はじめに

当センターでは、雨水の化学的性状を把握し酸性雨発生機構解明の基礎資料を得るため、全国環境研協議会の第6次酸性雨全国調査に参加し、雨水成分調査を行っている。これまでの報告では、2013~2022年度の調査のうち湿性沈着に係る調査結果について報告してきた<sup>1,2,3,4,5)</sup>。今年度も引続き2023年度の降水量、pH、イオン成分濃度および沈着量の状況とそれらの推移などを報告する。

クロマトグラフ装置により測定した。

測定したイオン成分は、塩化物イオン(以下「Cl<sup>-</sup>」という)、硝酸イオン(以下「NO<sub>3</sub><sup>-</sup>」という)、硫酸イオン(以下「SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>」という)、アンモニウムイオン(以下「NH<sub>4</sub><sup>+</sup>」という)、ナトリウムイオン(以下「Na<sup>+</sup>」という)、カリウムイオン(以下「K<sup>+</sup>」という)、カルシウムイオン(以下「Ca<sup>2+</sup>」という)及びマグネシウムイオン(以下「Mg<sup>2+</sup>」という)の8成分である。

### 調査方法

#### 1 調査期間

2023年度 2023年3月27日~2024年3月25日

#### 2 調査地点

大分県衛生環境研究センター屋上

大分市高江西2丁目8番

北緯33° 09' 東経131° 36' 標高約90m

大分市は、約47万人の人口を抱える県下随一の都市である。北部には臨海工業地帯(当センターから北北東に約14km)があり、鉄鋼や石油化学等の工場が立地している。

当センターは、市の中心から南約10kmに位置している。周囲は閑静な住宅地域である。

#### 3 試料採取方法および分析方法

試料の採取は、降水時開放型捕集装置により原則月曜日に1週間ごとの雨水を採取する方法を用いた。

試料の分析は、湿性沈着モニタリング手引き書(第2版)<sup>6)</sup>に従った。

測定項目のうち、pH及び電気伝導率は、pH計及び電気伝導率計により測定した。

降水試料中のイオン成分濃度については、イオン

### 調査結果

以下に、2023年度の状況を示す。

pH及びイオン成分濃度の月平均値及び年平均値は、降水量加重平均値とした。降水量加重平均値とは、測定値を単純に平均したものではなく、降水量で重み付けした平均値のことであり、以下の計算式により算出した<sup>7)</sup>。

降水量加重平均値 (pH)

$$= -\log \left\{ \sum (10^{\text{pHi}} \times \text{Qi}) \right\} / \sum \text{Qi}$$

$$= -\log (\text{合計H}^+\text{量}) / \text{合計降水量}$$

pHi : 各測定時のpH、Qi : 各測定時の降水量

降水量加重平均値 (成分濃度)

$$= \left\{ \sum (\text{Ci} \times \text{Qi}) \right\} / \sum \text{Qi}$$

$$= \text{合計成分量} / \text{合計降水量}$$

Ci : 各測定時の成分濃度、Qi : 各測定時の降水量

#### 1 降水量について

降水量は捕集試料量 (mL) と捕集面積 (cm<sup>2</sup>) により算出した値を基本とし、オーバーフローが認められた試料については、屋上に設置してある雨量計による測定結果を用いた。

降水量および成分濃度を表1に示す。年間降水量は1905.3mmであり、前年度比で約19%増加となった(2022年度年間降水量1602.5mm)。

## 2 pHおよび電気伝導率について

表1よりpHの年平均値は4.83であり、前年度の年平均値4.74より高い値であった。

2023年度における1週間降水の測定値によるpH分布を図1に示す。pHは4.8~5.0の範囲の降水試料が最も多く、pHが低い側に偏りがみられる頻度分布であった。また、酸性雨の目安となるpH5.6以下の降水が9割以上を占めていた。

表1より、電気伝導率 (mS/m) の年平均値は、1.2であり、前年度年平均値の1.5に比べ低い値を示した。

## 3 イオン成分濃度

イオン成分濃度について、表1、図3-1~3-3に各成分濃度の経月変化、図2に降水試料中の各イオン成分濃度組成の割合を示す。なお、表及び図中の“nss-”とは非海塩性 (nss- : non sea salt) を、“ss-”は海塩性 (ss- : sea salt) を表している。非海塩性は各成分の測定値から海塩性イオンを差し引いた値である。雨水中には、海水中の $\text{SO}_4^{2-}$ や $\text{Ca}^{2+}$ などが含まれるため、ここでは $\text{Na}^+$ をすべて海塩性イオンとして、次式によりnss- $\text{SO}_4^{2-}$ 、nss- $\text{Ca}^{2+}$ を算出した<sup>8,9)</sup>。

$$\begin{aligned} [\text{nss-SO}_4^{2-}] &= [\text{SO}_4^{2-}] - [\text{ss-SO}_4^{2-}] \\ &= [\text{SO}_4^{2-}] - 0.06028 \times [\text{Na}^+] \\ [\text{nss-Ca}^{2+}] &= [\text{Ca}^{2+}] - [\text{ss-Ca}^{2+}] \\ &= [\text{Ca}^{2+}] - 0.02161 \times [\text{Na}^+] \end{aligned}$$

(海水中の濃度を $\text{Na}^+$  : 468.3mmol/L、 $\text{SO}_4^{2-}$  : 28.23mmol/L、 $\text{Ca}^{2+}$  : 10.12mmol/Lとする。)

上記式を用いて算出した2023年度降水試料中の非海塩性イオン成分の割合は、nss- $\text{SO}_4^{2-}$ が93.6%、nss- $\text{Ca}^{2+}$ が86.6%であった。

本項では、湿性沈着の汚染状況を把握するのに重要なイオン成分として $\text{H}^+$ 、降水の酸性成分であるnss- $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、降水の塩基性成分である $\text{NH}_4^+$ 、nss- $\text{Ca}^{2+}$ に着目した<sup>8,10,11,12)</sup>。

まず酸性成分であるnss- $\text{SO}_4^{2-}$ 加重平均濃度は9.9 $\mu\text{mol/L}$ であった。

$\text{NO}_3^-$ については10.5 $\mu\text{mol/L}$ であった。

次に塩基性成分である $\text{NH}_4^+$ については、8.7 $\mu\text{mol/L}$ であった。

nss- $\text{Ca}^{2+}$ については、1.6 $\mu\text{mol/L}$ であった。

また、 $\text{H}^+$ については14.6 $\mu\text{mol/L}$ であった。

降水試料中の各イオン成分濃度組成の割合につい

て、図2から酸性成分であるnss- $\text{SO}_4^{2-}$ および $\text{NO}_3^-$ 割合の合計は27.4%であった。塩基性成分である $\text{NH}_4^+$ およびnss- $\text{Ca}^{2+}$ 割合の合計は13.8%であった。また、 $\text{H}^+$ の割合は19.6%であった。

イオン成分濃度の経月変化について、図3-1~3-3に示すとおり多くのイオン成分において夏季(6月~8月)を中心に低濃度となり秋季(9月~11月)から冬季(12月~2月)にかけて高濃度となる季節変動が見られた。特に1月に最大を取る成分が多かった。これは1月の降水量が少なかったため、イオン成分の濃度が濃くなったものと考えられる。

## 4 イオン成分湿性沈着量

2023年度におけるイオン成分総沈着量を表2に示す。なお、イオン成分総沈着量 (mmol/m<sup>2</sup>) はイオン成分濃度 ( $\mu\text{mol/L}$ ) に降水量 (mm) を掛け合わせるにより算出した。

nss- $\text{SO}_4^{2-}$ の年間沈着量は18.8mmol/m<sup>2</sup>/yであった。

$\text{NO}_3^-$ の年間沈着量は20.0mmol/m<sup>2</sup>/yであった。

$\text{NH}_4^+$ の年間沈着量は16.6mmol/m<sup>2</sup>/yであった。

nss- $\text{Ca}^{2+}$ の年間沈着量は3.0mmol/m<sup>2</sup>/yであった。

$\text{H}^+$ の年間沈着量は27.9mmol/m<sup>2</sup>/yであった。

## 5 pH, イオン成分湿性沈着量の経年変化

図4に2014~2023年度におけるpHの経年変化、表3、図5に2014~2023年度におけるイオン成分沈着量および降水量の経年変化を示す。

pHは2023年度4.83であり、増加傾向がみられた。

2023年度のイオン成分総沈着量は141.9mmol/m<sup>2</sup>/yであり、昨年度に比べ増加した。イオン成分総沈着量はイオン成分濃度に降水量を掛け合わせて算出することから、降水量の影響を受ける。降水量が昨年度より増加したため、沈着量も増加したと考えられる。

### 参考文献

- 1) 伊東矢頭 他：「大分県における湿性沈着中の成分調査 (2013~2018年度)」, 大分県衛生環境研究センター年報, 46, 72-84 (2018)
- 2) 伊東矢頭 他：「大分県における湿性沈着中の成分調査 (2019年度)」, 大分県衛生環境研究センター年報, 47, 75-83 (2019)
- 3) 甲斐太郎 他：「大分県における湿性沈着中の成分調査 (2020年度)」, 大分県衛生環境研究

- センター年報, 48, 78 - 86 (2020)
- 4) 安藤大生 他：「大分県における湿性沈着中の成分調査 (2021年度)」, 大分県衛生環境研究センター年報, 49, 60 - 69 (2021)
  - 5) 河野公亮 他：「大分県における湿性沈着中の成分調査 (2022年度)」, 大分県衛生環境研究センター年報, 50, 113 - 121 (2022)
  - 6) 環境省地球環境局環境保全対策課, 酸性雨研究センター：「湿性沈着モニタリング手引き書 (第2版)」, 2001
  - 7) 全国環境研協議会酸性雨広域大気汚染調査研究部会；第5次酸性雨全国調査報告書 (平成25年度), 全国環境研会誌, 40 (3), 98 - 142, 2015, (<http://db.cger.nies.go.jp/dataset/acidrain/ja/05/>)
  - 8) 酸性雨調査法研究会編集：「酸性雨調査法」, (株) ぎょうせい, 263 - 264, 267 - 268
  - 9) 気象庁編：海洋観測指針, 第1部, 財団法人気象業務支援センター, 33 (1999)
  - 10) 全国環境研協議会酸性雨広域大気汚染調査研究部会；第5次酸性雨全国調査報告書 (平成26年度), 全国環境研会誌, 41 (3), 2 - 37, 2016, (<http://db.cger.nies.go.jp/dataset/acidrain/ja/05/>)
  - 11) 全国環境研協議会酸性雨広域大気汚染調査研究部会；第5次酸性雨全国調査報告書 (平成27年度), 全国環境研会誌, 42 (3), 2 - 45, 2017, (<http://db.cger.nies.go.jp/dataset/acidrain/ja/05/>)
  - 12) 全国環境研協議会酸性雨広域大気汚染調査研究部会；第6次酸性雨全国調査報告書 (平成28年度), 全国環境研会誌, 43 (3), 2 - 42, 2018, ([http://tenbou.nies.go.jp/science/institute/region/journal/JELA\\_4303002\\_2018.pdf](http://tenbou.nies.go.jp/science/institute/region/journal/JELA_4303002_2018.pdf))

表1 2023年度月平均濃度

月	採集期間		降水量 mm	pH	電気伝導率 mS/m	成分濃度 μmol/L										非塩基成分割合 %				
	開始日	終了日				SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	ss-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>	nss-Ca <sup>2+</sup>	ss-Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	H <sup>+</sup>	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> /SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	nss-Ca <sup>2+</sup> /Ca <sup>2+</sup>
4月	3月27日	4月24日	107.2	4.91	1.1	10.4	10.0	0.4	10.7	10.6	10.6	6.9	1.0	2.5	2.4	0.1	1.4	12.3	96.0	94.1
5月	4月24日	6月5日	358.2	4.85	1.0	10.2	10.0	0.2	9.0	4.1	7.9	2.8	0.3	1.8	1.7	0.1	0.6	14.0	98.3	96.6
6月	6月5日	7月3日	361.1	5.11	0.7	6.2	6.1	0.1	9.2	3.0	9.5	1.6	0.2	0.9	0.9	0.0	0.3	7.7	98.4	96.2
7月	7月3日	7月31日	211.3	5.30	0.5	3.3	3.2	0.1	5.9	3.0	4.1	1.8	0.2	0.6	0.5	0.0	0.3	5.0	96.6	93.2
8月	7月31日	8月28日	267.8	5.09	1.5	11.0	8.4	2.6	7.0	50.5	5.0	43.2	1.0	1.4	0.4	0.9	4.8	8.2	76.4	31.7
9月	8月28日	9月25日	126.0	5.09	0.7	7.0	6.6	0.4	5.8	9.7	2.7	6.9	0.3	2.5	2.3	0.1	1.2	8.1	94.0	94.0
10月	9月25日	11月6日	42.1	4.75	2.0	16.7	14.3	2.4	22.1	46.4	16.9	40.3	1.3	4.7	3.9	0.9	5.0	17.6	85.4	81.6
11月	11月6日	12月4日	19.6	4.62	1.5	14.0	13.5	0.5	11.1	13.9	6.1	8.3	0.4	2.0	1.8	0.2	1.2	24.1	96.4	91.0
12月	12月4日	1月4日	44.6	4.56	1.9	15.5	14.4	1.1	23.9	22.5	14.5	18.2	0.9	3.8	3.4	0.4	2.6	27.4	92.9	89.5
1月	1月4日	1月29日	14.5	4.07	5.8	45.3	41.1	4.2	60.4	99.7	45.3	70.3	2.6	8.3	6.7	1.5	9.1	85.1	90.6	81.6
2月	1月29日	2月26日	175.4	4.53	1.8	16.8	16.3	0.5	14.1	14.5	11.7	8.0	0.7	1.9	1.7	0.2	1.3	29.4	97.1	91.0
3月	2月26日	3月25日	177.6	4.50	1.9	18.6	18.2	0.4	16.0	12.0	13.8	7.1	0.7	3.1	2.9	0.2	1.3	31.9	97.7	95.1
年間値	3月27日	3月25日	1905.3	4.83	1.2	10.6	9.9	0.7	10.5	14.9	8.7	11.3	0.5	1.8	1.6	0.2	1.5	14.6	93.6	86.6

表2 2023年度月沈着量

月	採集期間		降水量 mm	成分沈着量 mmol/m <sup>2</sup>												
	開始日	終了日		SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	ss-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>	nss-Ca <sup>2+</sup>	ss-Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	H <sup>+</sup>
4月	3月27日	4月24日	107.2	1.1	1.1	0.0	1.1	1.1	1.1	0.7	0.1	0.3	0.3	0.0	0.1	1.3
5月	4月24日	6月5日	358.2	3.7	3.6	0.1	3.2	1.5	2.8	1.0	0.1	0.6	0.6	0.0	0.2	5.0
6月	6月5日	7月3日	361.1	2.2	2.2	0.0	3.3	1.1	3.4	0.6	0.1	0.3	0.3	0.0	0.1	2.8
7月	7月3日	7月31日	211.3	0.7	0.7	0.0	1.2	0.6	0.9	0.4	0.0	0.1	0.1	0.0	0.1	1.1
8月	7月31日	8月28日	267.8	3.0	2.3	0.7	1.9	13.5	1.3	11.6	0.3	0.4	0.1	0.2	1.3	2.2
9月	8月28日	9月25日	126.0	0.9	0.8	0.1	0.7	1.2	0.3	0.9	0.0	0.3	0.3	0.0	0.1	1.0
10月	9月25日	11月6日	42.1	0.7	0.6	0.1	0.9	2.0	0.7	1.7	0.1	0.2	0.2	0.0	0.2	0.7
11月	11月6日	12月4日	19.6	0.3	0.3	0.0	0.2	0.3	0.1	0.2	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.5
12月	12月4日	1月4日	44.6	0.7	0.6	0.0	1.1	1.0	0.6	0.8	0.0	0.2	0.1	0.0	0.1	1.2
1月	1月4日	1月29日	14.5	0.7	0.6	0.1	0.9	1.4	0.7	1.0	0.0	0.1	0.1	0.0	0.1	1.2
2月	1月29日	2月26日	175.4	2.9	2.9	0.1	2.5	2.5	2.1	1.4	0.1	0.3	0.3	0.0	0.2	5.2
3月	2月26日	3月25日	177.6	3.3	3.2	0.1	2.8	2.1	2.5	1.3	0.1	0.5	0.5	0.0	0.2	5.7
年間値	3月27日	3月25日	1905.3	20.1	18.8	1.3	20.0	28.4	16.6	21.5	1.0	3.5	3.0	0.5	2.9	27.9

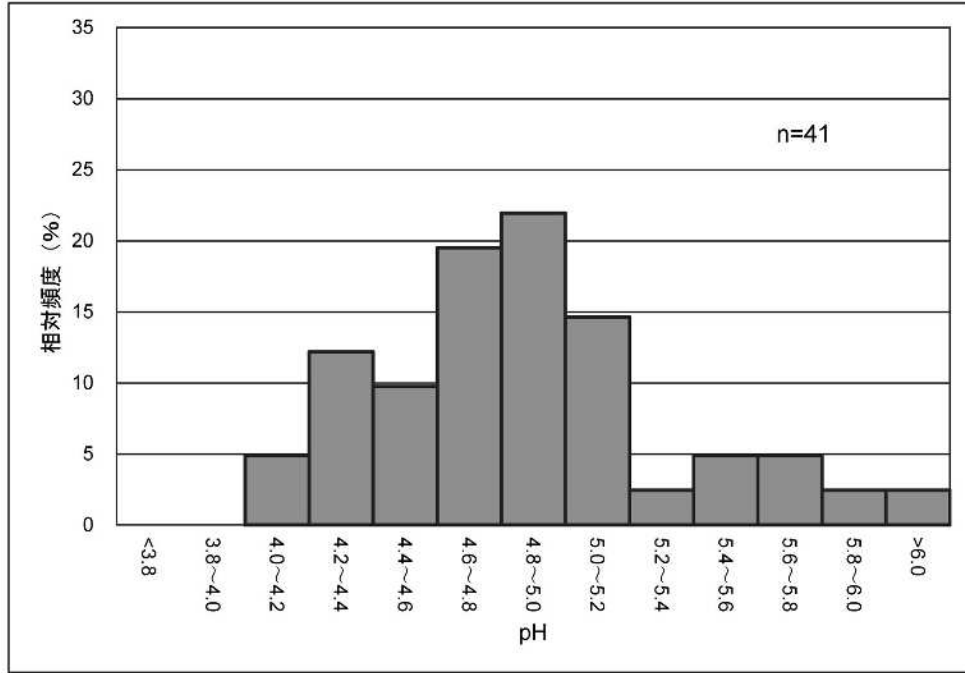


図1 雨水のpH分布 (2023年度)

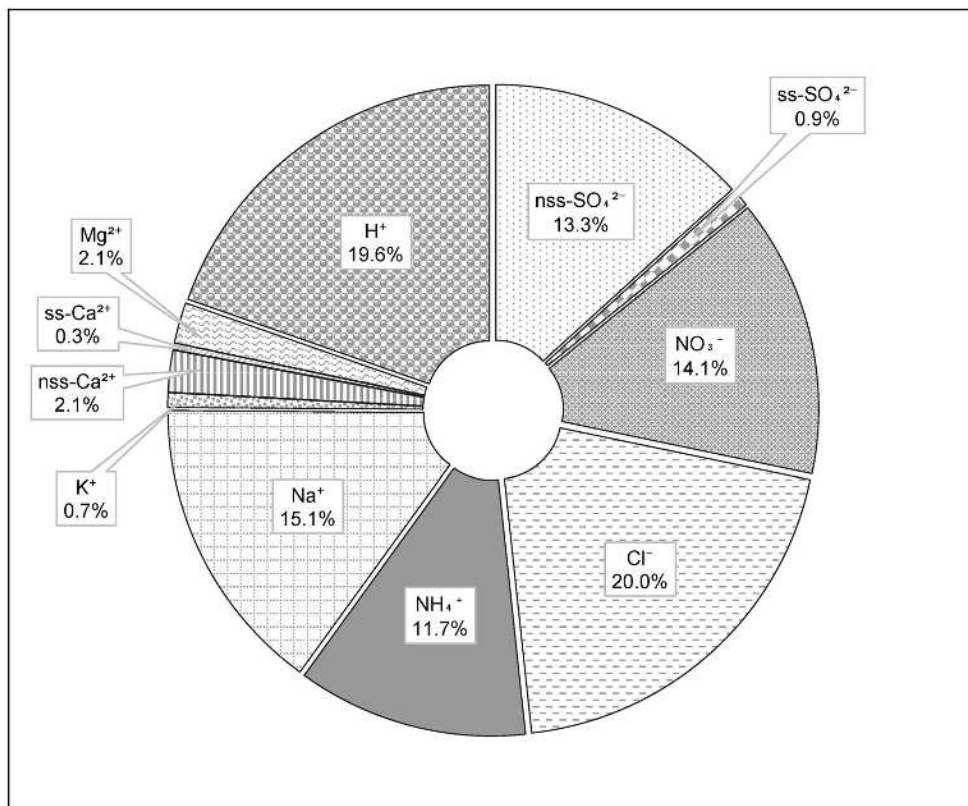


図2 イオン成分濃度組成割合 (2023年度)

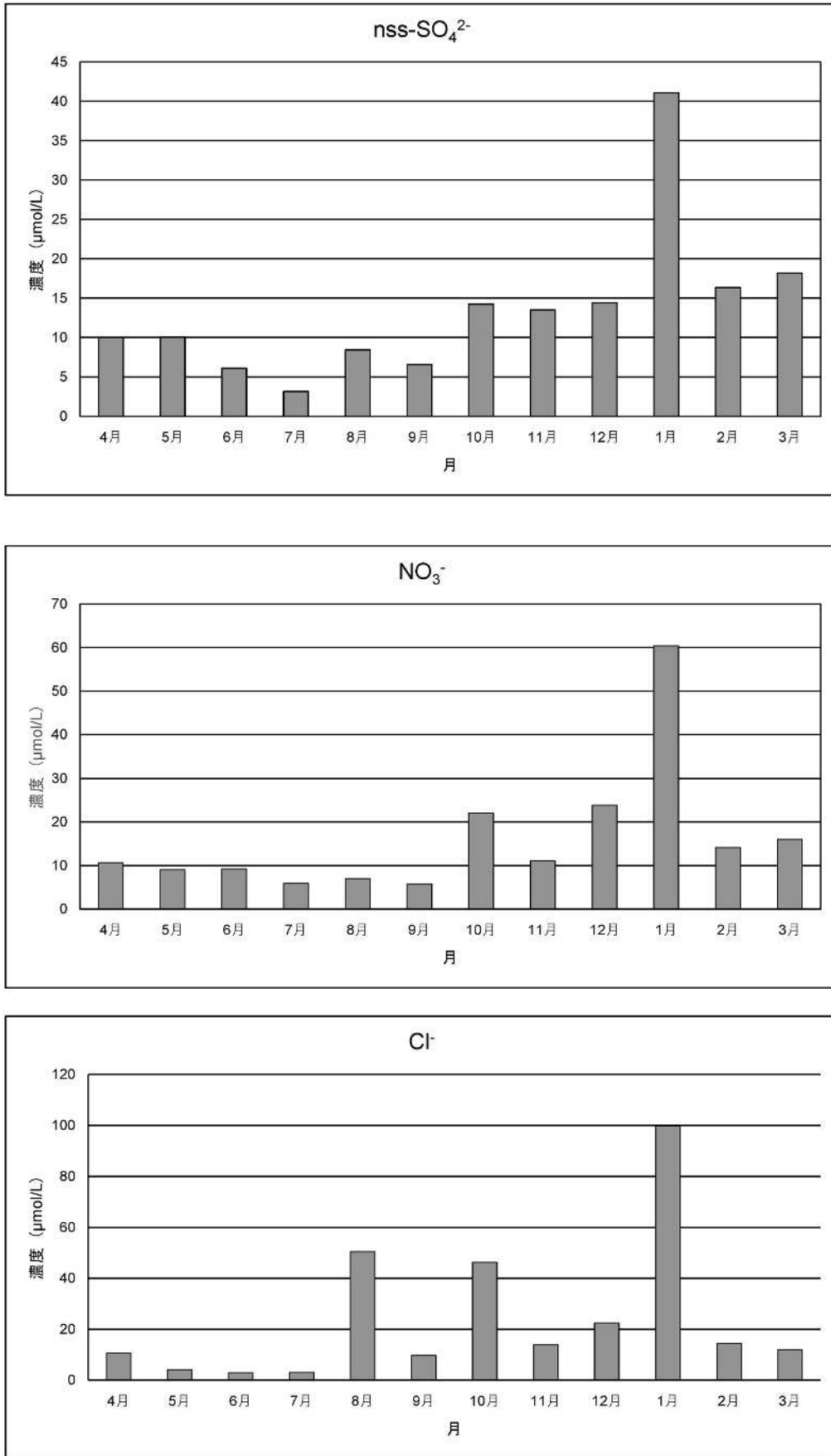


図3-1 各イオン成分濃度の経月変化 (2023年度)

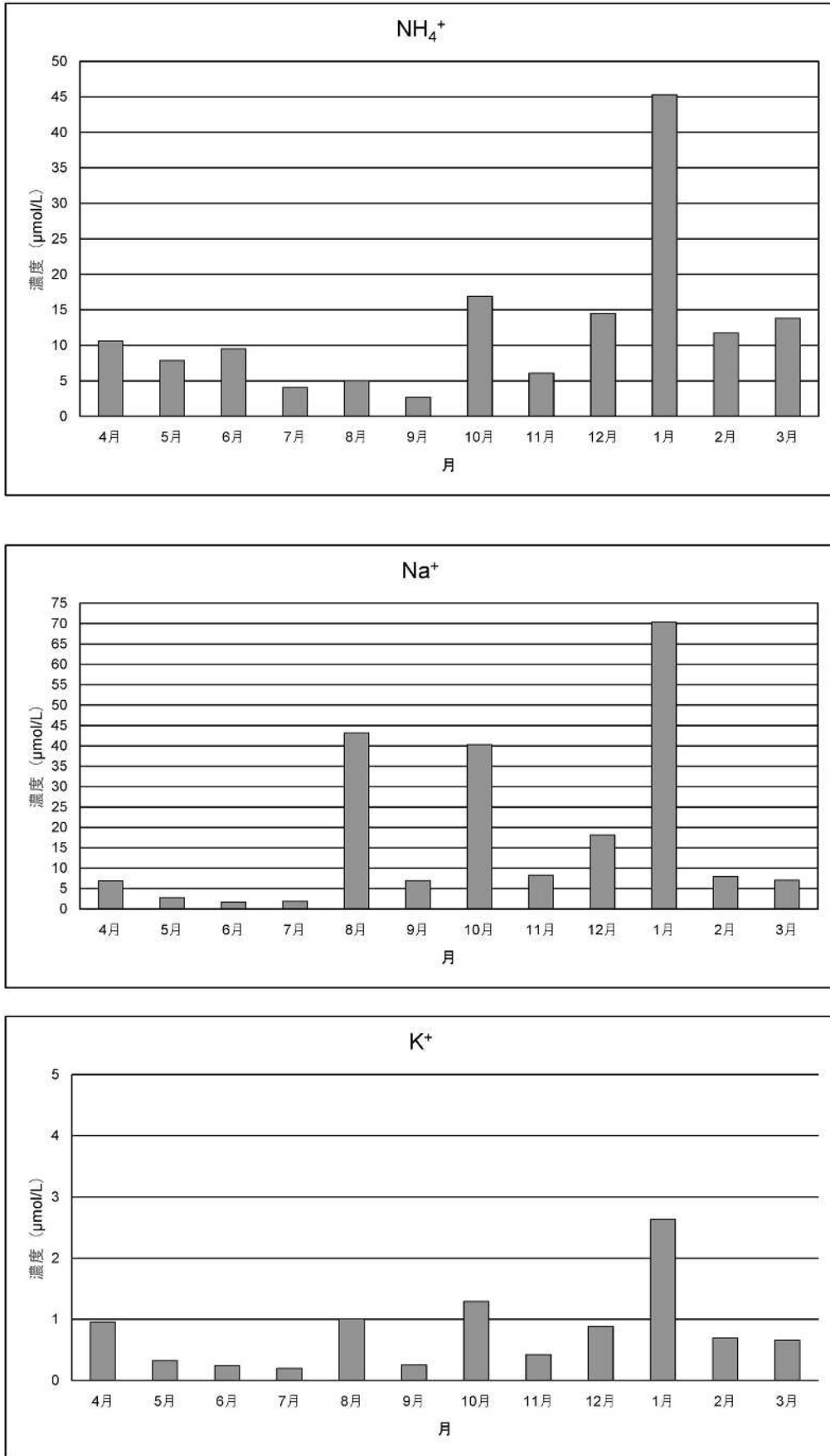


図3-2 各イオン成分濃度の経月変化 (2023年度)

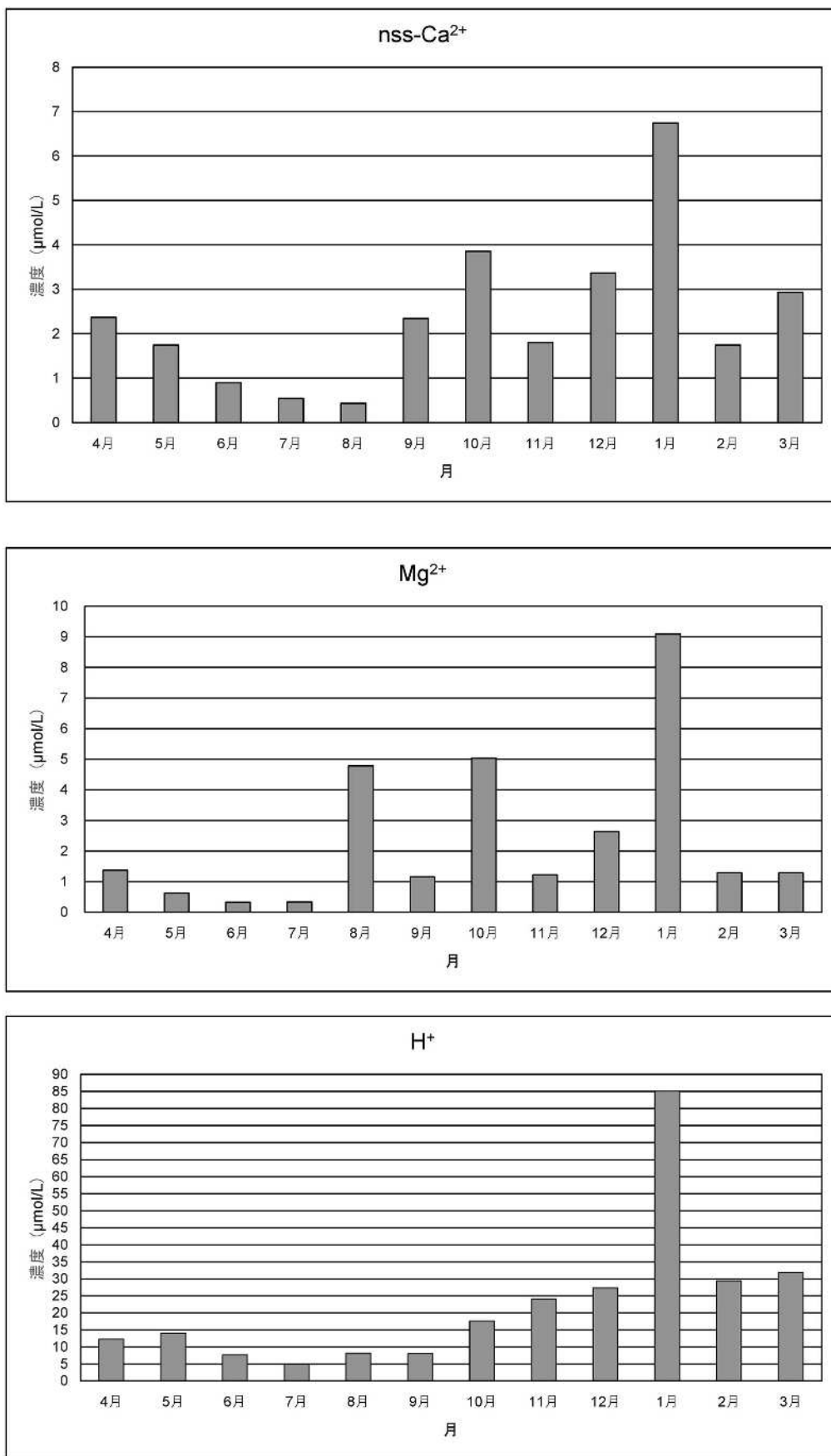


図3-3 各イオン成分濃度の経月変化 (2023年度)



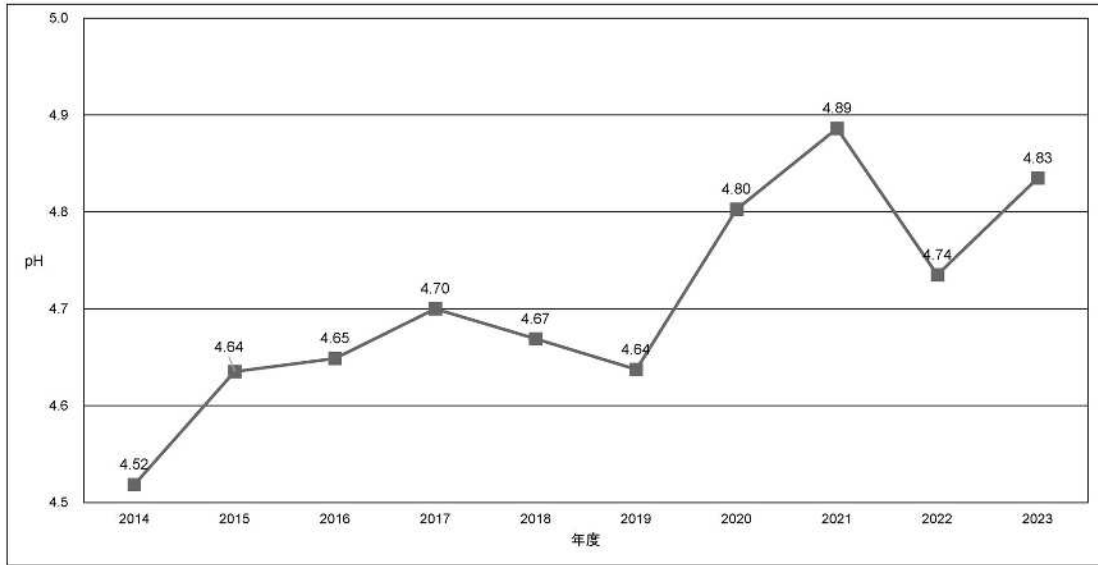


図4 pHの経年変化 (2014~2023年度)

表3 イオン成分沈着量の経年変化 (2014~2023年度)

年度	成分沈着量											総沈着量
	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	ss-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>	nss-Ca <sup>2+</sup>	ss-Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	H <sup>+</sup>	
	mmol/m <sup>2</sup>											mmol/m <sup>2</sup> /y
◎2014年度	34.7	2.5	25.9	62.5	23.0	41.0	3.0	4.2	0.9	5.2	63.7	266.6
◎2015年度	25.7	1.1	25.1	24.3	19.5	18.2	1.1	3.6	0.4	2.7	42.6	164.3
◎2016年度	82.0	1.7	26.5	45.0	23.4	28.3	1.7	35.5	0.6	8.2	54.4	307.4
◎2017年度	30.4	2.9	26.7	57.2	25.7	48.5	1.5	4.9	1.0	6.0	47.8	252.7
◎2018年度	29.2	1.7	26.3	35.9	20.1	28.1	1.2	6.3	0.6	3.8	45.2	198.4
◎2019年度	26.1	2.3	21.2	52.2	17.9	37.8	1.1	3.2	0.8	4.7	48.1	215.4
◎2020年度	17.6	3.0	17.8	57.9	15.9	49.0	1.3	2.5	1.1	5.7	30.9	202.6
◎2021年度	13.7	0.8	17.1	22.7	12.9	12.6	0.7	2.7	0.3	1.8	21.9	107.0
◎2022年度	12.0	0.9	12.2	19.6	10.7	14.5	0.6	2.1	0.3	2.0	18.4	93.3
◎2023年度	18.8	1.3	20.0	28.4	16.6	21.5	1.0	3.0	0.5	2.9	27.9	141.9

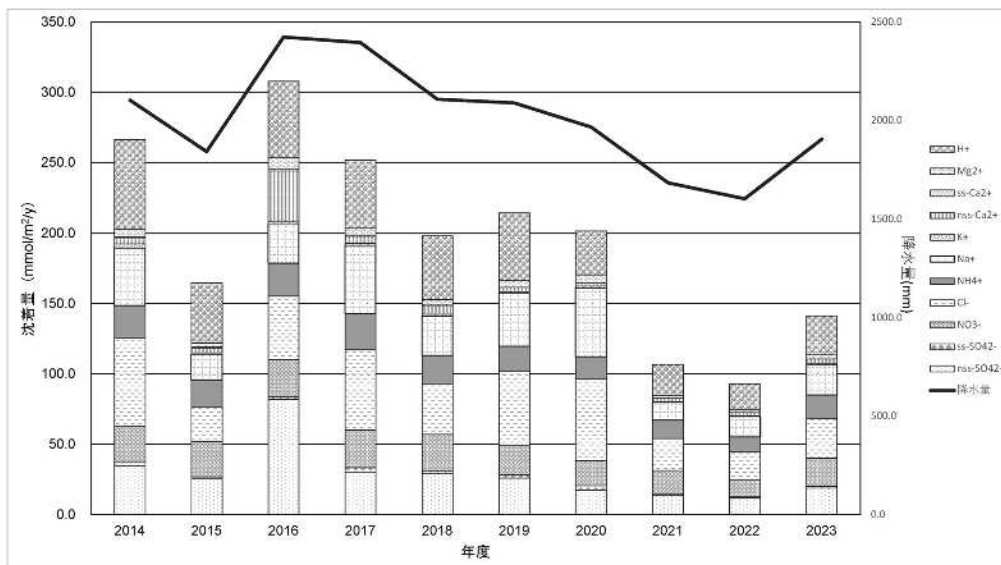


図5 イオン成分総沈着量および降水量の経年変化 (2014~2023年度)

