

4) 熊本県の酸性雨長期モニタリング調査結果 (2020 年度)

上野一憲 小原大翼* 澤田 愛

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¹⁾を行っている。採取方法について、当初はろ過式採取装置を用いていたが、2004 年 4 月から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²⁾、2008 年からは湿性沈着のみ調査を行っている。なお、乾性沈着（非降水時における降下物）の結果については、既報³⁾を参照されたい。

本報では宇土と 2019 年度から調査を開始した阿蘇一の宮を含む 2 地点の調査結果について報告する。

調査方法及び分析方法

1. 調査地点及び降水採取方法

過去に実施した地点を含む酸性雨調査地点を図 1 に示した。

2020 年度は宇土（熊本県保健環境科学研究所）及び阿蘇一の宮（阿蘇地域振興局）の 2 地点で調査を実施した。降水採取は小笠原計器製降水採取器 US-300 型を用い、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⁴⁾の別表月割り表に従った。

2. 分析方法

採取した降水試料について pH、電気伝導度（以下「EC」という。）及びイオン成分を分析した。

pH 測定は東亜ディーケーケー製 HM-42X を用い、複合電極は GST-5841C を使用した。EC 測定は東亜ディーケーケー製 CM-42X を用い、電導度セルは CT-58101B を使用した。なお、pH 及び EC は恒温水槽を使用して 25℃で測定した。

イオン成分分析はダイオネクス製 ICS-1600 を用い、イオンクロマトグラフ法で行った。分析条件として、カチオンについてはカラムとして Dionex IonPacTM CS16、溶離液として 30mmol/L メタンスルホン酸溶液を用い、流速は 1.0mL/min に設定した。また、アニオンについてはカラムとして Dionex IonPacTM AS23、溶離液として 4.5mmol/L Na₂CO₃、0.5mmol/L NaHCO₃ 混合溶液を用い、流速 1.0mL/min に設定した。

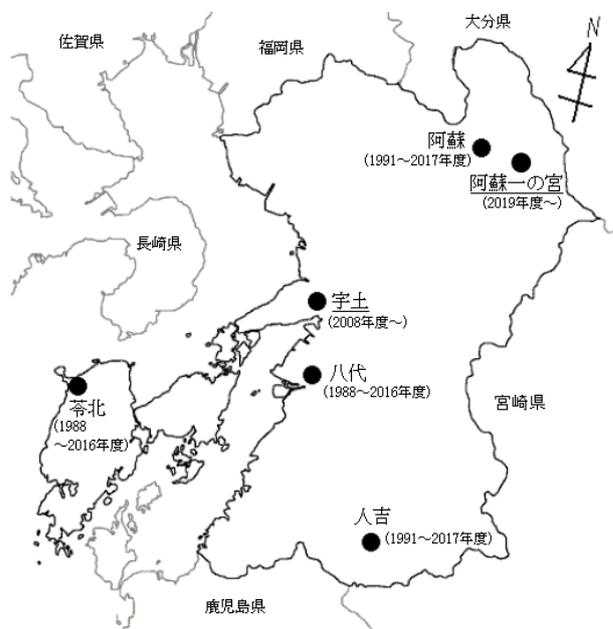


図 1 調査地点

調査結果及び考察

1. 2019 年度⁵⁾との比較

表 1 に 2020 年度の調査地点におけるイオン成分総括表を示した。年間降水量は回収時の捕集量から算出した。pH、EC 及びイオン成分濃度の各年平均値は月毎の降水量との加重平均により算出した。

年間降水量について、阿蘇一の宮においては 2019 年度と比べ 193mm 増加した。一方、宇土においては 2019 年度と比べ 254mm 増加した。いずれも 6、7 月の大雨が年間降水量の増加に寄与した。

pH の年平均値について、宇土においては 2019 年度と比べ 0.01 高かった。一方、阿蘇一の宮における pH の年平均値は 2019 年度と比べ 0.45 高かった。

EC の年平均値について、宇土においては 2019 年度と比べ 0.13mS/m 低かった。一方、阿蘇一の宮においては 3.09mS/m 低かった。

イオン成分について、宇土においては主に海塩由来成分である Cl⁻、Na⁺及び Mg²⁺の年平均濃度は 2019 年度と比べ、それぞれ 2.4μmol/L、3.5μmol/L、0.3μmol/L 高く、また Na⁺は 0.2μmol/L 高かった。また、SO₄²⁻は 1.7μmol/L 低く、NO₃⁻、NH₄⁺はそれぞれ 0.3μmol/L、

*現環境生活部環境局環境保全課

表 1 pH, EC 及びイオン成分総括表^{注1)}

調査地点		pH	EC mS/m	SO ₄ ²⁻ μmol/L	NO ₃ ⁻ μmol/L	Cl ⁻ μmol/L	NH ₄ ⁺ μmol/L	Na ⁺ μmol/L	K ⁺ μmol/L	Ca ²⁺ μmol/L	Mg ²⁺ μmol/L	H ⁺ μmol/L	年間降水量 ^{注2)} mm
阿蘇一の宮 n=43	平均	4.55	1.39	10.4	6.8	19.3	11.5	6.5	0.8	1.7	1.1	28.3	2428.6
	最高	4.10	4.48	24.8	9.1	89.2	15.9	10.7	1.7	11.7	4.5	79.3	
	最低	5.01	7.26	33.6	20.0	148.5	36.0	26.7	2.4	8.7	5.4	151.7	
	最低	3.82	0.67	5.1	4.1	6.6	7.5	3.0	0.4	0.5	0.5	9.7	
宇土 n=45	平均	4.69	1.18	8.6	9.3	19.5	10.8	15.9	1.0	1.7	2.0	20.2	2550.0
	最高	4.68	1.31	10.3	9.0	17.1	10.4	12.4	0.8	1.7	1.7	20.8	
	最低	4.85	4.38	39.9	30.4	79.0	29.0	66.1	2.2	11.2	7.8	77.2	
	最低	4.11	0.83	4.8	6.0	4.0	6.5	2.2	0.5	0.7	0.4	14.0	

注1) n: 検体数。平均は分析に供した雨水の降水量を基に加重平均により算出。表中の最高値及び最低値は、月平均(加重平均)値から抽出。イタリック体: 2019年度の成分加重平均濃度及び降水量。

注2) オーバーフローした週の降水量は雨量計の降水量を用いて年間降水量を算出。

表 2 pH 及び EC の月別平均(加重平均)と月別イオン成分沈着量

調査地点	月	試料数	降水量 mm	pH	EC mS/m	SO ₄ ²⁻ meq/m ²	NO ₃ ⁻ meq/m ²	Cl ⁻ meq/m ²	NH ₄ ⁺ meq/m ²	Na ⁺ meq/m ²	K ⁺ meq/m ²	Ca ²⁺ meq/m ²	Mg ²⁺ meq/m ²	H ⁺ meq/m ²	月間沈着量 meq/m ²
阿蘇一の宮	4	3	72.5	3.82	7.26	3.6	0.8	10.8	1.3	1.1	0.1	1.3	0.8	11.0	30.7
	5	4	195.5	4.28	2.56	7.9	1.6	5.5	2.7	0.9	0.2	1.0	0.5	10.2	30.5
	6	6	713.4	4.83	0.80	9.6	4.6	7.0	5.6	4.3	0.5	1.8	1.3	10.5	45.3
	7	4	657.0	4.76	0.79	9.0	3.4	4.3	4.9	2.0	0.2	0.6	0.6	11.5	36.7
	8	3	61.4	4.20	2.88	4.1	0.5	1.1	1.7	0.4	0.1	0.3	0.1	3.9	12.2
	9	4	299.6	5.01	0.67	3.1	1.2	3.7	2.4	2.5	0.2	0.6	0.7	2.9	17.4
	10	3	79.2	4.71	1.10	1.6	0.6	1.2	1.1	0.6	0.1	0.2	0.2	1.5	7.1
	11	3	75.1	4.04	3.61	2.5	0.5	4.8	1.4	0.6	0.0	0.1	0.2	6.8	17.0
	12	2	31.8	4.09	3.46	1.4	0.5	1.9	1.0	0.4	0.0	0.3	0.1	2.6	8.2
	1	4	37.2	3.98	4.86	2.4	0.7	3.2	1.0	0.1	0.6	0.3	0.3	3.9	13.5
	2	3	120.3	4.78	1.03	2.1	0.9	1.7	1.9	1.0	0.1	0.6	0.3	2.0	10.6
	3	4	85.7	4.67	1.43	3.0	1.0	1.5	2.7	0.9	0.2	0.6	0.2	1.8	11.9
	年間合計	43	2428.6	4.55	1.39	50.3	16.4	46.8	27.9	15.8	1.9	8.1	5.3	68.7	241.2
宇土	4	3	85.4	4.33	2.44	4.0	1.0	1.9	1.3	1.2	0.1	0.6	0.4	4.0	14.4
	5	4	254.3	4.80	0.83	3.3	1.7	1.0	2.3	0.6	0.1	0.5	0.2	4.0	13.6
	6	6	706.0	4.82	0.99	8.0	6.8	13.2	7.1	11.1	0.5	1.7	2.7	10.7	61.9
	7	4	797.3	4.85	0.87	7.6	6.8	13.9	7.1	12.0	1.0	2.6	3.3	11.2	65.6
	8	4	21.3	4.25	3.04	1.4	0.3	0.7	0.6	0.5	0.0	0.1	0.1	1.2	5.0
	9	4	257.1	4.76	1.19	4.6	1.6	7.7	2.0	6.4	0.2	0.6	1.5	4.4	29.0
	10	3	89.1	4.47	1.63	2.7	1.0	1.1	1.3	0.8	0.1	0.3	0.2	3.0	10.5
	11	3	102.1	4.45	1.55	2.7	0.8	1.7	0.7	1.2	0.1	0.1	0.3	3.6	11.1
	12	2	28.4	4.33	3.07	1.4	0.6	2.2	0.5	1.9	0.1	0.4	0.4	1.3	8.9
	1	4	29.4	4.11	4.38	2.3	0.9	2.2	0.8	1.7	0.1	0.7	0.5	2.3	11.5
	2	4	78.3	4.75	1.33	1.9	0.8	2.1	1.4	1.7	0.1	0.5	0.5	1.4	10.4
	3	4	101.1	4.36	2.05	3.9	1.6	1.9	2.4	1.5	0.2	0.6	0.4	4.4	17.0
	年間合計	45	2550.0	4.69	1.18	43.8	23.7	49.7	27.6	40.7	2.5	8.7	10.5	51.6	258.8

0.4μmol/L 高く、Ca²⁺は差がなかった。一方、阿蘇一の宮においては SO₄²⁻、Cl⁻、Ca²⁺、Mg²⁺及び H⁺については、それぞれ 14.4μmol/L、69.9μmol/L、10.0μmol/L、3.4μmol/L、51.0μmol/L 低かった。また、NO₃⁻、NH₄⁺、Na⁺及び K⁺についてはそれぞれ 2.3μmol/L、4.4μmol/L、4.2μmol/L、0.9μmol/L の減少が認められた。

2. 経月変化

表 2 に 2020 年度の阿蘇一の宮及び宇土における pH 及び EC の月別平均(加重平均)と月別イオン成分沈着量を示した。pH 及び EC の月別平均は降水量との加重平均により算出し、イオン成分沈着量は各イオン成分濃度に降水量を乗じて算出した。

pH では、阿蘇一の宮で 4 月と 1 月がそれぞれ 3.82 と 3.98 で 4 以下であり、次いで 11 月の 4.04、12 月の 4.09 の順であった。一方、宇土では 1 月の 4.11 が最も

低く、次いで 8 月の 4.25、4 月と 12 月の 4.33 の順であった。

EC では、阿蘇一の宮で 4 月が 7.26mS/m と最も高く、次いで 1 月が 4.86mS/m、11 月が 3.61mS/m、12 月が 3.46mS/m の順であった。一方、宇土では 1 月の 4.38mS/m が最も高く、次いで 12 月の 3.07mS/m、8 月の 3.04mS/m の順であった。いずれも降水量の少ない月に高くなる傾向を示した。

月別イオン成分沈着量では、阿蘇一の宮では Cl⁻と Mg²⁺を除き降水量の多かった 6 月と 7 月の順に高い値を示した。一方、宇土では降水量の多かった 7 月と 6 月が全イオン種で高い傾向にあった。

図 2 に 2020 年度の月別沈着量に対する各イオン成分沈着量の占める割合を示した。阿蘇一の宮ではアニオン成分のうち Cl⁻/SO₄²⁻比で 4 月は 3.0 倍であったが、それ以降は 0.3 (8 月) ~ 1.9 (11 月) の間で推移した。

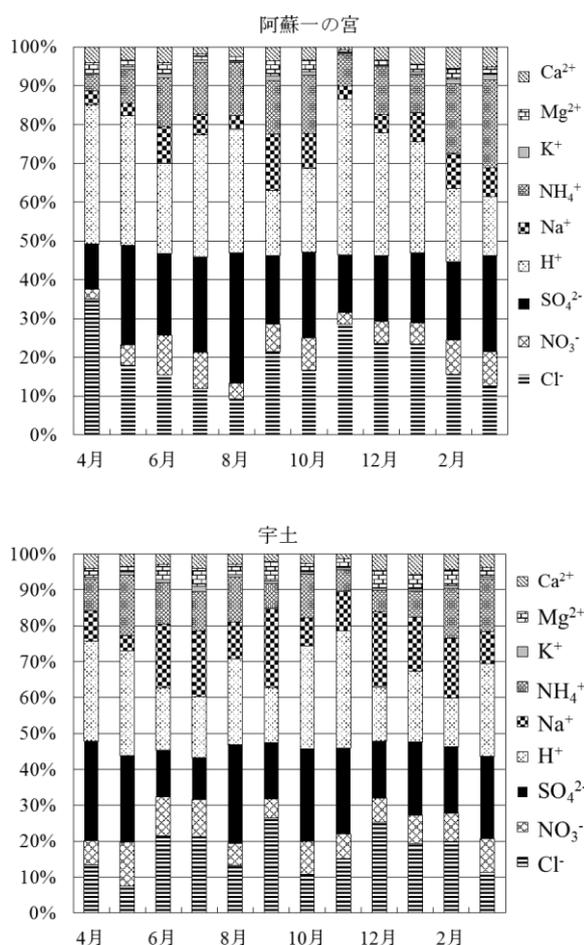


図 2 月別沈着量に対する各イオン成分沈着量の割合

一方、宇土では年間を通して 0.3 (5 月) ~1.8 (7 月) の間で推移した。

図 3 に H⁺に対する SO₄²⁻、Cl⁻及び[SO₄²⁻+Cl⁻]の各沈着量間の相関を示した。宇土は SO₄²⁻及び Cl⁻ともに高い相関が認められ、降水の酸性化に寄与しているものと考えられた。一方、阿蘇一の宮は宇土と比較して相関が低かったが、両イオンの合計沈着量である[SO₄²⁻+Cl⁻]と H⁺との間では極めて高い相関を示した。

3. 経年変化

2008 年度から 2020 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表 3 に示した。なお、他の調査地点の調査開始 (1989 年度) からのデータは既報⁶⁾を参照されたい。

宇土におけるイオン成分については海塩成分である Na⁺と Cl⁻を除き前年度とほぼ同じレベルで推移した。

阿蘇一の宮については 2019 年度からのデータに加え、参考として 2017 年度まで調査を実施していた阿蘇 (旧阿蘇保健所) の調査結果を示した。2019 年度の

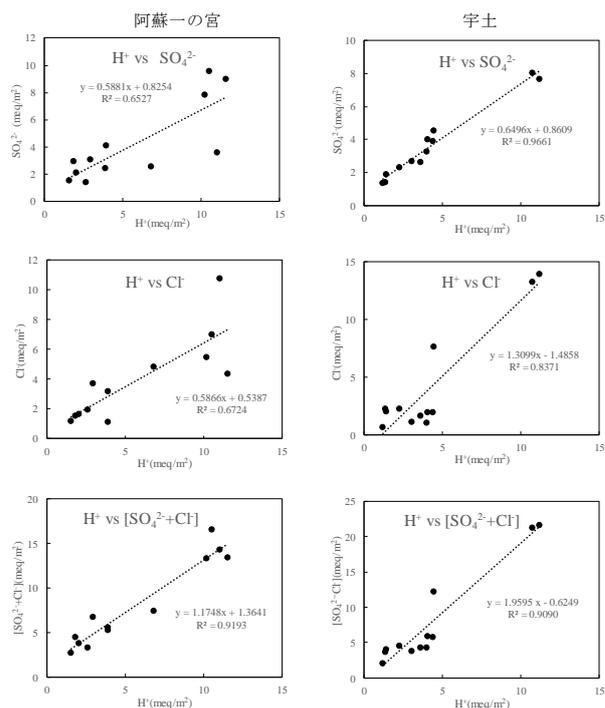


図 3 H⁺に対する SO₄²⁻、Cl⁻及び[SO₄²⁻+Cl⁻]

阿蘇一の宮は宇土と比較して SO₄²⁻、Cl⁻、H⁺の沈着量が際立って多かったが、2020 年度は 8 月以降阿蘇山の火山活動が沈静化したことにより阿蘇や宇土と差が小さくなった

4. 低 pH (pH4 未満) の降水事例

表 4 に降水試料の pH が 4 未満の事例を示した。宇土においては、pH4 未満の降水試料は少なく、2020 年度は 3 検体あった。一方、阿蘇一の宮においては、pH4 未満の降水試料が 7 検体あった。特に 5 月第 1 週 (4/27 ~5/7) の試料は pH3.42 で、2020 年度の調査期間中最も低い値であった。これは表 5 に示すように、2019 年 4 月に阿蘇山の火山活動が活発化したため、噴火警戒レベルが 2 に引き上げられ、その後たびたび噴火を繰り返し、2020 年 8 月 18 日に噴火警戒レベルが 1 に引き下げられるまで火山ガスの放出量が多い状態で経過したことが原因と考えられる。

降水の酸性化に寄与するアニオンは主に SO₄²⁻、NO₃⁻、Cl⁻である。表 4 中では阿蘇一の宮において SO₄²⁻と Cl⁻が高濃度であることに着目し、海塩由来成分を除いた非海塩性の nss-SO₄²⁻と nss-Cl⁻について H⁺との相関をグラフで示した (図 4)。この図から H⁺と nss-Cl⁻の相関が高いことがわかる。なお、最も高かった 5 月第 1 週 (4/27 ~5/7) の値を除いて算出した R² も 0.8055

表 3 イオン成分年間沈着量の推移

調査地点	年度	年間降水量 mm	pH	EC mS/m	SO ₄ ²⁻ meq/m ²	NO ₃ ⁻ meq/m ²	Cl ⁻ meq/m ²	NH ₄ ⁺ meq/m ²	Na ⁺ meq/m ²	K ⁺ meq/m ²	Ca ²⁺ meq/m ²	Mg ²⁺ meq/m ²	H ⁺ meq/m ²	年間沈着量 meq/m ²
阿蘇	2008 ^{注1)}	2424.6	4.50	1.50	74.8	23.5	37.3	37.0	20.8	4.3	13.3	6.6	73.6	291.3
	2009	2655.3	4.52	1.57	90.0	32.6	54.9	47.5	31.6	6.3	19.4	10.2	80.0	372.4
	2010	2190.9	4.61	1.91	80.0	33.4	60.3	49.4	32.9	4.0	21.5	9.5	50.0	341.0
	2011	2580.0	4.80	1.38	80.5	30.4	39.2	42.5	26.1	7.1	23.0	8.8	41.1	298.8
	2012 ^{注2)}	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	2013	2455.9	4.54	2.26	99.5	44.1	87.9	67.1	48.3	8.9	28.9	15.5	69.9	470.2
	2014 ^{注3)}	2339.9	4.27	3.38	110.5	28.4	123.5	43.3	29.5	4.2	35.8	15.8	124.9	515.8
	2015	2728.4	4.60	1.83	84.4	22.9	62.5	38.8	26.4	4.4	21.1	11.2	69.1	340.7
	2016	3802.1	4.61	1.56	116.0	40.5	59.0	61.2	33.3	3.4	14.8	9.5	94.2	431.9
	2017	2655.3	4.74	1.21	66.6	24.2	33.5	32.9	25.0	2.0	11.6	7.0	48.8	251.7
阿蘇一の宮	2019	2236.1	4.10	4.48	110.7	20.4	199.6	35.5	23.9	3.9	52.1	20.3	177.4	643.7
	2020	2428.6	4.55	1.39	50.3	16.4	46.8	27.9	15.8	1.9	8.1	5.3	68.7	241.2
宇土	2008	2389.6	4.55	1.55	72.5	25.0	38.5	34.8	28.7	2.8	12.8	8.0	64.9	288.1
	2009 ^{注4)}	1446.2	4.44	1.92	51.7	23.5	35.8	28.6	29.4	1.6	10.6	7.7	52.7	241.6
	2010	1744.1	4.69	1.57	50.9	22.1	31.2	32.0	24.7	1.6	11.3	6.6	35.7	215.9
	2011	2180.5	4.69	1.45	58.9	23.4	31.4	30.1	23.7	2.2	9.7	5.8	44.5	229.7
	2012	2106.8	4.71	1.56	59.9	22.6	43.5	33.7	35.8	2.6	10.8	8.7	41.5	259.2
	2013 ^{注5)}	1968.3	4.69	1.49	50.8	21.8	31.3	27.2	25.6	1.7	10.3	6.7	36.5	211.9
	2014	1775.1	4.62	1.71	57.5	21.4	27.9	25.5	22.7	1.9	10.1	6.4	42.2	215.5
	2015	2415.5	4.86	1.18	47.4	18.8	41.3	23.8	36.7	2.2	9.5	9.5	33.7	222.8
	2016	2649.6	4.85	1.11	55.2	27.5	39.8	33.4	31.8	2.3	11.9	8.6	37.8	248.5
	2017	2203.3	4.75	1.22	47.8	20.3	38.7	20.8	30.9	1.9	8.5	7.8	38.8	215.4
	2018	1996.5	4.69	1.35	49.6	20.0	29.5	21.6	21.7	1.5	8.8	6.3	40.7	199.8
	2019	2296.5	4.68	1.31	47.1	20.7	39.3	23.8	28.5	1.8	7.8	7.9	47.7	224.8
2020	2550.0	4.69	1.18	43.8	23.7	49.7	27.6	40.7	2.5	8.7	10.5	51.6	258.8	

注1) 欠測月(9月, 10月)を含む。注2) 2012年7月2日から2013年2月24日まで欠測。注3) 試料未回収週を含む。
 注4) 欠測月(2月, 3月)を含む。注5) 2013年9月2日から2013年12月2日まで降水量のみ測定分, 2014年1月24日から2月10日までの欠測を含む。

表 4 低 pH (pH4 未満) 観測事例

地点名	採取期間		降水量 mm	pH	EC mS/m	SO ₄ ²⁻ μmol/L	nss-SO ₄ ²⁻ μmol/L	NO ₃ ⁻ μmol/L	Cl ⁻ μmol/L	nss-Cl ⁻ μmol/L	NH ₄ ⁺ μmol/L	Na ⁺ μmol/L	K ⁺ μmol/L	Ca ²⁺ μmol/L	nss-Ca ²⁺ μmol/L	Mg ²⁺ μmol/L	H ⁺ μmol/L		
	月	週																開始日	終了日
阿蘇一の宮	4	1	3/30	4/6	15.4	3.73	8.52	23.6	23.3	8.5	178.3	173.3	20.2	4.3	2.2	8.7	8.6	4.8	186.2
	4	2	4/6	4/13	29.5	3.75	8.05	23.5	23.2	11.3	153.4	147.7	13.5	4.8	1.4	7.8	7.7	3.6	177.8
	4	3	4/13	4/20	27.7	3.98	5.72	26.5	24.5	11.3	126.7	88.3	21.3	32.7	2.3	9.6	8.8	7.8	104.7
	5	1	4/27	5/7	3.9	3.42	20.90	70.7	69.0	42.2	520.7	488.5	121.3	27.4	6.5	32.6	32.0	29.4	380.2
	11	1	10/26	11/2	10.6	3.84	6.04	30.9	29.8	6.3	121.1	98.4	39.7	19.3	0.7	2.0	1.6	2.4	144.5
	12	3	12/21	12/28	12.9	3.98	4.45	29.3	28.7	17.3	76.3	64.5	47.9	10.0	1.1	5.1	4.8	1.7	104.7
	1	3	1/18	1/25	24.7	3.87	5.50	33.9	33.1	11.6	83.7	67.9	25.7	13.4	2.3	3.8	3.5	1.7	134.9
宇土	5	2	5/7	5/11	4.1	3.82	8.05	80.8	77.9	33.5	76.8	21.7	59.5	46.8	3.9	10.5	9.4	6.5	151.4
	8	3	8/17	8/24	5.0	3.69	9.50	102.9	102.6	44.8	21.0	14.6	81.2	5.4	2.1	7.5	7.4	1.9	204.2
	10	1	9/28	10/5	5.0	3.96	5.41	60.7	59.7	37.6	29.0	8.1	78.0	17.8	1.2	2.8	2.4	2.5	109.6

(R=0.8923) と高い相関を示した。特に 5 月第 1 週については nss-Cl 濃度が 488.5 μmol/L と極めて高い値を示し、前号⁵⁾で述べたように火山性ガス中の HCl 濃度が火山活動の活発化により多量に排出されたことによると推測された。^{8),9)}

宇土についてはデータ数が少ないが、nss-SO₄²⁻と H⁺との間に高い相関 (R=0.9997) がみられた。

ま と め

宇土における pH の年平均値は近年 4.7 前後で推移しており、特異な pH の変動はなかった。一方、阿蘇一の宮における年平均 pH は昨年度の 4.10 から 4.55 に

上がったが、宇土と比べると依然低い値であった。この降水の pH 上昇の原因は、阿蘇山が前年度から引き続き噴火警戒レベル 2 の活動期にあったが、8 月以降沈静化に向かったことから宇土と差が少なくなったものと考えられる。

阿蘇一の宮は阿蘇中岳との距離が近いことから、SO₄²⁻に加え Cl⁻の濃度が大きく影響して降水の酸性化に寄与したのと考えられる。今後も阿蘇一の宮での情報を蓄積することにより、阿蘇山の火山活動から排出される SO₄²⁻や Cl⁻の関係を検討していきたい。

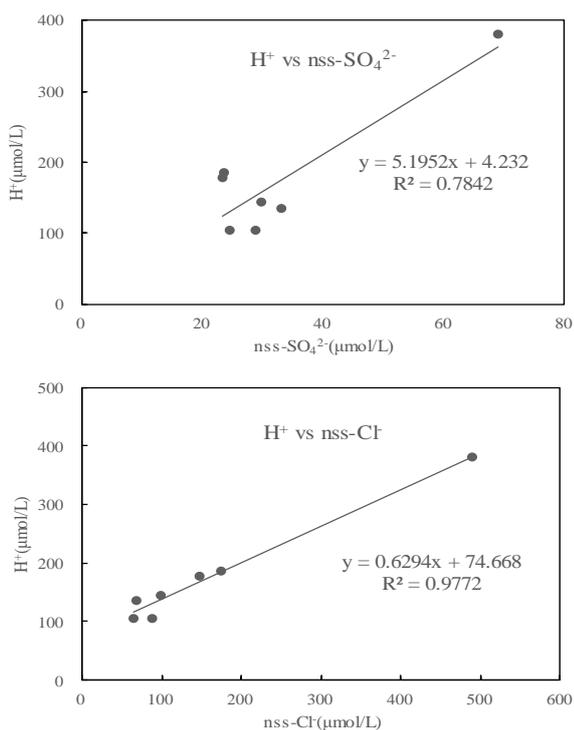


図 4 阿蘇一の宮における低 pH 観測時の H⁺ 対 nss-SO₄²⁻ 及び nss-Cl⁻

文 献

1) 今村 修, 久保 清: 熊本県衛生公害研究所報, 19, 53 (1989).
 2) 緒方和博, 矢野弘道, 上野一憲, 今村 修: 熊本県保健環境科学研究所報, 35, 91 (2005).
 3) 松本依子, 上野一憲, 今村 修: 全国環境研会誌,

表 5 阿蘇山の火山活動状況 (2020 年発表履歴) ⁷⁾

噴火警報・予報及び噴火警報レベルの状況	2019年4月～	噴火警戒レベル2 (火口周辺規制) で推移
	8月18日	噴火警戒レベルを1 (活火山であることに留意) に引き下げ
活動状況	2019年10月7日～	2019年10月7日に発生した噴火が1月6日まで継続
	1月7日	噴火が発生。火口縁上1,100mまで上がる
	6月～	噴火の発生なし
火山ガス (二酸化硫黄) の放出量	～6月上旬	概ね多い状態で経過
	6月中旬～	やや少ない状態で経過

33(4), 219 (2008).

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(2020年度).
 5) 上野一憲, 小原大翼: 熊本県保健環境科学研究所報, 49, 78 (2019).
 6) 宮本 俊, 古澤尚英: 熊本県保健環境科学研究所報, 44, 96 (2014).
 7) 国土交通省気象庁ホームページ: 月間火山概況・火山活動解説資料/火山活動解説資料 (阿蘇山). http://www.data.jma.go.jp/svd/vois/data/tokyo/STOCK/monthly_v-act_doc/monthly_vact_vol.php?id=503
 8) Iwasaki, I., Ozawa, T., Yoshida, M., Katsura, T., Iwasaki, B. and Kamada, M.: Differentiation of magmatic emanation, Bulletin of the Tokyo Insutitute of Tecnology, No.74, 1966, pp.1-57.
 9) 平林順一: 京大防災研究所年報, 第 24 号 B-1 (昭和 56.4), 1-10.