

## 6) 熊本県の酸性雨長期モニタリング調査結果（2013年度）

### － 県内4地点における降水試料調査結果 －

古澤 尚英 出納 由美子

#### はじめに

熊本県では、1988年10月から県内における酸性雨の状況を把握するため、長期モニタリング調査を行っている<sup>1)</sup>。2004年4月から採取装置を湿性沈着と乾性沈着を分けて採取する降水時開放型採取装置に変更した<sup>2)</sup>。図1に調査地点を示した。本報では2013年度の調査結果について報告する。なお、2008年まで調査を行っていた人吉市の結果は既報<sup>3)</sup>を参照されたい。

#### 調査方法及び分析方法

##### 1 調査地点及び降水採取方法

苓北町（苓北町立志岐小学校）、八代市（八代市役所）、阿蘇市（熊本県阿蘇保健所）及び宇土市（熊本県保健環境科学研究所）で小笠原計器製降水採取器US-300Dを用い、1週間ごとに降水の回収を行った。

調査月の区切りと降水試料の回収日は、酸性雨全国調査実施要領の別表月割り表<sup>4)</sup>に従った。

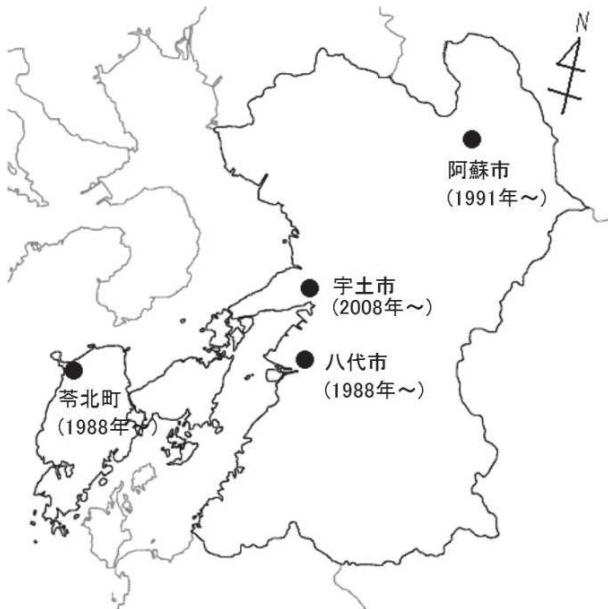


図1 調査地点

表1 イオン成分総括表

調査地點	pH	EC μS/cm	Cl <sup>-</sup> μg/mL	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> μg/mL	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> μg/mL	H <sup>+</sup> μg/mL	Na <sup>+</sup> μg/mL	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> μg/mL	K <sup>+</sup> μg/mL	Mg <sup>2+</sup> μg/mL	Ca <sup>2+</sup> μg/mL	年間降水量*
苓北町	平均	4.71 (4.75)	26 (23)	2.9 (2.3)	0.92 (0.86)	2.0 (1.7)	0.020 (0.018)	1.7 (1.3)	0.24 (0.27)	0.19 (0.19)	0.18 (0.17)	0.32 (0.21)
	n=44	最高	5.19	75	11	4.9	4.9	0.057	6.3	0.797	0.88	1.6 (1555.8)
	n=44	最低	4.25	11	0.44	0.18	0.61	0.0065	0.22	0.036	0.049	0.088
八代市	平均	4.86 (4.72)	14 (17)	0.87 (0.88)	0.78 (0.86)	1.4 (1.7)	0.014 (0.019)	0.51 (0.48)	0.32 (0.34)	0.060 (0.043)	0.070 (0.065)	0.20 (0.19)
	n=46	最高	5.29	48	6.1	3.1	4.2	0.037	3.8	0.77	0.26	1.1 (1848.0)
	n=46	最低	4.44	4.7	0.27	0.16	0.46	0.005	0.13	0.10	0.022	0.014 (0.045)
阿蘇市**	平均	4.54 (4.60)	23 (21)	1.3 (0.92)	1.1 (0.79)	1.9 (1.8)	0.029 (0.025)	0.45 (0.34)	0.493 (0.37)	0.14 (0.22)	0.077 (0.065)	0.24 (0.25)
	n=46	最高	5.20	76	4.6	3.4	4.9	0.15	1.6	1.2	0.28	0.37 (1056.2)
	n=46	最低	3.81	6.2	0.31	0.20	0.57	0.0063	0.10	0.11	0.044	0.014 (0.043)
宇土市***	平均	4.69 (4.70)	15 (16)	0.62 (0.74)	0.75 (0.68)	1.4 (1.4)	0.021 (0.020)	0.33 (0.39)	0.27 (0.29)	0.038 (0.048)	0.046 (0.051)	0.12 (0.10)
	n=33	最高	5.39	44	2.7	1.7	3.5	0.083	1.7	0.65	1.6	0.21 (2106.8)
	n=33	最低	4.08	3.7	0.23	0.11	0.27	0.0040	0.17	0.026	0.012	0.017 (0.016)

注)n:検体数。平均は加重平均。 ( )内:2012年度の成分平均濃度及び降水量。

\*測定地点で回収した雨水重量より計算した値。

\*\*九州北部豪雨の影響で2012年3月26日～2012年7月1日、2013年2月25日～2013年3月25日の期間のみ測定。

\*\*\*2013年9月2日～2013年12月2日まで降水量のみ測定、2014年1月24日～2月10日まで欠測。



酸溶液を用い、1.0mL/min の流速で分析を行った。

また、アニオンでは IonPac® AS-12A のカラムを用いた。溶離液として 2.7mM Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, 0.3mM NaHCO<sub>3</sub> 混合溶液を用い、1.5mL/min の流速で分析を行った<sup>5)</sup>。

ICS-1600 の分析条件は、カチオンでは Dionex IonPac™ CS16 のカラムを用いた。溶離液として 30mM メタンスルフォン酸溶液を用い、1.0mL/min の流速で分析を行った。

また、アニオンでは Dionex IonPac™ AS23 のカラムを用いた。溶離液として 4.5mM Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, 0.5mM NaHCO<sub>3</sub> 混合溶液を用い、1.2mL/min の流速で分析を行った。

### 調査結果及び考察

表 1 に 2013 年度の調査 4 地点におけるイオン成分総括表を示した。降水量は貯水量から計算した。平均 pH, 平均 EC 及び平均イオン成分濃度は加重平均により計算した。

宇土市は 2013 年 9 月 2 日～12 月 2 日まで、雨水採水装置の故障により、降水量のみ測定を行った。また、阿蘇市は 2012 年 7 月に起きた九州北部豪雨の影響で降水採取器が 2012 年 7 月～2013 年 2 月の期間中使用不可になったため、測定値は 4 月～6 月、及び 3 月の 4 ヶ月間のデータより計算した値となっている。そのため、2012 年度との比較は行っていない。

### 1 前年度との比較

年間降水量は 2012 年度と比べ、苔北町 155.4mm, 八代市 22.6mm, 宇土市 138.5mm と、それぞれ減少した。

pH の年平均値は、苔北町 4.71, 八代市 4.86, 宇土市 4.69 であり、前年度と比べ-0.04～-0.14 の値を示した。

EC の年平均値は、苔北町 26 μS/cm, 八代市 14 μS/cm, 宇土市 15 μS/cm であり、前年度と比べ -3.5～-2.9 μS/cm の値を示した。

イオン成分のうち、主に海塩由来成分である Cl<sup>-</sup>, Na<sup>+</sup> 及び Mg<sup>2+</sup> の年平均濃度は前年度値よりも、苔北町が 24.8, 24.3, 6.2%, 八代市が -0.6, 5.0, 8.1%, 宇土市が -15.8, -16.5, -10.0% の変動であった。

降水の酸性化物質である NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 及び SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> の年平均濃度は、前年度値より苔北町が 6.8, 16.0%, 八代市が -8.3, -16.0%, 宇土市が 11.4, -0.9% の変動であった。

### 2 経月変化

表 2 に 2013 年度の調査 4 地点における月平均 pH 及び EC と月別イオン成分沈着量を示した。また、図 2 に 2013 年度の月間沈着量に対する各イオン成分沈着量の占める

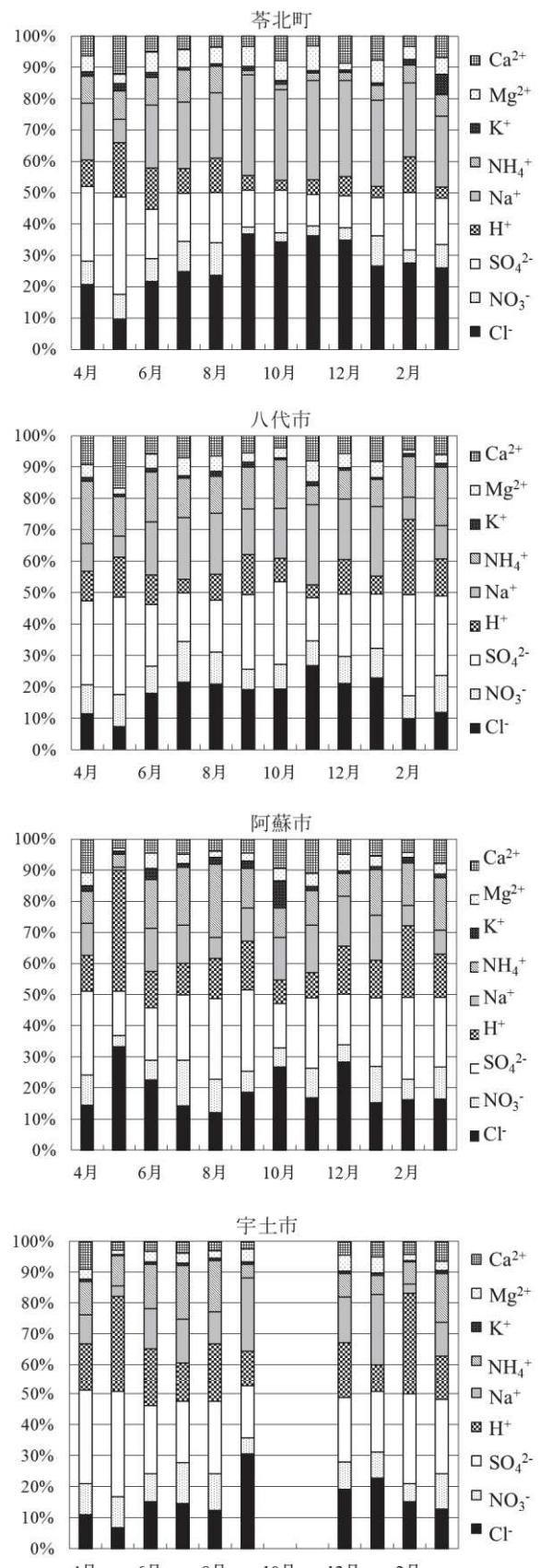


図 2 月間沈着量に対する各イオン成分

沈着量の割合

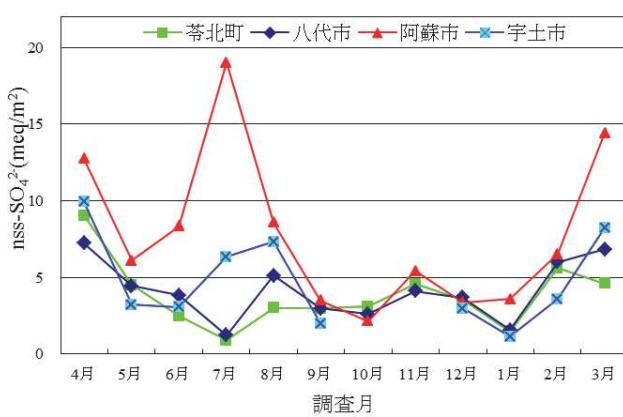


図3 nss- $\text{SO}_4^{2-}$ 月間沈着量の推移

割合を示した。イオン成分沈着量はイオン成分濃度に降水量を乗じて計算した。

降水の酸性化成分である  $\text{SO}_4^{2-}$ について、海塩由来の ss- $\text{SO}_4^{2-}$ を除いた非海塩性成分 nss- $\text{SO}_4^{2-}$ 月間沈着量の経月推移を図3に示した。

月別平均 pH の最低値は、阿蘇市は 5 月、苔北町は 12 月、八代市と宇土市は 2 月であり、2013 年度 pH の最低値は阿蘇市の 5 月で 3.81 であった。また、2 月の月平均 pH は 4 地点とも低い値を示す傾向にあった。

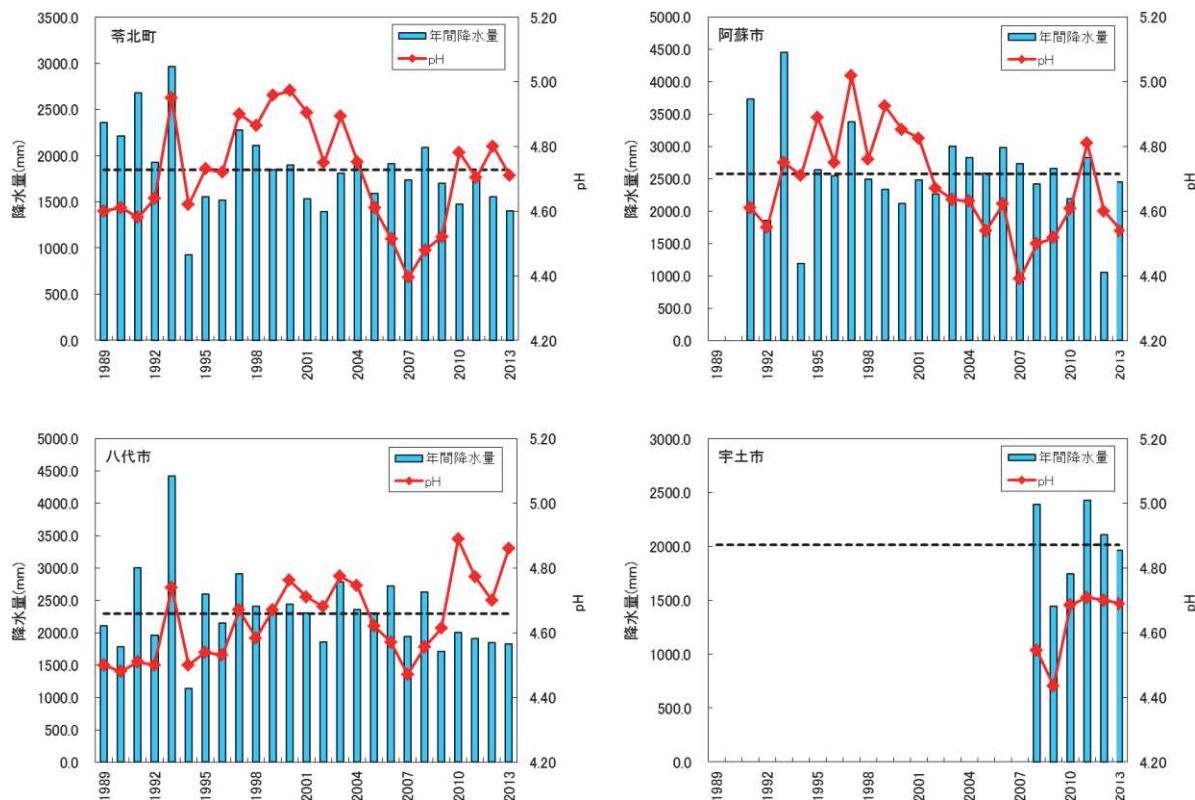


図4 年間降水量及び年平均 pH の推移

阿蘇市の 5 月のイオン成分は  $\text{Na}^+$ に対して  $\text{Cl}^-$ が非常に多く、非海塩由来の汚染があったと考えられる。しかし、原因がはっきりしない為、今後検討していく必要がある。

pH が低かった月の降水量を見ると、4 地点とも 12 月は降水量が少なく 55.0mm~72.5mm であった。降水量が少ないと降水中成分濃度が高くなり、pH は低くなったと考えられる。

また、2 月は苔北町、八代市、阿蘇市の 3 地点の降水量 126.2mm~157.1mm に対し、宇土市の降水量が少なく 49.8mm であった。降水量の差が pH にも影響を及ぼしたと考えられ、苔北町、八代市、阿蘇市の 3 地点は pH が 4.42~4.50 であったのに対し、宇土市は pH が 4.08 と、他の 3 地点より低い値を示していた。

図2より、2 月~5 月は、4 地点とも  $\text{SO}_4^{2-}$  沈着量が他のイオン成分より高い割合を示していた。この原因として、越境移流の影響が示唆される<sup>6)</sup>。酸性雨を含む越境大気汚染は大きな社会問題となっており、今後両者の関係は検討していく必要がある。

合計降水量は 6 月、8 月、9 月が多く、苔北町で 615.0mm、八代市で 1019.0mm、阿蘇市で 1003.1mm、宇土市で 1057.5mm であった。一方で、イオン成分沈着量

は、苓北町、八代市は 11 月が最も多く、阿蘇市は 7 月、宇土市は 3 月が多かった。4 地点の年間沈着量を比較すると、阿蘇市が  $469.0 \text{ meq/m}^2$  と最も多く、以下、苓北町  $394.4 \text{ meq/m}^2$ 、八代市  $249.9 \text{ meq/m}^2$ 、宇土市  $219.3 \text{ meq/m}^2$  の順であった。

図 3 から、 $\text{nss-SO}_4^{2-}$  年間沈着量は阿蘇市を除く 3 地点でほぼ同様な季節変動を示し、3 月～4 月が最も多かった。一方、阿蘇市は 7 月の沈着量が多く、他の 3 地点と異なる傾向を示した。 $\text{nss-SO}_4^{2-}$  年間沈着量の 5 年間平均値が阿蘇市を含む九州中部は、他の調査地点に比べて多く、火山性ガスの影響と降水量が多いいためと考えられている<sup>6)</sup>。

$\text{Cl}^-$  及び  $\text{Na}^+$  はそのほとんどが海塩由来であるが、苓北町の年間沈着量は他の地点より多く（表 2），これら 2 成分の沈着量の合計は年間総沈着量の約 1/2 以上を占めている。苓北町は北方向 200m と南西方向 1.2km に海岸を有しており、特に冬季の 11 月、12 月に季節風の影響を受け、海水が飛沫化、飛散して降水時に取り込まれることで、 $\text{Cl}^-$  及び  $\text{Na}^+$  の沈着量が多くなる傾向にあると推測された。

### 3 経年変化

図 4 に年間降水量及び平均 pH の推移を、また、表 3 に苓北町、八代市、阿蘇市及び宇土市における調査開始年度から 2013 年度までの平均 pH、EC 及びイオン成分年間沈着量の推移を示した。

年平均 pH は、八代市で前年度より 0.14 高い値を示し、苓北町、宇土市で前年度より 0.09、0.01 低い値を示した。2000 年度以降、苓北町、八代市及び阿蘇市は pH が低くなる傾向にあったが、2007 年度を境に再び上昇傾向に転じ、2011 年度から阿蘇市は下降に転じた。八代市は pH が 2007 年度から上昇後、2010 年度から下降に転じたが、2013 年度に再び上昇した。また、苓北町及び宇土市は、2010 年度から年平均 pH は 4.70～4.80 で推移している。

次に、 $\text{nss-SO}_4^{2-}$  年間沈着量の経年推移を図 5 に示した。調査開始から 2005～2007 年度までは、苓北町は八代市及び阿蘇市より低めに推移した。しかし、2007 年度以降八代市は減少傾向に転じたため、八代市と苓北町、宇土市の 3 地点は差が小さくなっている。阿蘇市は 2007 から濃度が減少しているが、他の 3 地点よりも高い濃度を推移している。

また、九州全域での降水中のイオン成分濃度が冬期には上昇する傾向にあり、九州北部は特に濃度が高くなる。このことから、冬季には季節風の影響を強く受けて大陸からの移流の影響を受けていると考えられ<sup>6)</sup>、特に  $\text{nss-SO}_4^{2-}$

は中国の排出量と相関関係にあることが報告されている<sup>7)</sup>。

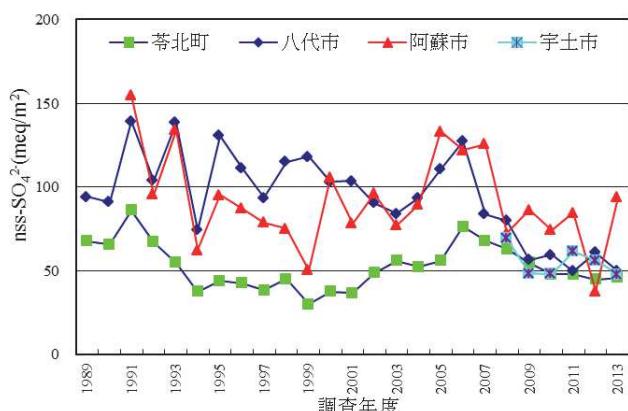


図 5  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  年間沈着量の推移

### 謝辞

本調査において、多大な御協力をいただいた苓北町企画政策課、八代市環境部環境課、熊本県阿蘇保健所及び同環境生活部環境保全課の関係各位に謝意を表します。

### 文献

- 1) 上野一憲、松本依子、北岡宏道；熊本県保健環境科学研究所報, 41, 92 (2011).
- 2) 松本依子、緒方和博、上野一憲、今村 修；熊本県保健環境科学研究所報, 37, 100 (2007).
- 3) 古澤尚英、上野一憲、北岡宏道；熊本県保健環境科学研究所報, 43, 138 (2013).
- 4) 全国環境研協議会・酸性雨広域大気汚染調査研究部会；酸性雨全国調査実施要領(平成 25 年度), (2013).
- 5) 矢野弘道、上野一憲、木庭亮一、植木 肇；熊本県保健環境科学研究所報, 31, 78 (2001).
- 6) 九州衛生環境技術協議会大気分科会、山口県環境保健センター；九州・沖縄・山口地方酸性雨共同調査研究第Ⅲ期調査報告書(平成 25 年 7 月), 11-17 (2013).
- 7) 大石興弘、濱村健吾、藤川和浩、村野健太郎；大気環境学会誌, 49 (4), 198-206 (2014).

