

# 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

友寄喜貴, 嘉手納恒

## Study on Non-sea-salt Sulfate and Sulfur Dioxide in Wet and Dry Deposition at Nanjo-Oozato, Okinawa

Nobutaka TOMOYOSE and Hisashi KADENA

**要旨** : 2007 年度に沖縄県南城市大里にて実施した湿性および乾性沈着調査結果を用いて, 大気および降水中の SO<sub>2</sub> および nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の挙動について検討した結果, 次のことが明らかになった. 大里における nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(wet), nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p), および SO<sub>2</sub>(g) 年平均濃度は, それぞれ 6.8 μmol・L<sup>-1</sup>, 46.6 nmol・m<sup>-3</sup> および 24.6 nmol・m<sup>-3</sup> であった. これらの濃度はアジア大陸側からの移流が主となる 10~3 月に高くなる季節変動を示し, 越境大気汚染の影響が示唆された. 「nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(wet)沈着量」を従属変数, 「nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p)濃度×降水量」および「SO<sub>2</sub>(g)濃度×降水量」を説明変数として重回帰分析を行った結果, 「nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(wet)沈着量」と「nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p)濃度×降水量」の関係式が得られた. なお, 「SO<sub>2</sub>(g)濃度×降水量」は説明変数から除外された. この関係式から, nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(wet)沈着量は, rainout 過程で雲中に取り込まれた nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>に加え, washout 過程で降水時に大気中の粒子状 nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>を取り込んだ結果であり, 「nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p)濃度×降水量」が大きいほど, washout の寄与が大きくなることが示唆された.

**Abstract** : Non-sea-salt(nss)-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> and SO<sub>2</sub> in wet and dry deposition were analyzed from Apr. 2007 to Mar. 2008 at Nanjo-Oozato, Okinawa. Annual average concentrations of nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(wet), nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p) and SO<sub>2</sub>(g) were 6.8 μmol・L<sup>-1</sup>, 46.6 and 24.6 nmol・m<sup>-3</sup>, respectively. These concentrations were relatively high from Oct. to Mar., which suggested the influence of transboundary air pollution from Asian continent. “Deposition of nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(wet)” was positively correlated with “Concentration of nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p) × Precipitation”, which suggested that the contribution of washout depended on the concentrations of nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p) and precipitation.

**Key words** : 湿性沈着 Wet deposition, 乾性沈着 Dry deposition, 二酸化硫黄 SO<sub>2</sub>, 非海塩由来硫酸イオン nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, 沖縄本島 Okinawa Island

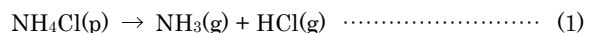
### I はじめに

酸性雨とは, 硫黄酸化物(SO<sub>x</sub>)や窒素酸化物(NO<sub>x</sub>)などの大気汚染物質が硫酸や硝酸などに変化し, 雲を作っている水滴に溶け込んで雨や雪などを酸性化させる現象である. 雨・雪・霧などの降水に伴い地表面などに沈着する現象を「湿性沈着」といい, 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現象を「乾性沈着」と呼ぶ. 現在では, 湿性沈着と乾性沈着を合わせた沈着過程が酸性化される場合に「酸性沈着(酸性雨)」と定義されている.

当研究所では, 酸性沈着の実態を把握するために, 南城市大里(旧大里村;以下,「大里」という.)にある当所屋上にて, 降水時開放型捕集装置(Wet-only サンプラー)を用いた湿性沈着調査, および 4 段ろ紙フィルターパック法(以下,「FP法」という.)による乾性沈着調査を実施している.

FP法では, 粒子状成分(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>, Mg<sup>2+</sup>および Ca<sup>2+</sup>), ガス状成分(SO<sub>2</sub>, HNO<sub>3</sub>, HCl および NH<sub>3</sub>など)の測定が可能である. しかしながら, ろ紙上にて以下

の副反応(アーティファクト)が起こるため, 粒子状成分の NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, Cl<sup>-</sup>, および NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, ガス状成分の HNO<sub>3</sub>, HCl および NH<sub>3</sub>の測定値については誤差が生じる.



ここで, ()内の添字は, p: 粒子状成分, g: ガス状成分を表す. 気温が高い, または海塩の影響の大きい地点ほど, アーティファクトの影響が大きくなると考えられる<sup>1)</sup>. 沖縄は両条件に合致するため, これらの影響を十分に検討する必要がある, 評価が複雑となる.

一方, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p)および SO<sub>2</sub>(g)間では, アーティファクトがほとんどないため, 乾性沈着中の SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p)および SO<sub>2</sub>(g)については, 直接的に検討することが可能であると考えられる.

近年, 東アジア地域で急激な経済発展に伴い, 硫黄酸化物等の放出量が增大している<sup>2)</sup>ことから, 大気および降水における SO<sub>2</sub> および非海塩由来(nss)-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の挙動を把握する

ことは重要であると考えられる。

これまで、大里における湿性および乾性沈着については、いくつかの報告<sup>3,5)</sup>がなされてきたが、湿性および乾性沈着を合わせて包括的に検討した報告例はない。本報では、湿性および乾性沈着の調査結果を融合することにより、酸性沈着の実態および生成機構などを明らかにすることを目的とし、大里における大気および降水中の硫黄化合物(乾性沈着中の粒子状  $nss\text{-SO}_4^{2-}$ 、ガス状  $\text{SO}_2$  および湿性沈着中の  $nss\text{-SO}_4^{2-}$ ; 以下、それぞれ「 $nss\text{-SO}_4^{2-}(\text{p})$ 」「 $\text{SO}_2(\text{g})$ 」および「 $nss\text{-SO}_4^{2-}(\text{wet})$ 」という。)の挙動について解析した。

## 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。

### 2. 試料捕集および分析方法

#### (1) 調査期間

本報における解析には2007年度のデータを使用した。ただし、湿性および乾性沈着調査ともに全国環境研協議会酸性雨調査研究部会(以下、「全環研」という。)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2007年3月26日~2008年3月31日の調査期間となる<sup>6)</sup>。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。

なお、乾性沈着調査において、ポンプ故障により5月14

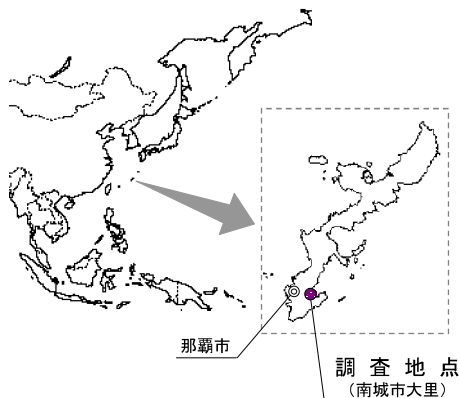


図1. 調査地点

日~5月28日が欠測となった。また、台風4号の襲来によりろ紙が濡れたため7月2日~7月18日の試料についても欠測として扱った。

#### (2) 湿性沈着

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。

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測定した。

#### (3) 乾性沈着

乾性沈着試料はFP法により、全環研の指定した月区切りにおける開始日~中間日および中間日~終了日の月間2試料を採取した。1試料あたりの採取単位期間は14~18日間である。

FP法として、1段目で粒子状物質を、2~4段目でガス状成分を捕集する4段ろ紙法により、1~2L $\cdot$ min<sup>-1</sup>程度の吸引速度で連続採取を行い、積算流量計により採気量を求めた。大気中濃度は、試料ろ紙の抽出液中濃度、20℃で補正した採気量などから換算した。

なお、湿性および乾性沈着ともに分析方法の詳細については、既報<sup>4,5)</sup>を参照頂きたい。また、 $nss\text{-SO}_4^{2-}(\text{wet})$  および  $\text{p}$ )は、降水および粒子状成分中のNa<sup>+</sup>をすべて海塩由来としてNa<sup>+</sup>濃度と海塩組成比から海塩由来 $\text{SO}_4^{2-}$ 濃度について求め、その濃度と降水および粒子状成分中の総(total-) $\text{SO}_4^{2-}$ 濃度との差を非海塩由来( $nss$ -) $\text{SO}_4^{2-}$ 濃度とした。

## III 結果および考察

### 1. 年平均濃度

大里における湿性および乾性沈着の2007年度年平均値を表1に示す。表1には、調査年度は異なるが、比較のため全国平均値(2003~2005年度の3カ年平均)<sup>1)</sup>を併せて示した。大里における湿性沈着では、年間降水量は3240mm $\cdot$ y<sup>-1</sup>で全国平均より1500mm $\cdot$ y<sup>-1</sup>程度多く、 $nss\text{-SO}_4^{2-}(\text{wet})$ 年平均濃度は6.8 $\mu$ mol $\cdot$ L<sup>-1</sup>で全国平均の約40%であった。乾性沈着では、 $nss\text{-SO}_4^{2-}(\text{p})$ 年平均濃度は46.6nmol $\cdot$ m<sup>-3</sup>で全国平均より若干高く、 $\text{SO}_2(\text{g})$ 年平均濃度は24.6nmol $\cdot$ m<sup>-3</sup>で全国平均の約1/2程度であった。

$nss\text{-SO}_4^{2-}$ がtotal- $\text{SO}_4^{2-}$ に占める割合(表1「 $nss$ 割合」)は、湿性沈着および粒子状成分ともに、大里のほうが全国平均より低く、海塩の影響が強いことが伺えた。湿性沈着および粒子状成分の比較では、粒子状成分のほうが $nss\text{-SO}_4^{2-}$ の寄与が大きいことが示された。

表 1. 湿性および乾性沈着の年平均濃度等

	湿性沈着				乾性沈着			
	降水量 (mm・y <sup>-1</sup> )	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> (μmol・L <sup>-1</sup> )	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> (μmol・L <sup>-1</sup> )	nss割合 (%)	粒子状成分			ガス状成分
					SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> (nmol・m <sup>-3</sup> )	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> (nmol・m <sup>-3</sup> )	nss割合 (%)	SO <sub>2</sub> (nmol・m <sup>-3</sup> )
大里 (2007年度)	3240	14.0	6.8	48.6	53.7	46.6	86.8	24.6
全国平均値 (2003~2005年度平均)	1730	22.1	17.8	80.5	47.0	44.8	95.3	52.2

2. 季節変動

2007年度の大里における湿性および乾性沈着の経月変動を図2に示す。図中プロットの白抜きは欠測期間があったことを示す。欠測があったのは、5月および7月の乾性沈着においてであるが、湿性および乾性沈着の比較のため、湿性沈着における両月の月間値についても乾性沈着の有効データ期間に合わせて集計した。nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(wet)濃度は7月を除き夏季に低く冬季に高い傾向がみられた。nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p)濃度は4~9月は変動が大きく、概ね降水量と逆の変動パターンを示し、10~3月は濃度が増加する傾向がみられた。全国的には夏季に高く、冬季に低い季節変動が確認されており<sup>8)</sup>、本研究における結果と異なっている。SO<sub>2</sub>(g)濃度は変動の幅は小さいもののnss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p)濃度と同様な変動パターンを示した。nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(wet)、nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p)およびSO<sub>2</sub>(g)濃度ともに、アジア大陸側からの移流が卓越する10~3月に高濃度となり、越境汚染の影響の可能性が示唆された。なお、全環研の全国調査においても、西に位置する地点ほどSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p)が高い傾向がみられ、アジア大陸側からの越境汚染の影響が示唆されることが報告されている<sup>9)</sup>。

3. 大気中 nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>およびSO<sub>2</sub>と降水中 nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>との関係

降水の酸性化は、SO<sub>2</sub>やNO<sub>x</sub>が大気中で光化学反応によって、硫酸ミスト、硝酸ガス、硫酸塩や硝酸塩の粒子状物質に変換され、降水および雲片に取り込まれることにより起こる。雲粒が生成するとき大気中の粒子状物質が凝結核とし

て取り込まれたり、水溶性のガスが雲滴中に取り込まれる場合を雲内洗浄(rainout)、雨粒が落下するときに気相中に存在している成分を捕捉しながら落ちてくる場合を雲下洗浄(washout)と呼ぶ<sup>10)</sup>。

nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(wet)濃度とnss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p)およびSO<sub>2</sub>(g)濃度の関係を図3に示す。nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(wet)濃度とnss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p)およびSO<sub>2</sub>(g)濃度の間には、4月を除き正の相関がみられた。数時間~日単位程度の短いタイムスケールでは、地上で観測されるnss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(wet)濃度は、rainoutに寄与するパラメータ(雲滴中の濃度など)に、washoutに寄与するパラメータ(降水時の降水量、降水強度、大気中に存在するnss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p)およびSO<sub>2</sub>(g)濃度、降水への取り込み速度等)を加えた、さまざまなパラメータにより決定されると考えられる。しかしながら、月単位のタイムスケールでみると、これらのさまざまなパラメータが平均化され、大気中に存在するnss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p)およびSO<sub>2</sub>(g)濃度が平均的に高い月は、単位降雨あたりに取り込まれる量が多くなり、nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(wet)濃度も高くなったと考えられた。4月のプロットのみがnss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(wet)濃度が高い側へ大きく外れている。その原因は不明であるが、雲滴中の取り込みが多く、rainoutの寄与がwashoutより大きかったことや、大気中に存在するnss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p)およびSO<sub>2</sub>(g)濃度に時間的な偏りがあり、降雨時にこれらの濃度が高くwashoutにより取り込まれる量が多かったことなどが想定

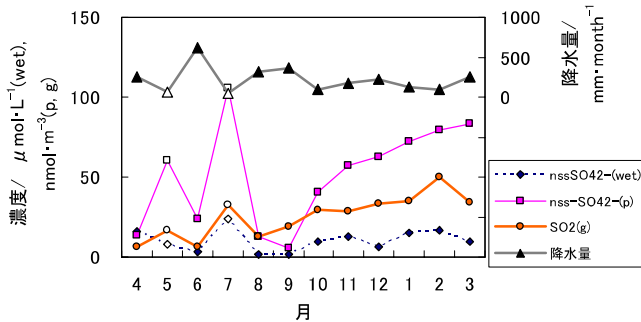


図 2. nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(wet)、nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p)およびSO<sub>2</sub>(g)の経月変動

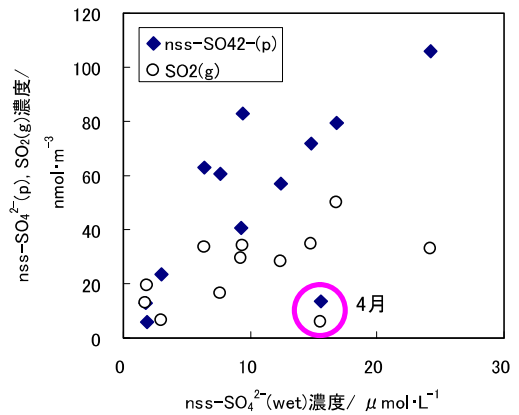


図 3. nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(wet)濃度とnss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p)およびSO<sub>2</sub>(g)濃度の関係

された。より短いタイムスケールでの調査であれば、詳細な検討が可能となると考えられる。

以上の結果から、大気中に存在する  $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$  および  $\text{SO}_2(\text{g})$  濃度が高いときは、単位降雨あたりに取り込まれる量が平均的に多くなることが考えられた。 $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{wet})$  の沈着量は、Rainout される量と Washout される量の結果であり、Washout される量は降雨時に大気中に存在する  $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$  および  $\text{SO}_2(\text{g})$  濃度、降水量などに関連があると考えられる。単純に、 $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{wet})$  の沈着量は下式で説明できると仮定し、 $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{wet})$  沈着量と  $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$  および  $\text{SO}_2(\text{g})$  濃度、降水量などの関係について検討した。

$$\begin{aligned} \{\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{wet})\} &= \{\text{rainout}\} + \{\text{washout}\} \\ &= \{\text{rainout}\} + (\text{Tp} \cdot [\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})] + \text{Tg} \cdot [\text{SO}_2(\text{g})]) \cdot \\ &\quad \text{precipitation} \dots\dots\dots (4) \end{aligned}$$

ただし、 $\{\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{wet})\}$ :  $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{wet})$  沈着量 ( $\text{mmol} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{month}^{-1}$ )、 $\{\text{rainout}\}$ : rainout による沈着量、 $\{\text{washout}\}$ : washout による沈着量、Tp:  $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$  の取り込みに関する係数 ( $\times 10^9$ )、 $[\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})]$ :  $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$  濃度 ( $\text{nmol} \cdot \text{m}^{-3}$ )、Tg:  $\text{SO}_2(\text{g})$  の取り込みに関する係数 ( $\times 10^9$ )、 $[\text{SO}_2(\text{g})]$ :  $\text{SO}_2(\text{g})$  濃度 ( $\text{nmol} \cdot \text{m}^{-3}$ )、precipitation: 降水量 ( $\text{mm} \cdot \text{month}^{-1}$ ) を表す。

なお、雲内および雲下での取り込みを評価するパラメータとして洗淨比(W)がある<sup>11)</sup>などが、式の定義や求め方が異なるため、本報では取り込みに関する係数(T: Taking into rain)として定義した。

大きく外れた4月を除いた月間値(n=11)を用い、「 $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{wet})$  沈着量」を従属変数、「 $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$  濃度  $\times$  降水量」および「 $\text{SO}_2(\text{g})$  濃度  $\times$  降水量」を説明変数として、ステップワイズ法により重回帰分析を行った結果、次の関係式が得られた。

$$\{\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{wet})\} = 0.53 + 9.4 \times 10^{-5} \cdot [\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})] \cdot \text{precipitation} \dots\dots\dots (5)$$

なお、「 $\text{SO}_2(\text{g})$  濃度  $\times$  降水量」の項は説明変数から除外され、大気中  $\text{SO}_2(\text{g})$  濃度は、降水中の  $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{wet})$  濃度に対する寄与が小さいことが示唆された。式(5)の有意性の確認のため、実試料における  $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{wet})$  沈着量と式(5)により求めた  $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{wet})$  沈着量の関係を図4に示した。これらのプロットにおける原点をとる回帰式は、 $y = 0.94x$  ( $R^2 = 0.60$ ) であり、式(5)により、 $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{wet})$  沈着量と  $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$  濃度および降水量の関係が概ね説明できていると考えられた。この関係式から、 $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{wet})$  沈着量は、rainout 過程で雲中に取り込まれていた  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  に加え、washout 過程で降水時に大気中の粒子状  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  を取り込んだ結果であることが示唆された。「 $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$  濃度  $\times$  降水

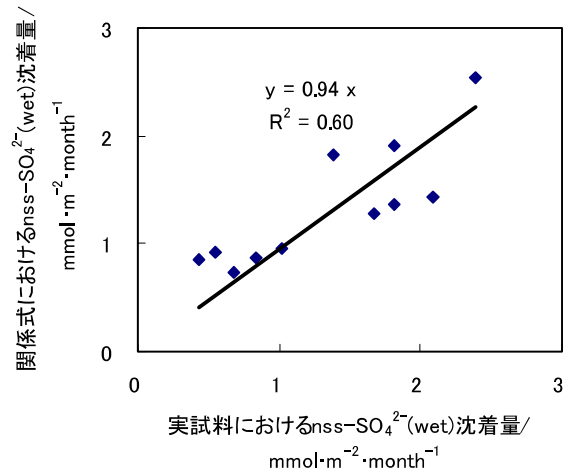


図4. 実試料および関係式による  $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{wet})$  濃度

量」が大きいほど、washout の寄与が大きくなると考えられた。

一般に、rainout は汚染物質の長距離輸送をより反映し、washout は地域汚染をより反映するといわれている。しかしながら、大里では近傍に大規模な発生源はなく、washout においてもアジア大陸側から長距離輸送された  $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$  の影響が大きいと考えられた。

#### IV まとめ

本研究では、2007年度に沖縄県南城市大里にて実施した湿性および乾性沈着調査結果を用いて、大気および降水中の  $\text{SO}_2$  および  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  の挙動について解析した結果、以下のことが明らかになった。なお、湿性沈着はWet-only サンプラー、乾性沈着はFP法により、当研究所屋上にて採取した。

- (1) 大里における  $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{wet})$  年平均濃度は  $6.8 \mu\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$  で全国平均の約40%と低い傾向にあった。 $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$  年平均濃度は  $46.6 \text{nmol} \cdot \text{m}^{-3}$  で全国平均より若干高く、 $\text{SO}_2(\text{g})$  年平均濃度は  $24.6 \text{nmol} \cdot \text{m}^{-3}$  で全国平均の約1/2程度であった。ただし、調査年度は、大里: 2007年度、全国平均: 2003~2005年度の3カ年平均である。
- (2)  $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{wet})$ 、 $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$  および  $\text{SO}_2(\text{g})$  濃度ともに、アジア大陸側からの移流が主となる10~3月に高濃度となる季節変動を示し、越境汚染の影響が示唆された。
- (3)  $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{wet})$  濃度と  $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$  および  $\text{SO}_2(\text{g})$  濃度の関係を調べたところ、4月を除き正の相関がみられた。「 $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{wet})$  沈着量」を従属変数、「 $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$  濃度  $\times$  降水量」および「 $\text{SO}_2(\text{g})$  濃度  $\times$  降水量」を説明変数として重回帰分析を行った結果、「 $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{wet})$  沈着量」と「 $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$  濃度  $\times$  降水量」の関係式が得られた。なお、「 $\text{SO}_2(\text{g})$  濃度  $\times$  降水量」は説明変数から除外された。この関係式から、 $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{wet})$  沈着量は、rainout 過程で雲中に取り込まれ

た  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ に加え, washout 過程で降水時に大気中の粒子状  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ を取り込んだ結果であり, 「 $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ 濃度×降水量」が大きいほど, washout の寄与が大きくなることが示唆された.

以上のように, 大里における大気および降水中の  $\text{SO}_2$  および  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ の挙動について, いくつかの知見が得られた. 窒素酸化物などの挙動については, アーティファクト等の検討も含め, 今後の課題である. 今後も湿性および乾性沈着と併せた総合的な解析を進めていくことにより, より詳細な知見が得られることが期待される.

## V 参考文献

- 1) 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, 32: 79-126
- 2) Ohara, T., H. Akimoto, J. Kurokawa, N. Horii, K. Yamaji, X. Yan, and T. Hayasaka(2007) An Asian emission inventory of anthropogenic emission sources for the period 1980-2020, *Atoms. Chem. Phys.* 7: 4419-4444
- 3) 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, 37: 47-50
- 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) 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
- 6) 全国環境研協議会酸性雨調査研究部会(2007) 酸性雨全国調査実施要領
- 7) 環境省地球環境局環境保全対策課・酸性雨研究センター(2001) 湿性沈着モニタリング手引書(第2版)
- 8) 辻昭博(2008) 全環研酸性雨全国調査・フィルターパック法による乾性沈着成分濃度の動向, 第49回大気環境学会年会講演要旨集, 134-135
- 9) Aikawa, M., T. Hiraki, O. Oishi, A. Tsuji, H. Mukai, and K. Murano, Local contribution and hemispherical pollution of sulfur dioxide and particulate sulfate based on the three-year data set collected by the filter-pack method in Japan. *Atmospheric Environment*(投稿中)
- 10) 村野健太郎(1993) 酸性雨と酸性霧, 裳華房, 61
- 11) 福崎紀夫・近藤聡美・前田正人・戸塚績(2005) 新潟県弥彦角田地域における降水中主要イオン種の洗浄比観測, 大気環境学会誌, 40: 250-259