

# 長崎県における酸性雨調査(2018年度)

橋本京太郎

## Acid rain Survey in Nagasaki Prefecture (2018)

Kyotaro HASHIMOTO

キーワード：酸性雨、pH、非海塩性硫酸イオン

Key words: acid rain, pH, non sea salt sulfate

### はじめに

酸性雨は化石燃料の燃焼により大気中に排出された硫黄酸化物や窒素酸化物の一部が大気中で硫酸および硝酸等の二次生成物質に酸化され、これらの二次生成物質が雨滴生成過程で核として捕捉され降水に取り込まれることによって起こる。また、酸性雨の原因となる物質は、国内からの発生に加え大陸からの移流も指摘されている<sup>1)</sup>。

このような酸性雨問題に対処するため、長崎県は1983年から長崎市式見及び旧大村保健所(大村市西三城町12番地)で酸性雨調査を開始した<sup>2~11)</sup>。2005年度からは長崎市式見及び県央保健所での機器保守管理、酸性雨分析は民間委託されており、2008年度からは長崎市式見における調査を終了し、県央保健所1箇所での調査を継続している。また、長崎県内には2箇所の国設酸性雨局があり、環境省の委託を受けて国設対馬酸性雨測定所では酸性雨調査を継続している。国設五島酸性雨測定所においては2008年度をもって酸性雨調査を終了し、現在は大気関係の測定を継続している。

本報告では、県央保健所における2018年度の酸性雨調査結果について報告する。

### 調査地点の概要

県内の酸性雨測定地点及び国設局(五島酸性雨測定所を含む)を図1に示す。本調査結果に関わる測定地点の概要は次に示すとおりである。

県央保健所においては、1998年1月から測定を開始した。諫早市中心部の北方に位置し、調査地点の西側は住宅地が広がっている。東側は交通量が多い



図1 酸性雨測定地点

旧国道34号線を経て田園地帯となっている。

### 調査方法

雨水の採取は小笠原計器(株)製US-400をベースとして、10検体の一降雨試料が連続して採取できるように改造した雨水採取器により実施した。なお、2018年12月から2019年3月の期間では、雨水採集器不良により正常な試料採集ができなかったため、正常に採集できた試料についてのみ報告した。

表 1 pH の出現頻度及び酸性雨出現率

pH 階級	県央保健所	
	2017 年度	2018 年度
2.61～2.99	0	0
3.00～3.59	0	0
3.60～3.99	0	6
4.00～4.59	30	33
4.60～4.99	27	16
5.00～5.60	15	6
5.61～5.99	0	3
6.00～6.59	0	0
6.60～6.99	2	0
7.00～	0	0
サンプル数	74	64
酸性雨出現率 (%)	97.3	95.3
pH<4.00 (%)	0.0	9.4
最低 pH	4.02	3.74
最高 pH	6.80	5.85
加重平均 pH	4.77	4.49

表 2 黄砂観測日

	2017 年度	2018 年度
黄砂観測日	5 月 6 日	4 月 6 日
	5 月 7 日	4 月 7 日
	5 月 8 日	4 月 15 日
		4 月 16 日
		4 月 17 日
合計	3 日間	5 日間

※気象庁 HP より

雨水の採取、分析は民間委託されており、測定項目は貯水量、pH、電気伝導率(EC)、 $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{Cl}^-$ 、 $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ 、 $\text{K}^+$ 、 $\text{Na}^+$ の 11 項目である。測定方法は湿性沈着モニタリング手引き書(第 2 版)<sup>12)</sup>に準じた。また、降水量については、貯水量から計算した。

## 調査結果

### 1 pH 及び酸性雨出現頻度

pH の出現頻度及び酸性雨の定義を pH5.6 以下とした場合の酸性雨出現率を表 1 に示す。県央保健所における 2018 年度の酸性雨出現率は 95.3%であり、2017 年度と比較してほとんど変化は無かった。降水の pH は 3.74 ~ 5.85 であり、年平均値は 4.49 と 2017 年

度と比較してやや低下した。

降水を中和する要因やイオン濃度などに影響を与える黄砂について、2017、2018 年度における観測日を表 2 に示す。気象庁 HP によれば、2018 年度に長崎県で黄砂が観測された日数は 5 日間であり、3 日間であった 2017 年度と比較して多かった。

### 2 pH の経月変化

2017、2018 年度の降水量の経月変化を図 2 に、2009-2018 年度の月別平均値 pH の経月変化を図 3 に示す。2018 年度の月別降水量は、4 月に最も多く、5 月を除いて例年より少なかった。また、年間降水量は過去 10 年間で最も少ない量だった。

例年の pH の加重平均値は、雨の多い夏季に高く、雨の少ない冬季に低い傾向を示す。2018 年度の結果においてもおおむねそのような傾向を示した。また、図 4 には 2009-2018 年度の pH 加重平均値の推移を示しているが、2018 年度は過去 10 年で最も低くなった。

### 3 イオン成分濃度

2009-2018 年度におけるイオン成分濃度年平均値を表 3 に、2017、2018 年度のイオン成分濃度月平均値を表 4 に示す。“nss-”は「非海塩性(nss: non sea salt)」を表し、海塩性イオン( $\text{Na}^+$ をすべて海塩由来として海塩組成比から算出)を差し引いた残りであることを示している。

降水中の非海塩性硫酸イオン( $\text{nss-SO}_4^{2-}$ )成分及び非海塩性カルシウムイオン( $\text{nss-Ca}^{2+}$ )成分の割合を求めると、2018 年度の年平均値はそれぞれ 88%、80%であり、2017 年度の年平均値と比較すると、 $\text{nss-SO}_4^{2-}$ の割合が高くなった。また、降水の質的变化の解析として用いられている $^{13}\text{NO}_3^-/\text{nss-SO}_4^{2-}$ 等量比は2009年以降減少し、2017 年は再び同じ水準へ上昇していたが、2018 年度は再び低下した。一般的に  $\text{SO}_2$  は火山活動や越境汚染の影響を受けやすく、 $\text{NO}_x$  は国内発生源の影響を受けやすいといわれてきたが、鶴野<sup>14)</sup>によれば寒候季には域外に水平輸送されることが示されていることから、越境汚染の影響を受けている可能性がある。また、2000 年代のおわりには中国の  $\text{SO}_2$  の排出量は頭打ちされたと言われており、 $\text{NO}_3^-/\text{nss-SO}_4^{2-}$ 等量比の変化もその影響を受けていると思われる。

2009-2018 年度における  $\text{nss-Ca}^{2+}$ 濃度、 $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 濃度及び  $\text{NO}_3^-$ 濃度の経月変化を図 5、6、7 に示す。一般的にイオン成分濃度は雨の多い夏季に低く、雨の少ない冬季に高い傾向を示す。2018 年度に長崎県で黄砂が観測されたのは 4 月であるが、 $\text{nss-Ca}^{2+}$ 濃度が黄

砂観測日の前後で特徴的である事例はなかった。nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度及び NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度は冬季に高く、おおむね例年の傾向を示していた。

#### 4 イオン成分沈着量

表 5 に 2009-2018 年度におけるイオン成分年沈着量を、表 6 に 2017、2018 年度イオン成分月別沈着量を示した。2018 年度の年沈着量は Cl<sup>-</sup> が最も多く、次いで SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>という結果であり、2017 年度と比べ大きな変化はなかった。

一般的に降水量が多ければ沈着量も増加する。2018 年度においてもほぼそのような傾向を示していたが、一部の期間で正常な試料採集ができなかったため、詳細な季節変化についてはわからなかった。

### まとめ

県央保健所における 2018 年度の酸性雨の出現率は 2017 年度と大きな差はなく例年並みであった。2018 年度における降水の pH は 3.74 ~ 5.85、加重平均値は 4.49 であり、2017 年度と比較すると低くなった。また、pH が 4.00 より低い強酸性雨の出現は、2017 年度よりも増え、5 月、9 月 11 月に出現した。2017 年度の全国の pH の地点別年平均値は 4.57 ~ 5.24、全地点の年平均値は 4.88 であるので<sup>15)</sup>、県央保健所における 2018 年度の降水の pH は、全国の降水の pH よりも低い傾向があった。イオン成分濃度については、nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度及び NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度は、冬季に高く、おおむね例年と同様の傾向を示していた。イオン沈着量については、降水量の多い時期に高い傾向を示した。

降水量が測定値に影響を与えていることは明らかであるが、冬季に nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>及び NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度が高くなることや、nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>については全国と比較しても高濃度であることから今後も継続的に経過を解析する必要がある。また、本県は大陸と近く越境汚染の影響を受けやすいことから、気象イベント等との関連について長期的に解析をする必要がある。

### 参考文献

- 1) 環境省：酸性雨長期モニタリング報告書(平成 15~19 年度),101-128(2009).
- 2) 吉村 賢一郎, 他：酸性雨調査(第 1 報), 長崎県衛生公害研究所報, **25**, 91-96(1983).
- 3) 吉村 賢一郎, 他：酸性雨調査(第 2 報), 長崎県衛生公害研究所報, **26**, 130-134(1984).
- 4) 吉村 賢一郎, 他：酸性雨調査(第 3 報), 長崎

県衛生公害研究所報, **27**, 29-36(1985).

- 5) 吉村 賢一郎, 他：酸性雨調査(第 4 報), 長崎県衛生公害研究所報, **28**, 15-24(1986).
- 6) 釜谷 剛, 他：長崎県における酸性雨調査(1999 年度), 長崎県衛生公害研究所報, **45**, 37-39(1999).
- 7) 釜谷 剛, 他：長崎県における酸性雨調査(2000 年度), 長崎県衛生公害研究所報, **46**, 32-36(2000).
- 8) 山口 顕徳, 他：長崎県における酸性雨調査(2001 年度), 長崎県衛生公害研究所報, **47**, 41-46(2001).
- 9) 山口 顕徳, 他：長崎県における酸性雨調査(2002 年度), 長崎県衛生公害研究所報, **48**, 66-70(2002).
- 10) 山口 顕徳, 他：長崎県における酸性雨調査(2003 年度), 長崎県衛生公害研究所報, **49**, 52-57(2003).
- 11) 横瀬 健, 他：長崎県における酸性雨調査(2004 年度), 長崎県衛生公害研究所報, **50**, 38-43(2004).
- 12) 環境省地球環境局環境保全対策課酸性雨研究センター：第 2 章 各論,湿性沈着モニタリング手引き書(第 2 版), 28-53(2001).
- 13) 藤田 慎一：日本列島における降水の NO<sub>3</sub><sup>-</sup>/nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度比の経年変化,大気環境学会誌, **48**, 12-19(2013).
- 14) 鶴野 伊津志：東アジア域の NO<sub>x</sub> 排出量と窒素化合物の挙動のモデル解析,大気環境学会誌, **48**, 223-233(2013).
- 15) 環境省：平成 29 年度酸性雨調査結果(湿性沈着モニタリング結果)

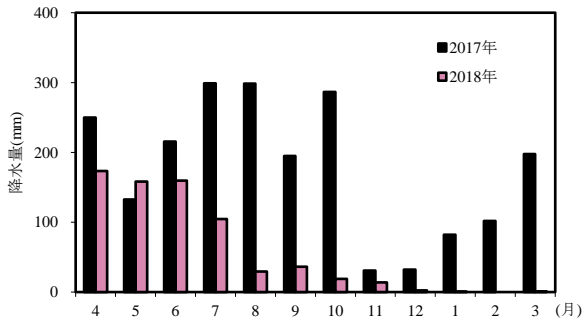


図2 降水量の経月変化

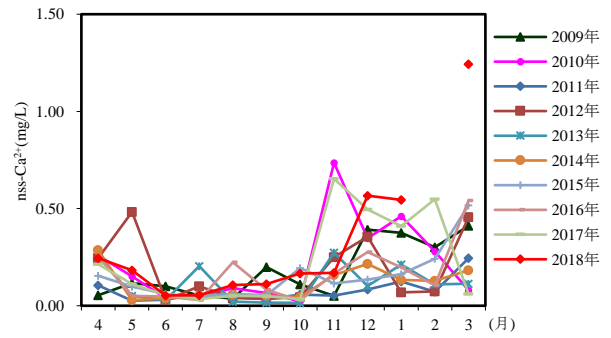


図5 nss- Ca<sup>2+</sup>濃度の経月変化

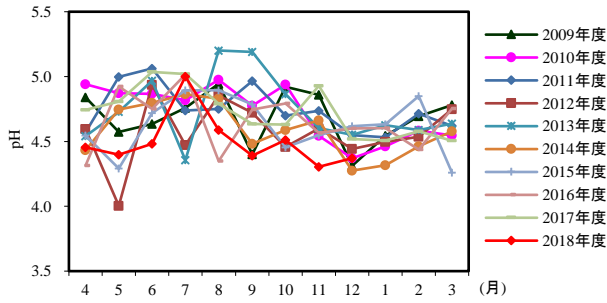


図3 pH月別平均値

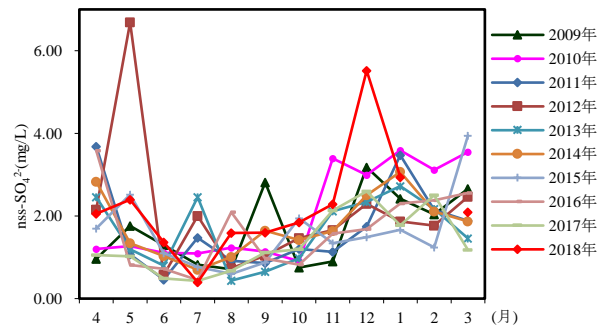


図6 nss- SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度の経月変化

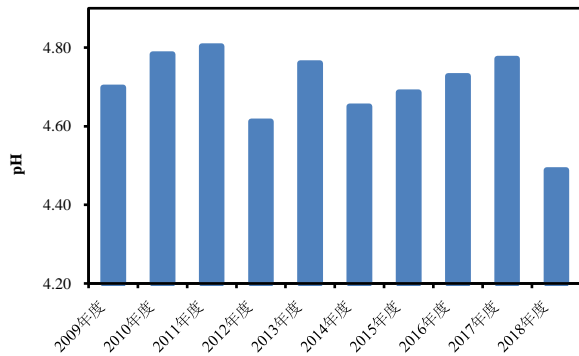


図4 pH加重平均値の推移

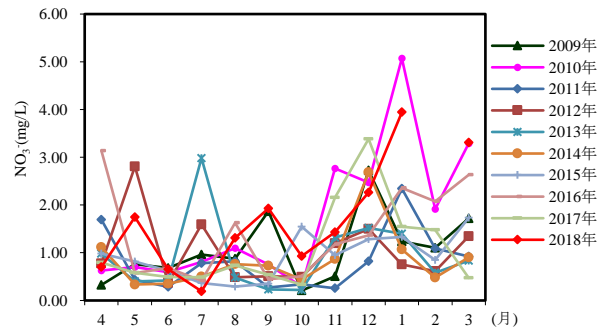


図7 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度の経月変化

表3 イオン成分濃度年平均値

単位:mg/L

調査地点	年度	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> (a)	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> (b)	b/a*100 (%)	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Ca <sup>2+</sup> (c)	nss-Ca <sup>2+</sup> (d)	d/c*100 (%)	Na <sup>+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	K <sup>+</sup>	H <sup>+</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> /nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> (%)
県央保健所	2009	1.54	1.38	90	0.92	1.08	0.30	0.17	0.14	85	0.64	0.09	0.04	0.02	66.80
	2010	1.62	1.44	89	0.98	1.27	0.33	0.16	0.13	83	0.72	0.11	0.05	0.02	68.34
	2011	1.22	1.13	92	0.61	0.68	0.18	0.07	0.06	81	0.37	0.10	0.03	0.02	54.06
	2012	1.66	1.51	91	0.85	1.04	0.31	0.15	0.13	85	0.58	0.10	0.03	0.02	56.44
	2013	1.51	1.32	87	0.70	1.40	0.20	0.12	0.09	76	0.77	0.10	0.05	0.02	53.51
	2014	1.50	1.36	90	0.74	1.12	0.22	0.11	0.08	79	0.59	0.09	0.05	0.02	54.70
	2015	1.31	1.17	90	0.64	0.99	0.24	0.11	0.09	82	0.54	0.08	0.03	0.02	54.91
	2016	1.26	1.07	85	0.86	1.36	0.28	0.12	0.09	77	0.75	0.12	0.04	0.02	80.19
	2017	1.19	1.03	86	0.70	1.24	0.22	0.15	0.12	83	0.66	0.12	0.04	0.02	68.55
	2018	1.93	1.69	88	0.97	1.83	0.30	0.18	0.14	80	0.96	0.14	0.06	0.03	57.40

表4 イオン成分濃度月平均値

単位:mg/L

調査地点	年度	項目	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月	イオン成分 年平均値及 び年降水量		
県央保健所	2017	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	1.13	1.06	0.51	0.48	0.74	1.17	1.25	2.50	3.28	2.83	3.48	1.42	1.19		
		nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	1.05	1.03	0.49	0.43	0.68	1.12	1.20	2.13	2.60	1.77	2.50	1.18	1.03		
		NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	0.79	0.58	0.49	0.49	0.74	0.54	0.33	2.16	3.38	1.55	1.48	0.47	0.70		
		Cl <sup>-</sup>	0.84	0.25	0.20	0.38	0.42	0.37	0.34	2.33	4.50	7.21	6.88	2.11	1.24		
		NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	0.24	0.16	0.13	0.14	0.20	0.18	0.17	0.55	0.89	0.48	0.50	0.18	0.22		
		Ca <sup>2+</sup>	0.22	0.12	0.06	0.04	0.06	0.06	0.04	0.71	0.60	0.57	0.70	0.10	0.15		
		nss-Ca <sup>2+</sup>	0.21	0.11	0.05	0.03	0.05	0.05	0.03	0.65	0.50	0.41	0.55	0.06	0.12		
		Na <sup>+</sup>	0.32	0.12	0.10	0.21	0.24	0.20	0.20	1.46	2.73	4.21	3.89	0.94	0.66		
		Mg <sup>2+</sup>	0.13	0.06	0.03	0.06	0.06	0.04	0.05	0.24	0.41	0.56	0.54	0.14	0.12		
		K <sup>+</sup>	0.03	0.03	0.01	0.02	0.02	0.01	0.02	0.09	0.14	0.18	0.18	0.05	0.04		
		H <sup>+</sup>	0.018	0.016	0.009	0.010	0.016	0.023	0.023	0.012	0.030	0.031	0.026	0.031	0.019		
		降水量mm	250	133	215	299	299	195	286	31	32	82	102	198	2122		
		県央保健所	2018	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	2.26	2.50	1.46	0.85	1.98	1.90	3.18	2.51	5.74	3.47	*	2.28	1.93
				nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	2.06	2.39	1.36	0.40	1.59	1.59	1.84	2.29	5.52	2.94	*	2.09	1.69
				NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	0.70	1.75	0.65	0.19	1.31	1.93	0.93	1.43	2.26	3.94	*	3.31	0.97
Cl <sup>-</sup>	1.51			0.88	0.77	3.20	3.00	2.41	11.01	1.78	2.06	3.84	*	1.16	1.83		
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	0.24			0.57	0.18	0.07	0.46	0.45	0.16	0.29	0.43	0.84	*	1.03	0.30		
Ca <sup>2+</sup>	0.28			0.20	0.07	0.12	0.17	0.16	0.37	0.20	0.60	0.63	*	1.27	0.18		
nss-Ca <sup>2+</sup>	0.25			0.18	0.05	0.05	0.11	0.11	0.17	0.17	0.57	0.54	*	1.24	0.14		
Na <sup>+</sup>	0.81			0.42	0.39	1.80	1.55	1.23	5.35	0.90	0.89	2.13	*	0.75	0.96		
Mg <sup>2+</sup>	0.13			0.07	0.05	0.24	0.22	0.17	0.79	0.12	0.16	0.32	*	0.20	0.14		
K <sup>+</sup>	0.06			0.04	0.03	0.07	0.09	0.07	0.21	0.06	0.07	0.15	*	0.12	0.06		
H <sup>+</sup>	0.035			0.040	0.033	0.010	0.026	0.041	0.031	0.050	0.043	0.000	*	0.000	0.032		
降水量mm	173			158	160	104	29	36	19	14	2	0	*	1	698		

\*: 欠測(月間に測定データが1つも無い)を表す。

表5 イオン成分年沈着量

単位:mg/m<sup>2</sup>/年

調査地点	年度	年降水量 (mm)	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	nss-Ca <sup>2+</sup>	Na <sup>+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	K <sup>+</sup>	H <sup>+</sup>
県央保健所	2009	2142.6	3304.1	2960.6	1977.7	2315.3	633.6	356.4	304.4	1368.2	190.2	87.8	42.7
	2010	2075.3	3364.7	2991.7	2044.4	2642.3	680.2	336.6	280.1	1486.0	231.4	102.3	34.2
	2011	2815.7	3445.0	3182.5	1720.5	1917.0	499.6	205.5	165.8	1045.7	278.2	98.5	43.6
	2012	2489.5	4128.7	3765.2	2125.1	2578.2	781.4	369.1	314.1	1448.2	243.7	72.5	60.7
	2013	2003.3	3025.6	2635.7	1410.3	2804.8	407.3	244.4	185.4	1553.2	202.3	97.3	34.2
	2014	2199.7	3312.1	2985.0	1632.9	2461.8	488.0	235.7	186.1	1303.2	198.4	119.8	48.9
	2015	2462.9	3222.2	2886.3	1584.9	2427.5	600.1	280.1	229.3	1338.1	208.9	70.5	51.1
	2016	1907.3	2408.0	2048.4	1642.6	2587.6	525.6	235.5	181.1	1432.3	224.6	83.9	36.2
	2017	2121.5	2533.2	2179.0	1493.7	2623.2	466.9	315.7	262.1	1411.2	256.4	83.8	40.3
	2018	698.1	1349.3	1181.9	678.5	1275.1	207.3	126.2	100.9	667.0	97.6	38.7	22.4

表6 イオン成分月別沈着量

単位:mg/m<sup>2</sup>/月

調査地点	年度	項目	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月	イオン成分 年沈着量及 び年降水量		
県央保健所	2017	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	283.1	140.0	110.1	144.2	220.4	228.1	356.9	77.6	105.3	232.9	354.5	280.1	2533.2		
		nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	263.3	136.0	104.8	128.2	202.0	218.2	342.8	66.2	83.3	145.9	254.9	233.3	2179.0		
		NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	198.6	77.1	105.8	145.1	220.2	105.7	94.6	67.0	108.6	127.3	150.5	93.2	1493.7		
		Cl <sup>-</sup>	211.0	32.6	42.4	113.2	126.8	71.9	98.1	72.3	144.4	592.5	700.9	417.1	2623.2		
		NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	60.3	21.0	28.5	41.7	60.5	34.2	48.7	17.2	28.6	39.6	50.5	36.1	466.9		
		Ca <sup>2+</sup>	56.2	15.4	12.5	12.9	17.8	11.0	11.8	22.0	19.2	46.9	71.0	19.1	315.7		
		nss-Ca <sup>2+</sup>	53.2	14.8	11.7	10.5	15.0	9.5	9.7	20.3	15.9	33.7	55.9	12.0	262.1		
		Na <sup>+</sup>	78.8	16.0	21.1	63.8	73.2	39.5	56.1	45.4	87.7	346.4	396.7	186.5	1411.2		
		Mg <sup>2+</sup>	32.3	8.3	7.1	17.2	19.0	8.7	14.3	7.6	13.1	46.2	55.3	27.3	256.4		
		K <sup>+</sup>	8.3	3.5	2.9	5.7	6.7	1.0	4.9	2.8	4.6	15.0	18.4	10.0	83.8		
		H <sup>+</sup>	4.5	2.1	2.0	2.9	4.9	4.5	6.7	0.4	1.0	2.6	2.7	6.2	40.3		
		降水量mm	250	133	215	299	299	195	286	31	32	82	102	198	2122		
		県央保健所	2018	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	392.3	395.6	233.1	88.5	57.8	69.0	60.6	35.2	13.6	1.7	*	2.1	1349.3
				nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	356.8	378.8	217.4	41.4	46.4	57.8	35.0	32.0	13.1	1.4	*	1.9	1181.9
				NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	121.2	276.8	104.0	20.2	38.3	70.0	17.7	20.0	5.4	1.9	*	3.0	678.5
				Cl <sup>-</sup>	261.3	138.8	122.4	334.9	87.8	87.6	209.5	25.0	4.9	1.9	*	1.0	1275.1
				NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	42.2	89.9	28.8	7.2	13.5	16.2	3.1	4.1	1.0	0.4	*	0.9	207.3
Ca <sup>2+</sup>	47.9			31.4	10.8	12.7	4.9	5.8	7.0	2.8	1.4	0.3	*	1.1	126.2		
nss-Ca <sup>2+</sup>	42.5			28.9	8.4	5.6	3.1	4.1	3.2	2.4	1.3	0.3	*	1.1	100.9		
Na <sup>+</sup>	141.4			66.9	62.6	187.7	45.4	44.8	101.8	12.6	2.1	1.0	*	0.7	667.0		
Mg <sup>2+</sup>	22.4			11.2	8.4	25.5	6.5	6.3	14.9	1.7	0.4	0.2	*	0.2	97.6		
K <sup>+</sup>	9.7			7.1	4.5	7.3	2.5	2.5	4.0	0.8	0.2	0.1	*	0.1	38.7		
H <sup>+</sup>	6.1			6.4	5.3	1.0	0.8	1.5	0.6	0.7	0.1	0.0	*	0.0	22.4		
降水量mm	173			158	160	104	29	36	19	14	2	0	*	1	698		