

島根県の冬季における湿性沈着にみられる

酸性化傾向の解析*

江 角 真 依**・多田納
黒 崎 理 恵**・大 城

力**・荒 木 卓 久**・佐 川 竜 也**
等**・原 宏***

キーワード ①湿性沈着 ②冬季沈着量 ③硝酸イオン ④硫酸イオン ⑤クラスター解析

要 旨

島根県の酸性雨について、地域のおよび季節的な特徴と長期的な変動を把握することを目的として、2000～2006年の湿性沈着モニタリングデータの解析を行った。東アジアおよび県内の地域区分を行い、地域間の違いが大きいと推定された冬季(12月～2月)について、松江市(県東部都市部)と川本町(山間部)の比較、および蟠竜湖、隠岐、辺戸、チェジュのEANET地点間の比較を行った。

酸性成分の月平均沈着量($\text{mmol m}^{-2} \text{ month}^{-1}$)について次の結果が得られた； nss-SO_4^{2-} ：松江3.57，川本3.56，蟠竜湖2.30，隠岐2.13， NO_3^- ：松江4.74，川本5.68，蟠竜湖3.39，隠岐2.55。地点間の沈着量の違いは、 NO_3^- が nss-SO_4^{2-} より顕著であり，川本は松江より，蟠竜湖は隠岐より大きい値を示した。Zhiweiら(2006)は，冬季にはEANET地点の中で中国の重慶に次いで南韓国と蟠竜湖のpHが低いと報告しており，今回の調査においても，蟠竜湖とチェジュの H^+ の平均濃度は，それぞれ $42.1 \mu\text{mol l}^{-1}$ ， $33.0 \mu\text{mol l}^{-1}$ で，隠岐や辺戸に比べ高濃度であることが示された。蟠竜湖では $\text{NO}_3^-/\text{nss-SO}_4^{2-}$ の当量濃度比が他地点より大きく，低pHは NO_3^- の影響であることが分かった。

松江の冬季の沈着量の7年間平均値に対する年変化率(%)は，酸性成分の上昇とアルカリ成分の低下により， nss-SO_4^{2-} 3.4， NO_3^- 5.1， NH_4^+ -5.3， nss-Ca^{2+} -6.1% yr^{-1} ， H^+ 沈着量の年変化率が顕著な上昇傾向となり11.8% yr^{-1} を示した。 NO_3^- 沈着量は，年増加率が大きく地域的な違いもみられたことから，乾性沈着を含めた実態解明が必要であると考えられる。

1. はじめに

島根県は，東アジア地域の大気汚染物質が長距離輸送されてくる地理的な位置にあり，地域環境への影響が懸念されることから，早くから様々な調査をとおしてこの越境汚染問題に取り組んできた。特に，東アジア酸性雨ネットワーク(EANET，

Acid Deposition Monitoring Network in East Asia)

として，蟠竜湖と隠岐の2地点に国設酸性雨測定所が設置され，本県の酸性雨の調査態勢が格段に強化されたことにより，より精密なデータ収集が可能となった意義は大きい。また，大気汚染物質の長距離輸送モデルの開発等，多くの研究者に島

*Analysis of Acidification Trend about Wet Deposition during Winter in Shimane

**Mai EZUMI, Tsutomu TATANO, Takahisa ARAKI, Tatsuya SAGAWA, Rie KUROSAKI, Hitoshi OHSHIRO (島根県保健環境科学研究所) Shimane Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science

***Hiroshi HARA (東京農工大学) Tokyo University of Agriculture and Technology

表 1 wet-only 型降水サンプリャーによる調査地点, 調査期間, 試料採取方法

調査地点名	所属	所在地	緯度	経度	採取装置	調査期間	1 試料の捕集期間
隠岐	EANET	隠岐の島町	36°17'N	133°11'E	C-U420	1989～2009年(*)	daily 捕集
蟠竜湖	EANET	益田市	34°40'N	131°42'E	C-U420	1999～2009年(*)	7 days 捕集
松江	島根県	松江市	35°28'N	133°00'E	US-410	1997～2009年(*)	7 days 捕集
江津	島根県	江津市	35°00'N	132°13'E	US-330	1997～2009年(*)	14days 捕集
川本	島根県	川本町	34°59'N	132°29'E	US-410	1997～2007年	14days 捕集

(*) ; 調査継続中

根県のデータが利用されており, 湿性・乾性沈着の機構解明によって本県においてのみならず東アジアにおける酸性雨実態の把握に繋がることが期待される。

EANET の精度に関わる重要事項として, 原(2005)は「地域代表性のある調査地点」, 「適切な試料採取と試料の取扱い」, 「かたよりのない化学分析値」を挙げ, この観点から「系統的管理」の必要性を示した。島根県の酸性雨に関わる環境モニタリングは, 2009年現在, EANET 観測地点である県西部および県北部離島に加え, 県独自の調査地点である県東部・県央の計 4 地点で行っている。今回, 調査地点の代表性の観点から東アジアおよび県内の地域区分を試み, 調査地点がどのような地域に属するか確認した。また, 降水成分における季節的な比較と地点間の比較により, 島根県における湿性沈着にみられる酸性化の実態を解析したので報告する。

2. 調査方法

2.1 調査地点, 調査期間, 試料の採取方法

降水試料の採取地点, wet-only 型降水サンプリャーによる採取期間等について表 1 に示した。ただし, 環境庁型ろ過式採取器の Bulk 法(1 カ月捕集)による調査期間は, 松江・江津; 1985年～1996年, 川本; 1988年～1996年である。

2.2 分析方法

測定項目は pH, EC, SO_4^{2-} , NO_3^- , Cl^- , NH_4^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} , K^+ , Na^+ の 10 種である。pH はガラス電極法, EC は電気伝導法, 各種イオン成分はイオンクロマトグラフ法により測定した。測定方法の詳細は環境省作成の湿性沈着モニタリング手引き書(第 2 版)に従った。また, 県独自の調査地点である 2 地域における降水量は採取口面積と

採取量から算出した。

2.3 解析対象データ

解析対象期間を 2000～2006 年とし, 酸性雨研究センターより提供を受けた EANET 地点データと県独自の調査地点である松江と川本のデータを使用した。また, daily, 7 days, 14days 捕集データは月間データに集約した。

3. 結果および考察

3.1 東アジアの地域区分

2006 年 EANET 49 地点のうち, 日本国内では島根県の隠岐の地域代表性の観点から, 隠岐の東側で同じ日本海に位置する佐渡関, また西側に位置する東シナ海の辺戸の 3 地点を, 国外ではデータの揃った 22 地点を選び, 月別湿性沈着データによって地域区分を行った。 SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+ , Ca^{2+} , Na^+ , H^+ の 6 成分の各イオンについて, 全陰イオンおよび全陽イオンに占める当量濃度の比率を求め, クラスタ解析を行った。クラスタ化の方法は Ward 法, クラスタ間の距離はユークリッドの平方距離を採用した。クラスタ解析では区分できない調査地点については, 地理的位置を考慮し次の 7 地域に区分した。Group 1 ; 隠岐, 佐渡関, 辺戸, 韓国(カンガ), ロシア(プリモルスカヤ), Group 2 ; 中国(西安 2 地点), Group 3 ; 中国(重慶 2 地点), Group 4 ; 中国(廈門 2 地点, 珠海), フィリピン(ロスバノス), Group 5 ; ベトナム(ハノイ, ホアビン), タイ(バンコク, ナコーンラーチャシマ), カンボジア(プノンペン), Group 6 ; マレーシア(ペタリンジャヤ, タナラタ), インドネシア(ジャカルタ 2 地点), Group 7 ; ロシア(イルクーツク, モンディ), モンゴル(テレルジ)。

これらの地域区分における各地域の特徴は, イ

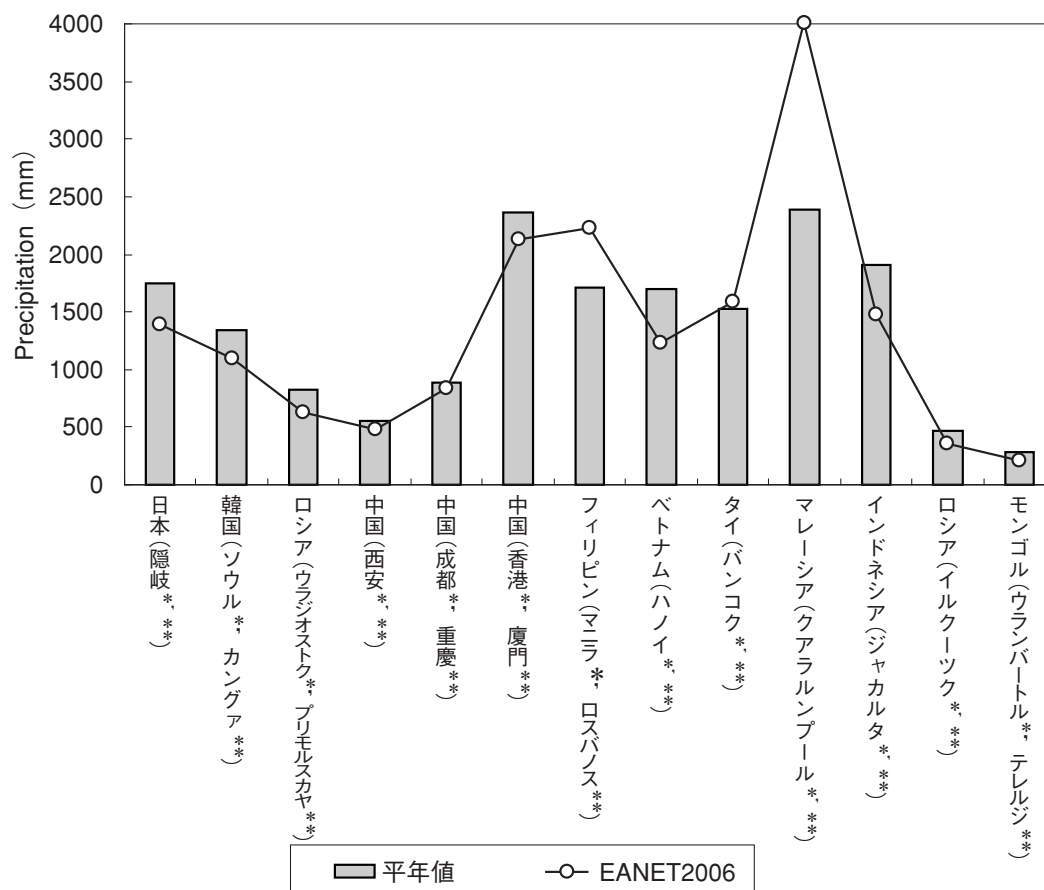


図1 EANET 調査地点付近の都市または各国の主要都市における年間降水量の年平均値(1971-2000年)と、EANET 地点における2006年の降水量の比較

※※：年間降水量の年平均値測定地点，※※：EANET 地点

オン成分間の相関や pH と入力酸性度(pAi, $-\log([nss-SO_4^{2-}] + [NO_3^-])$)との関係から次のように要約できた。Group 1 は海塩成分(Na^+)の影響が大きく、Group 4 にも海塩成分の影響がみられる。Group 2 と Group 3 の特徴は、 SO_4^{2-} 、 NH_4^+ 、 Ca^{2+} の3成分が高濃度であり、 SO_4^{2-} と Ca^{2+} が著しく高濃度の Group 2 は更に Group 3 と区分された。Group 5 は、 NH_4^+ に特徴のある地点と、 SO_4^{2-} と Ca^{2+} に特徴のある地点に分かれる。Group 6 は SO_4^{2-} と NO_3^- によって特徴付けられ、原(2005)はこれらの地点の NO_3^- 沈着量が中国の地点より大きいと報告している。Group 7 は Ca^{2+} の影響が大である。

また、調査地点の2006年の降雨状況を見るために、調査地点で捕集された年間降水量を年平均値(1971~2000年)と比較し図1に示した。ただし、年平均値は調査地点付近の都市または調査地点を持つ国の主要都市のものである。各地点の降水量

は、マレーシア(クアラルンプール)を除けばほぼ年平均値並みであった。ロシア(イルクーツク)、モンゴル、中国(西安)の年間水量は約500mmで、雨量の多い地域の4分の1である。雨量の多い地域は、図2「東アジア地域の気候分類と雨季あるいは四季の月別変化」に示す雨季のある地域に該当している。隠岐は、2006年の降水量が約1400mmで、比較的多い地域に該当する。隠岐、佐渡関および辺戸では、12月~3月の冬季に降水量が増加しており、同時期が雨季に該当するマレーシアとインドネシアを除き、冬季に減少する他地域との違いが特徴づけられる。地理的状況から隠岐と同じグループ(Group 1)とした韓国(カンガア)、ロシア(プリモルスカヤ)では、冬季の降水量が少なかった。

7地域区分によるグループ別の平均 pH 値は、図3に示すように、Group 1 と Group 6 が低く、Group 2 と Group 7 次いで Group 5 が高い値で

地点	気候分類*	3月	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月
日本(隠岐)	温暖湿潤気候	春季			夏季			秋季			冬季		
韓国	温暖冬季少雨気候	春季			夏季			秋季			冬季		
ロシア(ウラジオストック)	冷帯冬季少雨気候	冬季				夏季					冬季		
中国(西安)	ステップ気候	春季			夏季			秋季			冬季		
中国(成都)	温暖冬季少雨気候	春季			夏季			秋季			冬季		
中国(香港)	温暖冬季少雨気候			雨季									
フィリピン	サバナ気候	暑季			雨季						乾季		
ベトナム	温暖冬季少雨気候	乾季		雨季					乾季				
タイ	サバナ気候	暑季			雨季					乾季			
マレーシア	熱帯雨林気候	雨季		乾季					雨季				
インドネシア	熱帯モンスーン気候	雨季		乾季						雨季			
ロシア(イルクーツク)	冷帯冬季少雨気候	冬季	春季		夏季			秋季		冬季			
モンゴル	冷帯冬季少雨気候	冬季		春季		夏季		秋季		冬季			

図2 東アジア地域の気候分類と雨季または四季の月別変化

※ *ケッペンの気候分類による

雨季または四季の月別変化は、筆者らがさまざまな情報を総合して得たものであり、実際とは異なる場合がある。

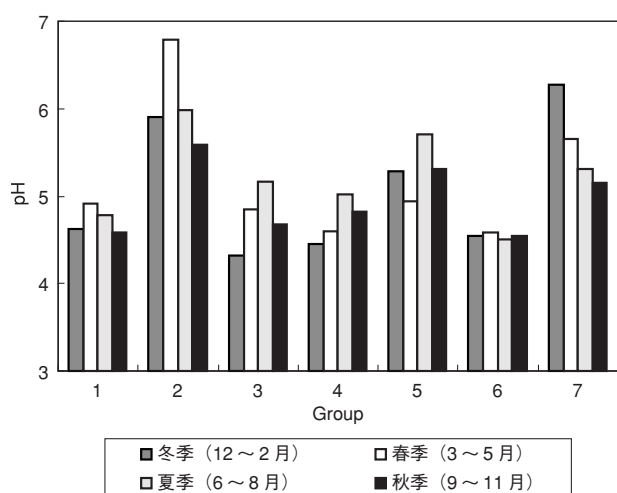


図3 地域区分された7つのグループにおける季節別平均pH(2006年, 幾何平均)

あった。なお、pHの地域平均値は幾何平均値である。日本の3地点の季節別平均値は、冬季4.58, 春季4.84, 夏季4.86, 秋季4.70で、冬季のpH値が低かった。即ち、冬季に降水量が多くpHの低い「冬季の酸性雨」が、島根県の湿性沈着の実態解明をするキーワードとなると考えられる。

3.2 島根県の地域区分

湿性沈着における調査地点の地域代表性について、瀬戸ら(2000)は、酸性雨局に対するアメダス観測所の年降水量比が±20%以内であれば、酸性雨局は年降水量に関して地域代表性があるとして

いる。島根県は北東～南西方向に約200kmと細長く、県東部と県西部の気象状況に違いがあるため、湿性沈着の調査地点の地域的な特徴をみるためには季節別の降雨分布を把握することが必要である。それを踏まえて解析対象の季節を選択することが、地点間比較による効果的な解析に繋がるものと考えられた。

そこで、県内アメダス観測所27地点(2006年)の各月の上旬, 中旬, 下旬の雨量データに基づき、第1期(2001～2003年)および第2期(2004～2006年)についてクラスター解析を行った。冬季(12月～2月)と雨季(6月～7月)の降雨には、春季や秋季に比べ明確な地域差がみられた。なお、8月は降雨の少ない地点が多いため、雨季には含めなかった。第1期, 第2期のクラスター解析結果をもとにアメダス観測所が属する行政区域により5区域に分け、図4((a)冬季, (b)雨季)に示した。冬季は県東部と県西部のそれぞれ日本海側, 中国山地側の山間部, 隠岐の4地域となり、雨季は県東部, 県央, 県西部, 隠岐の4地域となることが分かった。また、これより隠岐の降雨状況は県西部より県東部に近いことが推測された。

3.3 県東部および県央山間部における酸性雨の実態

冬季においては県東部と県央山間部とが地域区分され、雨季には県東部と県央が地域区分された

表 2 県東部と県央山間部の湿性沈着イオン成分の関係(2000-2006年)

イオン成分	冬季					雨季				
	降水量加重平均濃度 ($\mu\text{mol L}^{-1}$)		一次回帰式 (n=18)			降水量加重平均濃度 ($\mu\text{mol L}^{-1}$)		一次回帰式 (n=12)		
	松江	川本	a	b	R ²	松江	川本	a	b	R ²
nss-SO ₄ ²⁻	26.4	28.6	1.332	-5.901	0.723	12.1	12.8	1.232	-1.150	0.714
NO ₃ ⁻	35.0	45.6	1.331	-0.012	0.724	12.5	12.2	0.902	1.619	0.637
NH ₄ ⁺	25.6	32.7	1.705	-10.588	0.836	15.9	17.1	1.442	-4.775	0.777
nss-Ca ²⁺	10.0	11.0	1.066	-0.008	0.725	1.8	1.5	0.736	0.750	0.160
H ⁺	37.4	39.0	1.053	1.752	0.580	16.2	16.9	0.768	5.616	0.686
降水量(mm)	157.9	145.2	0.664	40.379	0.382	191.9	188.7	0.836	28.281	0.732

〔備考〕 冬季：12月，1月，2月（※2002年1・2月と，2006年12月は川本地点欠測のため松江も欠測扱いとして算出。）

雨季：6月，7月（※2006年は川本地点欠測のため松江も欠測扱いとして算出。）

一次回帰式において， $y=ax+b$

y =川本地点の濃度($\mu\text{mol L}^{-1}$)

x =松江地点の濃度($\mu\text{mol L}^{-1}$)

ことから，県東部地域に属する松江と県央山間部に属する川本との間では，降雨に関わる湿性沈着への影響が異なるものと推測された。そこで，冬季の降水中のイオン成分濃度(2000年～2006年)について，雨季を季節的な比較対照として，2地点の地域間比較を行った。なお，川本の2002年1月～2月はデータ欠測のため，同時期の松江についても解析対象から除外した。

nss-SO₄²⁻とNO₃⁻の月別降水量加重平均濃度について，松江と川本との関係を図5((a)冬季，(b)雨季)に示した。冬季には川本が松江より高濃度であり，特にこの傾向はNO₃⁻で顕著であった。しかし，雨季の場合には両地点はほぼ同様の分布を示した。これらの酸性成分とアルカリ成分の降水量加重平均濃度および月平均降水量を表2に示した。冬季の月平均降水量は川本の方が松江に対して約8%少なく，雨季の場合は地域区分の結果(図4(b))と異なり2地点では同程度となった。一方，冬季においてnss-SO₄²⁻濃度は約8%，NO₃⁻濃度は約30%松江に比べ川本のほうが高かった。即ち，冬季の月平均沈着量は，nss-SO₄²⁻では両地点で同程度であり，NO₃⁻とNH₄⁺の月平均沈着量は川本の方が顕著に多かった(nss-SO₄²⁻；松江3.57，川本3.56，NO₃⁻；松江4.74，川本5.68，NH₄⁺；松江3.46，川本4.06mmol m⁻² month⁻¹)。一方，雨季のイオン成分の沈着量は，松江と川本では同程度となった(nss-SO₄²⁻；松江

1.98，川本2.07，NO₃⁻；松江2.06，川本1.97，NH₄⁺；松江2.62，川本2.76mmol m⁻² month⁻¹)。冬季に中国山地山間部では，NO₃⁻とNH₄⁺の沈着量が顕著に多く，その増加分の由来について調査をする必要がある。化学形態としては硝酸アンモニウムが考えられる。

イオン成分の沈着量の経年変化については，データの欠測がなく現在(2009年)も調査を継続中の松江地点のデータを用いて解析した。沈着量の推移を図6((a)H⁺，(b)nss-SO₄²⁻，(c)NO₃⁻，(d)NH₄⁺，(e)nss-Ca²⁺)に示した。2000～2006年の冬季および雨季の7年間平均値に対する年変化率(%)をみると，冬季には酸性成分が上昇し，アルカリ成分は低下する傾向があった(nss-SO₄²⁻ -3.4，NO₃⁻ -5.1，NH₄⁺ -5.3，nss-Ca²⁺ -6.1%yr⁻¹)。雨季には，NH₄⁺が上昇し冬季との違いがみられた(nss-SO₄²⁻ 14.7，NO₃⁻ 9.2，NH₄⁺ 13.8，nss-Ca²⁺ -2.9%yr⁻¹)。冬季の酸性成分の上昇率は雨季の上昇率に比べ小さかったが，アルカリ成分の低下傾向により冬季のH⁺沈着量は雨季と同様に顕著な上昇傾向を示した(冬季11.8，雨季14.5%yr⁻¹)。なお，2004年の雨季は降水量が少なく，すべての成分について沈着量が減少した。

松江における2000年以前の冬季沈着量の経年変動について，宮廻ら(2002)の報告でBulk法により測定された1985～1996年の期間において，nss-SO₄²⁻は小さな上昇傾向を，NO₃⁻とNH₄⁺が顕著

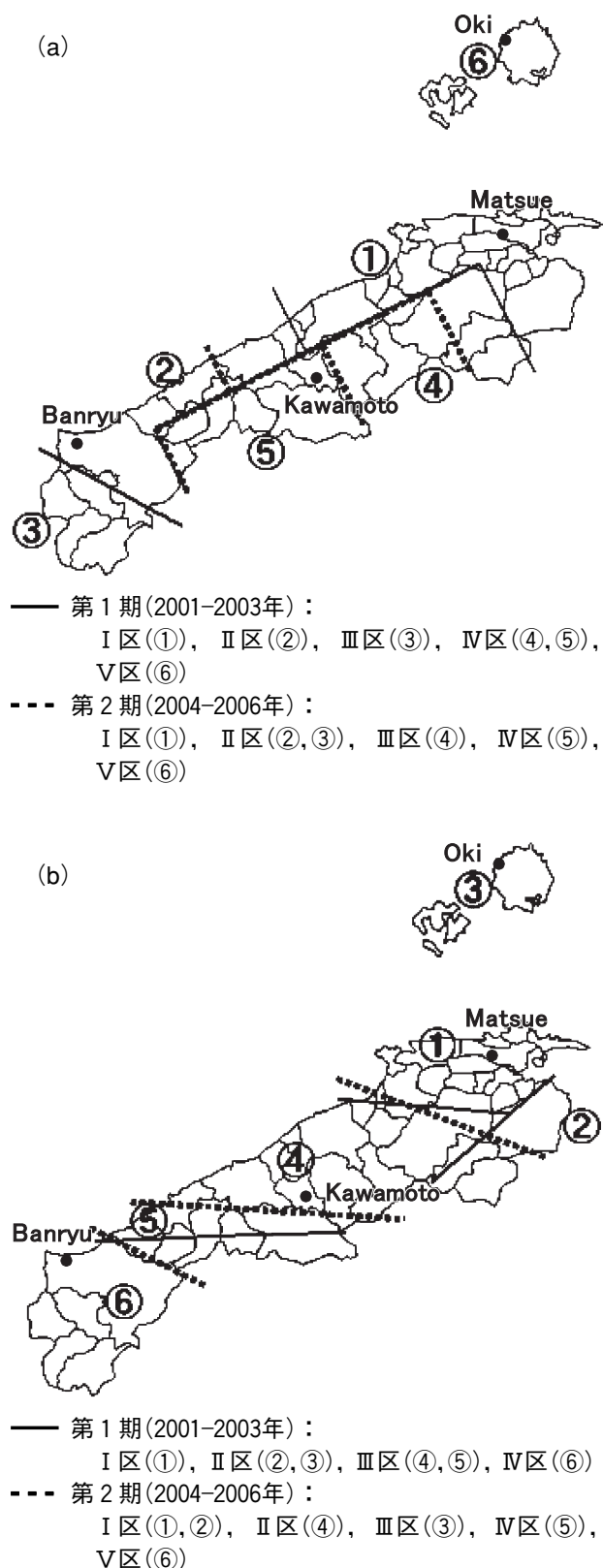


図4 (a)冬季, (b)雨季の県内アメダス観測所雨量データに基づくクラスター解析結果より描いた降雨地域区分

※冬季: 12月, 1月, 2月 雨季: 6月, 7月

実線は第1期(2001-2003年),

点線は第2期(2004-2006年)の境界線

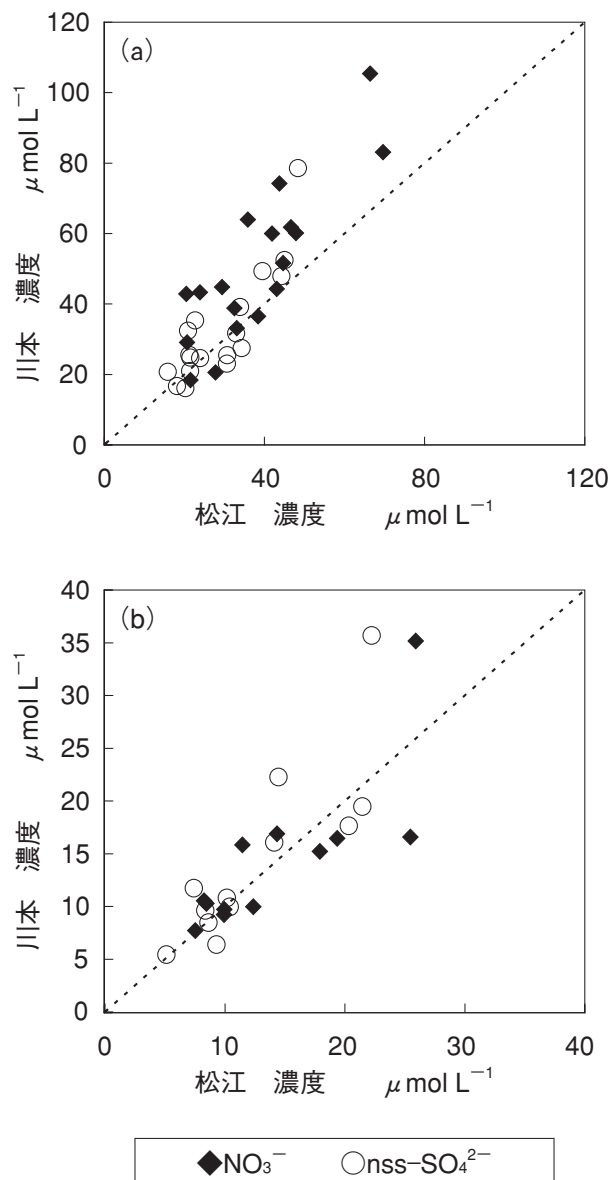


図5 (a)冬季, (b)雨季における松江および川本の降水中イオン成分濃度の関係(2000~2006年, 月別降水量加重平均濃度)

※冬季: 12月, 1月, 2月

(2002年1・2月と, 2006年12月は川本地点欠測のため松江も欠測扱いとした。)

雨季: 6月, 7月

(2006年は川本地点欠測のため松江も欠測扱いとした。)

な上昇傾向を示し, nss-Ca^{2+} が横這いであったこと, また wet-only 法により測定された1997~2001年の期間ではいずれの成分も横這いであったことが示されている。したがって, 松江の酸性成分の沈着量調査結果を総合すると, 1985~2006年の冬季の長期的変動は, NO_3^- および nss-SO_4^{2-} について上昇傾向にあるとみなすことができる。しか

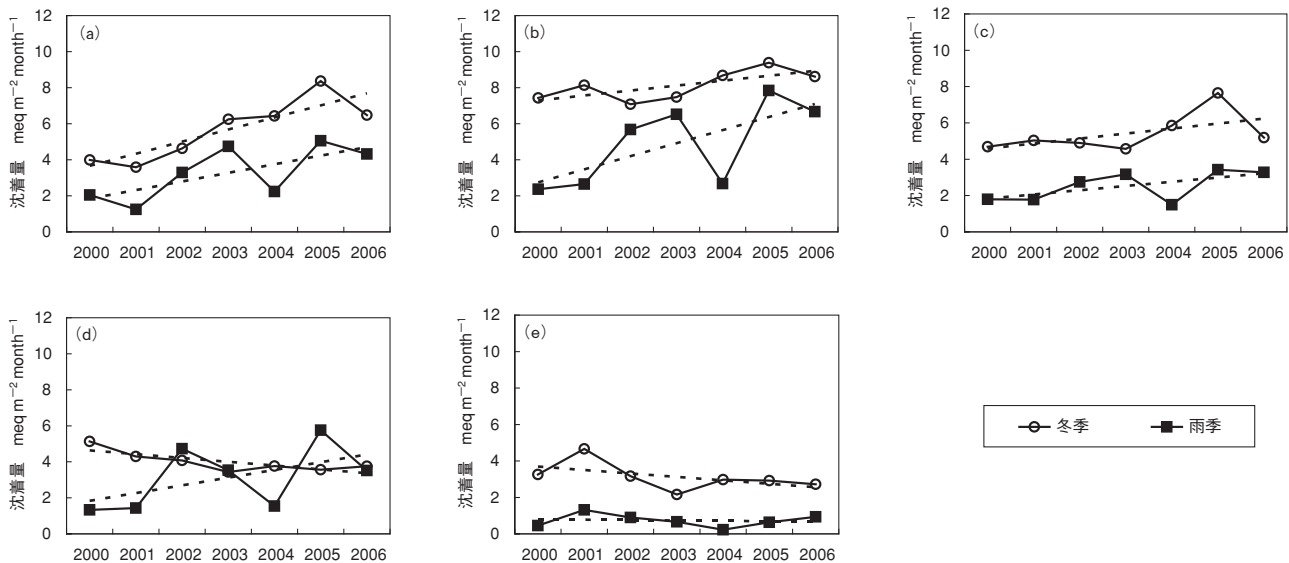


図6 松江における(a)H⁺, (b)nss-SO₄²⁻, (c)NO₃⁻, (d)NH₄⁺, (e)nss-Ca²⁺月平均沈着量の経年変化(2000-2006年)

※冬季：12月，1月，2月 雨季：6月，7月

表3 EANET 地点の湿性沈着イオン成分濃度および降水量，NO₃⁻/nss-SO₄²⁻比(2000-2006年)

イオン成分	冬季				雨季			
	降水量加重平均濃度(μmol L ⁻¹)				降水量加重平均濃度(μmol L ⁻¹)			
	蟠竜湖	隠岐	辺戸	チェジュ	蟠竜湖	隠岐	辺戸	チェジュ
nss-SO ₄ ²⁻	25.3	21.2	14.1	40.7	10.3	7.9	5.6	16.0
NO ₃ ⁻	37.3	25.3	12.5	41.8	11.1	9.3	4.7	18.7
NH ₄ ⁺	26.7	18.7	11.3	47.9	11.9	8.9	7.1	31.7
nss-Ca ²⁺	7.7	7.7	6.1	16.6	1.2	1.3	0.9	4.2
H ⁺	42.1	29.6	17.7	33.0	15.9	12.7	8.2	20.2
降水量(mm)	90.9	100.6	102.5	33.1	208.7	152.9	257.6	157.9
NO ₃ ⁻ /nss-SO ₄ ²⁻	0.74	0.60	0.44	0.51	0.54	0.59	0.42	0.58

〔備考〕 冬季：12月，1月，2月(蟠竜湖2000年とチェジュ2001年は欠測として算出。)

雨季：6月，7月

NO₃⁻/nss-SO₄²⁻比は当量濃度により算出

し、年間沈着量の経年変動については、Seto ら(2002)は、松江の1989～1998年の年変化率は、nss-SO₄²⁻ -4.70, NO₃⁻ 2.82, NH₄⁺ ± 0, nss-Ca²⁺ ± 0 %yr⁻¹で、nss-SO₄²⁻が減少傾向であったと報告している。片山ら(2008)も、西日本の日本海側における nss-SO₄²⁻の挙動に関して、1997年～1999年の減少傾向から2001年～2003年には上昇に転じたことをモデル解析によって示し、沈着量が減少したときの要因を日本海上での湿性沈着であるとしている。

3.4 県西部および県北部離島の酸性雨の実態

雨量によって地域差が示された県西部(蟠竜湖)および県北部離島(隠岐)の冬季の酸性雨の実態を

把握するために、2000～2006年の EANET 調査地点の蟠竜湖と隠岐の湿性沈着データを解析した。比較対照季節は3.3と同様に雨季とし、また、比較対照地点に辺戸(沖縄26°47'N, 128°14'E)とチェジュ(韓国33°18'N, 126°10'E)の地域汚染の影響が小さいと推定される離島を選んだ。それぞれの地点におけるイオン成分の降水量加重平均濃度および月平均降水量について表3に示した。またこれらの地点について、pH と pAi(-log([nss-SO₄²⁻] + [NO₃⁻]))との関係を図7((a)冬季, (b)雨季)に示した。月平均降水量を隠岐と比較すると、蟠竜湖は冬季に少なく、雨季に多い。対照地域の特徴は、チェジュで冬季に少なく、辺

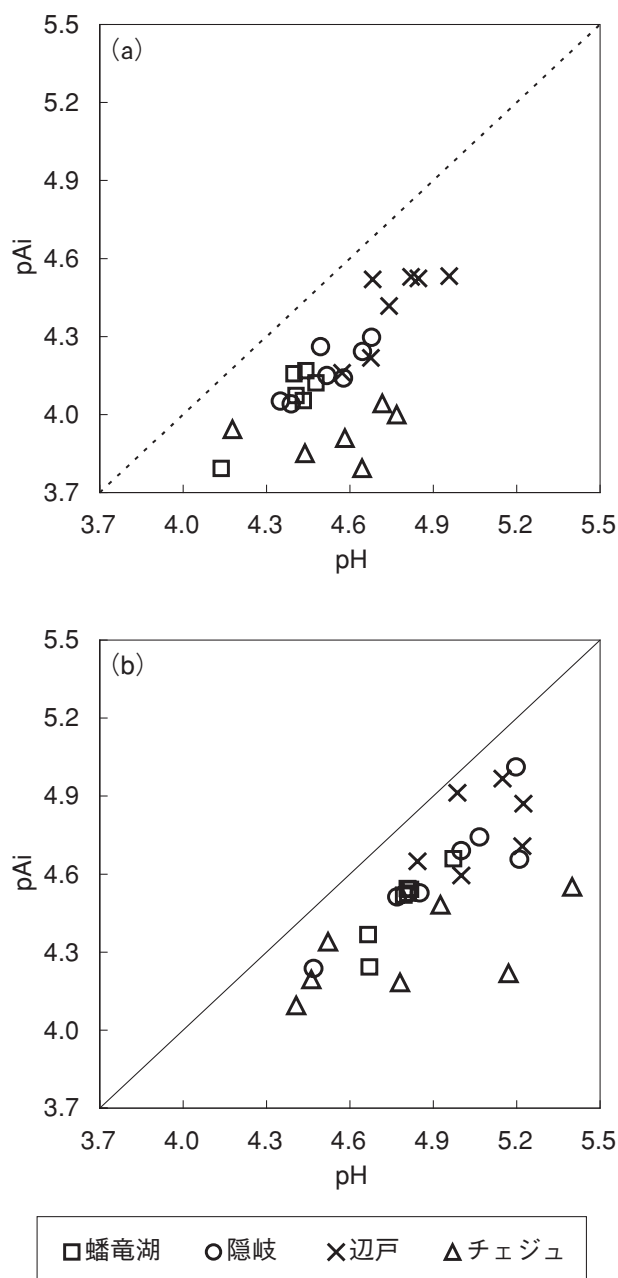


図7 (a)冬季, (b)雨季における地点別 pH, pAi の関係
(2000-2006年, 年別降水量加重平均濃度より算出)

※冬季: 12月, 1月, 2月

(蟠竜湖2000年, チェジュ2001年は欠測。)

雨季: 6月, 7月

(辺戸2002年は海塩粒子の影響を強く受けていたため欠測とした。)

$$pAi = -\log([nss-SO_4^{2-}] + [NO_3^-])$$

戸で雨季に多い。H⁺の月平均濃度は、隠岐に比較して蟠竜湖とチェジュは冬季、雨季ともに高濃度であり、辺戸は逆に冬季、雨季ともに低濃度であった。いずれの地点においても、冬季は雨季に比べ酸性成分濃度が高く低 pAi 値を示し、また、

低 pH 値を示す。nss-SO₄²⁻と NO₃⁻による酸性化の影響の比較のために NO₃⁻と nss-SO₄²⁻の当量濃度比(NO₃⁻/nss-SO₄²⁻)をみると、隠岐では冬季0.60と雨季0.59とほぼ同じ値であったが、蟠竜湖では冬季0.74, 雨季0.54と冬季に非常に高い値となっており、蟠竜湖地点の冬季の低 pH には NO₃⁻の影響が大きいことが分かる。雨季には、隠岐が他の地点に比べ酸性成分濃度が最も小さく、高い pH 値を示した。チェジュの pAi 値は冬季も雨季も最も低い値を示しているが、pH 値は、高濃度の NH₄⁺や nss-Ca²⁺の中和により広く分布している。Zhiwei ら(2006)は、湿性沈着の地域モデルにより2001年12月において EANET 18地点の中で、中国の重慶(Jinyunshan)に次いで韓国のカングアとチェジュおよび蟠竜湖の3地点の pH 値が低かったとしている。また韓国にみられるような高濃度のアルカリ成分について、その由来と島根県への影響について今後検討する必要があると思われる。

蟠竜湖と隠岐の冬季の月平均沈着量を比較すると、nss-SO₄²⁻では蟠竜湖と隠岐の差が小さく、NO₃⁻と NH₄⁺の月平均沈着量は蟠竜湖の方が顕著に多かった(nss-SO₄²⁻: 蟠竜湖2.30, 隠岐2.13, NO₃⁻: 蟠竜湖3.39, 隠岐2.55, NH₄⁺: 蟠竜湖2.43, 隠岐1.88mmol m⁻² month⁻¹)。この蟠竜湖と隠岐の関係は、松江と川本との関係に似ている。酸性成分の月平均沈着量は、蟠竜湖と隠岐では冬季が雨季より大きかったが、辺戸では冬季と雨季がほぼ同じで、チェジュは逆に雨季の方が多かった。

以上のように、冬季の湿性沈着に及ぼす酸性成分として NO₃⁻の影響が大きかったことから、NO₃⁻に関わるガス・エアロゾルの乾性沈着の影響も検討する必要がある。Kajino(2007)らは、Na⁺や Mg²⁺の硝酸エアロゾルの NO₃⁻から SO₄²⁻への交換によって生成するガス状 HNO₃の沈着量の増加について検討している。しかし、このガス化による変質については、海塩粒子の豊富な冬季の日本海側では影響が小さいとされる。2000~2006年の冬季の総 SO₄²⁻に占める海塩由来の ss-SO₄²⁻の比率(ss-SO₄²⁻/総 SO₄²⁻比)は、松江0.39, 川本0.36, 蟠竜湖0.35, 隠岐0.72, 辺戸0.65, チェジュ0.21で、この反応の起こる条件の海塩粒子比

率0.15未満を超えていた。したがって、 NO_3^- に関する乾性沈着については、気象条件の違いが重要と考えられた。

4. まとめと今後の展望

酸性雨が環境に及ぼす影響の実態を解析するためには、解析の対象となる調査地点と季節の選定が重要と考え、調査地点の地域代表性の観点から地域区分について検討した。島根県に設置されたEANETの2地点は、東アジア地域の降水成分と地理的位置に関する地域区分において、冬季に降水量が多くpHの低い地域であった。また、県内のアメダス雨量データによる地域区分では冬季が4地域に分かれ、EANET地点を含む県の酸性雨調査地点はそれぞれの地域に属して配置されていた。そこで、EANETデータのある2000～2006年の期間で、地域間の違いが大きいと推定された冬季(12月～2月)の湿性沈着の実態を、地域間比較によって解析した。その比較対照とする時期に雨季(6月～7月)を選んだ。

松江と川本の冬季の月平均沈着量は次のとおりであった； nss-SO_4^{2-} ：松江3.57，川本3.56， NO_3^- ：松江4.74，川本5.68， NH_4^+ ：松江3.46，川本4.06 $\text{mmol m}^{-2} \text{ month}^{-1}$ 。中国山地山間部の川本は松江に比べ NO_3^- と NH_4^+ の沈着量が顕著に多く、それらの増加分については起源を同じくし、形態としては硝酸アンモニウムと推定される。

EANET地点の冬季の月平均沈着量については、蟠竜湖は隠岐に比べ NO_3^- と NH_4^+ が顕著に多い結果となった； nss-SO_4^{2-} ：蟠竜湖2.30，隠岐2.13， NO_3^- ：蟠竜湖3.39，隠岐2.55， NH_4^+ ：蟠竜湖2.43，隠岐1.88 $\text{mmol m}^{-2} \text{ month}^{-1}$ 。このように、冬季における NO_3^- と NH_4^+ の湿性沈着量に地域間の違いがみられたことは、今後 NO_3^- の乾性沈着量についての、化合物形態に関わる挙動調査の必要性を示唆している。

松江における降水成分の沈着量の経年変動について、2000～2006年の冬季の7年間平均値に対する年変化率(%)は、酸性成分の上昇とアルカリ成分の低下により、 H^+ の顕著な上昇傾向を示した(nss-SO_4^{2-} 3.4, NO_3^- 5.1, NH_4^+ -5.3, nss-Ca^{2+} -6.1, H^+ 11.8% yr^{-1})。さらに、宮廻ら(2002)のBulk法による1985～1996年の冬季の経年変動結果を総合すると、1985～2006年の冬季の長期的変動に関して NO_3^- および nss-SO_4^{2-} は上昇傾向にあると言える。一方、Setoら(2002)により、松江の1989～1998年における nss-SO_4^{2-} 年間沈着量が減少傾向を示していることが報告されている。よって、酸性雨の長期変動とその影響に関する評価は、時間スケールの設定により異なる結果となることが考えられ、酸性雨原因物質の長距離輸送の影響をみるために、季節的な解析のほかdaily試料による解析を行う考えである。

—引用文献—

- ・原 宏 (2005) 東アジア酸性雨モニタリングネットワーク, 大気環境学会誌, 40, A1-A15
- ・宮廻隆洋, 佐川竜也, 藤原誠, 多田納力 (2002) 島根県における酸性雨の長期変動, 全国環境研会誌, 27, 255-261
- ・瀬戸信也, 飯豊修司, 大石興弘, 大泉毅, 田畑亨, 野口泉, 原宏 (2000) 酸性雨局とアメダス局との降水量の比較, 大気環境学会誌, 35, 273-286
- ・Seto, S., Nakamura, A., Noguchi, I., Ohizumi, T., Fukuzaki, N., Toyama, S., Maeda, M., Hayashi, K., Hara, H., (2002) Annual and seasonal trends in chemical composition of precipitation in Japan during 1989-1998. *Atmospheric Environment*, 36, 3505-3517.
- ・片山学, 大原利真, 鶴野伊津志, 原宏 (2008) 日本の沈着量における経年変動のモデル解析, 大気環境学会誌, 43, 136-146
- ・Han, Z., Ueda, H., Sakurai, T., (2006) Model study on acidifying wet deposition in East Asia during wintertime. *Atmospheric Environment*, 40, 2360-2373.
- ・Kajino, M., Ueda, H., Nakayama, S., Ishikawa, H., 2007, Observational indications of indirect acidification in Asia: Enhanced deposition of nitric acid gas expelled from the aerosol phase by sulfate, *Annals of Disas. Prev. Res. Inst., Kyoto Univ.*, No. 50C, 165-176.