

# 高知県における酸性雨調査（第16報） 本県の大気中の粒子状物質，ガス状物質濃度の特徴について （2006年度から2015年度）

尾崎吉純・池田里美・西 孝仁・武市佳子・坂本武大\*・富田健介\*\*・山下 浩\*\*\*

## Acid deposition study of Kochi Prefecture (16th) The trend of dry deposition in Kochi prefecture (from 2006 to 2015)

Yoshizumi Ozaki, Satomi Ikeda, Takahito Nishi, Yoshiko Takechi  
Takehiro Sakamoto, Kensuke Tomita, Hiroshi Yamashita

【要旨】 2006年度から2015年度における梶原測定所（以下「梶原」という.），香北測定局（以下「香北」という.）の大気中の粒子状物質，ガス状物質濃度の特徴についてまとめた。

大気中の粒子状物質中のイオン成分濃度について， $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 濃度の年平均値は，梶原，香北ともに，全国と比較して高い値で推移していた。また， $\text{nss-SO}_4^{2-}$ ， $\text{NH}_4^+$ 濃度は，梶原，香北間で相互に強い相関を示したことから，梶原，香北では，黄砂等の広域的な影響を受けていることが考えられる。

大気中のガス状物質濃度について，梶原の $\text{SO}_2$ ， $\text{HNO}_3$ 濃度の年平均値は，全国と同程度で推移していたが，梶原の $\text{HCl}$ ， $\text{NH}_3$ 濃度，2012年度以降の $\text{HNO}_3$ 濃度を除く香北のガス状物質濃度の年平均値は，低い値で推移していた。梶原では， $\text{SO}_2$ - $\text{HCl}$ 濃度でやや強い相関を示した。冬季に $\text{HCl}$ 濃度が高かったことから，瀬戸内側の発生源の影響を受けていることも考えられる。

全硫酸，全硝酸，全塩化物，全アンモニアの粒子化率の特徴について，全硫酸では夏季に高く，冬季に低い傾向を示し，全硝酸，全アンモニアでは夏季に低く，冬季に高い傾向を示した。

Key words：フィルターパック，乾性沈着，粒子状物質，ガス状物質

### 1. はじめに

酸性雨については，1960年代に欧米において湖沼の酸性化及び森林被害が国際問題となり，1970年代には日本でも湿性大気汚染が問題となった<sup>1)</sup>。

本県では，高岡郡梶原町に設置された国設酸性雨測定所で1999年から測定を行っており，現在は東アジア酸性雨モニタリングネットワークに参加している。また，本県が香美市香北町に設置した測定局では1983年から測定を行っており，2015年度まで全国環境研協議会が行っている酸性雨全国調査に加わっていた。

梶原測定所（以下「梶原」という.）及び香北

測定局（以下「香北」という.）では，降水試料の採取，フィルターパック法による粒子状及びガス状物質の捕集を行い，香北では，それらに加えてパッシブ法によるガス状物質の捕集も行っている。

この度，2006年度から2015年度までのフィルターパック法の調査結果から，梶原及び香北の大気中の粒子状物質濃度，ガス状物質濃度の特徴についてまとめたので報告する。

### 2. 調査方法

調査方法は，環境省が国設酸性雨測定所での調査を受託している機関に示した「フィルターパッ

\* 現幡多福祉保健所 \*\* 現須崎福祉保健所 \*\*\* 現環境対策課

ク法測定手順書」及び全国環境研協議会・酸性雨広域大気汚染調査研究部会が示した「酸性雨全国調査実施要領」に基づいた。

## 2. 1 調査地点

フィルターパック法による調査は，図1に示す測定地点に設置している捕集装置で行った。

梶原は，高岡郡梶原町太郎川に位置し，県中央部から西北西へ約50kmの距離にある。本測定所は四万十川の源流域にあり，周辺はほぼ山林である。測定所の周辺150m以内には，テレビや電話のアンテナが複数設置されている。固定発生源として，測定所の5km北西に年間排出量SO<sub>2</sub>約4t，NO<sub>2</sub>約0.5tの乾燥炉があるが，その他周辺10km以内に大きな発生源はない。

梶原の気象は，2006年度から2015年度までの年

平均気温は11.8℃，年間をとおして北または北北西の風が多く吹いているが，2014年度及び2015年度は，例年と比較して南南東の風が多く観測された。また，年間降水量は平均2,820mmである。

一方，香北は，香美市香北町永瀬に位置する永瀬ダム管理事務所の屋上に設置しており，県中央部から北東へ約30kmの距離にある。物部川中流域にあり，山林に囲まれている。固定発生源として，測定局の10km南西に年間排出量SO<sub>2</sub>約4t，NO<sub>2</sub>約0.6tの温水プールがあるが，その他周辺10km以内に大きな発生源はない。

香北では，気温と風向風速の測定を行っていないため，最寄りの気象官署（大柵）の気象データ<sup>2)</sup>となるが，2006年度から2015年度までの年平均気温は15.3℃，年間をとおして北東の風が多く吹いている。また，年間降水量は平均2,866mmである。

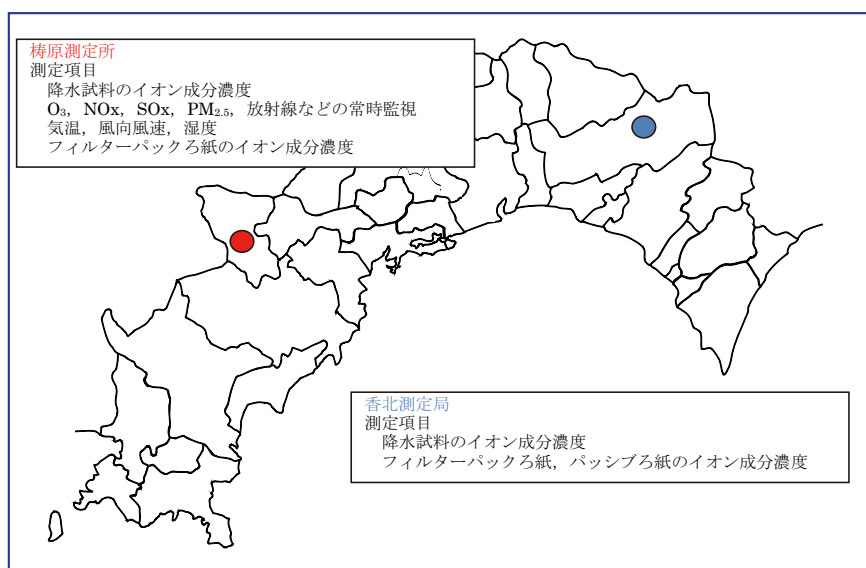


図1 調査地点

## 2. 2 試料採取方法

フィルターパック法により，粒子状物質，ガス状物質の捕集を行った。捕集のために使用したろ紙の種類及び捕集成分は表1のとおりである。

試料採取後は，F<sub>0</sub>, F<sub>1</sub>, F<sub>3</sub>ろ紙は20mLの超純水で，F<sub>2</sub>ろ紙は0.03% H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>溶液20mLでそれぞれ30min振とうを行い，イオン成分を抽出した。

表1 ろ紙の種類及び捕集成分

ろ紙	種類	捕集成分
F <sub>0</sub>	PTFEろ紙	粒子状物質
F <sub>1</sub>	ポリアミドロ紙	ガス状物質 (SO <sub>2</sub> , HNO <sub>3</sub> , HCl, NH <sub>3</sub> )
F <sub>2</sub>	6% K <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> , 2%グリセリン含浸セルロースろ紙	ガス状物質 (SO <sub>2</sub> , HCl)
F <sub>3</sub>	5%リン酸, 2%グリセリン含浸セルロースろ紙	ガス状物質 (NH <sub>3</sub> )

2. 2. 1 梶原

1 段目F<sub>0</sub>ろ紙, 2 段目F<sub>1</sub>ろ紙, 3 段目F<sub>2</sub>ろ紙, 4 段目F<sub>3</sub>ろ紙を配置した 4 段ろ紙法により調査を行った。試料大気は, 毎分 1L の流量で捕集し, 採取期間は 2 週間とした。

2. 2. 2 香北

2007年度までは梶原と同様に 4 段ろ紙法により調査を行っていたが, 2008年度からは 1 段目F<sub>0</sub>ろ紙, 2 段目F<sub>1</sub>ろ紙, 3 段目F<sub>2</sub>ろ紙, 4 段目F<sub>2</sub>ろ紙, 5 段目F<sub>3</sub>ろ紙を配置した 5 段ろ紙法により調査を

行った。試料大気は, 2012年 6 月11日までは毎分 1L, 2012年11月20日からは毎分 2L の流量で捕集し, 採取期間は 1 週間または 2 週間とした。

2. 3 調査期間

調査期間は, 梶原では2006年 3 月29日から2016年 4 月 4 日まで, 香北では2006年 3 月27日から2016年 4 月 4 日までの10年間とした。

試料の採取期間及び欠測期間を表 2 に示す。なお, 赤字で示した期間については, NH<sub>3</sub> ガスについて欠測である。

表 2 試料採取期間及び欠測期間

年度	粒子状物質							
	梶原				香北			
	採取期間		欠測期間		採取期間		欠測期間	
	開始日	終了日	開始日	終了日	開始日	終了日	開始日	終了日
2006	2006/3/29	2007/3/28			2006/3/27	2007/3/26	2006/7/31	2006/8/7
							2006/12/25	2007/1/9
							2007/3/12	2007/3/26
2007	2007/3/28	2008/3/31			2007/3/26	2008/3/31		
2008	2008/3/31	2009/3/30	2008/10/27	2009/1/5	2008/3/31	2009/3/31	2008/4/14	2008/4/28
2009	2009/3/30	2010/3/29			2009/3/31	2010/3/29		
2010	2010/3/29	2011/3/28			2010/3/29	2011/3/28		
2011	2011/3/28	2012/3/26			2011/3/28	2012/3/26	2011/11/21	2011/12/5
							2012/1/30	2012/2/13
2012	2012/3/26	2013/3/25	2012/3/26	2012/4/23	2012/3/26	2013/3/25	2012/6/11	2012/11/20
2013	2013/3/25	2014/4/7			2013/3/25	2014/4/7	2013/7/29	2013/11/5
							2013/11/18	2013/12/2
2014	2014/4/7	2015/4/6	2015/3/9	2015/3/23	2014/4/7	2015/4/7	2014/10/20	2014/11/4
2015	2015/4/6	2016/4/4			2015/4/7	2016/4/4	2016/1/12	2016/1/25

年度	ガス状物質							
	梶原				香北			
	採取期間		欠測期間		採取期間		欠測期間	
	開始日	終了日	開始日	終了日	開始日	終了日	開始日	終了日
2006	2006/3/29	2007/3/28			2006/3/27	2007/3/26	2006/7/31	2006/8/7
							2006/12/25	2007/1/9
							2007/3/12	2007/3/26
2007	2007/3/28	2008/3/31			2007/3/26	2008/3/31		
2008	2008/3/31	2009/3/30	2008/10/27	2009/1/5	2008/3/31	2009/3/31	2008/4/14	2008/4/28
2009	2009/3/30	2010/3/29			2009/3/31	2010/3/29		
2010	2010/3/29	2011/3/28			2010/3/29	2011/3/28	2010/4/26	2010/5/10
							2010/6/21	2010/7/5
							2010/8/30	2010/9/27
							2010/12/6	2011/1/4
2011	2011/3/28	2012/3/26			2011/3/28	2012/3/26	2011/11/21	2011/12/5
							2012/1/30	2012/2/13
2012	2012/3/26	2013/3/25	2012/3/26	2012/4/23	2012/3/26	2013/3/25	2012/6/11	2012/11/20
2013	2013/3/25	2014/4/7			2013/3/25	2014/4/7	2013/7/29	2013/11/5
							2013/11/18	2013/12/2
2014	2014/4/7	2015/4/6	2015/3/9	2015/3/23	2014/4/7	2015/4/7	2014/10/20	2014/11/4
2015	2015/4/6	2016/4/4			2015/4/7	2016/4/4	2015/8/10	2015/9/7
							2016/1/12	2016/1/25

## 2. 4 調査項目及び分析方法

調査項目は、イオン成分濃度（ $\text{Na}^+$ 、 $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{K}^+$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{Cl}^-$ ）とした。また、 $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ については、 $\text{Na}^+$ 濃度から算出した海塩割合分を除いた非海塩由来濃度（ $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 、 $\text{nss-Ca}^{2+}$ ）を算出した。イオン成分濃度は、イオンクロマトグラフ法（ICS-90（ダイオネクス製））で分析を行った。

抽出液中のイオン成分量を期間中に採取した大気量で除して、大気中の濃度を算出した。F<sub>0</sub>ろ紙から抽出されたイオン成分量から粒子状物質中のイオン成分濃度を、F<sub>1</sub>及びF<sub>2</sub>、F<sub>3</sub>ろ紙から抽出されたイオン成分量からガス状物質濃度を算出した。

なお、香北で採取された試料の分析は当センターで行っているが、梶原で採取された試料の分析は環境省の委託先で行っており、その結果については、環境省に測定データ公表申請を行い、公表承諾を受けたデータを用いている。

## 3. 結果及び考察

### 3. 1 大気中の粒子状物質中のイオン成分濃度の特徴

#### 3. 1. 1 年平均値

大気中の粒子状物質中の $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{Cl}^-$ 、 $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{nss-Ca}^{2+}$ 濃度の年平均値を図2に示す。

$\text{nss-SO}_4^{2-}$ 濃度をみると、梶原では、36.9  $\text{nmol m}^{-3}$ から63.0  $\text{nmol m}^{-3}$ の範囲で推移しており、全体としては減少傾向にあった。香北では、40.0  $\text{nmol m}^{-3}$ から53.0  $\text{nmol m}^{-3}$ の範囲で全体として変化はみられなかった。一方、 $\text{NO}_3^-$ 濃度は、梶原では8.4  $\text{nmol m}^{-3}$ から11.2  $\text{nmol m}^{-3}$ の範囲で推移しており大きな変化はみられなかった。香北では、6.3  $\text{nmol m}^{-3}$ から11.2  $\text{nmol m}^{-3}$ の範囲で2013年度以降は低い値で推移していた。 $\text{Cl}^-$ 濃度は、梶原では1.0  $\text{nmol m}^{-3}$ から6.6  $\text{nmol m}^{-3}$ 、香北では1.4  $\text{nmol m}^{-3}$ から2.9  $\text{nmol m}^{-3}$ の範囲で推移していた。特に、梶原では2009年度の $\text{Cl}^-$ 濃度が高かったが、8月下旬から9月上旬にかけて台風が2回本県に接近し、この期間の $\text{Cl}^-$ 濃度が非常に高かったことから、その影響を受けたものと考えられる<sup>3)</sup>。2009年度は酸性雨全国調査の $\text{Cl}^-$ 濃度の中央値も高い値を示しており、他地域でも台風等の影響が大きかったこ

とが考えられる。

$\text{NH}_4^+$ 濃度は、梶原は49.2  $\text{nmol m}^{-3}$ から76.9  $\text{nmol m}^{-3}$ 、香北は54.0  $\text{nmol m}^{-3}$ から80.6  $\text{nmol m}^{-3}$ の範囲で推移していた。一方、 $\text{nss-Ca}^{2+}$ 濃度は、梶原では、2.8  $\text{nmol m}^{-3}$ から9.1  $\text{nmol m}^{-3}$ の範囲で推移しており、2013年度から減少していた。2009年度の年平均値は、他の年度と比較して高い値を示したが、これは4月13日から4月27日にかけて大気中濃度が71.5  $\text{nmol m}^{-3}$ と非常に高い値を示したことによるものである。このとき黄砂は観測されておらず<sup>4)</sup>、他のイオン成分では大きな変化はなかったことから、 $\text{nss-Ca}^{2+}$ 濃度を上昇させる原因は特定できなかった。香北では3.3  $\text{nmol m}^{-3}$ から15.5  $\text{nmol m}^{-3}$ の範囲で、2012年度を除いて濃度に大きな変化はなかった。2012年度の $\text{nss-Ca}^{2+}$ 濃度は、永瀬ダム管理事務所の耐震化工事の影響により特異的に高くなったと考えられる<sup>5)</sup>。

全国環境研協議会が行っている酸性雨全国調査での全国中央値（2006年度から2014年度）<sup>6) 7) 8) 9)</sup>と比較すると、梶原、香北ともに、 $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 濃度は高い値で推移している。酸性雨全国調査での地域区分において、本県の属する「西部」は、アジア大陸の汚染大気の流れの影響を受けていると考えられ、全国的にみて $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 濃度が高い傾向にある<sup>6)</sup>。一方で、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{Cl}^-$ 濃度は低い値で推移している。 $\text{NO}_3^-$ 濃度については、都市に近い酸性雨測定局等と比較して発生源の影響が少ないこと、 $\text{Cl}^-$ 濃度については、海沿いに立地している他の酸性雨測定局と比較して、梶原、香北ともにやや海から距離が離れていることから、海塩の影響がより少ないことが考えられる。

大気中の $\text{NH}_4^+$ 濃度は、梶原、香北ともに中央値と大きな濃度差がなく推移している。また、 $\text{nss-Ca}^{2+}$ 濃度については、梶原では2011年度以降、香北では2012年度以外はいずれも低い値で推移している。

#### 3. 1. 2 月平均値

大気中の粒子状物質中の $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{Cl}^-$ 、 $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{nss-Ca}^{2+}$ 濃度の月平均値を箱ひげ図で図3に示す。

$\text{nss-SO}_4^{2-}$ 濃度の中央値は、梶原、香北ともに5月が最も高く、それぞれ67.0、61.1  $\text{nmol m}^{-3}$ であっ

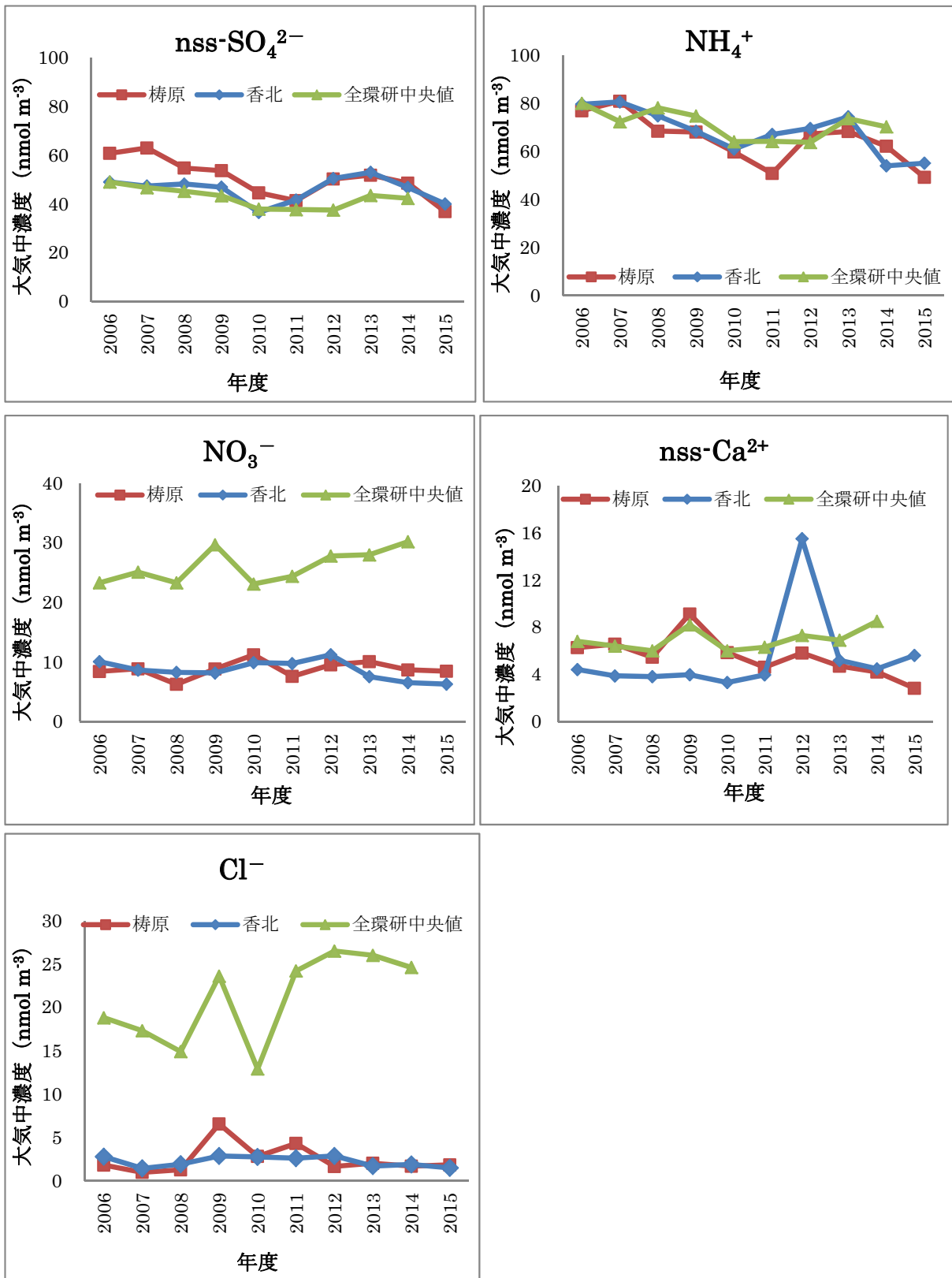


図2 粒子状物質中のイオン成分濃度の年平均値

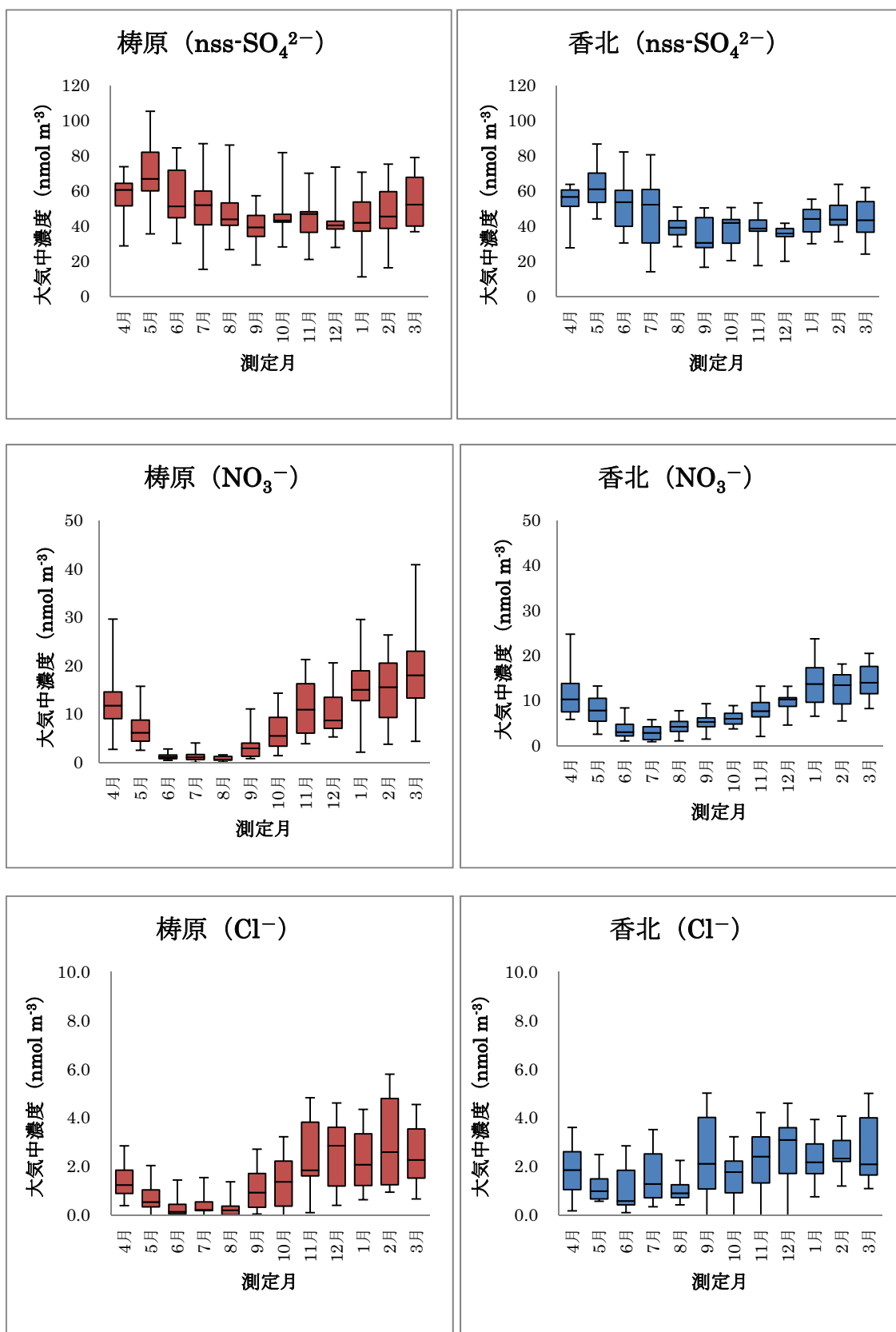


図3 粒子状物質中のイオン成分濃度の月平均値

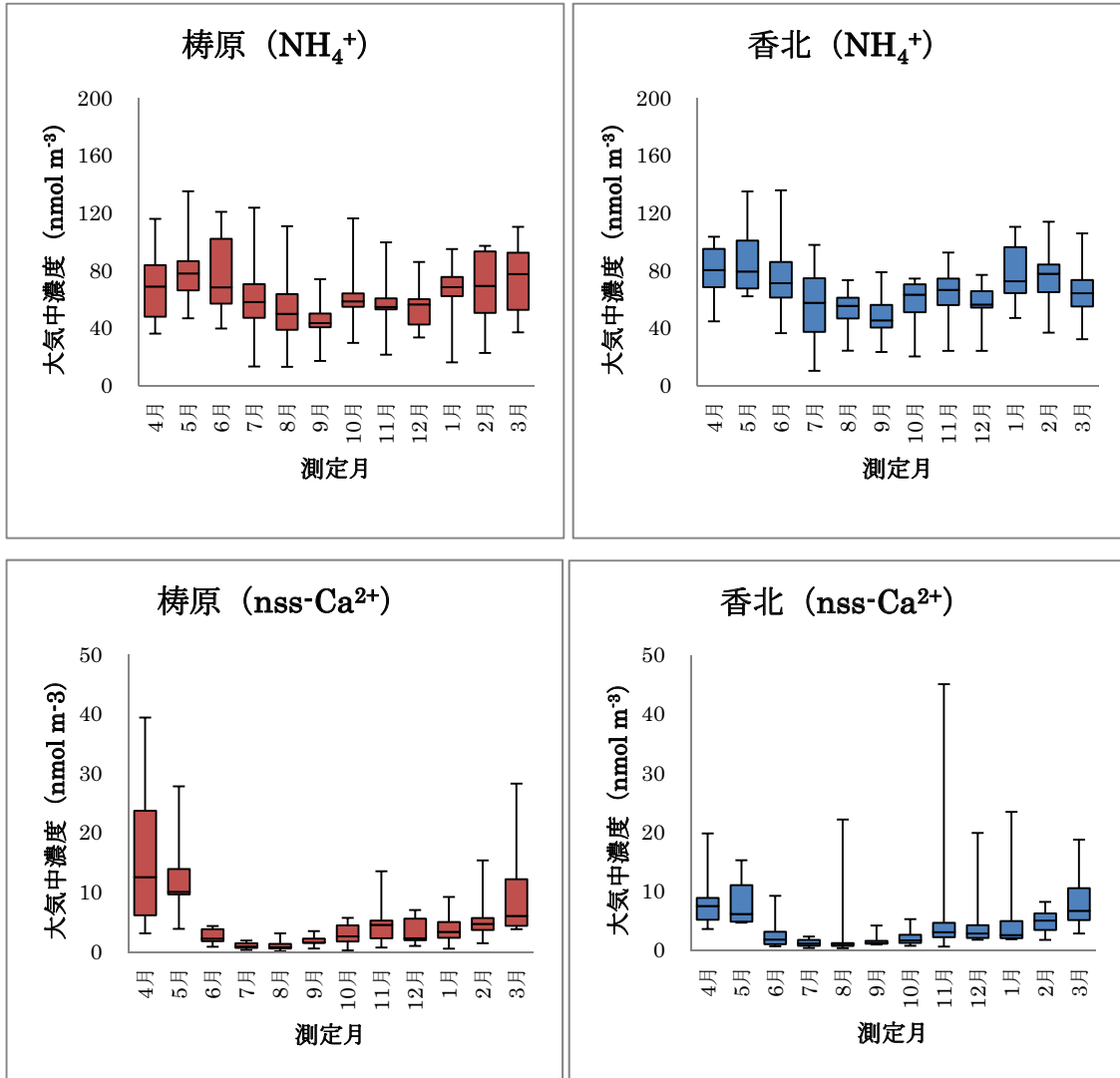
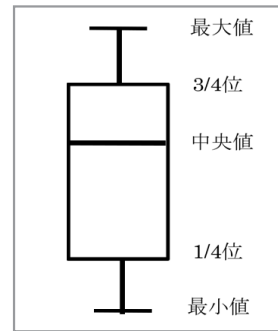


図3 粒子状物質中のイオン成分濃度の月平均値

た。また、梶原、香北ともに4月と5月に濃度が高く、黄砂が主に飛来する時期とも重なっている。一方、濃度が最も低かった月は、梶原、香北ともに9月で、それぞれ39.5、30.6 nmol m<sup>-3</sup>であった。

NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度の中央値は、梶原、香北ともに3月が最も高く、それぞれ18.0、14.0 nmol m<sup>-3</sup>であり、1月から4月にかけて高かった。特に梶原では、1月から4月にかけてNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度が大きく変化していた。この期間でNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度と最も相関係数が高かったのはMg<sup>2+</sup>濃度であった。Mg(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>として大気中に存在していたと仮定すると、直接の排出源としては、肥料、医薬品原料などが考えられるが、測定所周辺では要因を特定できなかった。一方、濃度が最も低かった月は、梶原は8月、香北は7月で、それぞれ0.6、2.8 nmol m<sup>-3</sup>であった。夏季に濃度が低いのは、NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>などの揮発性粒子がガス化するなどの影響が考えられる。

Cl<sup>-</sup>濃度の中央値は、梶原、香北ともに12月が最も高く、それぞれ2.9、3.1 nmol m<sup>-3</sup>であった。一方、濃度が最も低かった月は6月であり、それぞれ0.2、0.6 nmol m<sup>-3</sup>であった。降水量は、梶原、香北ともに6月が最も多く、12月が最も少ないことから降雨の影響も考えられる。

NH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度の中央値は、梶原では5月、香北では4月が最も高く、それぞれ78.1、80.4 nmol m<sup>-3</sup>であった。梶原、香北ともに3月から5月にかけて濃度が高かった。一方、最も濃度が低いのは、梶原、香北ともに9月で、それぞれ43.7、45.5 nmol m<sup>-3</sup>であった。

nss-Ca<sup>2+</sup>濃度の中央値は、梶原、香北ともに4月が最も高く、それぞれ12.6、7.6 nmol m<sup>-3</sup>であった。梶原、香北ともに、濃度が高い時期は3月から5月で、黄砂の観測時期とよく対応しており、黄砂の飛来の影響を受けて高くなったと考えられる<sup>6)</sup>。一方、濃度が最も低い月は、梶原、香北ともに8月で、それぞれ0.8、1.1 nmol m<sup>-3</sup>であった。

酸性雨全国調査で本県が属する「西部」の地域区分と梶原、香北のnss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、Cl<sup>-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、nss-Ca<sup>2+</sup>濃度の月平均値の特徴を比較した<sup>6) 7) 8) 9) 10) 11) 12) 13)</sup>。

nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度の特徴は、「西部」では主に春季に高い傾向を示し、梶原、香北でも同じ傾向を示した。NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度は、「西部」では主に春季、年度に

よっては冬季も高く、夏季に低い傾向にあった。梶原、香北では、主に冬季に濃度が高く、夏季に低かったことから、やや傾向が異なっていた。Cl<sup>-</sup>濃度は、「西部」では秋季から冬季に高い傾向が一部の年度でみられた。梶原では、同様に冬季の濃度が高かったが、香北では梶原と比較すると季節変動が大きくなかった。NH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度は、「西部」ではnss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度と類似した傾向を示すことが多かった。これは梶原、香北でも同じ傾向であった。nss-Ca<sup>2+</sup>濃度は、「西部」では春季に高く、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度と同様の傾向を示すこともあった。梶原、香北でも春季にnss-Ca<sup>2+</sup>濃度が高く、同様の傾向を示した。

### 3. 1. 3 相関関係

梶原、香北及び梶原-香北間の粒子状物質中のイオン成分濃度の相関関係を表3から表5に示す。相関係数を算出するにあたっては、スミルノフ・グラブズ検定を行い、5%水準での外れ値を除外した。

梶原、香北ともにnss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>-NH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度で強い相関を、Mg<sup>2+</sup>-nss-Ca<sup>2+</sup>濃度でやや強い相関を示した(表3、表4)。いずれのイオン成分も黄砂等の広域的な影響も考えられ、Mg<sup>2+</sup>とnss-Ca<sup>2+</sup>濃度については土壌の巻上げの影響も考えられる<sup>14)</sup>。NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度も黄砂等の影響を受ける成分と考えられる<sup>15)</sup>が、他のイオン成分と強い相関を示さなかった。

梶原-香北間のイオン成分濃度の相関関係をみると、同一成分ではnss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度で強い相関が、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、nss-Ca<sup>2+</sup>、Mg<sup>2+</sup>濃度でやや強い相関がみられ、異なる成分ではnss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>-NH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度で相互にやや強い相関を示した(表5)。このことから、nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度は、梶原、香北の両地点にまたがった影響を受けていると考えられる。

## 3. 2 大気中のガス状物質濃度の特徴

### 3. 2. 1 年平均値

大気中のガス状物質濃度の年平均値を図4に示す。

SO<sub>2</sub>濃度は、梶原では17.6 nmol m<sup>-3</sup>から41.3 nmol m<sup>-3</sup>の範囲にあり、2014年度から減少に転じ、香北では8.9 nmol m<sup>-3</sup>から23.6 nmol m<sup>-3</sup>の範囲にあり、大きな変化はみられなかった。



表3 梶原の粒子状物質中のイオン成分濃度の相関関係 (n=231)

	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	nss-Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>
nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	1.00							
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	0.11	1.00						
Cl <sup>-</sup>	-0.15	0.64	1.00					
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	0.95	0.23	-0.09	1.00				
Na <sup>+</sup>	0.27	0.53	0.48	0.23	1.00			
K <sup>+</sup>	0.57	0.39	0.12	0.59	0.32	1.00		
nss-Ca <sup>2+</sup>	0.45	0.53	0.24	0.41	0.36	0.44	1.00	
Mg <sup>2+</sup>	0.54	0.58	0.37	0.48	0.76	0.50	0.78	1.00

注 青字 :  $0.8 \leq r$ , 赤字 :  $0.6 \leq r < 0.8$  (表4, 表5も同様)

表4 香北の粒子状物質中のイオン成分濃度の相関関係 (n=239)

	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	nss-Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>
nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	1.00							
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	0.11	1.00						
Cl <sup>-</sup>	-0.20	0.48	1.00					
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	0.83	0.31	-0.08	1.00				
Na <sup>+</sup>	0.17	0.33	0.39	0.05	1.00			
K <sup>+</sup>	0.58	0.30	0.00	0.58	0.28	1.00		
nss-Ca <sup>2+</sup>	0.37	0.52	0.10	0.32	0.30	0.44	1.00	
Mg <sup>2+</sup>	0.35	0.55	0.30	0.24	0.64	0.43	0.76	1.00

表5 梶原, 香北の粒子状物質中のイオン成分濃度の相関関係 (n=182)

梶原 \ 香北	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	nss-Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>
nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	0.84	0.11	-0.14	0.72	0.12	0.48	0.37	0.26
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	0.05	0.72	0.27	0.19	0.32	0.22	0.52	0.46
Cl <sup>-</sup>	-0.13	0.45	0.35	-0.01	0.27	0.00	0.23	0.23
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	0.80	0.23	-0.11	0.74	0.09	0.51	0.36	0.26
Na <sup>+</sup>	0.14	0.50	0.39	0.20	0.62	0.19	0.34	0.43
K <sup>+</sup>	0.37	0.26	0.01	0.41	0.16	0.39	0.32	0.27
nss-Ca <sup>2+</sup>	0.32	0.40	0.00	0.30	0.18	0.24	0.77	0.55
Mg <sup>2+</sup>	0.39	0.48	0.17	0.40	0.47	0.35	0.72	0.64

HN<sub>3</sub>濃度は、梶原では8.6 nmol m<sup>-3</sup>から20.2 nmol m<sup>-3</sup>の範囲にあり、SO<sub>2</sub>濃度と同様に減少傾向で、香北では6.6 nmol m<sup>-3</sup>から13.2 nmol m<sup>-3</sup>の範囲にあり、2012年度以降は増加している。

HCl濃度は、梶原では9.7 nmol m<sup>-3</sup>から16.3 nmol m<sup>-3</sup>の範囲で、香北では5.9 nmol m<sup>-3</sup>から12.9 nmol m<sup>-3</sup>の範囲で、ともに大きな変化はなかった。

NH<sub>3</sub>濃度は、梶原では15.7 nmol m<sup>-3</sup>から25.2 nmol m<sup>-3</sup>の範囲にあり、一定で推移しているのに対して、香北では18.3 nmol m<sup>-3</sup>から128.3 nmol m<sup>-3</sup>の範囲にあり、2012年度から大きく減少している。香北でNH<sub>3</sub>濃度が大きく減少した要因として、永瀬ダム管理事務所の浄化槽の影響が考えられる。2012年度に耐震化工事に合わせて、浄化槽を単独浄化槽から合併浄化槽としたが、単独浄化槽を使用していた当時は、風で浄化槽のふたが動くこと

があり、内部が外気と接触することがあったようである。このことから、浄化槽からのNH<sub>3</sub>のリークの影響を受けたものと考えられる。

酸性雨全国調査での全国中央値<sup>6) 7) 8) 9)</sup>と比較すると、梶原では大気中のSO<sub>2</sub>、HN<sub>3</sub>濃度は差がなく、HCl、NH<sub>3</sub>濃度は低い値で推移している。

一方、香北では、SO<sub>2</sub>、HCl濃度は低い値が継続しており、HN<sub>3</sub>濃度は2011年度まで、NH<sub>3</sub>濃度は2012年度以降低く推移している。

酸性雨全国調査で本県が属する「西部」の地域区分では、アジア大陸から排出されるSO<sub>2</sub>の影響を受けている可能性があること、桜島や新燃岳の火山ガスの影響を受けている可能性もあることから、SO<sub>2</sub>濃度は高い傾向にある<sup>6)</sup>が、香北では全国的にみて濃度は低かった。

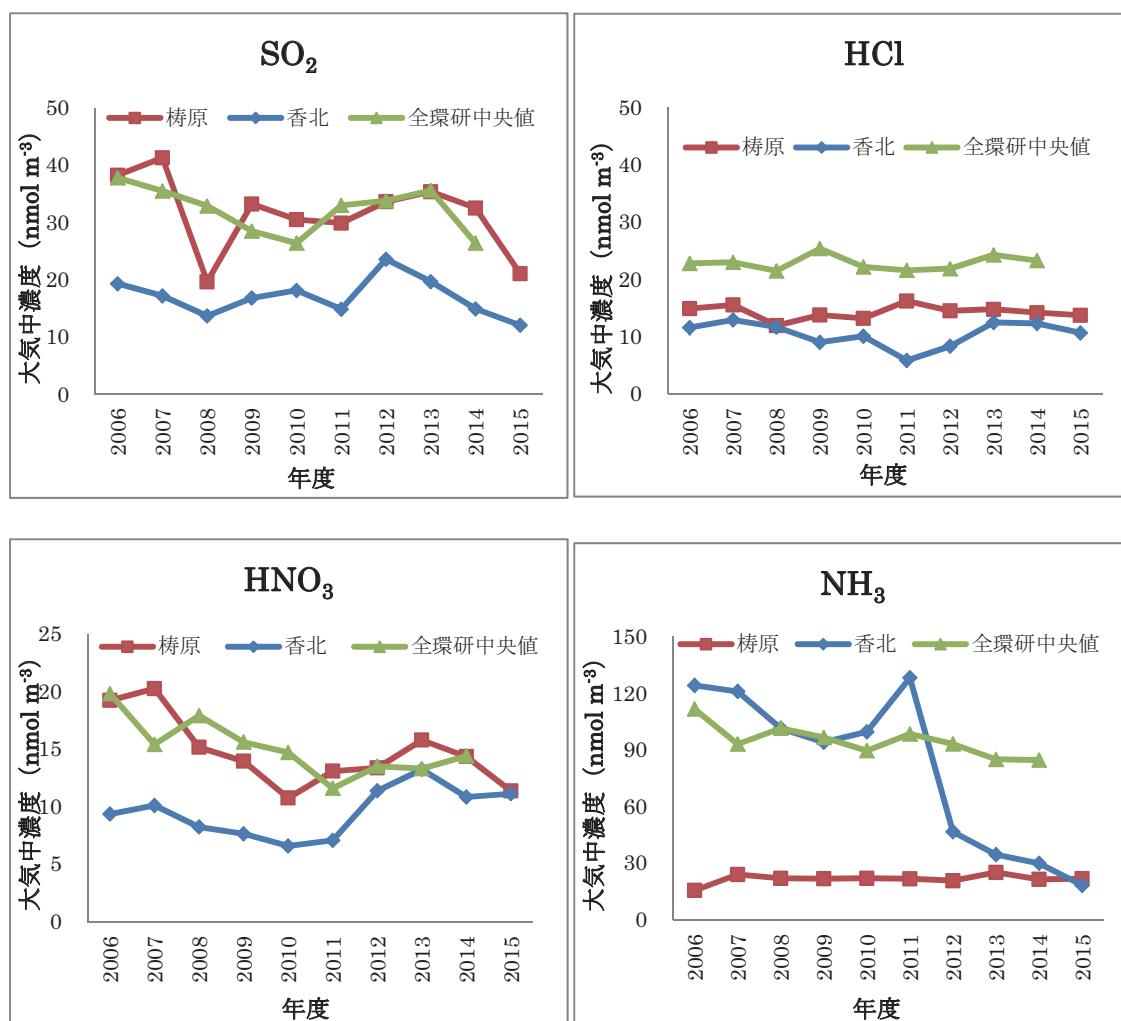


図4 ガス状物質濃度の年平均値

### 3. 2. 2 月平均値

各月のSO<sub>2</sub>, HNO<sub>3</sub>, HCl, NH<sub>3</sub>濃度の月平均値を箱ひげ図で図5に示す。

SO<sub>2</sub>濃度の中央値は、梶原、香北ともに1月が最も高く、それぞれ55.1, 32.2 nmol m<sup>-3</sup>であった。梶原、香北ともに冬季にSO<sub>2</sub>濃度が高かった。冬季は、重油等の燃料使用の多い時期でもあり、その影響を受けていることも考えられる。梶原では、風速5mを超える北または北北西の風が他の時期と比較して多く吹いており、瀬戸内側からの影響も受けていると考えられる。一方、濃度が最も低かった月は、梶原、香北ともに8月で、それぞれ8.5, 6.1 nmol m<sup>-3</sup>であった。

HNO<sub>3</sub>濃度の中央値は、梶原では5月、香北では4月が最も高く、それぞれ22.8, 16.4 nmol m<sup>-3</sup>

であった。梶原、香北ともに3月から5月にかけてHNO<sub>3</sub>濃度が高かった。一方、濃度が最も低かった月は、梶原では12月、香北では7月で、それぞれ9.8, 5.2 nmol m<sup>-3</sup>であった。

HCl濃度の中央値は、梶原では1月、香北では3月が最も高く、それぞれ21.7, 13.5 nmol m<sup>-3</sup>であった。一方、濃度が最も低かった月は、梶原では6月、香北では11月で、それぞれ7.0, 8.1 nmol m<sup>-3</sup>であった。梶原は、香北と比較して、12月から2月にかけてHCl濃度が高かった。梶原では、風速5mを超える北または北北西の風がこの時期に多く吹いており、瀬戸内側からの影響も受けていると考えられる。香北は、風速3m未満の北東の風がこの時期に主に吹いている。北東方向は四国山地であり、HClの発生源の影響をあまり受け

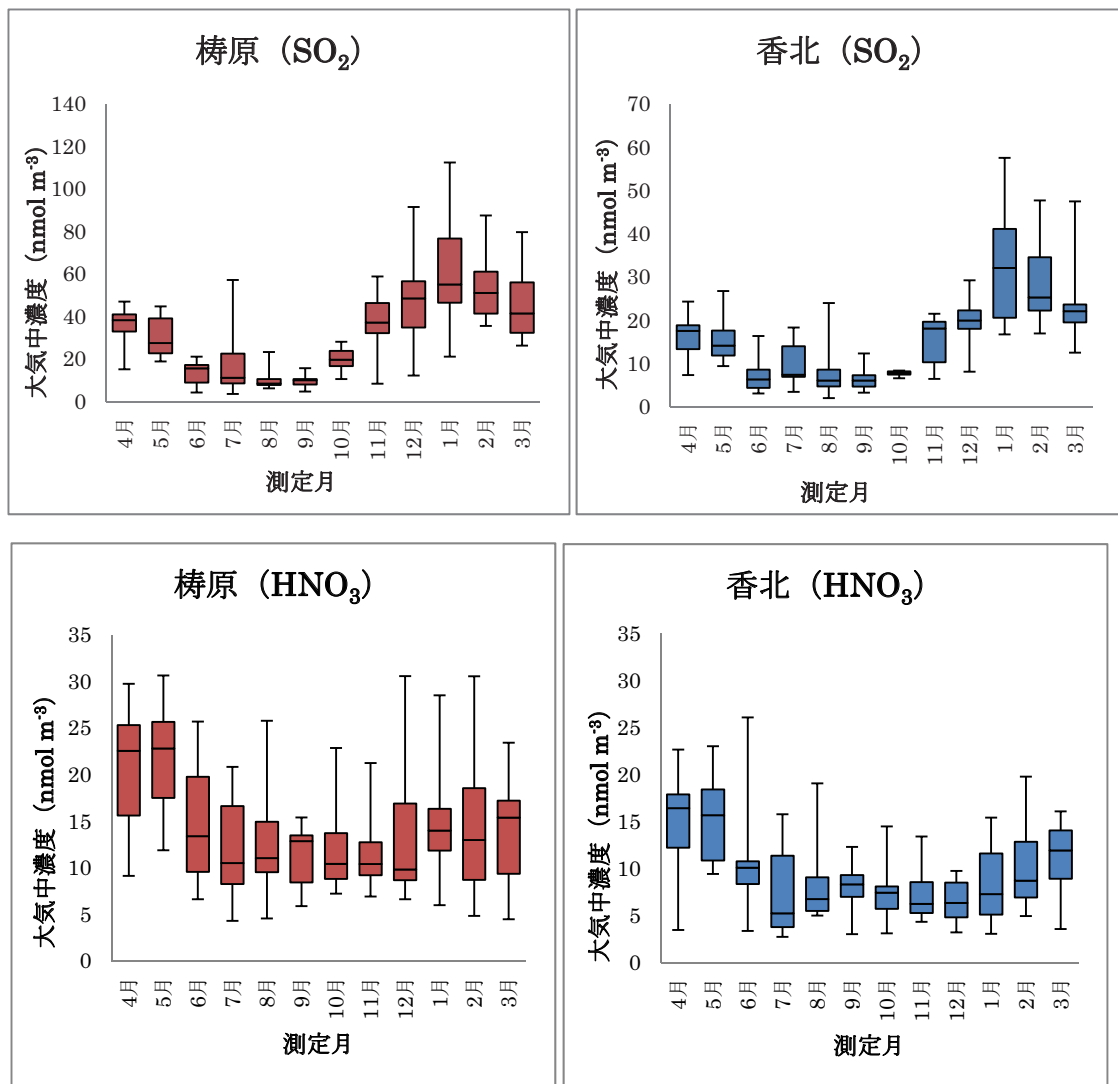


図5 ガス状物質濃度の月平均値

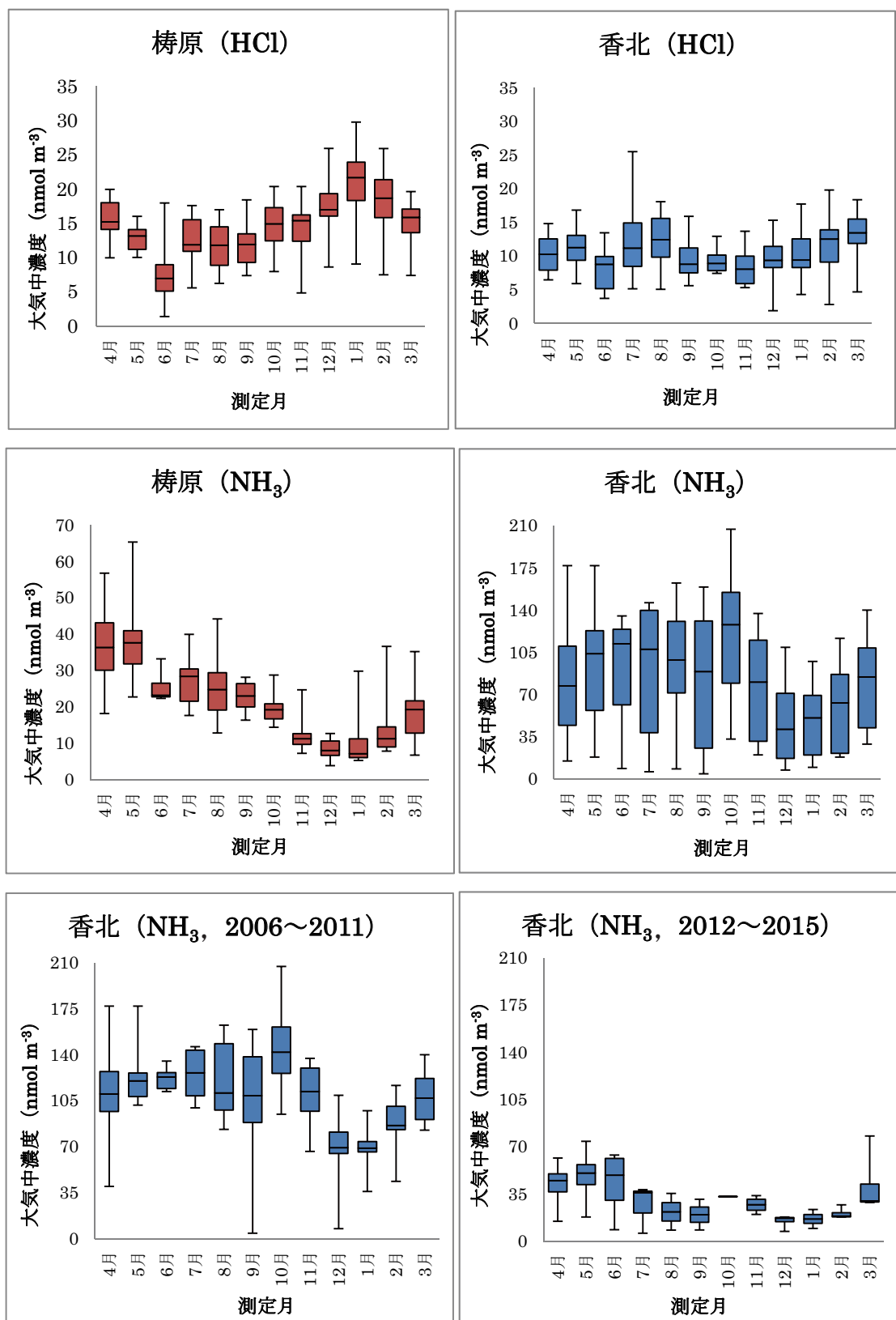


図5 ガス状物質濃度の月平均値

ないものと考えられる。

NH<sub>3</sub>濃度の中央値は、梶原では4月、香北では10月が最も高く、それぞれ36.4, 128.0 nmol m<sup>-3</sup>であった。一方、濃度が最も低かった月は、梶原では1月、香北では12月で、それぞれ7.1, 41.2 nmol m<sup>-3</sup>であった。大気中のNH<sub>3</sub>濃度は、梶原、香北ともに冬季に低い値を示した。NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>などの揮発性粒子の粒子化などの影響が考えられる<sup>6)</sup>。

年平均値が大きく減少した香北のNH<sub>3</sub>濃度について、2011年度以前と2012年度以後を区別して月平均値の中央値をみると、2006年度から2011年度では、最高値は10月、最低値は1月にみられ、それぞれ142.0, 69.0 nmol m<sup>-3</sup>であった。2012年度から2015年度では、最高値は5月、最低値は1月にみられ、それぞれ50.5, 16.5 nmol m<sup>-3</sup>であった。

酸性雨全国調査で本県が属する「西部」の地域区分と、梶原、香北でのSO<sub>2</sub>, HNO<sub>3</sub>, HCl, NH<sub>3</sub>濃度の月平均値の傾向を比較した<sup>6) 7) 8) 9) 10) 11) 12) 13)</sup>。SO<sub>2</sub>濃度は、「西部」では春季または冬季に高い傾向にあり、梶原、香北も同様の傾向を示した。HNO<sub>3</sub>濃度は年度によって傾向が異なるが、「西部」では、2011年度に春季に濃度が高く、夏季から冬季にかけて横ばいに推移していた。梶原、香北の傾向はこれと類似していた。HCl濃度は、「西部」では月平均値の特徴がみられないか、冬季に低くなる傾向を示した。梶原のHCl濃度は冬季に高くなる傾向を示しており、排出源の影響を受けていることが考えられる。NH<sub>3</sub>濃度は、「西部」では夏季に高く、冬季に低い傾向を示したが、梶原、2012年度以降の香北では、春季に濃度が高く、冬季に低い傾向を示した。

### 3. 2. 3 相関関係

梶原、香北及び梶原－香北間の大気中のSO<sub>2</sub>, HNO<sub>3</sub>, HCl, NH<sub>3</sub>濃度の相関関係を表6から表10に示す。相関係数を算出するにあたっては、スミルノフ・グラブズ検定を行い、5%水準での外れ値を除外した。

梶原ではSO<sub>2</sub>－HCl濃度でやや強い相関を示したが、香北ではガス状物質濃度の相関関係はみられなかった(表6, 表7)。火山性ガスの影響も考えられたが、阿蘇山、新燃岳、桜島での大規模な噴火時に火口を出た気塊は、本県を通過していな

かったことから、大きくは影響を受けていないものと考えられる<sup>16)</sup>。

一方、梶原－香北間ではSO<sub>2</sub>－SO<sub>2</sub>濃度、HNO<sub>3</sub>－HNO<sub>3</sub>濃度でやや強い相関を示した(表8)。香北のNH<sub>3</sub>濃度が大きく変化した2006年度から2011年度までと、2012年度から2015年度に区別して相関関係をみると、2006年度から2011年度では、梶原－香北のSO<sub>2</sub>－SO<sub>2</sub>濃度で強い相関、HNO<sub>3</sub>－HNO<sub>3</sub>濃度、梶原のHCl－香北のSO<sub>2</sub>濃度でやや強い相関を示した(表9)。2012年度から2015年度では、SO<sub>2</sub>－SO<sub>2</sub>濃度、HNO<sub>3</sub>－HNO<sub>3</sub>濃度で、やや強い相関を示した(表10)。また、両地点のNH<sub>3</sub>濃度の相関係数は、2006年度から2011年度までは0.25であったのに対して、2012年度から2015年度までは0.59となり大きく上昇したことから、永瀬ダム管理事務所の浄化槽の影響が大きかったものと考えられる(表9, 表10)。

表6 梶原のガス状物質濃度の相関関係(n=243)

	SO <sub>2</sub>	HNO <sub>3</sub>	HCl	NH <sub>3</sub>
SO <sub>2</sub>	1.00			
HNO <sub>3</sub>	0.43	1.00		
HCl	0.61	0.27	1.00	
NH <sub>3</sub>	-0.18	0.29	-0.16	1.00

注 青字：0.8≤r, 赤字：0.6≤r<0.8  
(表7から表10も同様)

表7 香北のガス状物質濃度の相関関係(n=225)

	SO <sub>2</sub>	HNO <sub>3</sub>	HCl	NH <sub>3</sub>
SO <sub>2</sub>	1.00			
HNO <sub>3</sub>	0.11	1.00		
HCl	0.26	0.30	1.00	
NH <sub>3</sub>	-0.18	-0.06	0.01	1.00

表8 梶原－香北間でのガス状物質濃度の相関関係(2006年度から2015年度, n=167)

梶原 \ 香北	SO <sub>2</sub>	HNO <sub>3</sub>	HCl	NH <sub>3</sub>
SO <sub>2</sub>	0.76	0.22	0.16	-0.17
HNO <sub>3</sub>	0.21	0.71	0.12	0.08
HCl	0.54	0.11	0.29	-0.12
NH <sub>3</sub>	-0.30	0.41	0.03	0.24

表9 梶原－香北間でのガス状物質濃度の相関関係（2006年度から2011年度，n=94）

梶原 \ 香北	SO <sub>2</sub>	HNO <sub>3</sub>	HCl	NH <sub>3</sub>
SO <sub>2</sub>	0.85	0.15	0.15	-0.34
HNO <sub>3</sub>	0.29	0.79	0.25	0.01
HCl	0.60	0.06	0.17	-0.21
NH <sub>3</sub>	-0.38	0.33	0.03	0.25

表10 梶原－香北間でのガス状物質濃度の相関関係（2012年度から2015年度，n=73）

梶原 \ 香北	SO <sub>2</sub>	HNO <sub>3</sub>	HCl	NH <sub>3</sub>
SO <sub>2</sub>	0.62	0.31	0.16	0.09
HNO <sub>3</sub>	0.10	0.74	0.01	0.43
HCl	0.43	0.20	0.45	-0.13
NH <sub>3</sub>	-0.21	0.57	0.04	0.59

### 3. 3 粒子状物質－ガス状物質濃度の相関関係

梶原及び香北での粒子状物質－ガス状物質濃度の相関関係について，表11，表12に示す。相関係数を算出するにあたってはスミルノフ・グラブズ検定を行い，5%水準での外れ値を除外した。

梶原では，nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>－HNO<sub>3</sub>濃度，NH<sub>4</sub><sup>+</sup>－HNO<sub>3</sub>濃度でやや強い相関を示した（表11）。一方，香北では，粒子状物質濃度とガス状物質濃度間で強い相関を示さなかった（表12）。

2006年度から2011年度，2012年度から2015年度における香北の粒子状物質－ガス状物質濃度の相関関係を表13，表14に示す。2006年度から2011年度では，HNO<sub>3</sub>濃度とnss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>，NH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度間で，やや強い相関を示したが（表13），2012年度から2015年度では，同成分間で強い相関を示さなかった（表14）。

香北の粒子状物質中のイオン成分濃度と梶原のガス状物質濃度の相関関係を表15に，梶原の粒子状物質中のイオン成分濃度と香北のガス状物質濃度の相関関係を表16に示す。梶原のHNO<sub>3</sub>濃度と香北のnss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>，NH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度間では，やや強い相関を示した（表15）。これは，香北のHNO<sub>3</sub>濃度と梶原のnss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>，NH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度間でも同様であった（表16）。

既に述べたが，梶原と香北では，nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度とNH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度で相互にやや強い相関を示している（表5）。また，梶原と香北のHNO<sub>3</sub>濃度でもやや強い相関を示している（表8）。そして，梶原と香北でHNO<sub>3</sub>濃度とnss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>，NH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度でやや強い相関を示した（表15，16）ことから，両地点のHNO<sub>3</sub>，nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>，NH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度が同一の発生源の影響を受けていると思われた。

nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度が上昇する要因の一つと考えられる黄砂等の飛来に併せてHNO<sub>3</sub>濃度が上昇するとしたとき，HNO<sub>3</sub>は黄砂に存在するCaCO<sub>3</sub>と反応し

表11 梶原の粒子状物質中のイオン成分，ガス状物質濃度の相関関係（n=213）

	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	nss-Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>
SO <sub>2</sub>	0.23	0.56	0.21	0.38	0.14	0.29	0.46	0.43
HNO <sub>3</sub>	0.70	0.05	-0.22	0.68	0.05	0.40	0.34	0.30
HCl	0.16	0.61	0.26	0.25	0.45	0.24	0.36	0.46
NH <sub>3</sub>	0.37	-0.22	-0.29	0.21	0.04	0.17	0.26	0.24

注 青字：0.8≤r，赤字：0.6≤r<0.8（表12から表16も同様）

表12 香北の粒子状物質中のイオン成分，ガス状物質濃度の相関関係（2006年度から2015年度，n=195）

	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	nss-Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>
SO <sub>2</sub>	0.23	0.59	0.20	0.39	0.11	0.39	0.36	0.37
HNO <sub>3</sub>	0.58	0.01	-0.35	0.49	0.16	0.33	0.42	0.38
HCl	0.16	0.26	0.17	0.08	0.58	0.21	0.15	0.44
NH <sub>3</sub>	0.02	-0.05	0.00	0.13	0.01	0.17	-0.17	-0.04

表13 香北の粒子状物質中のイオン成分, ガス状物質濃度の相関関係 (2006年度から2011年度, n=128)

	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	nss-Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>
SO <sub>2</sub>	0.30	0.63	0.17	0.45	0.01	0.40	0.40	0.30
HNO <sub>3</sub>	0.67	-0.11	-0.42	0.65	0.05	0.37	0.20	0.19
HCl	0.21	0.14	0.13	0.11	0.49	0.18	0.08	0.40
NH <sub>3</sub>	0.05	-0.26	-0.17	-0.01	0.10	0.13	-0.09	0.03

表14 香北の粒子状物質中のイオン成分, ガス状物質濃度の相関関係 (2012年度から2015年度, n=67)

	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	nss-Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>
SO <sub>2</sub>	0.10	0.53	0.30	0.24	0.37	0.38	0.41	0.54
HNO <sub>3</sub>	0.47	0.26	-0.14	0.47	0.32	0.43	0.59	0.56
HCl	0.08	0.46	0.30	0.04	0.75	0.30	0.22	0.49
NH <sub>3</sub>	0.44	-0.07	-0.26	0.37	-0.03	0.34	0.38	0.34

表15 香北の粒子状物質中のイオン成分, 梶原のガス状物質濃度の相関関係 (n=157)

梶原 \ 香北	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	nss-Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>
SO <sub>2</sub>	0.23	0.56	0.21	0.38	0.14	0.29	0.46	0.43
HNO <sub>3</sub>	0.70	0.05	-0.22	0.68	0.05	0.40	0.34	0.30
HCl	0.16	0.61	0.26	0.25	0.45	0.24	0.36	0.46
NH <sub>3</sub>	0.37	-0.22	-0.29	0.21	0.04	0.17	0.26	0.24

表16 梶原の粒子状物質中のイオン成分, 香北のガス状物質濃度の相関関係 (2006年度から2015年度, n=142)

梶原 \ 香北	SO <sub>2</sub>	HNO <sub>3</sub>	HCl	NH <sub>3</sub>
nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	0.15	0.64	0.23	0.09
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	0.56	0.18	0.20	-0.20
Cl <sup>-</sup>	0.21	-0.07	0.09	-0.19
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	0.29	0.62	0.19	0.04
Na <sup>+</sup>	0.16	0.07	0.27	0.04
K <sup>+</sup>	0.32	0.42	0.06	0.03
nss-Ca <sup>2+</sup>	0.23	0.44	0.08	0.00
Mg <sup>2+</sup>	0.20	0.41	0.19	0.08

て、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>として非可逆的に黄砂に取り込まれること<sup>11)</sup>から、アジア大陸から本県に到達するときにはNO<sub>3</sub><sup>-</sup>として到達していると考えられる。しかし、梶原、香北の両地点でNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度とnss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度間で強い相関を示さなかったことから、HNO<sub>3</sub>濃度とnss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度との間でやや強い相関を示した要因は、黄砂等に伴う影響とは異なることが考えられる。

### 3. 4 粒子化率の変動

梶原、香北での全硫酸（粒子状SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度とガ

ス状SO<sub>2</sub>濃度の和）、全硝酸（粒子状NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度とガス状HNO<sub>3</sub>濃度の和）、全アンモニア（粒子状NH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度とガス状NH<sub>3</sub>濃度の和）、全塩化物（粒子状Cl<sup>-</sup>濃度とガス状HCl濃度の和）の粒子化率の月平均値及び梶原、香北の月平均気温を図6から図9に示す。香北では気温の測定を行っていないため、測定局の近辺にある大榎気象官署での結果を用いている<sup>2)</sup>。粒子化率は、粒子状物質のイオン成分濃度/(粒子状物質のイオン成分濃度+ガス状成分濃度)×100から算出した。

全硫酸の粒子化率は、梶原、香北ともに夏季に

高く、冬季に低い傾向を示した。これは、梶原、香北の月平均気温の推移と一致していたが、夏季は気温が上昇することにより、水中に溶けたイオン成分が水分の蒸発によって再度粒子化すること、冬季は暖房などの使用によりSO<sub>2</sub>排出量が増加することなどの影響が考えられる。

全硝酸、全アンモニアの粒子化率は、梶原、香北ともに、夏季に低く、冬季に高い傾向を示した。夏季では、NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>からNH<sub>3</sub>、HNO<sub>3</sub>のガス化が促進されること、紫外線によりNO<sub>2</sub>とOHラジカルの反応が活発になるなどの理由が考えられる。酸性雨全国調査で、本県が属する「西部」の地域区分に属する他の測定局においても同様の傾向がみられた<sup>14)</sup>。

全塩化物の粒子化率は、季節による特徴はみられなかった。

#### 4. まとめ

2006年度から2015年度における梶原、香北の大气中の粒子状物質、ガス状物質濃度の特徴についてまとめた。

大气中の粒子状物質中のイオン成分濃度について、nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度の年平均値は、梶原、香北ともに全国と比較して高い値、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度の年平均値は低い値、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度の年平均値は、全国と比較して差がみられなかった。これは、アジア大陸からの汚染大気の流れの影響を受けているためと考えられる。nss-Ca<sup>2+</sup>濃度は、梶原では2011年度以降は全国と比較して低い値であり、香北では2012年度を除いて低い値で推移していた。

梶原、香北の粒子状物質中のイオン成分濃度では、nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>-NH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度で強い相関を、Mg<sup>2+</sup>-nss-Ca<sup>2+</sup>濃度でやや強い相関を示した。また、梶原と香北の地点間では、nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度で強い相関を、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度、nss-Ca<sup>2+</sup>濃度、Mg<sup>2+</sup>濃度ではやや強い相関を、異なるイオン成分濃度では、nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>-NH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度において、相互にやや強い相関を示した。nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度は、黄砂等の広域的な要因により梶原、香北にまたがって影響を

受けていることが考えられる。NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、Mg<sup>2+</sup>濃度については、梶原-香北間では、それぞれのイオン成分同士でやや強い相関を示したが、他のイオン成分とは強い相関を示さず、黄砂等の影響が大きいことも考えられる。

大气中のガス状物質濃度について、梶原のSO<sub>2</sub>、HNO<sub>3</sub>濃度の年平均値は、全国と比較して大きな差がなく推移しているが、梶原のHCl、NH<sub>3</sub>濃度は低い値で推移していた。また、香北のHNO<sub>3</sub>濃度は、2012年度以降は増加していたが、その他のガス状物質濃度は低い値で推移していた。梶原、香北のSO<sub>2</sub>、梶原のHClは冬季に濃度が高く、梶原、香北のHNO<sub>3</sub>は春季に濃度が高かった。梶原では、冬季に瀬戸内側の発生源の影響を受けていることも考えられる。一方、梶原、香北のNH<sub>3</sub>濃度は冬季に低い傾向にあった。

梶原でのSO<sub>2</sub>-HCl濃度でやや強い相関を示したが、その他のガス状物質及び香北のガス状物質では強い相関を示さなかった。梶原、香北のガス状物質濃度では、SO<sub>2</sub>濃度間、HNO<sub>3</sub>濃度間でやや強い相関を示した。

粒子状物質中のイオン成分濃度とガス状物質濃度の相関関係をみると、梶原では、nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度とHNO<sub>3</sub>濃度との間で、香北においても、2006年度から2011年度までは、同成分間でやや強い相関を示した。両地点間の同成分の相関関係においても同じ傾向を示した。

全硫酸、全硝酸、全塩化物、全アンモニアの粒子化率の特徴については、全硫酸では、夏季に粒子化率が高く、冬季に低い傾向を示した。夏季は、気温が上昇することにより水中に溶解したイオン成分が、水分の蒸発に伴って再度粒子化するなどの影響が、冬季はSO<sub>2</sub>排出量の増加の影響が考えられる。全硝酸、全アンモニアの粒子化率は、夏季に低く、冬季に高い傾向を示した。夏季では、NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>からNH<sub>3</sub>、HNO<sub>3</sub>のガス化が促進される、紫外線によりNO<sub>2</sub>とOHラジカルの反応が活発になるなどの理由が考えられる。一方、全塩化物の粒子化率は、季節による特徴はみられなかった。



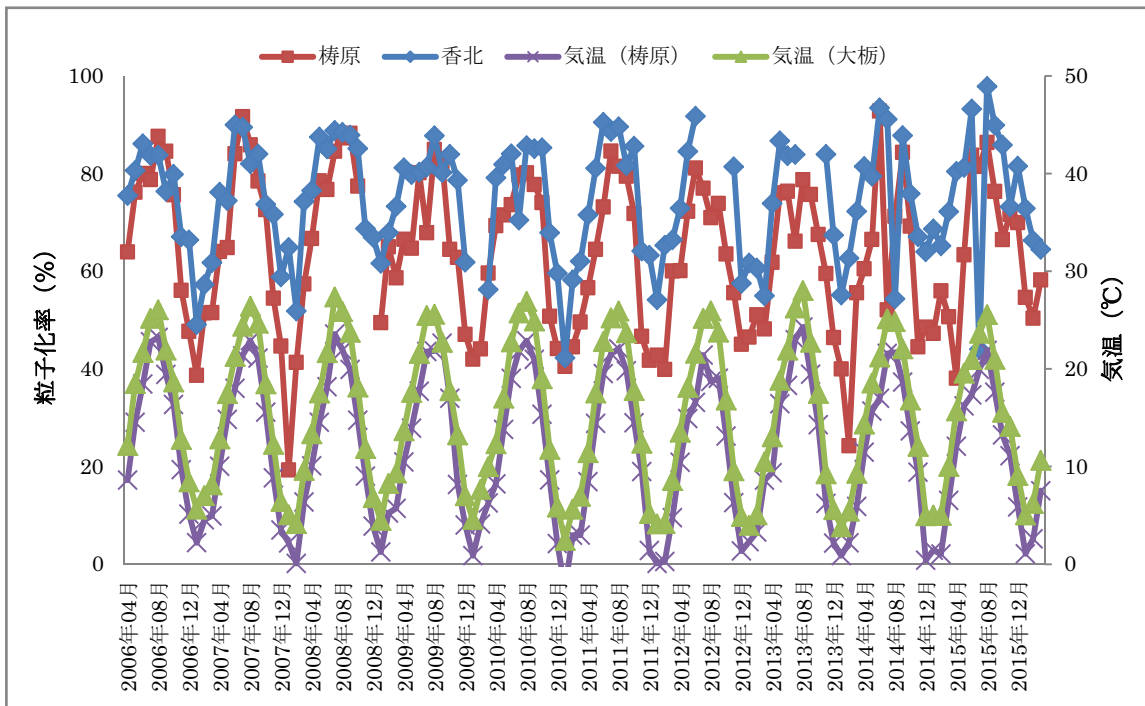


図6 全硫酸の粒子化率の推移

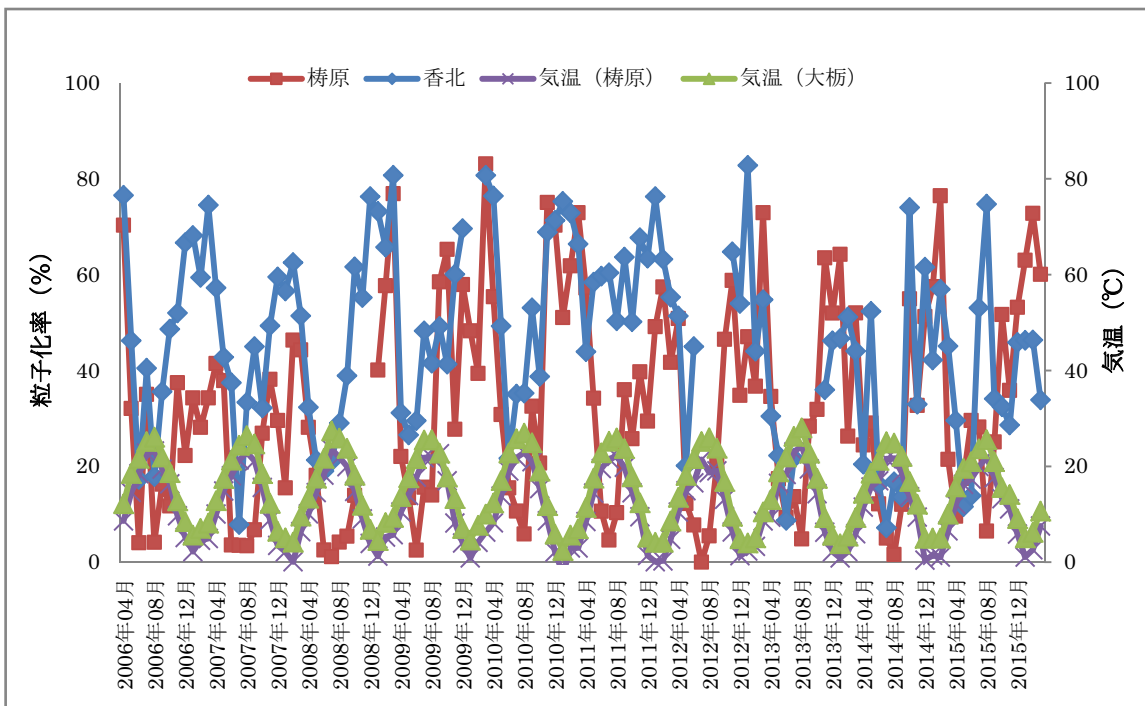


図7 全硝酸の粒子化率の推移

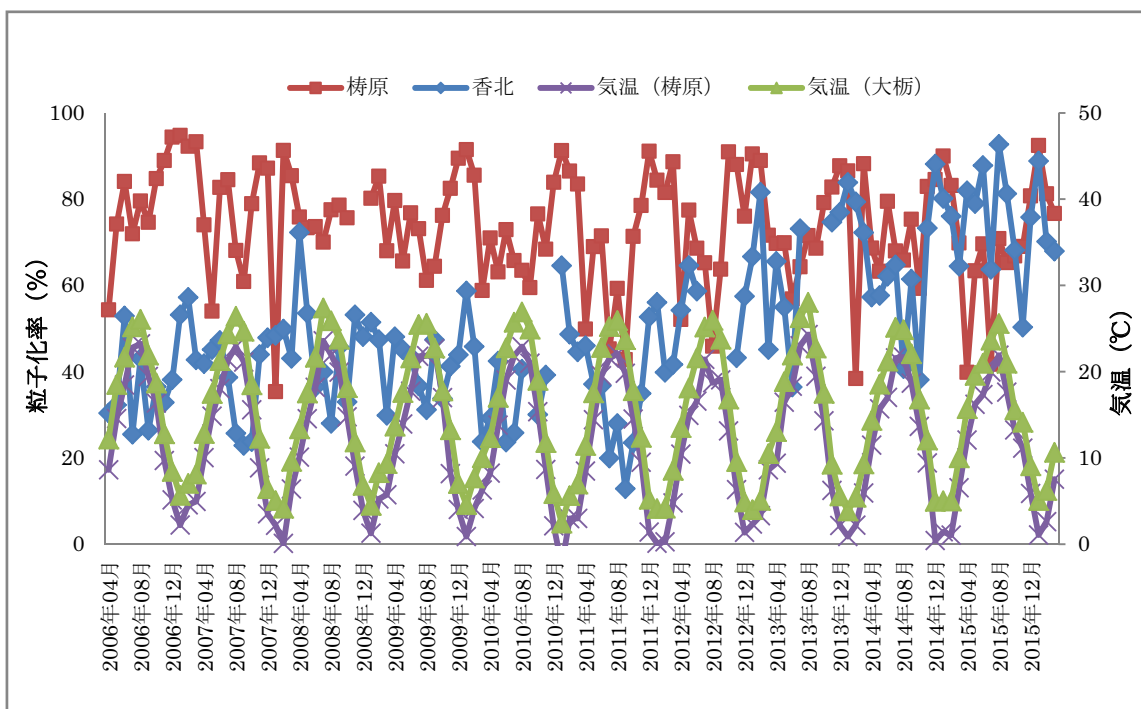


図8 全アンモニアの粒子化率の推移

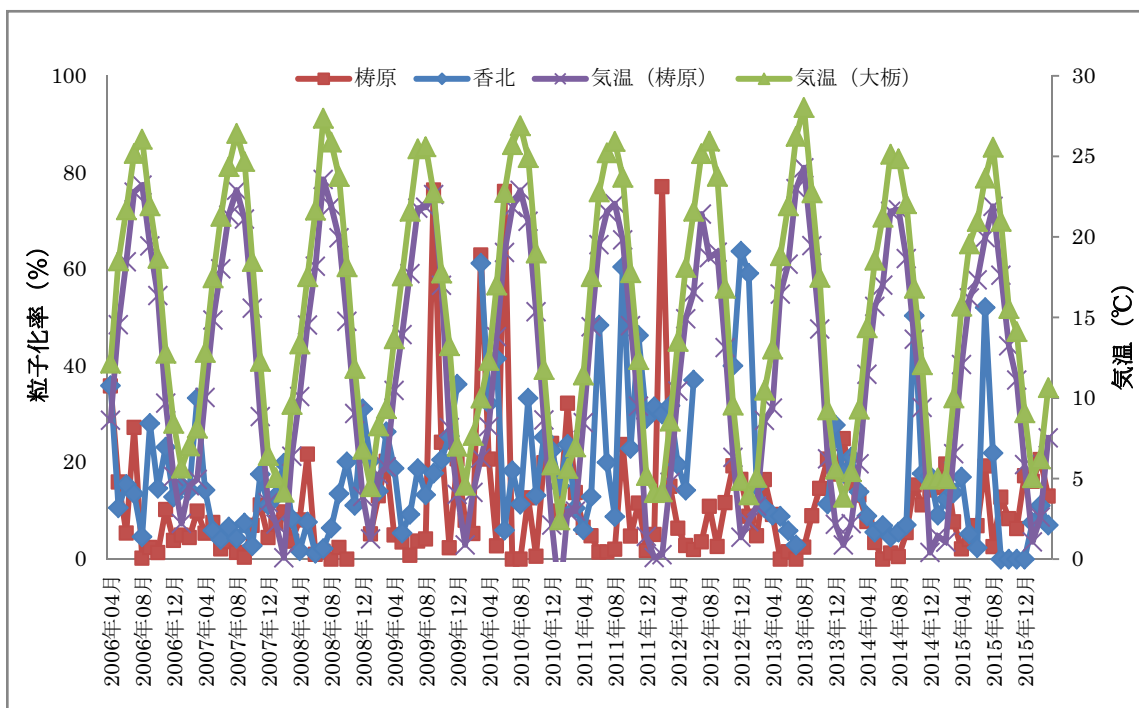


図9 全塩化物の粒子化率の推移

参考文献等

- 1) 環境省：越境大気汚染・酸性雨長期モニタリング報告書（平成20～24年度），2014
- 2) 気象庁：過去の気象データ・ダウンロード，  
<http://www.data.jma.go.jp/gmd/risk/obsdl/index.php>
- 3) 気象庁：日々の天気図 <http://www.data.jma.go.jp/fcd/yoho/hibiten/index.html>
- 4) 気象庁：2009年黄砂観測日および観測地点の表，  
[http://www.data.jma.go.jp/gmd/env/kosahp/kosa\\_table\\_2009.html](http://www.data.jma.go.jp/gmd/env/kosahp/kosa_table_2009.html)
- 5) 坂本武大ら：高知県における酸性雨調査（第14報）乾性沈着の動向について，高知県環境研究センター所報，30，25-38，2013
- 6) 全国環境研協議会酸性雨広域大気汚染調査研究部会：第5次酸性雨全国調査報告書（平成26年度），41，（3），2-37，2016
- 7) 全国環境研協議会酸性雨広域大気汚染調査研究部会：第5次酸性雨全国調査報告書（平成25年度），40，（3），98-142，2015
- 8) 全国環境研協議会酸性雨広域大気汚染調査研究部会：第5次酸性雨全国調査報告書（平成24年度），39，（3），100-146，2014
- 9) 全国環境研協議会酸性雨広域大気汚染調査研究部会：第4次酸性雨全国調査報告書（平成18年度），33，（3），126-196，2008
- 10) 全国環境研協議会酸性雨広域大気汚染調査研究部会：第5次酸性雨全国調査報告書（平成23年度）38，（3），84-126，2013
- 11) 全国環境研協議会酸性雨広域大気汚染調査研究部会：第5次酸性雨全国調査報告書（平成22年度）37，（3），110-158，2012
- 12) 全国環境研協議会酸性雨広域大気汚染調査研究部会：第5次酸性雨全国調査報告書（平成21年度）36，（3），106-146，2011
- 13) 全国環境研協議会酸性雨広域大気汚染調査研究部会：第4次酸性雨全国調査報告書（平成20年度）35，（3），88-138，2010
- 14) 松田貴志ら：久住地域における乾性沈着物中のイオン成分の特性について（2011～2013年度），大分県衛生環境研究センター年報，41，40-49，2013
- 15) 鶴野伊津志ら：九州北部で2014年5月下旬から1週間継続した黄砂期間の硝酸塩の越境輸送のモデル解析，大気環境学会誌，51，（4），181-189，2016
- 16) 米海洋大気庁：NOAA（USA），HYSPLIT MODEL，  
[https://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT\\_traj.php](https://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT_traj.php)