

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)

友寄 喜貴・嘉手納 恒・渡具知美希子¹⁾・長嶺 弘輝¹⁾

Temporal Trends (FY1996-FY2006) in Wet Deposition at Rural site in Okinawa Prefecture

Nobutaka TOMOYOSE, Hisashi KADENA, Mikiko TOGUCHI and Koki NAGAMINE

Abstract: Temporal trends of pH (or H⁺), non-sea-salt(nss)-SO₄²⁻, NO₃⁻, NH₄⁺ and nss-Ca²⁺ in precipitation were analyzed using the wet-only sampled monitoring data for FY1996 – FY2006 (Apr.–Mar.) at a rural site, Nanjo-Oozato, in Okinawa Prefecture. It was found that the annual volume-weighted mean pH value tended to decrease and the annual depositions of H⁺ tended to increase since around FY1998. The annual volume-weighted mean concentrations and the annual depositions of nss-SO₄²⁻, NO₃⁻ and NH₄⁺ had showed increasing trends since around FY2000, whereas for nss-Ca²⁺ the similar increasing trends were not observed during the period of interest. The annual depositions of effective H⁺ (H_{eff}⁺) and total inorganic nitrogen (ΣN) tended to increase, which reflected H⁺, NO₃⁻ and NH₄⁺ trends.

Key Words: 湿性沈着 Wet deposition, 経年変化 Temporal trend, 農村地域 Rural site, 沖縄本島 Okinawa Island

I はじめに

近年、東アジア地区において、急激な経済発展に伴い、硫黄酸化物や窒素酸化物等の放出量が増大している。これらの酸化物は光化学反応等により硫酸や硝酸に変化し、雲中に取り込まれたり、降雨に溶けたりすることにより湿性沈着(酸性雨)として地上に降下し、生態系や住環境に悪影響を及ぼすことになる。湿性沈着は、原因物質が長い距離にわたって輸送され、その影響が発生原因国内にとどまらず、国境を越えて広がる恐れがあることから、地球環境問題のひとつと位置づけられている。

当所では、酸性沈着の実態を把握するために、南城市大里(旧大里村)にある当所屋上に降水試料捕集装置を設置し、酸性雨調査を実施してきた。降水量や成分濃度等は、季節変動や年変動が大きいため、長期的モニタリングが必要である。既報¹⁾では、平成8~13年度の調査結果を基に、南城市大里における湿性沈着の経年変化や成分濃度の特徴等について報告した。本報では、さらに5年間の調査結果を追加して、湿性沈着の経年変化を解析したので報告する。

II 調査方法

1. 調査地点の概況

調査地点(南城市大里(旧大里村))を図-1に示す(以下、南城市大里の調査地点を「大里」と略す。)。調査は、標高約100mの小高い丘の上にある当所の2階屋上(地上約8m)に降水試料捕集装置を設置して実施した。周囲にはサトウキビ畑が散在し、南西300mに養鶏場、養豚場等があり、東に小さな集落がある。最も近い海岸線からは南西に約1.8km離れている。

環境省の酸性雨調査では、測定局をUrban(都市)、Rural(田園・郊外)、Remote(遠隔)等と分類している。大里は農村・郊外地域であり、同分類に従うとRural局に該当すると考えられる。

なお、南城市は、平成18年1月1日に1町3村の合併により誕生した人口約4万人の小都市であり、西北西約9kmには県都の那覇市(人口約32万人)がある。

2. 試料捕集および分析方法

湿性沈着試料は、降水試料捕集装置として降水時開放型捕集装置(Wet-onlyサンプラー)を用いて原則1週間毎に捕集した。なお、平成16年8月に捕集装置を更新した。更新後は試料回収時までの冷蔵保存が可能となった。

降水量は試料量と捕集口面積から算出した。オーバーフロー等によ

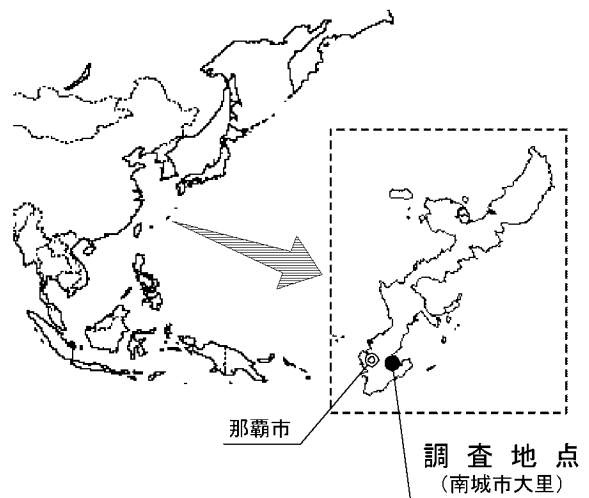


図-1 調査地点

¹⁾ 現 中央保健所

り、試料量が不明の場合は近接アメダス局等のデータを代用した。pHはガラス電極法、導電率は導電率計、イオン成分はイオンクロマトグラフ法により、陰イオン(Cl⁻, NO₃⁻およびSO₄²⁻)および陽イオン(Na⁺, NH₄⁺, K⁺, Mg²⁺およびCa²⁺)を測定した。なお、分析方法は「湿性沈着モニタリング手引き書³⁾(以下、「手引き書」と略す。)」に準じた。

測定値の信頼性は、手引き書に従い、イオンバランス(R₁)および電気伝導率バランス(R₂)の2つの検定方法を用い、評価した。R₁またはR₂の許容範囲を外れた場合、試料量の許す限り、再分析を実施した。

なお、平成15年8月の台風襲来により、降水試料捕集装置が故障した。その後、平成16年8月に同装置を更新するまでの間、常時開放・ろ過無しで、バルク捕集した(デポジットゲージ法に類似)。同期間の試料は、乾性沈着(粒子状およびガス状成分)の一部が含まれることや、蒸発損失による影響が考えられることから、解析においては参考値として扱った。

一般に、Wet-only試料とバルク(ろ過式)試料を比較した場合、Hを除けば、乾性沈着の一部を含むバルク(ろ過式)試料における成分濃度が高くなる傾向があることが知られている³⁾。本調査において参考値とした期間は、ろ過無しでバルク捕集したため、バルク(ろ過式)試料より、さらに高い成分濃度を示していることが予想される。

III 結果および考察

1. 濃度の経年変化

本報告での調査期間中、平成16年8月に捕集装置を更新した。本来ならば、更新前後の装置で並行試験等を実施し、捕集装置の違いによるデータの差異を検証した後、経年変化について検討すべきである。しかしながら、装置故障による更新であり、並行試験を実施できなかったため、本報告では捕集装置の違いによる差異は小さいものと仮定して経年変化を検討した。

平成8～18年度の11年間におけるpHおよび非海塩性イオン(nss-SO₄²⁻, NO₃⁻, NH₄⁺およびnss-Ca²⁺)の濃度について、経年変化を図-2に示す。ここで、「nss」は「非海塩性(non-sea-salt)」を表し、海塩性イオン(Na⁺をすべて海塩由来として算出)を差し引いたことを示す。また、pHおよびイオン成分濃度は年間加重平均値として示す。図中の回帰曲線は、酸性雨対策検討会(2004)⁴⁾に倣い、3次回帰を用いた。なお、平成15および16年度のpHおよび非海塩性イオン濃度の年間値は、前述のとおり参考値として扱い、グラフ上では白抜きで示し、回帰曲線の計算には用いなかった。

pHは、4.94～5.77(加重平均 5.40)の範囲にあり、平成10年度頃から年々低下傾向がみられ、特に最近2年間の低下が顕著であった。ただし、平成17年度の全環研全国調査結果(以下、「全国調査」と略す。)と比較すると、全国61地点で2番目に高い値であった⁵⁾。

なお、pHの経年変化を示したグラフには、pAiを併せて示した。pAiとは、雨水に溶け込んだ硫酸や硝酸が塩基性成分による中和を全く受けなかったときのpHに相当する値であり、pAi=-logAiとして求められる(Ai

(初期酸度)=[nss-SO₄²⁻]+[NO₃⁻]。ここで、[]はその中に書かれたイオン種の当量濃度(eq L⁻¹)を表す。pAiの経年変化は、後述するnss-SO₄²⁻とNO₃⁻の濃度変動を反映したように、平成12年度頃から年々低下する傾向がみられている。しかしながら、平成17年度のpAiが4.5程度ということは、全国調査におけるpHの全国平均値4.58⁵⁾とほぼ同程度である。これは、大里における降水のpHは、塩基性成分による中和が全く無かったと仮定した場合でも、全国平均レベルまでしか低下しないことを表しており、全国と比較して酸性成分の濃度が低いことを表していると考えられる。

降水の酸性化の原因となる主要な酸性成分(nss-SO₄²⁻およびNO₃⁻)については、次のとおりである。

nss-SO₄²⁻濃度は、12～23 μeq L⁻¹(加重平均 16 μeq L⁻¹)の範囲にあった。平成12年度頃まで、若干の低下傾向を示していたが、平成13年度以降は増加傾向に転じ、最近2年間は20 μeq L⁻¹を超える傾向にあった。

NO₃⁻濃度は、5～11 μeq L⁻¹(同 7 μeq L⁻¹)の範囲にあった。平成11年度頃までは横ばいであったが、平成12年度以降は年々微増する傾向にあり、平成18年度は10 μeq L⁻¹に達した。

nss-SO₄²⁻およびNO₃⁻濃度は、近年、増加傾向にあるが、平成17年度の全国調査と比較すると、全国62地点中、それぞれ3番目および最も低い値であった⁵⁾。

降水の酸性化を抑制する主要な塩基性成分(NH₄⁺およびnss-Ca²⁺)は、次のとおりであった。

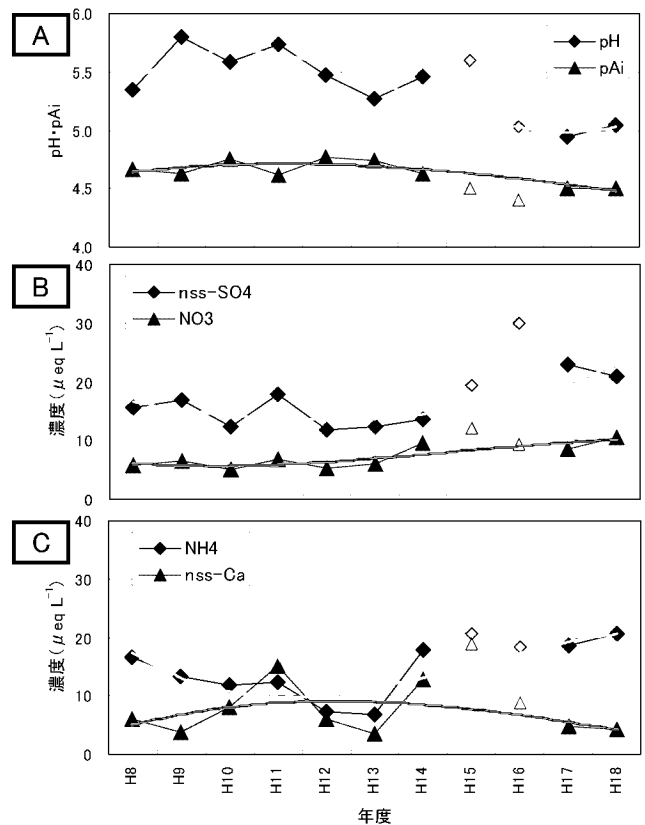


図-2 pH および主要イオン成分濃度の経年変化 (A) pH および pAi, (B) nss-SO₄²⁻ および NO₃⁻, (C) NH₄⁺ および nss-Ca²⁺

NH₄⁺濃度は、7~21 μeq L⁻¹ (同 14 μeq L⁻¹)の範囲にあった。平成13年度頃までは低下傾向を示していたが、その後、増加傾向に転じ、平成18年度には20 μeq L⁻¹に達した。

nss-Ca²⁺濃度は、4~15 μeq L⁻¹ (同 7 μeq L⁻¹)の範囲にあった。変動傾向は明確でないが、nss-SO₄²⁻、NO₃⁻およびNH₄⁺のような増加傾向は認められなかった。最近2年間は、5 μeq L⁻¹以下で推移していた。

NH₄⁺およびnss-Ca²⁺濃度は、平成17年度の全国調査と比較すると、全国62地点中、それぞれ16番目および6番目に低い値であった⁵⁾。酸性成分に比較して高い順位であり、酸性成分の濃度の割に、塩基性成分の濃度が高いことが伺えた。

降水中のpHは、nss-SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺およびnss-Ca²⁺のバランスでほぼ決定すると考えられる。①酸性成分のnss-SO₄²⁻およびNO₃⁻が増加傾向にあること、②塩基性成分のうち、NH₄⁺は増加傾向にあるが、nss-Ca²⁺では増加傾向は認められなかったことから、大里の降水でみられたpHの低下傾向は、①の増加傾向に比較して、②の増加が少ないため、H⁺が増加する方向に推移した結果であると考えられた。

2. 沈着量の経年変化

図-3に、主要イオン成分の年間沈着量について経年変化を示す。沈着量は濃度と降水量の積で算出されるため、降水量についても併せて示した。参考値や回帰曲線については、図-2と同様である。

降水量は、1,660~2,700 mm year⁻¹(算術平均 2,170 mm year⁻¹)の範囲にあったが、変動の傾向は明確でなかった。平成17年度の全国調査との比較によると、全国62地点中7番目に多い値であった⁵⁾。

一方、主要イオン成分の沈着量の経年変化は、降水量の変動とはほとんど一致せず、濃度変動を概ね反映するような傾向を示した。

nss-SO₄²⁻沈着量は、平成14年度頃まで減少傾向であったが、その後、急激な増加傾向に転じていた。

NO₃⁻沈着量は、平成11年度頃まではほぼ横ばいであったが、平成12年度以降は年々微増する傾向がみられた。

NH₄⁺沈着量は、平成13年度頃までは減少傾向を示していたが、その後、増加傾向に転じていた。

nss-Ca²⁺沈着量の変動傾向は明確でないが、nss-SO₄²⁻、NO₃⁻およびNH₄⁺のような増加傾向は認められなかった。

なお、全国平均⁶⁾に比較して、降水量は多いが、成分濃度が低いいため、NH₄⁺を除き、nss-SO₄²⁻、NO₃⁻およびnss-Ca²⁺の沈着量は全国平均以下であった。

これらの酸-塩基のバランスで決定されると考えられるH⁺沈着量は、平成11年度頃まではほぼ横ばいであったが、平成12年度以降は年々増加する傾向がみられ、最近10年間で約3倍増となっていた。ただし、全国平均値と比較すると少ない値であった⁵⁾。

次に、NH₄⁺の土壌や湖沼への影響を考慮した沈着量について検討した。NH₄⁺は降水の中では酸を中和し、降水の酸性化を抑制する方向へ働くが、いったん地表に降り注ぐと、土壌の酸性化や湖沼の富栄養化を進行させる方向に働く。潜在水素イオン(H_{eff}=[H⁺]-2[NH₄⁺])は土壌の酸性化の、全無機態窒素(ΣN=[NO₃⁻]+[NH₄⁺])は湖沼の富栄養化の指標として用いられている⁷⁾。ここで、{}はその中に書かれたイオン種の当量沈着量を示す。大里におけるH_{eff}およびΣNの沈着量を図-4に示した。H_{eff}およびΣNともに、平成11年度頃までは減少傾向を示していたが、平成12年度以降は年々増加する傾向がみられた。平成17年度の全国調査と比較すると、大きな沈着量ではないが⁸⁾、沖縄の土壌は、酸性化に対する耐性がグループ弱(耐性が低い)に分類されており(酸性

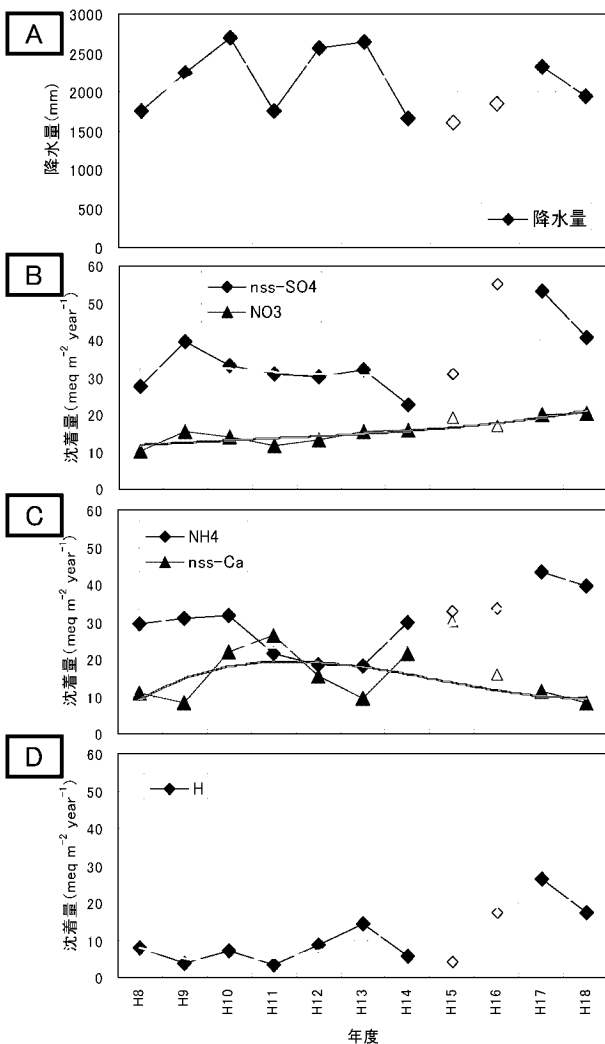


図-3 降水量および主要イオン成分沈着量の経年変化 (A)降水量, (B)nss-SO₄²⁻およびNO₃⁻沈着量, (C)NH₄⁺およびnss-Ca²⁺沈着量, (D)H⁺沈着量

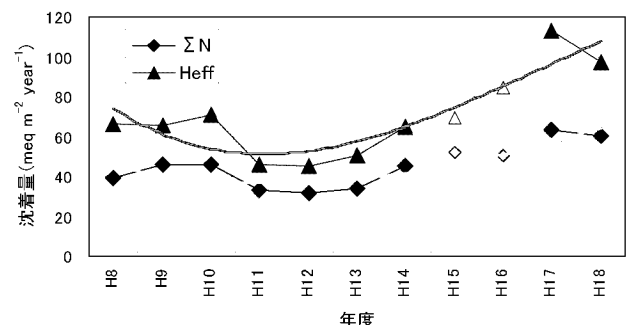


図-4 H_{eff}およびΣNの経年変化

雨の土壌への影響予察図(環境庁監修, 1983)より抜粋)⁴⁾, NH_4^- の挙動およびその環境への影響について, 今後さらに注視していく必要があると考えられる。

IV まとめ

Wet-onlyサンプラーを用いて捕集した降水試料について, 平成8～18年度の11年間における濃度および沈着量の経年変化を解析した結果, 以下のことが明らかになった。

①pHは, 平成10年度頃から年々低下傾向がみられ, 特に最近2年間の低下が顕著であった。ただし, pAi等の指標から, 全国と比べ酸性化の程度は小さいと考えられた。

②nss- SO_4^{2-} , NO_3^- および NH_4^- の濃度および沈着量は, 平成12年度頃から増加傾向がみられた。 H_2SO_4 および ΣN でも, 同様な増加傾向を示した。一方, nss- Ca^{2+} では増加傾向は認められなかった。

沖縄県の農村地域における降水の酸性化は, 日本全国のそれと比べて, それほど進行していないが, 近年, 酸性成分が増加傾向にあり, pHの低下も観測されている。島嶼県であり, 島内に大規模な発生源を持たない沖縄本島において, 酸性化が年々進行している原因としては, 中国大陸からの越境大気汚染の増加が推察される。しかしながら, 酸性成分が増加に転じた平成12年度頃以降, その傾向を把握するのに重要な年度が装置故障により参考値となったことを含め, 降水捕集装置の更新による影響も否定出来ないことから, 酸性成分の明らかな増加傾向として認めるには, データのさらなる蓄積が求められる。

また, NH_4^- についても増加傾向にあると考えられる。 NH_4^- が増加する原因としては, ①調査地点周辺で発生する NH_3 の増加(地域的汚染), ② SO_4^{2-} や NO_3^- の対イオンとして飛来する越境大気汚染の増加などが考えられる。今回の解析からは, 地域的, 越境的な汚染のどちらの寄与が大きいかは不明であり, 今後の検討課題のひとつである。さらに, 湖沼の富栄養化や土壌の酸性化など, NH_4^- の悪影響を念頭に置いた調査も進めていくことが重要であると考えられる。

V 参考文献

- 1) 友寄喜貴・与儀和夫・長嶺弘輝(2003) 沖縄県大里村における湿性沈着調査, 沖縄県衛生環境研究所報 No.37:47-50
- 2) 環境庁大気規制課(1998) 湿性沈着モニタリング手引書
- 3) Aikawa, M., Hiraki, T., Tamaki, M., Shoga, M. (2003) Difference between filtering-type bulk and wet-only data sets based on site classification, Atmospheric Environment 37:2597-2603
- 4) 酸性雨対策検討会(2004) 酸性雨対策調査総合とりまとめ報告書: 10-328
- 5) 全環研酸性雨調査研究部会(2007) 第4次酸性雨全国調査報告書(平成17年度), 全国環境研会誌 Vol.32 No.3:3-31