

全国酸性雨調査 (111) - 乾性沈着 (アンモニア濃度のパッシブ法と FP 法比較) -

○山口 高志 (北海道立総合研究機構 エネルギー・環境・地質研究所), 菊地 優也 (福島県環境創造センター), 村野 健太郎 (京都大学), 徳地 直子 (京都大学), 箕浦 宏明 (アジア大気汚染研究センター) [全国環境研協議会 酸性雨広域大気汚染調査研究部会]

【概要】大気中のアンモニアガス(NH<sub>3</sub>)濃度測定法としてフィルターパック法(FP)と小川式パッシブサンプラー法(PS)が用いられているが測定濃度にずれが見られる。これはそれぞれの手法で測定精度に影響する因子(アーティファクト)があるため、FP では NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub> などアンモニウム塩(NH<sub>4</sub><sup>+</sup>)の解離、PS では NH<sub>4</sub><sup>+</sup>の付着である。当部会は NH<sub>3</sub> のより正確な測定法開発を目的としており、両法の比較結果を報告する。

【調査方法】

2017 と 2018 年度調査結果から欠測が多い、もしくは特異的な地点を省いて濃度比などを検討した。比の単位は meq/meq である。

【結果】

・NH<sub>3</sub> 濃度比 (PS/FP) : 表 1 に FP に対する PS の NH<sub>3</sub> 濃度比を示す。地点は上から年平均 NH<sub>3</sub> 濃度の高い順である。PS/FP は 0.6-8.6 とばらつくが、中央値は 3-9 月に 1.0 未満、10-2 月に 1.0 以上となる傾向があった。

NH<sub>4</sub><sup>+</sup>の解離は気温が高いほど大きい一方、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度は冬季に高い傾向である<sup>2)</sup>。これらのことから PS/FP の傾向は 3-9 月は NH<sub>4</sub><sup>+</sup>解離による FP の過大評価、10-2 月は NH<sub>4</sub><sup>+</sup>付着による PS の過大評価を示すと考えられる。このことから夏季には PS が、冬季には FP がより正確な濃度を測定できると考えられる。一方、母子里、豊橋、射水、札幌では (PS/FP) が 2 を超える期間が 12-2 月に多く見られた。

・nssSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>/NH<sub>3</sub> 濃度比 : これについて粒

子の影響を検討するため 2018 年度の NH<sub>3</sub> と非海塩硫酸粒子の濃度比 (nssSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>/NH<sub>3</sub>) と 12-2 月平均 NH<sub>3</sub> 濃度 (FP) と平均気温を検討した (表 2)。母子里、射水、札幌の nssSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>/NH<sub>3</sub> は 1-3 と大きかった。これら地点では冬季は低温や積雪により NH<sub>3</sub> 濃度が 12-39 nmol/m<sup>3</sup> と低いこと合わせて NH<sub>4</sub><sup>+</sup>を含む nssSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>粒子濃度が冬季に高いため、PS の過大評価の度合いが大きくなったと考えられた。

【考察】

NH<sub>3</sub> 濃度が NH<sub>4</sub><sup>+</sup>に対して十分に大きい地点では FP の検証や補正に PS は有効だが、逆の場合には PS の過大評価があり、特に NH<sub>3</sub> 濃度が低い場合にはその度合いが大きくなることが明らかとなった。PS を用いる場合には測定地点の NH<sub>3</sub> と NH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度を考慮すべきだろう。PS の精度向上方法として NH<sub>4</sub><sup>+</sup>のカウンターイオン (SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>など)を測定し、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>付着量の補正も考えられるが、操作は煩雑になる。

今回用いたデータ内で年によって大きく傾向の異なる地点が見られ、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>解離と付着だけでは説明できない誤差もあると考えられる。今後より多くのデータで検討を行う。

- 1) 高橋希望、松田和秀.東京農工大学, 2018
- 2) 全国環境研協議会 酸性雨広域大気汚染調査研究部会.全国環境研会誌 44, no. 3 (2019 年): 74-115.

表 1 FP に対する PS の NH<sub>3</sub> 濃度比 (PS/FP) (上 2017, 下 2018 年度)

地点は上から年平均 NH<sub>3</sub> 濃度が高い順で、1.5 倍以上を網掛け

2017	04月	05月	06月	07月	08月	09月	10月	11月	12月	01月	02月	03月
佐倉	0.77	0.94	0.95	0.80	0.90	0.76	1.03	1.09	0.81	1.11	0.96	0.91
市原	0.84	0.81	0.99	0.90	0.84	0.85	1.06	1.13	0.95	1.11	1.01	0.87
加須	0.79	0.78	0.83	0.92	0.96	1.07	1.01	1.20	1.21	1.33	1.19	0.94
豊橋	1.30	0.97	0.96	0.72	1.04	0.91	0.95	1.25	4.19	3.58	1.85	1.38
射水	0.65	0.61	0.64	0.58	0.73	0.74	0.65	0.80	0.71	0.82	0.99	0.60
札幌北	0.87	0.69	0.69	0.72	0.74	0.66	0.67	0.79	1.54	2.03	2.27	0.87
母子里	1.29	1.09	1.12	0.95	1.54	0.93	1.60	2.95	3.25	8.60	5.32	4.40
中央値	0.84	0.81	0.95	0.80	0.90	0.85	1.01	1.13	1.21	1.33	1.19	0.91

  

2018	04月	05月	06月	07月	08月	09月	10月	11月	12月	01月	02月	03月
佐倉	0.68	0.74	0.70	0.99	1.06	1.16	0.8	0.69	0.71	0.85	0.78	0.65
市原	0.81	0.78	0.85	0.84	0.94	1.41	0.86	0.93	1.09	0.93	1.11	0.89
加須	0.91	1.10	1.01	1.15	0.99	1.09	1.35	1.13	1.16	1.49	1.59	0.86
豊橋	0.62	0.61	0.63	0.58	0.64	0.65	0.64	0.62	0.71	0.65	0.8	0.68
射水	0.70	0.82	0.76	0.78	0.95	0.80	0.91	0.92	2.40	1.74	1.02	
札幌北	0.68	0.74	0.70	0.99	1.06	1.16	0.80	0.69	0.71	0.85	0.78	0.65
母子里	1.17	1.58	1.03	1.86	1.70	1.04	1.80	2.47	4.09	7.17	2.41	4.50
中央値	0.82	0.81	0.96	0.84	0.93	0.88	0.98	1.13	1.21	1.48	1.10	0.89

表 2 FP による nssSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>/NH<sub>3</sub> と 12-2 月平均 NH<sub>3</sub> 濃度 (nmol/m<sup>3</sup>) および平均気温  
\*気温は地点名横括弧内。比の値が大きいほど網掛けが濃い。

2018(気温)	04月	05月	06月	07月	08月	09月	10月	11月	12月	01月	02月	03月	12-2月平均 NH <sub>3</sub> 濃度
佐倉 (4.5)	0.65	0.61	0.39	0.50	0.38	0.35	0.28	0.34	0.32	0.33	0.57	0.51	124.8
市原 (5.1)	0.64	0.64	0.40	0.61	0.50	0.39	0.33	0.33	0.27	0.37	0.46	0.43	165.4
加須 (4.4)	0.41	0.48	0.38	0.51	0.25	0.29	0.26	0.20	0.15	0.26	0.38	0.37	164.3
豊橋 (6.5)	0.59	0.42	0.34	0.36	0.27	0.31	0.28	0.18	0.40	0.60	0.66	0.51	79.1
射水 (3.8)	1.08	0.72	0.51	0.87	0.29	0.34	0.46	0.71	0.78	1.17	1.31	0.95	39.3
札幌 (-2.5)	0.66	0.69	0.62	0.67	0.39	0.35	0.33	0.46	1.39	1.80	1.54	1.32	27.0
母子里 (-8.5)	1.90	1.60	0.99	0.76	0.87	0.67	0.82	1.43	2.51	2.59	2.47	3.22	11.5