

# 沖縄県大里村における湿性沈着調査

友寄喜貴，与儀和夫，長嶺弘輝\*

## Wet Deposition in Ozato, Okinawa

Nobutaka TOMOYOSE, Kazuo YOGI and Koki NAGAMINE

**Abstract :** This study reports the wet deposition in Ozato, Okinawa - its comparison with whole Japan, the influence factor to pH, and the annual trend (Apr. 1996 - Mar. 2002). It is indicated that: 1) Although Ozato belongs to the area where acidification level of rain is quite low as compared with the national average, the annual trend shows that the acidification level of rain gets worse every year. 2) Ozato belongs to the area where the influence of the sea salt particle is quite large as compared with the national average. 3) According to the multiple linear regression analysis, the pH of the wet deposition is determined by the balance of  $\text{nssSO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{NH}_4^+$ , and  $\text{nssCa}^{2+}$ , but the large contribution of the sea salt is not observed.

**Key Words :** wet deposition, sea salt, multiple linear regression analysis, annual trend

### はじめに

近年，東アジア地区において，急激な人口増加及び経済発展に伴い，石油や石炭等の化石燃料の消費が増大している．そのため，大気中に放出される硫黄酸化物や窒素酸化物等も増加の一途を辿っている．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する．これら硫酸や硝酸が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．

全公研（現全環研）では1991年以来，酸性雨全国調査が行われてきた．当所ではその調査の一環として，湿性沈着調査を実施している．今回は，沖縄県大里村における湿性沈着について，全国との比較，pHへの影響因子，経年変化（平成8年度～平成13年度）をまとめたので報告する．



図-1 調査地点

### 調査方法

#### 1. 調査地点の概況

調査地点を図-1に示す．大里村（人口約1万2千人）は沖縄本島南部に位置しており，東側には太平洋が位置している．西北西約9kmには那覇市（人口約32万人）がある．

調査地点は，標高約100mの小高い丘の上に位置し，降水採取装置は地上8mの高さに設置されている．最も近い海岸線からは南西に約1.8km離れている．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．

#### 2. 試料採取及び分析方法

湿性沈着試料は，降水時開放型捕集装置を用いて原則1週間毎に採取し，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，Cl<sup>-</sup>，NO<sub>3</sub><sup>-</sup>，SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>，Na<sup>+</sup>，NH<sub>4</sub><sup>+</sup>，K<sup>+</sup>，Mg<sup>2+</sup>及びCa<sup>2+</sup>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」<sup>1)</sup>によった．

\*現南部福祉保健所

## 結果及び考察

### 1. 全国との比較

平成12年度の調査結果を表-1に示す。降水量は年間試料量と採取口面積から算出した年間総降水量，pH，ECは年間加重平均値，イオン成分は湿性沈着量年間値で示している。第3次酸性雨全国調査結果(平成12年度)<sup>2)</sup>と比較すると，pHは全国最高値，NO<sub>3</sub><sup>-</sup>及びnssSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>は全国最低値を示した。大里村は降水の酸性化が全国で最も進んでいない地域に属すると考えられる。また，Na<sup>+</sup>及びCl<sup>-</sup>は全国最高値を示し，海塩の影響が大きいことが示された。

平成12年度における大里村の平均化学組成を図-2に示した。また，日本の平均的な化学組成と比較する目的で，第3次酸性雨全国調査結果(平成12年度)<sup>2)</sup>において算出された日本全体の平均化学組成も併せて示した。

大里村ではカチオンがアニオンより若干高い傾向がみられたが，イオンバランス及び導電率による精度管理では，許容範囲内に入っており，測定精度は保たれているものと思われる。pHが6以上の試料も多く存在するため，分析対象外のHCO<sub>3</sub><sup>-</sup>の存在が示唆され，アニオンが若干低い結果となったと考えられる。

湿性沈着物中のNa<sup>+</sup>，Mg<sup>2+</sup>，Cl<sup>-</sup>は海水中の存在比率とほぼ一致しており，これらの成分のほとんどは海塩起源と推定される。SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>及びCa<sup>2+</sup>の海塩成分(ssSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>及び

ssCa<sup>2+</sup>)はNa<sup>+</sup>を海塩指標として算出した。海塩成分の割合は測定した成分の90%に達し，全国平均の約2.5倍の濃度であった。大里村の湿性沈着は海塩粒子の影響を強く受けていることがわかる。

非海塩起源と考えられるH<sup>+</sup>，NO<sub>3</sub><sup>-</sup>，nssSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>，NH<sub>4</sub><sup>+</sup>，nssCa<sup>2+</sup>は，これらの成分でほぼイオンバランスがとれていた。大里村の非海塩起源成分の濃度は全国平均の約1/4であり，これらの汚染物質が少ない結果が得られた。

### 2. pHへの影響因子

大里の湿性沈着には，海塩起源と考えられるイオン成分が90%以上含まれる。海水のpHは約8.3であり，湿性沈着のpHにどのくらいの影響を与えるのか興味もたれる。そこで平成8年度から平成13年度の湿性沈着調査結果を対象に，pHを目的変数，NO<sub>3</sub><sup>-</sup>，nssSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>，NH<sub>4</sub><sup>+</sup>，nssCa<sup>2+</sup>及び総海塩イオン(Tss)濃度(単位：μeq/l)の対数を説明変数として，重回帰分析を試みた。海塩粒子の寄与を求めるために，強制投入法により重回帰分析を行った。その結果，式(1)が得られた(R=0.728)。

$$\text{pH} = \log \frac{[\text{NH}_4^+]^{0.955} \times [\text{nssCa}^{2+}]^{0.885}}{[\text{NO}_3^-]^{0.784} \times [\text{nssSO}_4^{2-}]^{0.994}} + \log[\text{Tss}]^{0.0127} + 5.79 \dots (1)$$

表-1 沖縄県大里村における降水成分(平成12年度)

	降水量 (mm/y)	pH	EC (mS/m)	Cl <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	nssSO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	Na <sup>+</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	nssCa <sup>2+</sup>
				(mmol/m <sup>2</sup> ·y)									
大里村	2557	<u>5.47</u>	237	<u>362.2</u>	<u>13.2</u>	35.2	<u>15.3</u>	<u>329.3</u>	18.5	8.7	36.2	15.1	7.9
全国平均	1758	4.64	238	107.0	33.5	42.2	36.7	909	39.2	4.3	12.4	154	134

・pH，ECは加重平均値、イオン成分は湿性沈着量年間値で示す。  
 ・二重線:全国最高値,実線:全国最低値

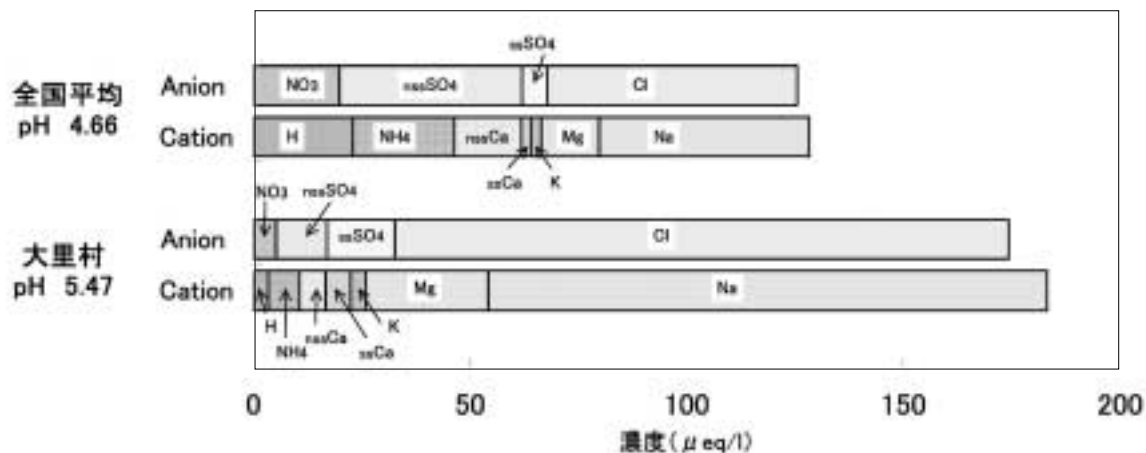


図-2 降水中の平均化学組成(平成12年度)

pHは、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{nssSO}_4^{2-}$ 、 $\text{NH}_4^+$ 及び $\text{nssCa}^{2+}$ のバランスに影響され、降水中の海塩は、pHに対してほとんど寄与していない結果となった。大里における平均的な降水中の成分濃度は、Tss：650  $\mu\text{eq/l}$ 、 $\text{NO}_3^-$ ：5.8  $\mu\text{eq/l}$ 、 $\text{nssSO}_4^{2-}$ ：16  $\mu\text{eq/l}$ 、 $\text{NH}_4^+$ ：17  $\mu\text{eq/l}$ 、 $\text{nssCa}^{2+}$ ：6.2  $\mu\text{eq/l}$ である。これらを式(1)に代入すると、pHに対する影響は、Tss：+0.04、 $\text{NO}_3^-$ ：-0.60、 $\text{nssSO}_4^{2-}$ ：-1.19、 $\text{NH}_4^+$ ：+1.17、 $\text{nssCa}^{2+}$ ：+0.70となる。湿性沈着の酸性化には $\text{nssSO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ の順、中和には $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{nssCa}^{2+}$ の順で寄与しており、海塩成分はほとんど寄与していない結果が得られた。ちなみに、変数減少法で重回帰分析を行ったところ、Tssは除去され、pHは $\text{nssSO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{NH}_4^+$ 及び $\text{nssCa}^{2+}$ の4成分で説明可能であった。

pHについて、式(1)より求めた計算値と実測値の関係を図-3に示す。全ての結果を用いて重回帰分析した結果( $R=0.728$ )と、いずれかの成分で10  $\mu\text{eq/l}$ 以下を示した低濃度試料を除いた高濃度試料を用いて重回帰分析した結果( $R=0.846$ )を示した。その結果、高濃度試料を用いて重回帰分析した結果のほうが、計算値と実測値のばらつきが若干小さくなった。このことは、低濃度試料の分析では定量下限値付近の値を測定するため、精度の確保が困難であり、測定誤差が生じやすいためであると思われる。大里の湿性沈着における非海塩起源のイオン成分は、全国で最も低い濃度レベルである。高い濃度レベルの地域では、更に精度の良い重回帰分析が期待できるものと思われる。

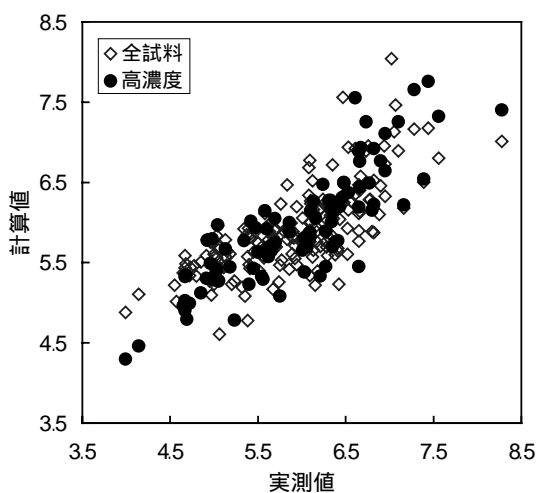


図-3 pHの実測値と重回帰式による計算値の関係

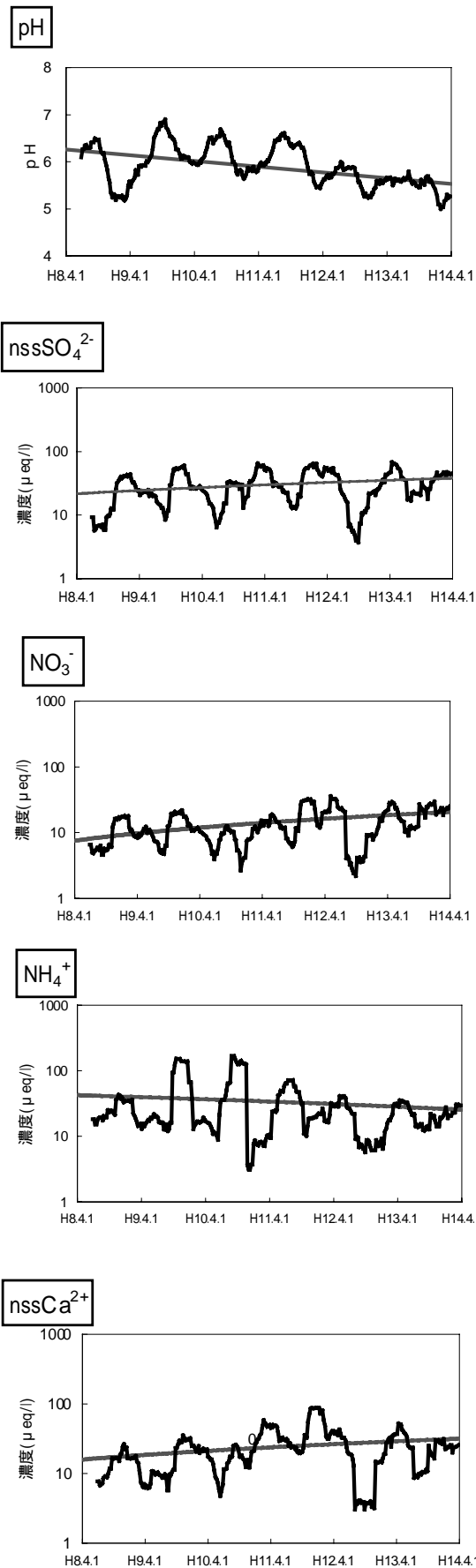


図-4 pH及び非海塩起源成分の経年変化

### 3. 経年変化（平成8年度～平成13年度）

平成8年度から平成13年度におけるpH及び非海塩起源成分( $\text{nssSO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{NH}_4^+$ 及び $\text{nssCa}^{2+}$ )の経年変化を3ヶ月移動平均として図-4に示す。

pHは夏期に高く、冬期に低くなる季節変動がみられた。また、pHは年々低下傾向にあった。

$\text{nssSO}_4^{2-}$ 及び $\text{NO}_3^-$ は夏期に低く、冬期に高くなる季節変動がみられ、年々増加傾向にあった。冬期に卓越する北西の季節風により、これらの酸性成分が中国大陸から多く飛来していることを示唆しているものと思われる。

$\text{NH}_4^+$ は夏期に高く、冬期に低くなる季節変動がみられ、年々低下傾向にあった。気温の高い時期に、生物活動が活発になることによる影響が一因であると思われる。

$\text{nssCa}^{2+}$ では、平成11年以降、春期に高くなる傾向が多くみられるようになり、年々増加傾向にあった。これは、近年、中国大陸からの黄砂の飛来が多くなってきていることを示唆しているものと思われる。

非海塩起源の塩基性成分と酸性成分の比( $\text{NH}_4^+ + \text{nssCa}^{2+} / (\text{NO}_3^- + \text{nssSO}_4^{2-})$ )の経年変化を3ヶ月移動平均として図-5に示す。この比は年々低下する傾向を示している。平成11年前半までは1以上を示すことが多く、湿性沈着を中和する方向に働いていたが、平成11年後半から1以下を示すことが多くなり、湿性沈着を酸性化する方向に働いている。pHと同様な低下傾向を示し、沖縄県大里村の湿性沈着においても、酸性化が進行している傾向がみられた。

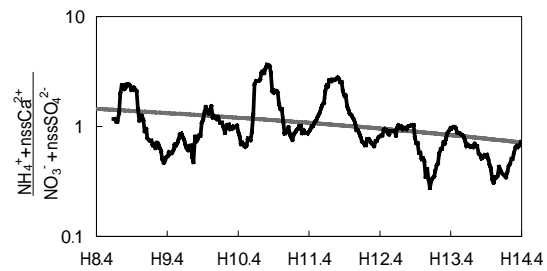


図-5 塩基性/酸性成分の経年変化

## まとめ

平成8年度から平成13年度までの沖縄県大里村における湿性沈着の調査結果を解析したところ、以下のことがわかった。

- 1) 大里村は、降水の酸性化が全国で最も進行していない地域に属していると考えられる。しかし、年々、降水の酸性化が進行する傾向を示している。
- 2) 大里村は、湿性沈着に対する海塩粒子の影響が、全国平均に比較してかなり大きい地域に属していると考えられる。
- 3) 重回帰分析による結果、湿性沈着のpHは $\text{nssSO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{NH}_4^+$ 及び $\text{nssCa}^{2+}$ のバランスによって決定し、海塩成分の寄与はほとんど認められなかった。

## 参考文献

- 1) 環境庁大気規制課(1998) 湿性沈着モニタリング手引書
- 2) 全環研酸性雨調査部会 第3次酸性雨全国調査報告書(平成12年度), 全国環境研会誌 Vol.27: 68-126