

山口市における乾性降下物調査

大気部

嘉村久美子・中川史代・梅本雅之・杉山邦義・光井常人

はじめに

自然界の酸性化には降雨（湿性降下物）のみではなくガスやエアロゾルといった乾性降下物の影響もあるとされている¹⁾。この調査では乾性降下物量を測定し、合わせて測定地点の気象パラメータから HNO₃ ガスと SO₂ ガスの乾性沈着量を推定した。

調査方法

1 試料採取方法及び調査期間

環境保健研究センター大歳庁舎にて 2003 年 3 月 31 日から 2004 年 3 月 29 日に調査を行った。採取方法は全国環境研協議会酸性雨調査研究部会第 4 次酸性雨全国調査実施要領²⁾に従った。4 種類のろ紙を装着した NILU 社製の FP を使用し 1L/min の吸引速度で、1 週間連続採取を通年で行った。使用したろ紙は大気流入側から F0, F1, F2, F3 とした。F0 ろ紙によってエアロゾル成分である SO₄²⁻, NO₃⁻, Cl⁻, Na⁺, NH₄⁺, K⁺, Ca²⁺, Mg²⁺, F1 ろ紙で SO₂ ガス, HNO₃ ガス, HCl ガスと NH₃ ガス, F2 ろ紙で SO₂ ガスと HCl ガス, F3 ろ紙で NH₃ ガスを採取した。

2 試料の保存及び処理方法

試料採取後のろ紙は、1 枚ずつポリプロピレン試験管に入れて分析まで冷蔵保存した。

分析直前に F0 ろ紙, F1 ろ紙および F3 ろ紙は超純水, F2 ろ紙は 0.03% 過酸化水素水を各 20mL 添加し、振とう器で 30 分抽出した。この抽出液を ADVANTEC 社製 DISMIC-25_{HP} と ADVANTEC 社製 DISMIC-13_{HP} でろ過した。

3 装置と分析法

分析装置は DIONEX 社製イオンクロマトグラフ DX320 を使用した。陰イオン分析時、ガードカラムは DIONEX 社製 AG-14, 分離カラムは DIONEX 社製 AS-14, サプレッサーは DIONEX 社製 ASRS-ULTRA を使用した。また溶離液は 3.5mMNa₂CO₃・1.0mMNaHCO₃ 溶液で、流速は 1.2mL/min とした。カラム温度は 35℃, 注入量は 25μL, サプレッサー電流は 50mA とした。陽イオン分析時、ガードカラムは DIONEX 社製 CG-12A, 分離カラムは DIONEX 社製 CS-12A, サプレッサーは DIONEX 社製 CSRS-ULTRA を使用した。また溶離液は 20mM メタンサルホン酸溶液で、流速は

1.0mL/min とした。カラム温度は 35℃, 注入量は 25μL, サプレッサー電流は 100mA とした。

4 乾性降下物の沈着速度算出法

沈着速度は、気象条件、観測条件等により影響を受けるため沈着速度抵抗モデル³⁾を基に作成された乾性沈着量推計ファイル ver1.2⁴⁾を利用して算出した。使用した時間毎気象データは、風速、気温、湿度及び雲量については気象庁データを、日射量についてはテレメータデータを使用した。

5 乾性沈着量算出法

次式のインファレンシャル法⁵⁾を使用して乾性沈着量を推計した。

$$Fd = Cd \times Vd \times Td \times 10^{-8}$$

Fd : 乾性沈着量 (mmol/m²)

Cd : 乾性降下物濃度 (nmol/m³)

Vd : 沈着速度 (cm/s)

Td : サンプリング時間 (s)

結果と考察

1 乾性降下物量について

自然界の酸性化に寄与するエアロゾル 3 成分について採取流量で加重平均を行い、月毎のエアロゾル濃度を算出した(図 1)。nss (非海塩由来成分)-SO₄²⁻ エアロゾルは 9 月に最高値を示し、年平均値は 103.9 neq/m³であった。NO₃⁻ エアロゾルは 4 月に最高値を示し、年平均値は 22.7 neq/m³であった。Cl⁻ エアロゾルは 2 月に最高値を示し、年平均値は 10.8 neq/m³であった。酸性化エアロゾルのうち nss (非海塩由来成分)-SO₄²⁻ エアロゾルの占める割合が最も大きく 74%であった。

自然界の中和化に寄与するエアロゾル 5 成分について採取流量で加重平均を行い、月毎のエアロゾル濃度を算出した(図 2)。NH₄⁺ エアロゾルは 6 月に最高値を示し、年平均値は 96.3 neq/m³であった。Na⁺ エアロゾルは 2 月に最高値を示し、年平均値は 26.3 neq/m³であった。K⁺ エアロゾルは 10 月に最高値を示し、年平均値は 4.4 neq/m³であった。nss-Ca²⁺ エアロゾルは 2 月に最高値を示し、年平均値は 10.0 neq/m³であった。Mg²⁺ エアロゾルは 4 月に

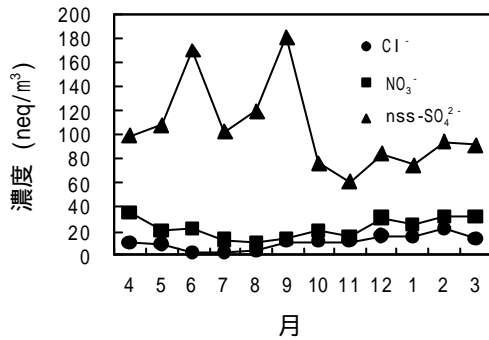


図1 酸性化エアロゾル濃度の月別変動

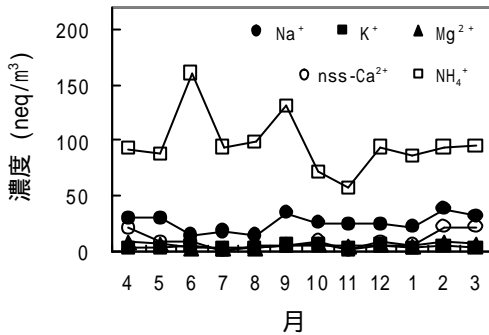


図2 中和化エアロゾル濃度の月別変動

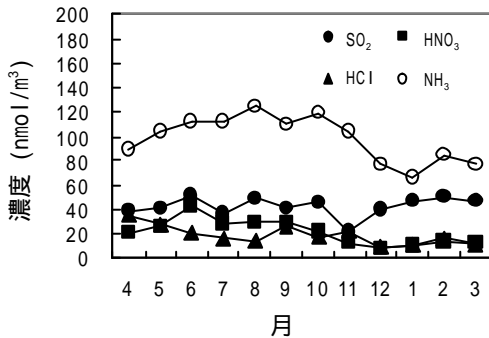


図3 ガス濃度の月別変動

最高値を示し、年平均値は 6.2 neq/m^3 であった。中和化エアロゾルのうち NH_4^+ エアロゾルの占める割合が最も大きく67%であった。

ガス成分について採取流量で加重平均を行い、月毎のガス濃度を算出した(図3)。自然界の酸性化に寄与する SO_2 ガスは6月に最高濃度を示し、年平均値は 42.3 nmol/m^3 であった。 HNO_3 ガスは6月に最高濃度を示し、年平均値は 21.1 nmol/m^3 であった。 HCl ガスは4月に最高濃度を示し、年平均値は 18.6 nmol/m^3 であった。酸性化ガスのうち SO_2 ガスの占める割合が大きく52%であった。自然界の中和化に寄与する NH_3 ガスは8月に最高濃度を示し、年平均値は 98.1 nmol/m^3 であった。

2 乾性降水物沈着速度について

沈着面として市街地、森林地域、草地及び農地につい

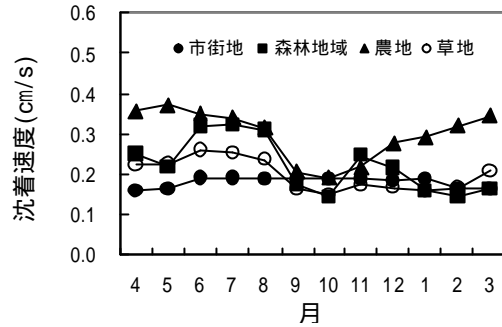


図4 SO_2 ガス沈着速度の月別変動

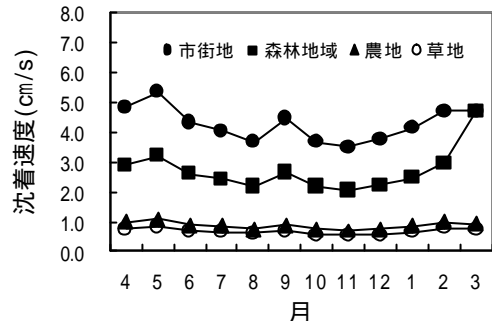


図5 HNO_3 ガス沈着速度の月別変動

て沈着速度を算出した。 SO_2 ガスの沈着速度は市街地 $0.16 \sim 0.19 \text{ cm/s}$ 、森林地域 $0.14 \sim 0.32 \text{ cm/s}$ 、農地 $0.19 \sim 0.37 \text{ cm/s}$ 、草地 $0.16 \sim 0.26 \text{ cm/s}$ であった(図4)。沈着速度は沈着過程の抵抗の逆数の影響を受け、特に SO_2 ガスは沈着表面抵抗の影響を受けやすい³⁾。そのため市街地に比べ森林地域、農地および草地の沈着速度の季節変動が大きく、草木が繁茂する夏季には増加し冬季には減少したと考えられる。 HNO_3 ガスの沈着速度は市街地 $3.48 \sim 5.34 \text{ cm/s}$ 、森林地域 $2.07 \sim 4.68 \text{ cm/s}$ 、農地 $0.74 \sim 1.07 \text{ cm/s}$ 、草地 $0.54 \sim 0.85 \text{ cm/s}$ であった(図5)。 HNO_3 ガスは SO_2 ガスに比べ反応性が強く水への溶解度が高い性質があるため、 SO_2 ガスと比較して沈着速度が大きくなったと考えられる。

3 乾性沈着量について

算出した沈着速度を用いて乾性沈着量を推計した(図6)。乾性降水物採取地点の地形形状から、市街地沈着速度を利用した。 HNO_3 ガスの沈着量は春季高濃度、秋季低濃度という変動を示し、年間沈着量は 28.1 mmol/m^2 であった。 SO_2 ガスの沈着量は HNO_3 ガスほど季節による明確な変動が認められなかった。その年間沈着量は 2.4 mmol/m^2 であった。 HNO_3 ガスの年間沈着量は SO_2 ガス年間沈着量の約12倍であった。このような傾向は第4次酸性雨全国調査(平成15年度)²⁾でも確認されている。また山口市における湿性降水物調査から算出した nss (非海塩由来成分) $-\text{SO}_4^{2-}$ と NO_3^- の酸性化寄与比

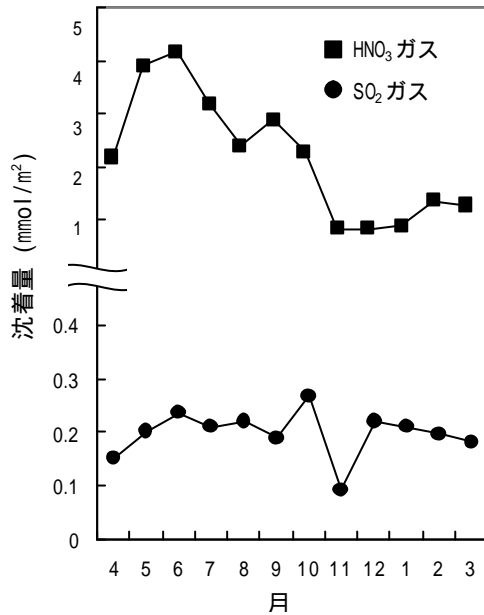


図6 ガス沈着量の月別変動

(NO₃⁻/nss-SO₄²⁻)においても、1986年0.28から2003年0.43と硝酸の寄与の増加が認められた⁶⁾。

まとめ

4段式FPを用いて山口市における乾性降下物量調査を行った。その結果エアロゾルとガスについて降下物量

の月別変動を把握することができた。酸性化原因物質であるSO₂ガスとHNO₃ガスの降下物量はSO₂ガスのほうが多いことが判明した。

また沈着量推計ファイルver1.2を用いて調査地点に即したSO₂ガスとHNO₃ガスの沈着速度を推計し、沈着量を算出した。算出結果からHNO₃ガス年間沈着量はSO₂ガス年間沈着量の約12倍で、SO₂ガスよりHNO₃ガスの沈着量が多いことが判明した。この傾向は第4次酸性雨全国調査(平成15年度)と類似していた。今後の酸性降下物評価の際には湿性、乾性両降下物中の硝酸量に注目し観測することが重要と考えられる。

参考文献

- 1) 藤田慎一：環境科学会誌，9(2)，185-189 (1996)
- 2) 全国環境研協議会：全国環境研会誌，30，2-79 (2005)
- 3) 松田和秀：Bulletin of JESC，29，41-45 (2002)
- 4) 乾性沈着推計ファイル
<http://www.hokkaido-ies.go.jp/>
- 5) Sienfeld J.H. and Pandis S.N. : Atmospheric Chemistry and Physics, A Wiley Interscience Publication, 958-996
- 6) 第26回水環境フォーラム山口講演概要集，34-35 (2005)