

沖縄県南城市における乾性沈着量の推計

友寄喜貴, 嘉手納恒

Estimation of Dry Deposition Flux using an Inferential Method at Nanjo-Oozato, Okinawa

Nobutaka TOMOYOSE and Hisashi KADENA

要旨 : 2008 年度に沖縄県南城市大里にて実施したフィルターパック法による乾性沈着調査結果を用いて、インファレンシャル法(乾性沈着推計ファイル Ver.3-5 を使用)により乾性沈着量を推計した。湿性沈着量についても併せて検討した結果、以下のことが明らかになった。粒子状物質 (nss-SO₄²⁻, NO₃⁻および NH₄⁺) においては、夏季に低く、冬季から春季にかけて高くなる濃度変化がみられ、それに伴い乾性沈着量も同様に変動していた。ガス状物質において、SO₂ では、濃度は夏低冬高の傾向がみられたが、沈着量では変動は小さかった。HNO₃ では、濃度変動に伴い沈着量も変動していた。なお、濃度では SO₂ > HNO₃ であるが、沈着量では SO₂ < HNO₃ であった。NH₃ では、年間を通して(特に夏季に)高濃度であり、沈着量の変動は濃度変動に概ね同調していた。湿性沈着量との比較において、硫酸および硝酸成分では、概ね、湿性沈着 : 乾性沈着 = 7 : 3 の割合であり、夏季には湿性沈着、冬季には乾性沈着の寄与が比較的大きくなる傾向がみられた。アンモニア成分では、ガス状物質の割合が高く、地点周辺の畜産施設からの影響によるものと考えられた。

Key words : 乾性沈着 Dry Deposition, インファレンシャル法 Inferential Method, フィルターパック法 Filter Pack Method, 乾性沈着推計ファイル Estimation Program File for Dry Deposition, 沖縄本島 Okinawa Island

I はじめに

大気中の汚染物質が地表面に到達することを「大気沈着」という。硫黄酸化物(SO_x)や窒素酸化物(NO_x)などの大気汚染物質は、大気中で硫酸や硝酸などの酸性物質に変化する。これら酸性物質の大気沈着は、「酸性沈着(酸性雨)」と呼ばれ、地表面の環境の酸性化を引き起こす。

大気沈着の主な過程には、雨・雪などの降水に伴い地表面に沈着する「湿性沈着」と、非降水時に、ガス・微粒子の状態直接地表面などに沈着する「乾性沈着」がある。乾性沈着の年間沈着量は、湿性沈着のそれに匹敵することが知られており、総沈着量を把握する上でも乾性沈着の評価は重要である。

乾性沈着の評価法には、代理表面法、葉面洗浄法、林内雨・樹幹流法などがあるが、ガス・微粒子の乾性沈着過程は複雑であり、これらの評価法には課題も多い。全国環境研協議会・酸性雨広域大気汚染調査研究部会(以下、「全環研」)では、第3次調査以降(1991年度～)、フィルターパック法(以下、「FP法」)により、乾性沈着(ガス・エアロゾル)成分の大気中濃度を測定し、「インファレンシャル法」により、乾性沈着量を推定している。インファレンシャル法は、気象要素や地表面状態などのパラメータから沈着速度を算出し、乾性沈着量を推計する方法である。この方法は、米国で開発され、乾性沈着モニタリングに適用されている。東アジア酸性雨モニタリングネットワーク(EANET)においても適用

されており、この推計法の当該地域への適用性も検討され、パラメタリゼーションの更新なども行われている¹⁾。

本報では、沖縄県南城市大里(以下、「大里」)における乾性沈着量をインファレンシャル法により推計し、湿性沈着量と合わせて、総沈着量を評価した。

II 調査方法

1. 調査地点の概況

調査地点(大里)を図1に示す。試料採取は、標高約100mの小高い丘の上にある当研究所の2階屋上(地上約8m)にて実施した。周囲にはサトウキビ畑が散在し、南西300mに養鶏場、養豚場等の畜産施設があり、東に小さな集落がある。なお、乾性沈着の推計に用いた地点周辺1km以内の土地利

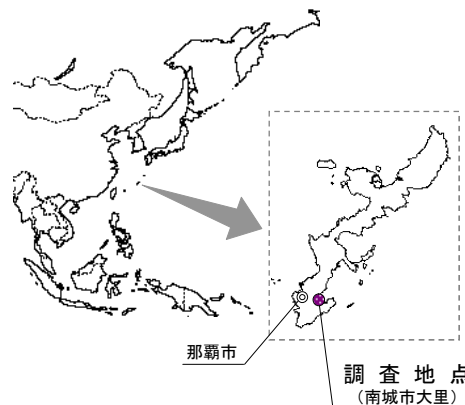


図 1. 調査地点

用割合は、主に農地(63%)、市街地(22%)、森林(12%)である。

2. 調査期間

本報における解析には2008年度のデータを使用した。ただし、全環研の実施する全国調査に参加しており、試料回収を原則月曜日に実施しているため、正確には2008年3月31日~2009年3月30日の調査期間となる²⁾。また、月区切りについても全環研の全国調査に合わせて集計した。

3. 乾性沈着のモニタリング

乾性沈着試料はFP法により、原則2週間毎に採取した。粒子・ガス状物質の大気中濃度は、試料ろ紙の抽出液中濃度、20°Cで補正した採気量などから換算した。

なお、分析方法の詳細については、既報^{3,4)}を参照頂きたい。また、非海塩由来(nss-)SO₄²⁻は、Na⁺をすべて海塩由来としてNa⁺濃度と海塩組成比から海塩由来(ss-)SO₄²⁻濃度について求め、その濃度と総(total-)SO₄²⁻濃度との差をnss-SO₄²⁻濃度とした。

4. 乾性沈着量の推計 (インファレンシャル法)

乾性沈着量は、インファレンシャル法により推計した。インファレンシャル法は、気象要素、地表面状態などから沈着速度を算出し、乾性沈着量を求める方法であり、このモデルは以下の式で表される (F: 沈着面への沈着量, C: 沈着物の大気中濃度, V_d: 沈着速度)。

$$F = C \times V_d$$

したがって、V_dが決定されれば、FP法などにより求めた大気中濃度から、乾性沈着量が求められる。V_dは、大気中から沈着表面までの3つの沈着過程(接地境界層、準層流層、沈着表面相互作用)を、直列につながった3つの抵抗(空気力学的抵抗、準層流抵抗、表面抵抗)として表現する抵抗モデルにより算出される。

V_dの算出は複雑であり、地方自治体などによる乾性沈着量の評価は困難であった。しかしながら、野口ら(2006)によりインファレンシャル法による乾性沈着量推計ファイルが、汎用ソフト(MS Excel)のファイルとして開発され^{5,6)}、同ファイルへ気象データなどのパラメータを入力することにより、V_dが算出できるようになった。

本調査のV_d算出には、この乾性沈着推計ファイル Ver.3-5を用いた⁶⁾。なお、同ファイルは、最新の知見など⁷⁾を基に、現在もパラメタリゼーションの改良が続けられている。

乾性沈着推計ファイルの使用については、全環研調査に準じた⁷⁾。同推計ファイルに入力する気象データは、那覇(気象官署)の1時間値(風速、気温、湿度、日射量、雲量)⁸⁾を用いた。季節は、温量指数と360時間前から120時間前の平均気温(1旬前の旬ごとの平均気温を近似値として用いた)⁹⁾により、同推計ファイルにて自動的に区分した。なお、

沖縄では気温が5°Cを下回ることはなく、季節区分は、春(1~6月)、夏(6~11月)、秋(11~12月)の3区分であった。測定点高さは10m、風速測定点は、気象官署の風速測定高さ(47.7m)を入力し計算を行った。

V_dは沈着表面の状況により異なるため、各表面カテゴリー(市街地、森林地域、農地、草地、水面)毎に、粒子状物質(SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺)およびSO₂、HNO₃、NH₃のV_dをそれぞれ1時間毎に算出し、採取基準日による月平均V_dを求めた。

各表面カテゴリーの月平均V_dと、FP法で測定した粒子状物質(nss-SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺)およびガス状物質(SO₂、HNO₃、NH₃)の月平均濃度の積により、各表面カテゴリーおよび成分ごとに、月間乾性沈着量を算出した。沈着表面には、測定地点周辺の土地利用割合(半径1kmにかかるメッシュ値)で重み付けしてものを用いた。年間沈着量は月間沈着量の合計として算出した。

なお、大気濃度の測定に用いたFP法では、硝酸成分、アンモニウム成分については、粒子およびガス状物質の完全な分別捕集は難しい。そのため、多くの粒子状物質がフィルター上で揮散し、ガス状物質として測定された場合、これらのガス状物質の乾性沈着量は実際より多めに推計されている可能性がある。

III 結果および考察

1. 年間乾性沈着量

粒子状物質(nss-SO₄²⁻、NO₃⁻およびNH₄⁺)およびガス状物質(SO₂、HNO₃およびNH₃)の年間平均加重濃度(C)、年間平均沈着速度(V_d)および年間沈着量(F)を表1に示す。

硫酸成分(nss-SO₄²⁻およびSO₂)および硝酸成分(NO₃⁻およびHNO₃)では、粒子状物質の濃度のほうが、ガス状物質に比較して、濃度が高かったが、沈着速度はガス状物質のほうが大きいため、沈着量はガス状物質が多かった。なお、ガス状物質の濃度ではSO₂>HNO₃であるが、沈着量ではSO₂<HNO₃であった。これは、HNO₃の沈着速度が、SO₂のそれに比べ、大きいことによる。

表 1. 大里における乾性沈着の年間加重平均濃度、沈着速度および年間沈着量

成分	濃度(C) nmol・m ⁻³	沈着速度(V _d) [※] m・day ⁻¹	沈着量(F) mmol・m ⁻² ・year ⁻¹
粒子状物質	nss-SO ₄ ²⁻	44.0	93
	NO ₃ ⁻	26.1	〃
	NH ₄ ⁺	57.0	〃
ガス状物質	SO ₂	19.8	542
	HNO ₃	5.0	3289
	NH ₃	427.6	329

※地点周辺1kmの土地利用割合で重み付けした沈着速度

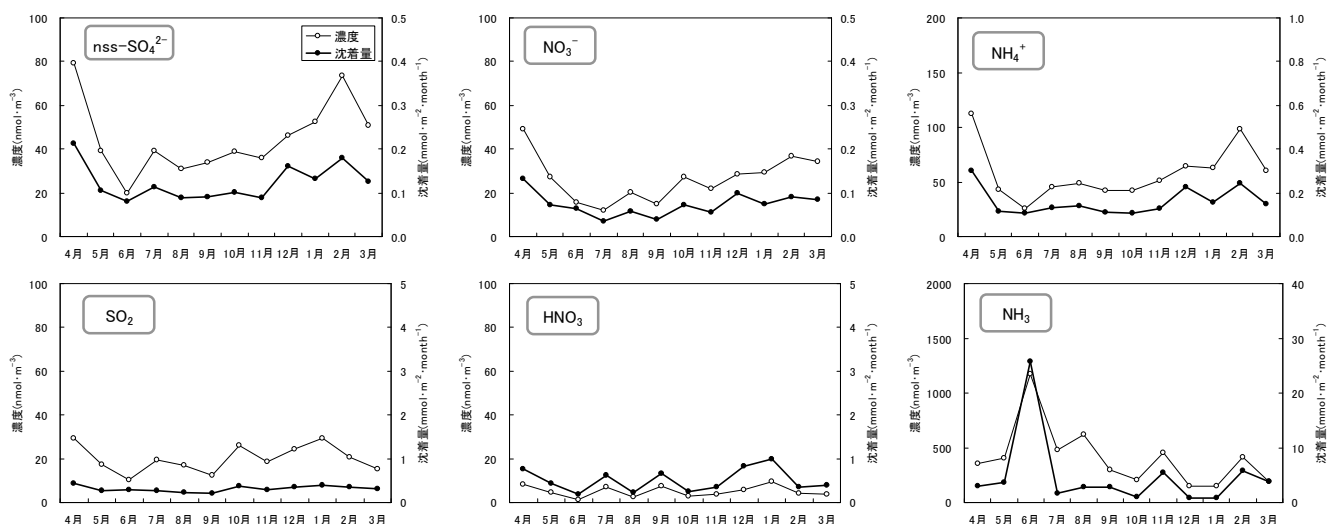
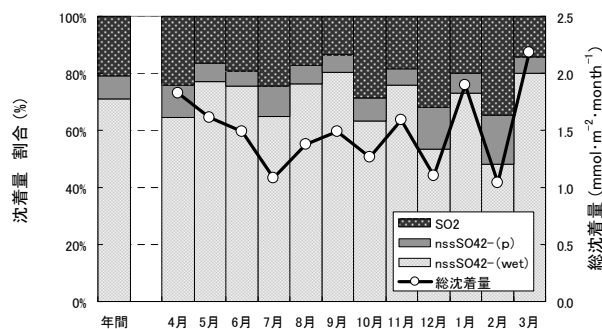
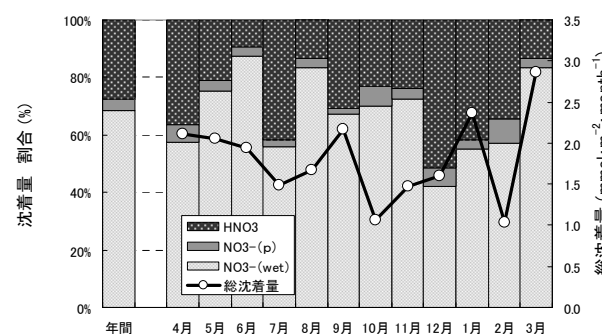


図2. 乾性沈着の経月変動 (硫酸成分：nss-SO₄²⁻およびSO₂, 硝酸成分：NO₃⁻およびHNO₃, アンモニア成分：NH₄⁺およびNH₃)

硫酸成分



硝酸成分



アンモニア成分

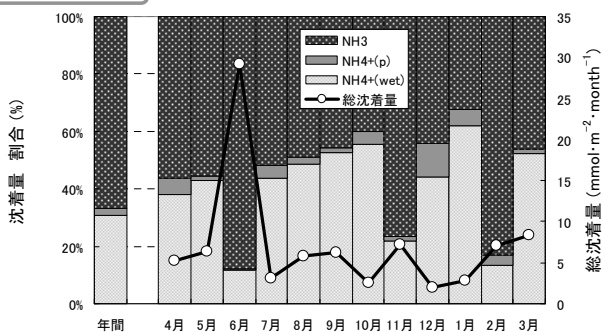


図3. 硫酸、硝酸およびアンモニア成分の湿性および乾性沈着の構成割合 凡例において、(wet)は湿性沈着、(p)は粒子状物質を表す添字である。

アンモニア成分(NH₄⁺およびNH₃)では、ガス状物質のNH₃で濃度および沈着量が大きな値を示した。これらの値は全国データと比較しても、極めて高濃度であり、沈着量も突出している¹⁰⁾。この要因として、地点周辺における畜産施設からの影響が考えられる。

2. 乾性沈着量の季節変動

表1に示した粒子状物質(nss-SO₄²⁻、NO₃⁻およびNH₄⁺)およびガス状物質(SO₂、HNO₃およびNH₃)の濃度および沈着量の経月変動を図2に示す。

粒子状物質では、nss-SO₄²⁻、NO₃⁻およびNH₄⁺ともに、夏季に低く、冬季から春季にかけて高くなる濃度変化がみられ、それに伴い乾性沈着量も同様に変動していた。冬季から春季にかけて高濃度となる要因は、主風向や後方流跡線解析などから、越境大気汚染の影響が大きいものと考えられる^{3, 11)}。

ガス状物質では、SO₂では、濃度は夏低冬高の傾向がみられたが、沈着量では変動は小さかった。HNO₃では、濃度変動に伴い沈着量も変動していた。NH₃では、年間を通して(特に夏季に)高濃度であり、沈着量の変動は濃度変動に概ね同調していた。

3. 湿性および乾性沈着量の比較

続いて、乾性沈着量を湿性沈着量と比較した。大里における湿性および乾性沈着(粒子状およびガス状物質)の構成割合について、その年間および月間の沈着量の構成割合を図3に示した。図3には、総沈着量(湿性+乾性沈着量)の経月変動についても、併せて示した。なお、湿性沈着量は、降水中の成分濃度と降水量の積として算出した。

硫酸成分では、湿性：粒子：ガスの割合は、年間値で71%：8%：21%であった。硝酸成分では、同様に68%：4%：28%

であった。概ね、湿性沈着：乾性沈着＝7：3の割合であり、夏季には湿性沈着、冬季には乾性沈着の寄与が比較的大きくなる傾向がみられた。

アンモニア成分では、湿性：粒子：ガスの割合は、年間値で31%：2%：67%であり、ガス状物質の割合が高かった。これは前述したように地点周辺の畜産施設からの影響によるものと考えられた。

IV まとめ

本研究では、沖縄県南城市大里における2008年度の乾性沈着量について、インファレンシャル法(乾性沈着推計ファイル Ver.3-5 使用)により推計した。湿性沈着量についても併せて検討した結果、以下のことが明らかになった。

- (1) 粒子状物質では、 nss-SO_4^{2-} 、 NO_3^- および NH_4^+ ともに、夏季に低く、冬季から春季にかけて高くなる濃度変化がみられ、それに伴い乾性沈着量も同様に変動していた。
- (2) ガス状物質において、 SO_2 では、濃度は夏低冬高の傾向がみられたが、沈着量では変動は小さかった。 HNO_3 では、濃度変動に伴い沈着量も変動していた。なお、濃度では $\text{SO}_2 > \text{HNO}_3$ であるが、沈着量では $\text{SO}_2 < \text{HNO}_3$ であった。 NH_3 では、年間を通して(特に夏季に)高濃度であり、沈着量の変動は濃度変動に概ね同調していた。
- (3) 湿性沈着量および乾性沈着量を比較した結果、硫酸および硝酸成分では、概ね、湿性沈着：乾性沈着＝7：3の割合であり、夏季には湿性沈着、冬季には乾性沈着の寄与が比較的大きくなる傾向がみられた。アンモニア成分では、ガス状物質の割合が高く、地点周辺の畜産施設からの影響によるものと考えられた。

東シナ海上のバックグラウンド地点であり、比較的清浄な大気環境を有すると考えられる大里においても、硫酸・硝酸成分において、乾性沈着の寄与が総沈着量の30%程度になることが示された。アンモニア成分については、地点周辺の影響が大きい結果となった。

なお、環境省(2009)によると、日本全国のEANET局(東京および落石岬を除く10地点)において、地表面を森林として比較した結果、沖縄県の辺戸岬では、 SO_2 および粒子状物質の乾性沈着量が多い地点のひとつとして挙げられている¹²⁾。また、辺戸岬における硫黄(非海塩由来)および窒素の年間乾性沈着量は、年間総沈着量のそれぞれ56%および43%であり¹²⁾、湿性沈着量に匹敵することも報告されている。

沖縄本島北部の森林地域(通称「ヤンバルの森」)は、世

界有数の亜熱帯降雨林としてノグチゲラなど希少動植物の宝庫とされる。先述したとおり、現時点においても、森林への乾性沈着量が大きいたことが示唆され、その影響が懸念される状況にあるが、沖縄で観測される湿性および乾性沈着は、越境大気汚染の影響が大きいことを考えると、今後、より一層注視していく必要があり、湿性および乾性沈着を併せた包括的な調査が重要であると思われる。

V 参考文献

- 1) 松田和秀(2008) 大気中硫黄および窒素化合物の乾性沈着推計-沈着速度推計法の更新-, 大気環境学会誌, 43: 332-339
- 2) 全国環境研協議会酸性雨調査研究部会(2008) 酸性雨全国調査実施要領
- 3) 嘉手納恒・友寄喜貴(2007) 沖縄県南城市における乾性沈着調査について, 沖縄県衛生環境研究所報, 41: 195-198
- 4) 友寄喜貴・嘉手納恒・渡具知美希子・長嶺弘輝(2007) 沖縄県の農村地域における湿性沈着の経年変化(平成8~18年度), 沖縄県衛生環境研究所報, 41: 85-88
- 5) 野口泉・松田和秀(2006) 乾性沈着量推計ファイルの開発と沈着速度の分布図作成, 第21回全国環境研交流シンポジウム要旨集, 82-87
- 6) 全国環境研協議会酸性雨広域大気汚染調査研究部会(2009), 乾性沈着量推計ファイル(Ver.3-5)
- 7) 全環研酸性雨広域大気汚染調査研究部会(2009) 第4次酸性雨全国調査報告書(平成19年度), 全国環境研学会誌, 34: 投稿中
- 8) 気象庁ホームページ <http://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/index.php>
- 9) 野口泉・布和敖斯尔・高田雅之・濱原和広・高橋英明・玉田克巳(2006) 気温による森林地域のNDVI推計モデルの開発, 北海道環境科学研究センター所報, 32, 43-56
- 10) 全環研酸性雨調査研究部会(2008) 第4次酸性雨全国調査報告書(平成18年度), 全国環境研学会誌, 33: 126-196
- 11) 友寄喜貴・嘉手納恒(2008) 沖縄県南城市における大気および降水中の硫黄化合物の挙動, 沖縄県衛生環境研究所報, 42: 85-89
- 12) 環境省(2009) 酸性雨長期モニタリング報告書(平成15~19年度), pp31-37