

6) 熊本県の酸性雨長期モニタリング調査結果 (2022 年度)

上野一憲 豊永悟史

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 月から降水試料と非降水時における降下物を分けて捕集する降水時開放型採取装置に変更し²⁾、2008 年からは降水試料のみ調査を行っている。なお、非降水時における降下物の結果(乾性沈着)については、既報³⁾を参照されたい。

本報では 2022 年度の宇土及び阿蘇一の宮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。

2022 年度は宇土(熊本県保健環境科学研究所)及び阿蘇一の宮(熊本県阿蘇地域振興局)の 2 地点で調査を実施した。降水試料の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 30 mmol/L メタンスルホン酸溶液を用い、流速は 1.0 mL/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 4.5 mmol/L Na₂CO₃、0.5 mmol/L NaHCO₃ 混合溶液を用い、流速 1.0 mL/min に設定した。

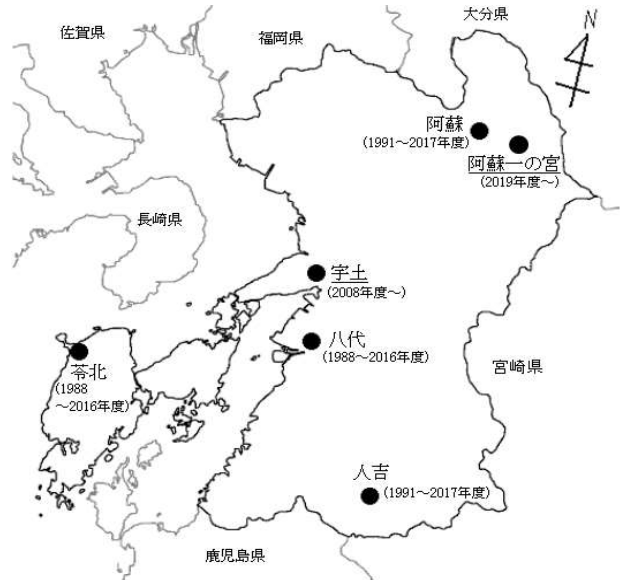


図 1 酸性雨調査地点

調査結果及び考察

1. 2021 年度⁵⁾との比較

表 1 に 2022 年度の調査地点における pH、EC 及び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。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、宇土においては 2021 年度と比べ 732.5 mm 減少した。また、阿蘇一の宮においては 2021 年度と比べ 206.0 mm 減少した。

pH の年平均値について、宇土においては 2021 年度と比べ 0.01 低かった。また、阿蘇一の宮における pH の年平均値は 2021 年度と比べ 0.11 高かった。

EC の年平均値について、宇土においては 2021 年度と比べ 0.12 mS/m 高かった。また、阿蘇一の宮においては 2021 年度と比べ 0.19 mS/m 高かった。

イオン成分の年平均濃度について、宇土においては主に海塩由来成分である Cl⁻及び Na⁺並びに K⁺は 2021 年度と比べそれぞれ 1.0 μmol/L、0.6 μmol/L、0.1 μmol/L 低かった。SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺、Ca²⁺及び H⁺は 1.3 μmol/L、2.5 μmol/L、3.7 μmol/L、0.6 μmol/L、0.4 μmol/L 高く、Mg²⁺は変わらなかった。また、阿蘇一の宮においては SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺、Na⁺、K⁺、Ca²⁺及び Mg²⁺について

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	4.52	1.49	10.6	7.9	22.0	15.8	7.6	0.6	1.8	1.1	30.0	1945.6
	最高	4.63	1.30	13.0	8.2	15.2	18.8	8.1	1.1	2.7	1.3	23.2	
	最低	4.99	6.86	20.4	20.1	161.8	33.5	18.7	1.3	7.3	2.8	151.7	
	最低	3.82	0.87	6.2	2.6	7.5	7.1	1.1	0.3	0.7	0.2	10.3	
宇土 n=46	平均	4.77	1.03	7.6	9.8	15.7	12.1	13.1	0.7	2.1	1.7	17.0	1817.5
	最高	4.78	0.91	6.3	7.3	16.7	8.4	13.7	0.8	1.5	1.7	16.6	
	最低	5.01	2.95	22.5	32.2	70.1	31.0	57.8	1.9	8.1	7.0	40.3	
	最低	4.39	0.55	2.9	2.4	4.5	4.5	3.1	0.3	0.8	0.7	9.8	

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: 2021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 ¹⁾ mm	pH	EC mS/m	SO ₄ ²⁻ meq/m ²	nss-SO ₄ ²⁻ meq/m ²	NO ₃ ⁻ meq/m ²	Cl ⁻ meq/m ²	nss-Cl ⁻ meq/m ²	NH ₄ ⁺ meq/m ²	Na ⁺ meq/m ²	K ⁺ meq/m ²	Ca ²⁺ meq/m ²	nss-Ca ²⁺ meq/m ²	Mg ²⁺ meq/m ²	H ⁺ meq/m ²	月別沈着量 meq/m ²
阿蘇一の宮	4	3	96.5	4.69	1.19	2.7	2.7	0.6	0.8	0.5	1.7	0.3	0.0	0.9	0.9	0.2	2.0	9.2
	5	4	340.1	4.60	1.15	6.2	6.2	0.9	3.2	2.7	3.0	0.4	0.1	0.5	0.5	0.2	8.6	23.0
	6	6	305.9	4.56	1.26	7.8	7.7	2.0	2.3	1.0	4.4	1.1	0.1	0.6	0.5	0.3	8.4	27.0
	7	4	290.5	4.99	0.89	4.4	4.1	4.2	3.7	0.3	6.7	2.9	0.2	1.0	0.9	0.7	3.0	26.8
	8	3	142.3	4.85	0.90	2.1	1.9	1.5	2.3	0.1	2.0	1.9	0.1	0.4	0.3	0.5	2.0	12.7
	9	4	252.2	4.91	0.87	3.1	2.6	0.7	5.5	0.7	1.8	4.1	0.2	0.7	0.5	0.9	3.1	20.1
	10	3	95.8	4.33	1.80	3.1	3.1	0.6	1.6	1.1	1.6	0.4	0.0	0.2	0.1	0.1	4.5	12.1
	11	3	63.7	4.15	2.93	1.1	1.0	0.6	3.8	3.4	1.2	0.3	0.0	0.2	0.2	0.1	4.5	11.9
	12	2	26.1	4.03	4.32	1.1	1.0	0.5	2.4	1.8	0.9	0.5	0.0	0.4	0.4	0.1	2.4	8.3
	1	4	63.4	3.82	6.86	1.6	1.5	1.1	10.3	8.9	2.0	1.2	0.1	0.7	0.6	0.3	9.6	26.9
	2	3	118.4	4.49	1.67	2.9	2.8	1.0	3.2	2.2	2.4	0.9	0.1	0.8	0.8	0.3	3.8	15.4
	3	4	150.6	4.38	2.04	4.9	4.8	1.5	3.8	2.7	3.0	1.0	0.1	0.9	0.9	0.4	6.3	22.0
	合計 ^{注2)}	43	1945.6	4.52	1.49	41.2	39.4	15.3	42.7	25.3	30.7	14.8	1.2	7.1	6.5	4.1	58.3	215.4
宇土	4	3	107.6	4.69	1.07	2.2	2.2	0.8	0.5	0.1	1.0	0.3	0.1	0.8	0.8	0.2	2.2	8.1
	5	4	343.9	5.01	0.59	2.3	2.1	1.7	2.1	0.0	2.2	1.8	0.1	0.7	0.6	0.5	3.4	14.8
	6	6	243.7	5.00	0.55	1.4	1.3	1.2	1.4	-0.1	1.5	1.3	0.1	0.4	0.3	0.3	2.4	10.1
	7	4	319.2	4.83	0.87	3.1	2.6	3.1	4.7	-0.1	4.2	4.1	0.2	0.8	0.6	1.0	4.7	25.8
	8	4	184.6	4.81	1.12	3.1	2.6	3.5	4.2	-0.1	4.2	3.7	0.2	0.7	0.5	0.9	2.8	23.1
	9	4	120.5	4.89	1.01	1.6	1.2	0.3	3.8	0.1	0.5	3.2	0.1	0.3	0.2	0.7	1.5	12.1
	10	3	86.1	4.49	1.49	2.2	2.1	0.8	1.1	0.1	0.9	0.8	0.0	0.1	0.1	0.2	2.8	9.1
	11	3	53.7	4.64	1.10	0.9	0.8	0.6	0.6	0.0	0.4	0.5	0.0	0.2	0.2	0.1	1.2	4.5
	12	2	33.2	4.39	2.95	1.5	1.3	1.1	2.3	0.1	1.0	1.9	0.1	0.5	0.5	0.5	1.3	10.3
	1	4	96.5	4.70	1.60	2.5	2.2	1.9	2.9	0.2	2.2	2.3	0.1	1.1	1.0	0.6	1.9	15.5
	2	4	98.6	4.53	1.68	3.2	3.0	1.0	2.7	0.2	1.4	2.1	0.1	1.0	0.9	0.6	2.9	14.9
	3	4	129.9	4.55	1.56	3.9	3.7	1.9	2.2	0.1	2.4	1.8	0.1	0.8	0.8	0.5	3.6	17.3
	合計 ^{注2)}	45	1817.5	4.77	1.03	27.8	24.9	17.8	28.6	0.6	22.0	23.8	1.3	7.5	6.4	6.0	30.9	165.6

注1) 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月間降水量を算出

注2) pH及びECは加重平均値

は、それぞれ 2.4 μmol/L, 0.3 μmol/L, 3.0 μmol/L, 0.5 μmol/L, 0.5 μmol/L, 0.9 μmol/L, 0.2 μmol/L 低かった。Cl⁻及び H⁺についてはそれぞれ 6.8 μmol/L, 6.8 μmol/L 低かった。

2. 経月変化

表 2 に 2022 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、図 2 に 2022 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。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 1 月の 3.82 が最も低く、次いで 12 月の 4.03, 11 月の 4.15 の順であった。また、宇土では 12 月の 4.39 が最も低く、次いで 10 月の 4.49, 2 月の 4.53 の順であった。

EC では、阿蘇一の宮で 1 月の 6.86 mS/m が最も高く、次いで 12 月が 4.32 mS/m, 11 月が 2.93 mS/m の順であった。また、宇土では 12 月の 2.95 mS/m が最も高く、次いで 2 月の 1.68 mS/m, 1 月の 1.60 mS/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 6 月, 1 月, 7 月の順に高い値を示した。特に、5 月と 6 月は非

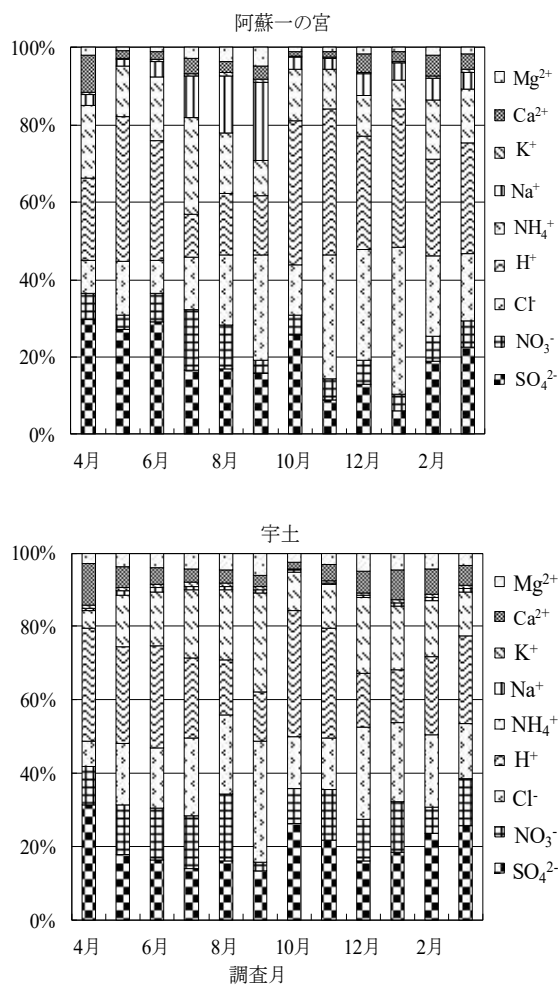


図 2 月別沈着量に対する各イオン成分沈着量の割合

海塩性である $nss-SO_4^{2-}$ が、1 月は $nss-Cl^-$ が際立って高く、低 pH に寄与した。また、宇土では降水量の多かった 7 月が最も高く、次いで 8 月、3 月の順で高い値を示した。アニオン成分のうち $nss-Cl^-/nss-SO_4^{2-}$ 比で阿蘇一の宮では 0.07 (8 月) ~ 12 (1 月) の間で推移した。また、宇土では -0.13 (6 月) ~ 0.23 (9 月) の間で推移した。

図 3 に H^+ に対する $nss-SO_4^{2-}$ 及び $nss-Cl^-$ の各成分濃度間の相関を示した。阿蘇一の宮は対 $nss-Cl^-$ が高い相関 ($r=0.968$) を示した。また、宇土は対 $nss-SO_4^{2-}$ が高い相関を示した ($r=0.885$)。阿蘇一の宮は $nss-Cl^-$ が、また、宇土は $nss-SO_4^{2-}$ が降水の酸性化に寄与しているものと考えられた。

3. 経年変化

2008 年度から 2022 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

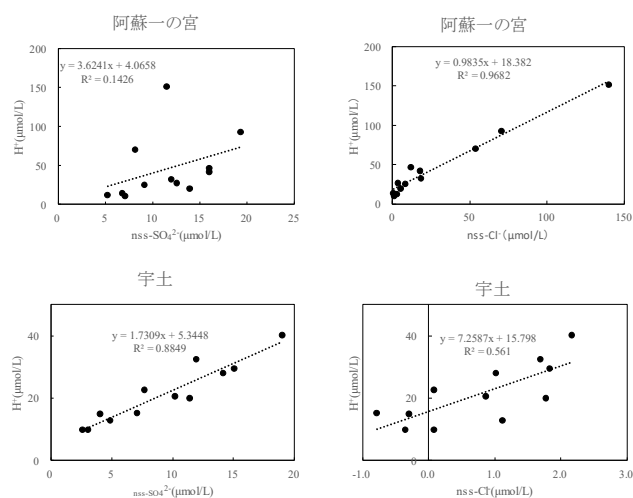


図 3 H^+ に対する $nss-SO_4^{2-}$ 及び $nss-Cl^-$

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 2021 年度と比較して低いレベルであった。また、阿蘇一の宮については阿蘇山の火山活動が活発だった 2019 年度は宇土と比較して SO_4^{2-} , Cl^- , H^+ の沈着量が際立って多かったが、2022 年度はイオン種による差はあるものの 2021 年度と同様のレベルであった。

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 未満の降水試料は観測されず、1 月の 4.02 が最も低かった。また、阿蘇一の宮においては、pH4 未満の降水試料は 3 検体 (2021 年度) から 4 検体 (2022 年度) に増加した。

表 5 に阿蘇山の噴火警報・予報及び噴火警戒レベルの状況を示した⁷⁾。阿蘇山の火山活動は 2022 年 3 月以降、噴火警戒レベルが 2 に引き下げられた後、2023 年 4 月 15 日に噴火警戒レベルが 1 に引き下げられた。以後、1 月 30 日から 3 月 23 日まで噴火警戒レベルが 2 に引き上げられたが、それ以降は噴火警戒レベル 1 で推移した。

これらの阿蘇山の火山活動の状況を踏まえ、阿蘇一の宮では $nss-SO_4^{2-}/SO_4^{2-}$ 比や $nss-Cl^-/Cl^-$ 比が大きいことから火山性ガスの影響によるものと考えられた。特に $nss-Cl^-$ 濃度が高く、低 pH 化に寄与していることが推測された。

まとめ

阿蘇一の宮における年平均 pH は 2019 年度に 4.10

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	
阿蘇一の宮	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	
	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	
	2021	2151.6	4.63	1.30	55.7	17.7	32.8	40.6	17.5	2.3	11.6	5.7	50.0	233.9	
宇土	2022	1945.6	4.52	1.49	41.2	15.3	42.7	30.7	14.8	1.2	7.1	4.1	58.3	215.4	
	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	
2021	2289.5	4.78	0.91	28.9	16.8	38.3	19.3	31.4	1.8	6.9	7.8	38.0	189.2		
2022	1817.5	4.77	1.03	27.8	17.8	28.6	22.0	23.8	1.3	7.5	6.0	30.9	165.6		

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	降水量		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	
	開始日	終了日															mm
阿蘇一の宮	2022/11/28	2022/12/5	27.6	3.98	4.17	7.6	7.1	14.0	91.1	81.9	21.8	7.9	0.5	1.8	1.6	1.0	104.7
	2023/1/10	2023/1/16	44.9	3.77	7.16	5.1	4.8	6.4	172.3	165.0	19.9	6.3	0.5	1.2	1.0	0.9	169.8
	2023/1/16	2023/1/23	11.8	3.78	7.22	24.5	23.2	24.8	148.8	123.4	25.2	21.6	1.1	8.5	8.1	3.5	166.0
	2023/3/13	2023/3/20	25.1	3.89	5.30	26.4	25.8	10.5	77.4	65.9	22.9	9.8	1.0	2.6	2.4	1.6	128.2
宇土	2023/1/4	2023/1/10	1.9	4.02	6.41	47.8	45.7	139.7	48.3	8.6	150.8	33.8	4.2	9.4	8.7	4.9	95.5

表5 阿蘇山の噴火警報・予報及び噴火警戒レベルの状況(2022年発表履歴)⁷⁾

2022年3月14日 11時00分	噴火警戒レベルを2(火口周辺規制)に引き下げ
2022年4月15日 11時00分	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
2023年1月30日 13時30分	噴火警戒レベルを2(火口周辺規制)に引き上げ
2023年3月23日 11時00分	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

と極めて低いpHを示したが、その後の3年間は4.6前後で推移している。また、宇土における年平均pHは4.7前後で推移しており、特異なpHの変化はなかった。

阿蘇一の宮は阿蘇山の火山活動の影響を受けやすいと考えられ、今後も阿蘇一の宮での降水成分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。

謝 辞

本調査の実施にあたり、阿蘇一の宮における降水試料の採取及び搬入に御協力いただきました阿蘇保健所に深謝いたします。

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, 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 (2022 年度).
- 5) 上野一憲, 角田朋生, 澤田 愛: 熊本県保健環境科学研究所報, 51, 68 (2021).
- 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/vois/data/tokyo/STOCK/monthly_v-act_doc/monthly_vact_vol.php?id=503 (2022 年 5 月閲覧).