

沖縄県南城市における大気中アンモニア濃度の特徴

嘉手納恒・友寄喜貴・城間朝彰・與古田尚子・与儀和夫

Characteristics of Ammonia Concentrations in Ambient Air at Nanjo, Okinawa

Hisashi KADENA, Nobutaka TOMOYOSE, Tomoaki SHIROMA, Naoko YOKOTA and Kazuo YOGI

要旨: 沖縄県南城市大里にて、フィルターパック法と小川式パッシブサンプラーを用いたパッシブ法による大気中アンモニア濃度の測定を実施した。フィルターパック法による全アンモニア濃度 ($\text{NH}_3(\text{g}) + \text{NH}_4^+(\text{p})$) は全国で最も高く、 $\text{NH}_4^+(\text{p})$ に比べ $\text{NH}_3(\text{g})$ の値が突出しており、調査地点が発生源の近傍に位置していることが示唆された。全アンモニア濃度は6～8月の夏季にピークを持つ季節変動がみられた。高濃度時の風向きから、周辺に点在する畜産施設が NH_3 の主な発生源と考えられた。フィルターパック法とパッシブ法の並行測定の結果、フィルターパック法では気温の上昇する夏季に、 $\text{NH}_3(\text{g})$ を30%程度過大評価している可能性が示唆された。

Key words: アンモニア, NH_3 , フィルターパック法, Filter pack method, 小川式パッシブサンプラー法, Ogawa passive sampler method

I はじめに

アンモニア(NH_3)は大気中で塩基性を示すガスであるが、地上に沈着した NH_3 は硝酸化成によって正味1価の酸性物質としてはたらく。さらに、 NH_3 の環境への負荷は、窒素酸化物の沈着と同じく窒素負荷となり、湖沼などの富栄養化を引き起こすことも懸念される。また、 NH_3 は硫酸や硝酸と粒子を形成し、これらの粒子は長距離輸送されることから粒子状アンモニアの挙動は越境汚染の観点からも重要である¹⁾。このように NH_3 は環境中での窒素循環を考える上で重要な物質であるが、国内における NH_3 の定量的な情報は乏しく、その実態把握が望まれている²⁾。

当所では、全国環境研協議会(以下、全環研)による全国酸性雨調査の一環として、平成18年度よりフィルターパック法(以下、FP法)による乾性沈着調査を実施している³⁾。調査地点である南城市大里(以下、大里)はFP法による大気中の全アンモニア濃度(ガス+粒子)の年平均値が、平成18、19年度ともに全国で最も高い地点となっており^{4,5)}、大気中 NH_3 濃度が高い地点である。大里における乾性沈着量の推計結果によると⁶⁾、硫酸および硝酸成分では、総沈着量に占める湿性沈着と乾性沈着の割合が7:3であるのに対し、 NH_3 では同割合が3:7となっている。このように NH_3 では乾性沈着の占める割合が大きく、酸性沈着を評価する上でも大気中 NH_3 濃度を把握しておくことは重要である。

FP法については、安価で扱いも容易なことから国内外の様々な測定ネットワークで用いられているが、粒子を捕集するろ紙上でのアーティファクトの影響が避けら

れない⁷⁾。特に気温の高い本県では、粒子のガス化によるアーティファクトにより、ガスを過大評価していることが懸念される。そこでFP法のアーティファクトの影響を検討するために、平成21年度より小川式パッシブサンプラーを用いたパッシブ法(以下、PS法)による NH_3 の並行測定を実施している。本報では、大里における大気中 NH_3 濃度の特徴について報告する。

II 方法

1. 調査地点

調査地点である南城市(人口4.1万人)は、那覇市の南東約12kmに位置し、東側を中城湾と太平洋に接する。試料採取は、市内の大里に位置する標高約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点在し、南東から南西方向に鶏舎、豚舎および牛舎等の畜産施設があり、調査地点の南西約200mの地点に鶏舎が存在する。

2. 調査期間

FP法による調査は2006年4月に、PS法による調査は2009年6月に開始し、本報では2010年7月採取分までのデータを用いた。

3. 調査方法

試料は全環研の実施要領⁸⁾に基づき、原則2週間毎に採取した。FP法、PS法ともに試料ろ紙を純水で抽出後、イオンクロマトグラフィーを用いて分析を行った。FP法は抽出液中濃度、20℃で補正した採気量より、ガス状アンモニア(以下、 $\text{NH}_3(\text{g})$)および粒子状アンモニア(以下、 $\text{NH}_4^+(\text{p})$)の大気中濃度を算出した。分析法の詳細に

については既報³⁾を参照頂きたい。PS法は抽出液中濃度、暴露時間および採取期間の平均気温よりNH₃(g)の大気中濃度を算出した⁹⁾。気象データは、直近のアメダス局である糸数観測所のデータを用いた。

Ⅲ 結果および考察

1. 全国調査結果との比較

図1に全環研による第4次酸性雨全国調査結果(FP法)^{4,5)}を示す。大里はNH₄⁺(p)に比べNH₃(g)の濃度が非常に高く、平成18,19年度ともに外れ値となっている。全環研ではFP法を評価する際、アーティファクトの影響を考慮し、ガスと粒子を個別に評価するのではなく、総計として評価しており、NH₃についてはNH₃(g)とNH₄⁺(p)とを合わせた全アンモニア濃度として評価している。大里はNH₃(g)濃度が非常に高いため、全アンモニア濃度も全国で最も高い地点である。

NH₃(g)は乾性沈着しやすいガスで、大気に放出されたNH₃の4割強がNH₃(g)のまま乾性沈着し、4割弱がNH₄⁺に変換後、湿性沈着する。NH₃(g)の乾性沈着は発生源近傍でその大部分が沈着することから¹⁰⁾、NH₄⁺(p)濃度に比べNH₃(g)濃度が非常に高い大里は、近傍の発生源の影響を受けていると推測される。県内のバックグラウンド地点と考えられる辺戸岬では、NH₄⁺(p)とNH₃(g)がほぼ同じ割合であることから、大里が近傍の発生源の影響を強く受けている地点であることが示唆される。

2. NH₃の季節変動

図2にFP法による全アンモニア濃度と平均気温の季節変動を示す。大里では6~8月の夏季に全アンモニア濃度のピークがみられる。辺戸岬では同様の季節変動はみられず^{11,12,13)}、大里特有の季節変動であった。図3に全

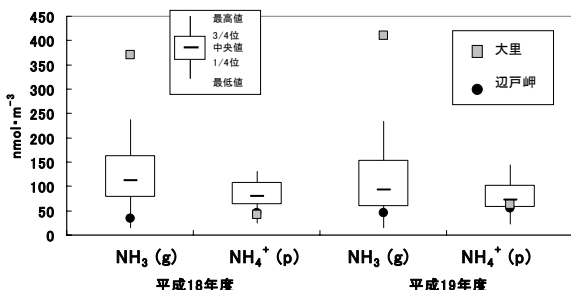


図1. 全国ならびに沖縄島内の2地点におけるFP法によるNH₃(g)およびNH₄⁺(p)の測定結果。平成18年度および平成19年度、第4次酸性雨全国調査結果^{4,5)}より作図(有効測定地点のみ、平成18年度26地点、平成19年度22地点)。

アンモニア濃度の高濃度側25%(75パーセンタイル値以上)および低濃度側25%(25パーセンタイル値以下)における風向の出現頻度を示す。高濃度時には畜産施設の点在する南側からの風向が、低濃度時には反対の北寄りの風向が主であった。したがって、大里で観測されるNH₃の主な発生源としては、周辺に点在する畜舎と考えられ、また、畜舎との位置関係から夏場に風下になり、夏場の高い気温、弱い風などの条件と相まって夏場に高濃度のNH₃が観測される現象の原因と考えられる。

3. FP法とPS法の並行測定

図4にFP法とPS法の並行測定の結果を示す。NH₃(g)はFP法とPS法で概ね同じような濃度変動を示しているものの、夏季の高濃度時には両者の値に差がみられた。FP法的全アンモニア濃度に占めるNH₄⁺(p)の割合は

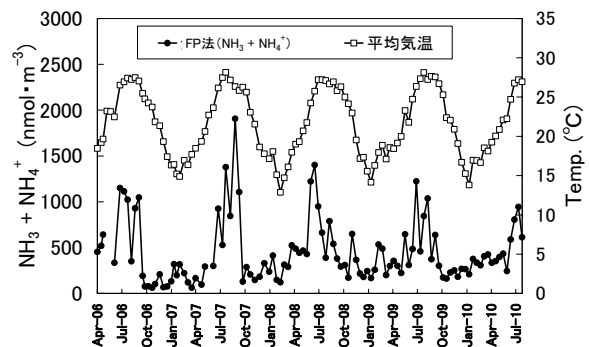


図2. 大里におけるFP法による全アンモニア濃度(NH₃(g)+NH₄⁺(p))と平均気温(サンプリング期間毎の平均気温)の季節変動(2006年4月~2010年7月)。

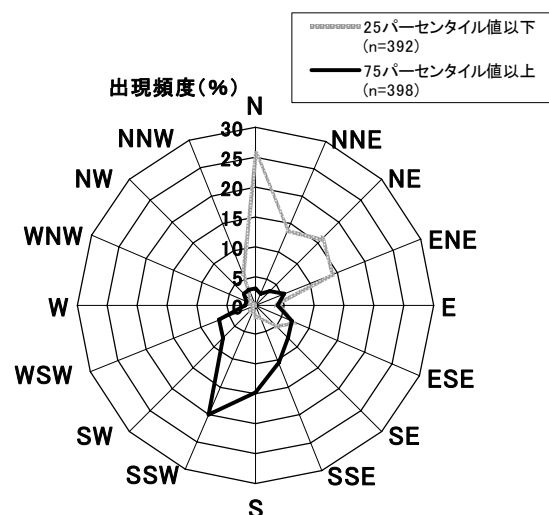


図3. 大里における全アンモニア濃度の高濃度側25%(75パーセンタイル値以上)および低濃度側25%(25パーセンタイル値以下)における風向の出現頻度(2006年4月~2010年7月)。

NH₃(g)に比べて低く、特に夏季においてその割合は10%未満となっていた。図5にFP法とPS法によるNH₃(g)濃度比(FP法/PS法)と平均気温の関係を示す。気温の上昇する夏季にはPS法に比べFP法の方が高い値を示しており、FP法では夏季にNH₃(g)を30%程度過大評価している可能性が示唆された。並行測定実施期間におけるFP法の全アンモニア濃度に占めるNH₄⁺(p)の割合は平均で約10%となっていた。PS法はNH₃(g)濃度を、FP法は全アンモニア濃度を比較的精度よく得られることが示唆されている⁷⁾。このことから、PS法の値をNH₃(g)の値、FP法の全アンモニア濃度とPS法の差をNH₄⁺(p)の値として、アーティファクトの影響がない場合のNH₃(g)およびNH₄⁺(p)を推計した。その結果、全アンモニア濃度に占めるNH₄⁺(p)の割合は平均で約20%となり、FP法との差約10%がアーティファクトの影響と考えられた。全体に占めるアーティファクトの影響は10%程度と小さいが、NH₄⁺(p)としては、その約50%がNH₃(g)にガス化して観測されていることが示唆された。大里における乾性沈着量の推計結果では⁸⁾NH₄⁺(p)に比べNH₃(g)の沈着速度が大きく、乾性沈着量の推計にアーティファクトがどの程度寄与しているのか今後の検討課題である。また、大里ではアーティファクトの影響を考慮

してもNH₃(g)の占める割合が高いことから、大里が近傍のNH₃発生源からの影響を強く受けている地点であることが示唆される。

IV まとめ

沖縄県南城市大里においてFP法およびPS法による、大気中NH₃濃度の測定を実施したところ、以下のことが明らかになった。

1. 大里のNH₃(g)濃度は、全国でも突出しており、NH₃(g)濃度がNH₄⁺(p)濃度に比べ非常に高いことから、近傍の発生源の影響を強く受けている地点であることが示唆された。
2. FP法による全アンモニア濃度には6月～8月の夏季にピークを持つ季節変動がみられた。高濃度時および低濃度時の風向きから、大里で観測されるNH₃の主な発生源としては、周辺に点在する畜舎と考えられ、また、畜舎との位置関係から夏場に風下になり、夏場の高い気温、弱い風などの条件と相まって夏場に高濃度のNH₃が観測される現象の原因と考えられた。
3. FP法とPS法による並行測定の結果、FP法では気温の上昇する夏季にはNH₃(g)を30%程度過大評価している可能性が示唆された。
4. PS法の値をNH₃(g)の値、FP法の全アンモニア濃度とPS法の差をNH₄⁺(p)の値と仮定し、アーティファクトの影響を検討した結果、全アンモニア濃度に対するアーティファクトの影響は平均で10%程度であった。全体に占めるアーティファクトの影響は10%程度と小さいが、NH₄⁺(p)としては、その約50%がNH₃(g)にガス化して観測されていることが示唆された。

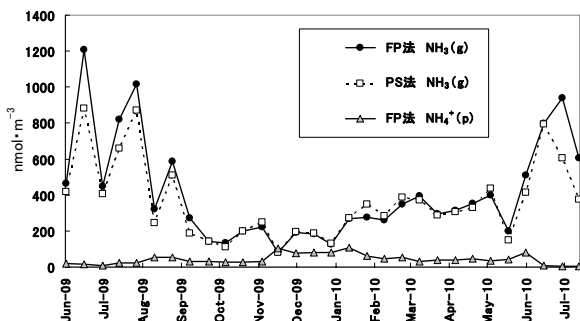


図4. 大里におけるFP法(NH₃(g)およびNH₄⁺(p))とPS法(NH₃(g))の並行測定結果(2009年6月～2010年7月)。

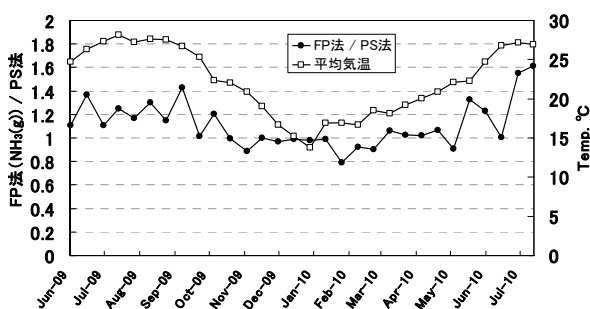


図5. FP法とPS法によるNH₃(g)濃度比(FP法/PS法)と平均気温の関係(2009年6月～2010年7月)。

V 参考文献

- 1) 村野健太郎(2003) 欧米での酸性雨問題の動向とアンモニア研究の進展. 資源環境対策, 39(13): 47-52.
- 2) 林健太郎(2007) 人間活動に伴う窒素負荷におけるアンモニアの重要性. 第48回大気環境学会年会講演要旨集, pp. 240-243.
- 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) 全国環境研協議会(2008) 第4次酸性雨全国調査報告書(平成18年度). 全国環境研会誌, 33(3): 126-196
- 5) 全国環境研協議会(2009) 第4次酸性雨全国調査報

- 告書(平成19年度)(1). 全国環境研究会誌, 34(3): 193-223.
- 6) 友寄喜貴・嘉手納恒(2009) 沖縄県南城市における乾性沈着量の推計. 沖縄県衛生環境研究所報, 43: 197-200.
- 7) 野口泉(2007) ガス状および粒子状アンモニア捕集測定方法(拡散でニューダ法, フィルターパック法およびパッシブ法). 第48回大気環境学会年会講演要旨集, pp. 244-245.
- 8) 全国環境研協議会・酸性雨広域大気汚染調査研究部会(2010). 酸性雨全国調査実施要領.
- 9) 株式会社 小川商会(2010年)
<<http://ogawajapan.com/nodo-nh3.html>>. 2010年9月アクセス.
- 10) 林健太郎(2003) 大気を介したアンモニア, アンモニウムイオンの循環. 資源環境対策, 39(13): 53-59.
- 11) Network Center for EANET(2007) Acid Deposition Monitoring Network in East Asia (EANET) Data Report 2006, 131-172.
- 12) Network Center for EANET(2008) Acid Deposition Monitoring Network in East Asia (EANET) Data Report 2007, 129-170.
- 13) Network Center for EANET(2009) Acid Deposition Monitoring Network in East Asia (EANET) Data Report 2008, 145-204.