

# 沖縄県うるま市における湿性及び乾性沈着量の推計

前田美奈子・城間朝彰・野波秀行・田崎盛也・南雲春馬・友寄喜貴

## Estimation of Wet and Dry Deposition Amounts at Uruma, Okinawa

Minako MAEDA, Tomoaki SHIROMA, Hideyuki NOHA, Moriya TASAKI,  
Haruma NAGUMO and Nobutaka TOMOYOSE

**要旨：**一般大気環境の酸性雨調査地点に位置づけられているうるま局における大気汚染状況を把握するために、2019年度から2023年度までの5年間の湿性及び乾性沈着調査の測定データを用いて、沈着量の推計を行った。酸性成分の全硫酸成分 ( $\text{nss-SO}_4^{2-}+\text{SO}_2$ )、全硝酸成分 ( $\text{NO}_3^-+\text{HNO}_3+\text{NO}_x$ ) 及び塩基性成分の全アンモニア成分 ( $\text{NH}_4^++\text{NH}_3$ ) はすべてにおいて3月から5月にかけて沈着量が多くなる傾向があり、大陸からの越境大気汚染の影響が示唆された。5年間の経年変動をみると湿性沈着量は年々減少傾向であり、乾性沈着量は2020年度に減少し、以降は概ね横ばいの傾向を示した。

**Key words：**乾性沈着, 湿性沈着, 越境大気汚染, 沖縄県

## I はじめに

大気汚染物質の二酸化硫黄(以下、「 $\text{SO}_2$ 」という.)や窒素酸化物(以下、「 $\text{NO}_x$ 」という.)等は、主に化石燃料の燃焼等により大気中に排出され、大気中で酸化されて硫酸や硝酸となり、雨や土壌の酸性化の原因となる。このとき、雨や霧として地表に沈着することを湿性沈着と呼び、大気中からガス状成分や粒子状成分として直接地表に沈着することを乾性沈着と呼ぶ。降水というイベントとともに起こる湿性沈着とは異なり、乾性沈着は、降水の有無にかかわらず常に起こっている現象である。

今回、一般大気環境局に位置づけられているうるま局(沖縄県うるま市兼箇段)における大気汚染状況を把握するため、2019年度から2023年度までの湿性・乾性沈着調査で得られた成分濃度を基に総沈着量の推計を行ったので報告する。

## II 方法

### 1. 調査地点

沖縄県の酸性雨調査地点であるうるま局にて調査を実施した(図1)。うるま局は沖縄島中部に位置し、周辺は畑地が主であり、養豚・養鶏場が点在し、生コン製造工場が1カ所存在している。大規模な $\text{SO}_2$ 及び $\text{NO}_x$ 発生源はなく、主要幹線道路からも離れており、最も近い海岸から約3kmの距離がある。なお、乾性沈着の推計に用いた地点周辺20km以内の土地利用割合は、市街地(40%)、森林(26%)、農地(24%)、草地(9%)、水面(1%)である。



図1. 調査地点.

### 2. 調査期間

今回の解析には2019年4月1日から2024年3月25日までのデータを使用した。月区切りについては全国環境研協議会第6次酸性雨全国調査(以下、「全環研調査」という.)に合わせて集計した。

### 3. 調査対象物質及び測定方法

湿性沈着試料の採取は全環研調査の実施要領<sup>1)</sup>に基づき、降水の捕集装置(降水時開放型)を使用し、原則1回/週(1週間連続採取)を行った。採取後は、イオンクロマトグラフ分析装置(Metrohm社製850 Professional ICまたは930 Compact IC Flex)を用いてイオン成分( $\text{Na}^+$ 、 $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{K}^+$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Cl}^-$ 、 $\text{NO}_2^-$ 、 $\text{NO}_3^-$ 及び $\text{SO}_4^{2-}$ )の濃度を測定した。

乾性沈着試料の採取は全環研調査の実施要領に基づき、原則2回/月(2週間連続採取)を行った。5段フィルタパック法(以下、「FP法」という.)の各ろ紙と捕集成分

について表 1 に示す。ろ紙 I0, F0, F1 及び F3 は純水を用いて抽出し、ろ紙 F2 及び F2' は 0.05%(v/v)H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 溶液で抽出した。抽出後、イオンクロマトグラフ分析によりイオン成分の濃度を測定した。NO 及び NO<sub>2</sub> ガスの採取は小川式パッシブ法を用いて原則 1 回/月行った。

表 1.ろ紙の種類と捕集成分。

番号	ろ紙種類	捕集成分
I0	石英	粗大粒子
F0	テフロン	PM <sub>2.5</sub> (微小粒子)
F1	ポリアミド	SO <sub>2</sub> , HONO, HNO <sub>3</sub> , NH <sub>3</sub>
F2	K <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> 含浸	SO <sub>2</sub> , HONO, HCl,
F2'	K <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> 含浸	SO <sub>2</sub> , HCl, NO <sub>2</sub>
F3	H <sub>3</sub> PO <sub>4</sub> 含浸	NH <sub>3</sub>

4. 沈着量の算出

湿性沈着量は、月ごとの平均イオン成分濃度と降水量を掛け合わせるにより算出した。

乾性沈着量は、直接測定し評価することが困難であるため、インファレンシャル法による推計を行った。インファレンシャル法は、気象要素、土地利用状況等及び沈着成分の沈着しやすさなどの特性から沈着速度 (V<sub>d</sub>) を推定し、土地利用割合で加重平均した沈着速度と FP 法などによって求めた大気中濃度の積により間接的に乾性沈着量を求めることができる。このモデルは以下の式で表される。

$$F = V_d \times C$$

F : 沈着面への沈着量

V<sub>d</sub> : 沈着速度

C : 沈着物質の大気中濃度

沈着速度の算出には、野口らが開発した表計算ソフトである乾性沈着推計ファイル Ve4-2<sup>2)</sup>を用いた。なお同ファイルは改良が続けられている。気象データは、アメダス局である宮城島局 (風速, 気温, 湿度) 及び那覇局 (日射量, 雲量) の 1 時間値を用いた<sup>3)</sup>。宮城島局が欠測の場合は那覇局からデータを補完した。季節区分は、温量指数と 360 時間前から 120 時間前の平均気温により、同推計ファイルにて自動的に区分した。なお季節区分は、春 (1-5 月), 夏 (6-9 月), 秋 (10-12 月) の 3 区分であった。

III 結果と考察

1. 乾性沈着の濃度及び沈着速度

今回算出した乾性沈着成分の加重平均濃度及び平均沈着速度を表 2 に示す。イオン成分濃度が最も高いのは NH<sub>3</sub>, 低いのは HNO<sub>3</sub> であった。沈着速度が大きいのは HNO<sub>3</sub>, 小さいのは NO であった。

表 2.加重平均濃度及び平均沈着速度。沈着速度は対象成分ごとに土地利用割合で重み付けした。

成分	濃度 (C) nmol m <sup>-3</sup>	沈着速度 cm s <sup>-1</sup>
粒子状物質	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	23
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	22
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	35
ガス状物質	SO <sub>2</sub>	15
	HNO <sub>3</sub>	3.7
	NH <sub>3</sub>	244
	NO	28
	NO <sub>2</sub>	95
		0.12

2. 総沈着量

酸性成分の全硫黄成分 (nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>+SO<sub>2</sub>) 及び全硝酸成分 (NO<sub>3</sub><sup>-</sup>+HNO<sub>3</sub>+NO<sub>x</sub>), 塩基性成分の全アンモニア成分 (NH<sub>4</sub><sup>+</sup> +NH<sub>3</sub>) の月別湿性及び乾性沈着量について降水量と併せて図 2 に示す。なお、「nss-」は「非海塩性 (non sea salt)」を表し、目的イオンから海塩性イオン (Na<sup>+</sup>をすべて海塩由来とし海塩組成比から算出) を除外したものを表す。

全硫黄成分の総沈着量は 2019 年 9 月で最も多く 8.9 mmol m<sup>-2</sup> month<sup>-1</sup>, 最も少なかったのは 2024 年 1 月の 0.54 mmol m<sup>-2</sup> month<sup>-1</sup> であった。調査期間中の月平均沈着量は 2.3 mmol m<sup>-2</sup> month<sup>-1</sup> であった。2020 年 8 月に西之島の噴火があり、沖縄県内の大気常時監視測定局の SO<sub>2</sub>濃度が高濃度となったが、今回の解析では火山ガスによる沈着量への影響はみられなかった。

全硝酸成分の総沈着量は 2021 年 6 月で最も多く 5.7 mmol m<sup>-2</sup> month<sup>-1</sup>, 最も少なかったのは 2023 年 9 月の 0.97 mmol m<sup>-2</sup> month<sup>-1</sup> であった。調査期間中の月平均沈着量は 3.9 mmol m<sup>-2</sup> month<sup>-1</sup> であった。

全アンモニア成分の総沈着量は 2019 年 9 月で最も多く 14 mmol m<sup>-2</sup> month<sup>-1</sup>, 最も少なかったのは 2023 年 1 月の 2.4 mmol m<sup>-2</sup> month<sup>-1</sup> であった。調査期間中の月平均沈着量は 5.6 mmol m<sup>-2</sup> month<sup>-1</sup> であり、他の 2 成分より多かった。

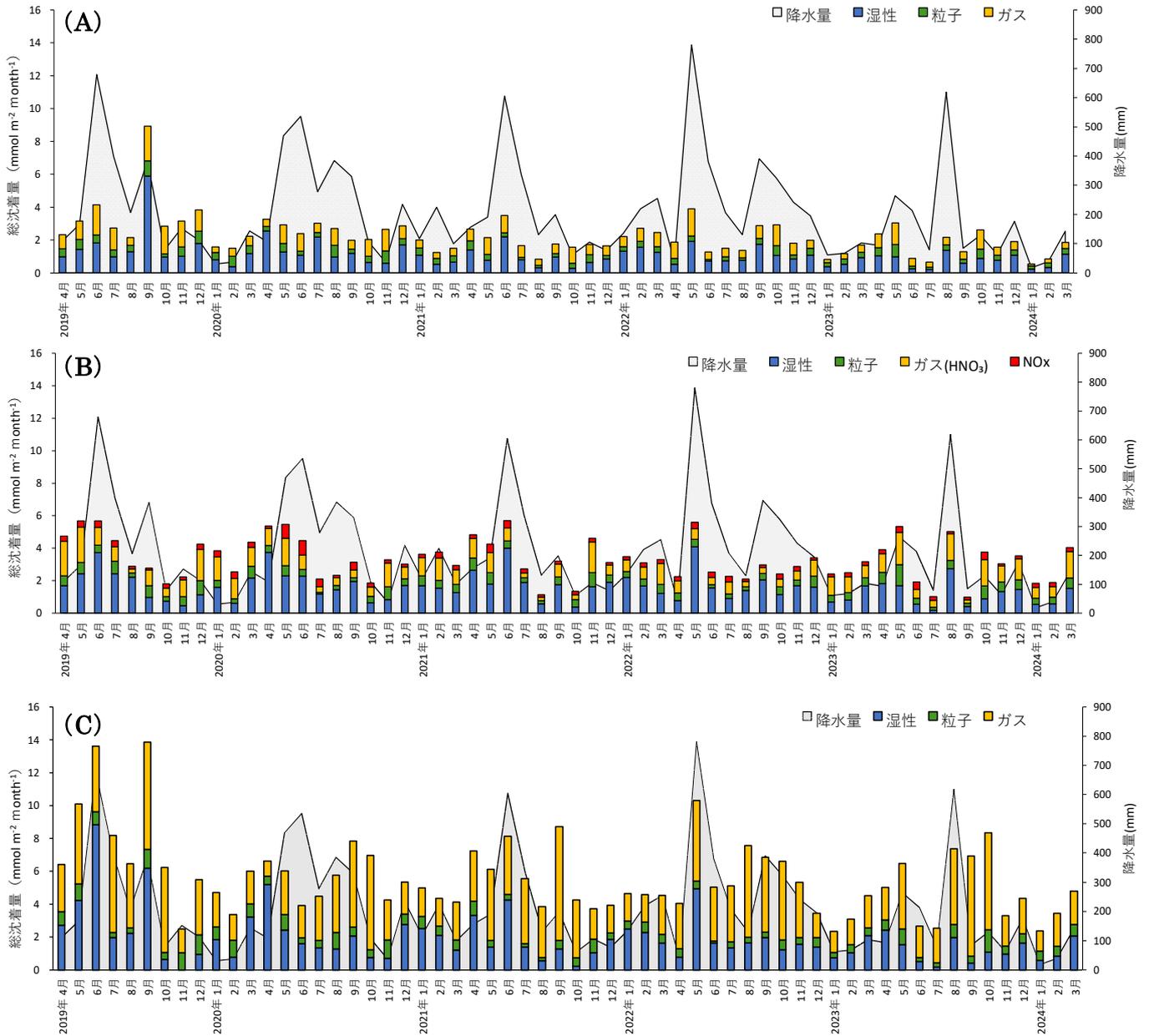


図 2. 主要イオン成分の月別湿性・乾性沈着量及び降水量を併せて示した。

(A) 全硫黄成分 ( $\text{nss-SO}_4^{2-} + \text{SO}_2$ ), (B) 全硝酸成分 ( $\text{NO}_3^- + \text{HNO}_3 + \text{NO}_x$ ), (C) 全アンモニア成分 ( $\text{NH}_4^+ + \text{NH}_3$ )

### 3. 季節変動

各成分の各月の平均沈着量を図 3 に示す。硫黄成分は 3-6 月の春期及び 9-12 月の秋期頃に沈着量が多くなる傾向がみられた。9 月の沈着量が最も多いが、これは 2019 年 9 月の沈着量が突出して多かったためであり、2019 年 9 月を除くと、9 月と 10 月は同等の沈着量であった。2019 年 9 月は 2 個の台風が襲来し、その影響を受けたと考えられる。乾性沈着量の割合は 38-68% であり、10-11 月に多い傾向を示した。

硝酸成分は 3-5 月の春期に沈着量が多くなり、夏期

から秋期にかけて減少し、11-2 月にやや増加する傾向を示した。乾性沈着量の割合は 40-66% であり、10-3 月に高く推移する傾向を示した。

アンモニア成分は春期から秋期に沈着量が多くなる傾向がみられ、沈着量が最も多かったのは 9 月であった。乾性沈着量の割合は 51-88% であり、他成分より比較的高く、特に 7-11 月に高くなる傾向がみられた。気温が高くなるとうるま局周辺の養豚及び養鶏場のアンモニア成分がガス化し、揮散しやすいことが要因だと考えられる。全成分とも春期に総沈着量が比較的多く、ユーラシ

ア大陸からの越境大気汚染の影響が示唆された。硫黄成分及びアンモニア成分は  $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$  として越境してくるため挙動が似ていると考えられる。総沈着量において乾性沈着が占める割合の平均値は硫黄成分で約 52%, 硝酸成分で約 53% であり, 湿性沈着と乾性沈着の寄与は同程度であった。一方, アンモニア成分では約 66% であり, 乾性沈着の寄与が大きいことが示唆された。

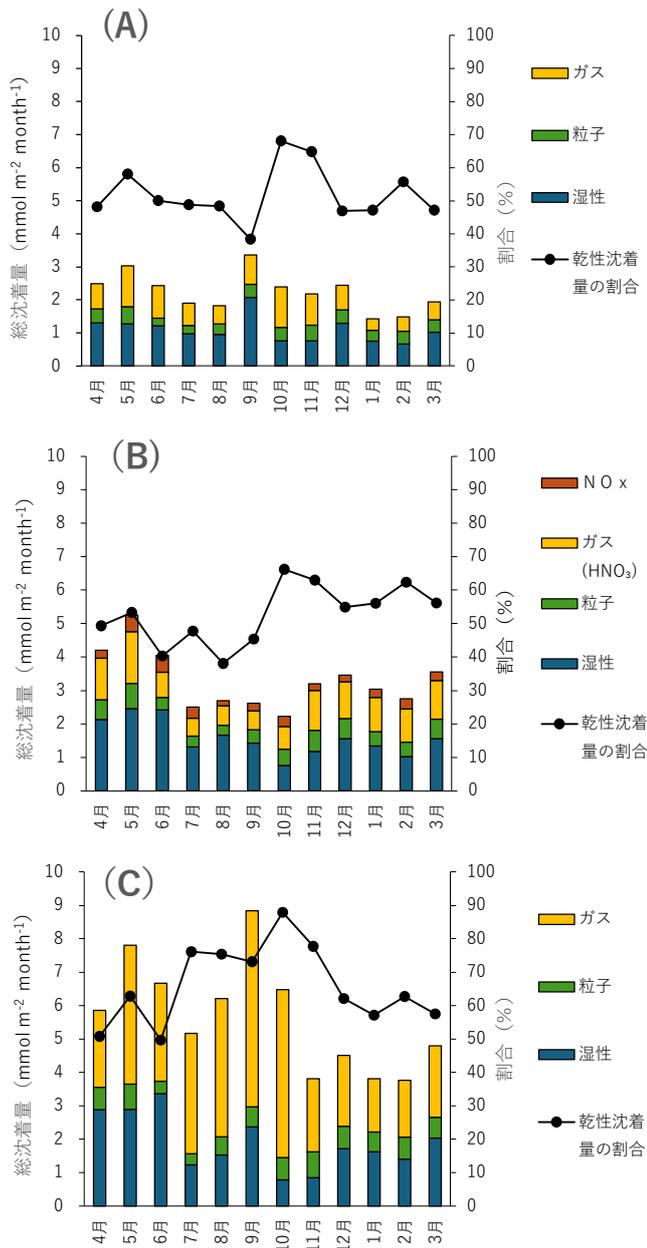


図 3. 湿性・乾性沈着量の各月平均値及び乾性沈着量の割合。乾性沈着量の割合は乾性沈着量 / (湿性沈着量 + 乾性沈着量) × 100 (%) で求めた。  
 (A) 全硫黄成分 ( $\text{nss-SO}_4^{2-} + \text{SO}_2$ )  
 (B) 全硝酸成分 ( $\text{NO}_3^- + \text{HNO}_3 + \text{NO}_x$ )  
 (C) 全アンモニア成分 ( $\text{NH}_4^+ + \text{NH}_3$ )

#### 4. 経年変化

湿性沈着量の経年変動及びイオン成分別の挙動を図 4 に示す。湿性沈着量は年々減少傾向であり, 2019 年度と 2023 年度を比較すると沈着量は半減していた。2023 年度に大きく減少しているのは, 9-3 月にかけてまとまった降水がなく (図 2), 5 年間で最も年間降水量が少なかったことが要因のひとつだと考えられる (表 3)。イオン成分別でも年々減少傾向であり, 特に  $\text{NH}_4^+$  及び  $\text{nss-Ca}^{2+}$  成分において減少幅が大きい。図示していないが, 各年度の 3-6 月における  $\text{NH}_4^+$  成分沈着量は減少傾向を示していることから, 越境してきた  $\text{NH}_4^+$  成分の沈着量が減少している可能性が示唆された。

$\text{nss-Ca}^{2+}$  成分は乾性沈着推計ファイルで沈着速度を求めることができないため乾性沈着量の推計はできないが, 年平均濃度は 2019 から 2023 年度にかけて 37% 減少していた (表 4)。2020 年度における  $\text{nss-Ca}^{2+}$  濃度変動と風向の関係では生コン製造工場方向からの風向きの際に  $\text{nss-Ca}^{2+}$  濃度が高かった<sup>4)</sup> ことから, 2019-2023 年度についても確認したところ, 同様の結果であった。5 年間にわたる月別風向の傾向は, 年度間で大きく変わらなかったため, 発生源と考えられる生コンクリート出荷実績の統計資料<sup>5)</sup>を確認したところ, 2019 年度と比較して 2023 年度では沖縄県全体で生コンクリートの出荷量が約 35% 減少していた。県内の生コン出荷量が減少していることから, うるま局近隣の生コン製造工場の出荷量も減少したと推測され,  $\text{nss-Ca}^{2+}$  成分の減少に影響した可能性があると考えられる。

乾性沈着量の経年変動及びイオン成分別の挙動を図 5 に示す。総沈着量は 2020 年度に大きく減少し, 2020-2023 年度にかけては概ね横ばい傾向であった。イオン成分別にみると,  $\text{NH}_3$  成分は 2020 年度に減少し, 以降は横ばいの傾向を示した。 $\text{SO}_2$  成分は年々減少傾向を示した。その他成分は概ね減少傾向だが, 2023 年度には微増した。前述のとおりうるま局の  $\text{NH}_3$  成分は畜産業由来の影響が大きいと考えられることから, 2019-2023 年度の中中部地域の家畜頭数 (牛, 豚, 鶏)<sup>6)</sup>を確認したところ, ほぼ横ばいの傾向であった。 $\text{NH}_3$  成分において, 2020 年度以降の横ばい傾向は中部の家畜頭数の傾向と類似していた。 $\text{SO}_2$  成分は全国的に減少傾向<sup>7)</sup>であり, 2020 年 1 月から開始された船舶燃料の硫黄分に対する規制強化の影響だと考えられる。 $\text{NH}_3$  及び  $\text{SO}_2$  成分以外の乾性沈着が 2023 年度に微増したのは, 年間降水量が少なかったことが要因のひとつだと考えられる。

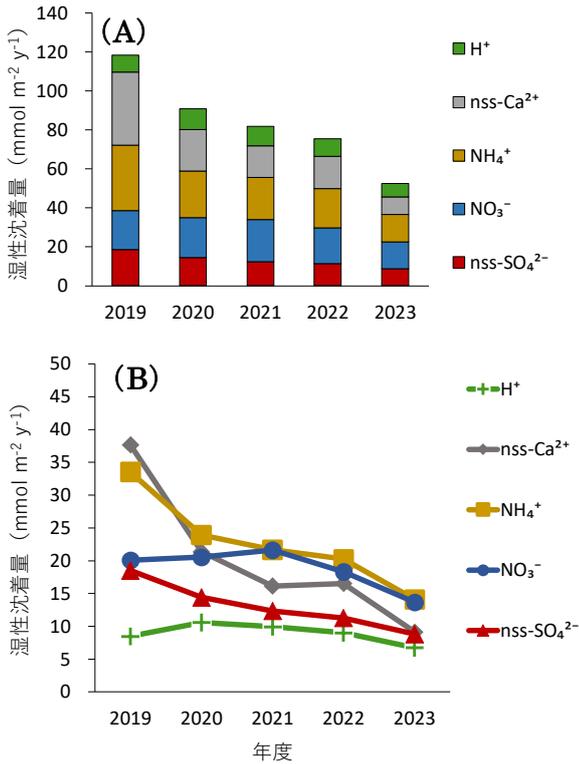


図 4. 湿性沈着量の経年変動。  
 (A) 各イオン成分の積みあげグラフ  
 (B) 各イオン成分の折れ線グラフ

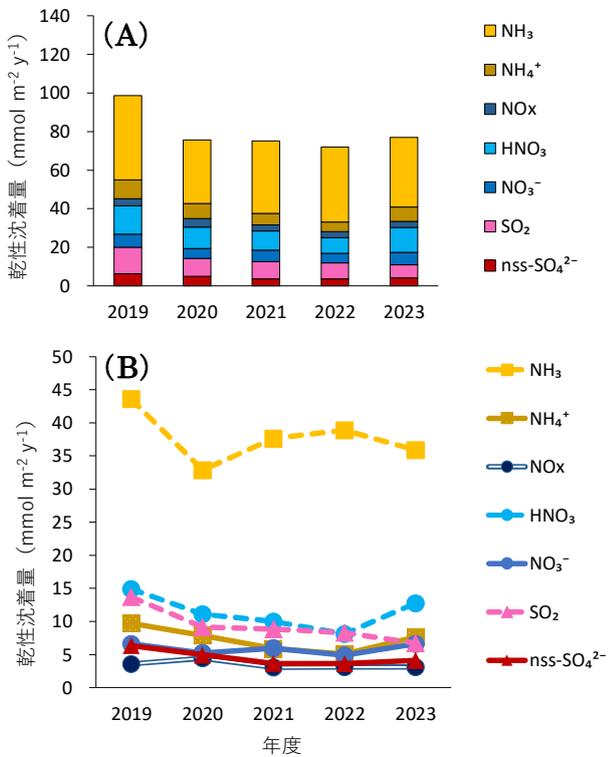


図 5. 乾性沈着量の経年変動。  
 (A) 各イオン成分の積みあげグラフ  
 (B) 各イオン成分の折れ線グラフ

表 3. 年間降水量.

年度	2019	2020	2021	2022	2023
年間降水量 (mm)	2498	2925	2472	2921	1921

表 4. 年平均 nss-Ca<sup>2+</sup>成分乾性沈着濃度.

年度	2019	2020	2021	2022	2023
平均濃度 (nmol m <sup>-3</sup> )	14	11	9.6	8.4	9.0

#### IV まとめ

一般大気環境局に位置づけられているうるま局における湿性・乾性沈着量を解析したところ、全硫黄成分の年平均沈着量は 2.3 mmol m<sup>-2</sup> month<sup>-1</sup>、全硝酸成分は 3.9 mmol m<sup>-2</sup> month<sup>-1</sup>、全アンモニア成分は 5.6 mmol m<sup>-2</sup> month<sup>-1</sup>であり、沈着量が最も多かったのは全アンモニア成分であった。

全硫黄成分、全硝酸成分、全アンモニア成分ともに春期に沈着量の増加がみられ、越境大気汚染の影響が示唆された。総沈着量における乾性沈着量の割合は全硫黄成分、全硝酸成分で概ね同程度、全アンモニア成分では多い傾向であった。

湿性沈着量は年々減少傾向にあり、2019 年度と 2023 年度を比較すると沈着量は半減していた。また NH<sub>4</sub><sup>+</sup>及び nss-Ca<sup>2+</sup>成分において減少幅が大きかった。

乾性沈着は 2020 年度に大きく減少し、2020-2023 年度にかけては概ね横ばい傾向で推移していた。NH<sub>3</sub>成分は概ね横ばい傾向、SO<sub>2</sub>成分は年々減少傾向であり、その他成分は減少傾向であったが、2023 年にやや微増していた。

#### V 参考文献

- 1) 全国環境研協議会酸性雨広域大気汚染調査研究部会、第 6 次酸性雨全国調査実施要領。
- 2) 野口泉 (2011) 乾性沈着量評価のための沈着速度推計プログラムの更新。環境科学研究センター所報 1 号 21-31,
- 3) 気象庁 (2019-2023) 過去のデータ検索。〈<https://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/index.php>〉。2024 年 8 月アクセス。
- 4) 前田美奈子・城間朝彰・野波秀行・田崎盛也・友寄喜貴 (2023) 沖縄県うるま市における乾性沈着の特徴。沖縄県衛生環境研究所報, 57 : 44-47

- 5) 全国生コンクリート工業組合連合会・全国生コンクリート協同組合連合会, 生コンクリート出荷実績.  
〈<https://www.zennama.or.jp/3-toukei/index.html>〉. 2024年8月アクセス
- 6) 沖縄県農林水産部畜産課, おきなわの畜産 令和5年7月. <https://www.pref.okinawa.jp/shigoto/chikusan-kyo/1011238/1011346.html>. 2024年8月アクセス.
- 7) 全国環境研協議会酸性雨広域大気汚染調査研究部会, 第6次酸性雨全国調査報告書2021(令和3)年度.