

＜特 集＞

第5次酸性雨全国調査報告書（平成27年度）

全国環境研協議会 酸性雨広域大気汚染調査研究部会

堀江洋佑, 岩崎綾, 友寄喜貴, 藤田大介, 河野明大, 西山亨, 久恒邦裕, 木戸瑞佳, 濱村研吾, 山添良太, 松本利恵, 多田敬子, 山口高志, 横山新紀, 家合浩明, 甲斐勇, 濱野晃, 吉田英美香

はじめに

全国環境研協議会による酸性雨全国調査は1991年度からの第1次調査に始まり、現在2016年度からの第6次調査を実施しています。

今回、当報告書では、第5次調査の最終年度である2015年度の調査結果を報告するとともに、第5次調査7年間の結果を取りまとめました。

この間の調査を振り返ると、第1次調査（1991～1993年度）では、ろ過式採取法（バルク）による調査を行い、全国的な降水の酸性化を明らかにしました。

第2次調査（1995～1997年度）では、夏季および冬季に日単位調査や流跡線解析を行いました。この結果、冬季に日本海側で沈着量が多く、硫酸イオンを多く含む気塊が中国や朝鮮半島を通過していたこと、カルシウムイオンを多く含む気塊は、モンゴルや中国北東部を起源とする場合が多かったことなどを明らかにし、酸性物質の移流の可能性が示唆されました。

第3次調査（1999～2001年度）では、湿性沈着（降水時開放型捕集装置法）に加えて、乾性沈着を把握するために、4段ろ紙法（フィルターパック法）によるガス・エアロゾル調査を実施しました。この結果、都市部における酸性雨の状況、硫酸化合物や窒素化合物の地域特性、さらに大気中のガス成分、粒子状成分について全国的な濃度分布とその季節変化を明らかにするとともに、乾性沈着量の推定を行いました。

第4次調査（2003～2008年度）では、乾性沈着量の空間分布について、より正確に把握するために、フィルターパック法では測定できない窒素化合物やオゾン濃度等が測定可能であるパッシブ法を導入しました。また、乾性沈着速度を算出するプログラムを共同開発し、乾性沈着量の評価を実施しました。

2009年度には部会名称を「酸性雨調査研究部会」から「酸性雨広域大気汚染調査研究部会」と改め、窒素成分のより高度な沈着量の把握などを含めた第5次調査を開始し、2015年度までの7年間実施しました。2016年度からは第6次調査を開始し、フィルターパック法による乾性沈

着調査において、従来の4段ろ紙法から5段もしくは6段ろ紙法への移行を推奨し、さらに高精度かつ広域的な全国調査を実施しています。

今回、この成果が、各地域でのデータ解析評価の一助となれば幸いです。また、調査結果の解析では広域大気汚染についても検討を行っており、今後も継続したデータ収集および解析により、東アジア酸性雨モニタリングネットワークの充実に貢献したいと考えています。

このように、本部会の取組は、日本における酸性雨調査を面的および项目的に補完しており、環境省および国立研究開発法人国立環境研究所と連携して、全国的な情報・知見の集積を行う上で、地方研究機関の役割・貢献が極めて大きいことを示していると思われます。加えて、最近ではPM_{2.5}による大気汚染等の問題により、環境行政に対する国民の関心が非常に高くなっております。このような中で、われわれ地方環境研究機関が中心となって独自の調査研究を行っていくことは、環境行政の推進に必要不可欠であり、今後も継続していくことが重要であると思われます。

最後になりましたが、行財政状況の大変厳しい中、本部会の活動にご参加いただきました全国環境研協議会会員機関と調査担当の皆様、本調査の企画・解析等にご尽力されました各委員、有益なご助言・ご指導をいただきました有識者の皆様、本調査に対し多大なご協力・ご支援をいただきました環境省、国立環境研究所、（一財）日本環境衛生センター／アジア大気汚染研究センター、ならびに、その他の多くの皆様に、この場をお借りしまして、深くお礼を申し上げます。今後も引き続き、当部会の活動に皆様のご支援・ご協力を賜りますようお願い申し上げます。

平成29年7月

全国環境研協議会

酸性雨広域大気汚染調査研究部会

部会長 四宮 博人

（愛媛県立衛生環境研究所 所長）

1. 調査目的

全国環境研協議会（以下、全環研）は、表1.1.1に示すように1991年度から全国調査を行ってきた。その結果、全国の湿性および乾性沈着について、地域特性、季節変化、火山・大陸の発生源の影響、乾性沈着速度評価などの多くの知見を得てきた。第1次から第3次調査までは3カ年の調査の後、1年間の準備期間を経て次の調査を行ってきたが、2003～2005年度の予定で開始した第4次調査では急速に増大し始めた中国のSO₂およびNO_x排出量の影響などが懸念されたことから、追加調査として3カ年、2008年度まで計6年間の調査を実施した。

2009年度～2015年度は、これまでの調査に加え素素成分のより高度な沈着量の把握やバックグラウンドオゾン濃度の把握などを含めた第5次調査を実施した。本調査の目的は、日本全域における酸性沈着による汚染実態を把握することであり、①国際標準の方法である降水時開放型捕集装置（ウェットオンリーサンプラー）による湿性沈着の把握、②自動測定機、国際的モニタリングネットワークでも用いられているフィルターパック法およびパッシブ法による乾性沈着成分（ガス/エアロゾル）濃度の把握、③インファレンシャル法による乾性沈着速度算出および乾性沈着量評価、以上の3つが主なテーマである。第5次調査の特徴としては、①第4次調査から準備年をおかずに継続して実施していること、②パッシブ法を小川式（0式）に統一することにより、広域の解析・とりまとめを目指すこと、③アンモニア・アンモニウムイオンの成分ごとの評価を目指すことなどが挙げられる。

なお、第1～5次調査結果（2014年度まで）は国立環境研究所地球環境研究センターにおける地球環境データベース（<http://db.cger.nies.go.jp/dataset/acidrain/ja/index.html>）にて公開されている。

2. 調査内容

2.1 調査概要

2015年度の調査参加機関は表2.1.1に示す49機関であり、湿性沈着調査地点は68地点、乾性沈着調査地点は44地点（フィルターパック法：31地点、パッシブ法：26地点）である。なお、一部には、他の学術機関との共同研究^{1, 2)}、国設局との共用データも含まれている。なお、環境省のデータとは降水量の算出方法（気象データを用いる場合と貯水量を用いる場合）などデータの算出法が一部異なるため、数値が一致しない場合があることに注意が必要である。

2015年度の調査期間は原則として2015年4月6日～2016年4月4日であり、季節および月の区切りは表2.1.2に示すとおりである。

本調査および報告書の作成は全環研・酸性雨広域大気汚染調査研究部会が主導して行われた。2015～2016年度の部会組織および報告書の担当を表2.1.3に示す。

2.2 調査方法

2.2.1 湿性沈着

調査地点は1地点の場合は原則として都市域で実施し、複数地点の場合は都市域および都市域から20～30km離れた地点または（および）地方に特有の地点で実施している。

調査は、通年調査とし、1週間単位での採取を原則とするが、2週間あるいはそれ以上での採取も可とし、その場合、冷蔵庫の設置等による試料の変質防止対策を推奨している。試料採取は原則月曜日に行った。なお、解析に用いるデータは表2.1.2に示す月単位である。

降水の捕集装置は降水時開放型であり、降雪地域においては、移動式の蓋の形状変更や凍結防止用ヒーターの装備などの対策をとることが望ましいが、ヒーターの使

表1.1.1 全国環境研協議会・酸性雨広域大気汚染調査研究部会による酸性雨全国調査の主な調査内容

	第1次酸性雨全国調査	第2次酸性雨全国調査	第3次酸性雨全国調査		第4次酸性雨全国調査		第5次酸性雨全国調査	
調査対象	降水成分	降水成分	湿性沈着	乾性沈着	湿性沈着	乾性沈着	湿性沈着	乾性沈着
調査地点	1991年度：158地点 1992年度：140地点 1993年度：140地点	1995年度：52地点 1996年度：58地点 1997年度：53地点	1999年度：47地点 2000年度：48地点 2001年度：52地点	1999年度：25地点 2000年度：27地点 2001年度：29地点	2003年度：61地点 2004年度：61地点 2005年度：62地点 2006年度：57地点 2007年度：61地点 2008年度：60地点	2003年度：32地点 2004年度：34地点 2005年度：35地点 2006年度：39地点 2007年度：34地点 2008年度：29地点	2009年度：72地点 2010年度：67地点 2011年度：66地点 2012年度：66地点 2013年度：67地点 2014年度：65地点 2015年度：68地点	2009年度：32地点 2010年度：35地点 2011年度：36地点 2012年度：34地点 2013年度：35地点 2014年度：28地点 2015年度：31地点
調査手法	ろ過式採取法（バルク採取）による原則1週間単位の試料採取	バケツ（バルク採取）による1日単位の試料採取	降水時開放型捕集装置（ウェットオンリー採取）による原則1週間単位の試料採取	フィルターパック法による原則1～2週間単位の試料採取	降水時開放型捕集装置（ウェットオンリー採取）による原則1週間単位の試料採取	フィルターパック法によるガス及び粒子状成分調査、原則1～2週間単位の試料採取	パッシブサンプラー（O式およびN式）によるガス成分調査、月単位の試料採取	降水時開放型捕集装置（ウェットオンリー採取）による原則1～2週間単位の試料採取
調査期間	通年調査	夏季及び冬季の2週間調査	通年調査		通年調査		通年調査	
データの公表	国立環境研究所地球環境研究センターホームページ（ http://www.cger.nies.go.jp/acid/acid0.htm ）に掲載	国立環境研究所地球環境研究センターホームページ（ http://www.cger.nies.go.jp/acid2/acid2-0.htm ）に掲載	国立環境研究所地球環境研究センターホームページ（ http://www.cger.nies.go.jp/acid3/acid3-index.html ）に掲載		国立環境研究所地球環境研究センターホームページ（ http://db.cger.nies.go.jp/dataset/acidrain/ja/04/index.html ）に掲載		国立環境研究所地球環境研究センターホームページに掲載予定	
報告書の公表	全国公害研会誌 VOL.19, NO.2,（平成4年度酸性雨全国調査結果報告書） 全国公害研会誌 VOL.20, NO.2,（酸性雨全国調査結果報告書（平成3年度～平成5年度））	全国公害研会誌 VOL.21, NO.4,（第2次酸性雨全国調査報告書（平成7年度）） 全国公害研会誌 VOL.22, NO.4,（第2次酸性雨全国調査報告書（平成8年度）） 全国公害研会誌 VOL.23, NO.4,（第2次酸性雨全国調査報告書（平成9年度））	全国環境研会誌 VOL.26, NO.2,（第3次酸性雨全国調査報告書（平成11年度）） 全国環境研会誌 VOL.27, NO.2,（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.28, NO.3,（第3次酸性雨全国調査報告書（平成11～13年度））		全国環境研会誌 VOL.30, NO.2,（第4次酸性雨全国調査報告書（平成15年度）） 全国環境研会誌 VOL.31, NO.3, 4,（第4次酸性雨全国調査報告書（平成16年度）） 全国環境研会誌 VOL.32, NO.3, 4,（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.33, NO.3, 4,（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 VOL.34, NO.3, 4,（第4次酸性雨全国調査報告書（平成19年度）） 全国環境研会誌 VOL.35, NO.3, 4,（第4次酸性雨全国調査報告書（平成20年度））		全国環境研会誌 VOL.36, NO.3,（第5次酸性雨全国調査報告書（平成21年度）） 全国環境研会誌 VOL.37, NO.3,（第5次酸性雨全国調査報告書（平成22年度）） 全国環境研会誌 VOL.38, NO.3,（第5次酸性雨全国調査報告書（平成23年度）） 全国環境研会誌 VOL.39, NO.3,（第5次酸性雨全国調査報告書（平成24年度）） 全国環境研会誌 VOL.40, NO.3,（第5次酸性雨全国調査報告書（平成25年度）） 全国環境研会誌 VOL.41, NO.3,（第5次酸性雨全国調査報告書（平成26年度））	

表2.1.1 調査地点の属性および調査内容

支 部	都道府県名	地点名	調査機関名	排出量 ^(注1) (t km ⁻² y ⁻¹)			地域区分 ^(注2)	緯度 (度)	経度 (度)	属性 ^(注3)	乾性 ^(注4)			標高 (m)	海岸からの 距離(km)	サンブーア設置位置 地上高	土地利用など			
				SO ₂	NO _x	NH ₃					FP	〇式	自動							
北海道・東北	北海道	利尻	北海道立総合研究機構 環境科学研究所	1.27	0.51	0.02	NJ	45.12	141.21	☆	☆	○	☆	40	0.8	地上高3m	未指定(草、笹)			
		天塩FRS	北海道立総合研究機構 環境科学研究所	0.01	0.09	0.50	NJ	45.06	142.10			■		70	30	地上高8m	未指定(森林)			
		母子里	北海道立総合研究機構 環境科学研究所	0.12	0.76	0.49	NJ	44.36	142.27	□		○		287	40	地上高8m	未指定(森林)			
		札幌北	北海道立総合研究機構 環境科学研究所	5.18	25.61	1.07	NJ	43.08	141.33	☆	○	○	☆	12	13	Wet: 8m, FP: 〇式: 9m	住居地域(市街地)			
		摩周	北海道立総合研究機構 環境科学研究所	0.03	0.30	1.00	NJ	43.56	144.51			▲		550	30	地上高1.5m	未指定(森林)			
		黒松内	北海道立総合研究機構 環境科学研究所	0.03	0.33	0.36	NJ	42.65	140.31			▲		87	13	地上高5m	未指定(森林)			
	青森県	青森東道造	青森県環境保健センター	1.18	3.59	0.44	NJ	40.83	140.79	○				3	0.7	地上高20m	住居地域(市街地)			
		緑ヶ沢舞戸	青森県環境保健センター	0.20	1.15	0.51	NJ	40.78	140.24	○			▲	30	0.4	地上高13m	都市計画未指定			
	岩手県	盛岡	岩手県環境保健研究センター	1.21	5.94	1.33	NJ	39.68	141.14			○		131	70	地上高12m	準工業地域 市街地			
		八幡平	岩手県環境保健研究センター	0.47	1.99	1.15	NJ	39.82	140.94			○		830	89	地上高2m	森林地域			
	宮城県	涌谷	宮城県保健環境センター	1.83	5.75	2.45	NJ	38.55	141.18	○				165	19	地上高3m	未指定(草、雑)			
	秋田県	秋田千秋	秋田県健康環境センター	4.37	6.14	0.53	NJ	39.72	140.13	○				16	5.5	地上高20m	商業地域			
	山形県	鶴岡	山形県環境科学研究所	0.12	0.71	0.38	NJ	38.55	139.87			○		220	26	地上高5m	未指定(森林)			
	福島県	福島天栄	福島県環境センター	0.61	1.22	0.50	EJ	37.25	140.04			○		941	84	地上高1.2m	田園			
		郡山朝日 ^(注10)	福島県環境センター	1.32	6.08	1.37	EJ	37.41	140.36	○				242	60	地上高10m	都市			
		三春 ^(注10)	福島県環境センター	1.31	6.42	1.48	EJ	37.43	140.52	○				423	46	地上高10m	工業地域			
		小浜浜	いわき市環境監視センター	13.81	16.92	0.99	EJ	36.96	140.89	○		○	○	3	2.5	Wet: 5m, 〇式: 1.5m	第一種住居地域			
		新潟曽根	新潟県保健環境科学研究所	2.60	9.49	1.28	JS	37.85	138.94	○	○		▲	2	3.1	Wet: 2.5m, FP: 2.1m	市街化調整区域			
		長岡	新潟県保健環境科学研究所	1.87	4.94	0.62	JS	37.45	138.87	○	○		○	27	19	地上高5m	住居地域			
	新潟県	新潟大山	新潟市衛生環境研究所	2.75	12.68	1.74	JS	37.94	139.08	○				10	1.2	地上高4m	住宅地域			
		新潟坂井	新潟市衛生環境研究所	2.62	9.59	1.64	JS	37.89	138.98			○		0	1.5	地上高3m	住宅地域			
新潟小浜		新潟市衛生環境研究所	2.64	9.73	1.66	JS	37.87	138.99	○	○			0	1.7	地上高15m	住宅地域				
日光 ^(注5)		栃木県保健環境センター	0.13	0.97	0.16	EJ	36.74	139.48	○				1300	95	地上高1m	住宅地				
栃木県	宇都宮 ^(注6)	栃木県保健環境センター	2.88	10.93	2.79	EJ	36.60	139.94	○				140	65	地上高10m	住宅地				
	小山	栃木県保健環境センター	3.13	12.59	3.08	EJ	36.31	139.83	○				35	63	地上高6m	住宅地				
埼玉県	加賀 ^(注5)	埼玉県環境科学国際センター	2.49	18.24	3.51	EJ	36.09	139.56	○		▲	○	13	55	地上高11m	農用地区域				
	さいたま	さいたま市健康科学研究所	7.46	48.21	5.19	EJ	35.86	139.65	○				15	35	地上高15m	商業地域				
茨城県	土浦	茨城県霞ヶ浦環境科学センター	1.44	7.73	3.20	EJ	36.08	140.27	○				18	31	地上高1m	未指定(草地)				
千葉県	群馬県	前橋	群馬県衛生環境研究所	4.13	12.96	7.55	EJ	36.40	139.10	○		○	○	102	110	地上高20m	市街化調整区域			
	市川	千葉県環境研究センター	8.63	59.68	4.64	EJ	35.72	139.93	○				5	6.1	地上高20m	住居地域				
	市原	千葉県環境研究センター	13.96	44.28	3.14	EJ	35.53	140.07	○	○	▲		5	1.2	Wet: 5m, FP: 〇式: 10m	工業地域				
	鎌子	千葉県環境研究センター	10.17	8.98	3.92	EJ	35.74	140.74	○				50	4.5	地上高5m	農業地域				
	一宮	千葉県環境研究センター	0.23	1.97	0.97	EJ	35.35	140.38	○				5	1	地上高3m	農業地域				
	旭	千葉県環境研究センター	7.68	8.66	4.12	EJ	35.73	140.72	○	○	▲		58	4.7	地上高0m	農業地域				
	佐倉	千葉県環境研究センター	2.96	26.96	3.01	EJ	35.73	140.21	○	○	▲		25	19	地上高3m	住居地域				
	清澄	千葉県環境研究センター	0.16	1.14	0.92	EJ	35.16	140.16	○				360	4.5	地上高0m	未指定(森林)				
	勝浦	千葉県環境研究センター	0.16	1.06	0.66	EJ	35.18	140.27	○				97	4.4	Wet: 5m, FP: 3m,	農業地域				
	宮野木	千葉県環境保健研究所	12.33	42.86	3.97	EJ	35.65	140.10	○				21	4.1	地上高3m	住居系				
神奈川県	平塚	神奈川県環境科学センター	1.42	17.70	3.03	EJ	35.35	139.35	○				9	3.7	地上高22m	準工業地域				
	川崎 ^(注5)	川崎市環境総合研究所	16.98	74.46	3.11	EJ	35.54	139.75	○				4	3.2	地上高20m	準工業用地				
長野県	長野	長野県環境保全研究所	1.35	4.76	0.61	CJ	36.64	138.18	○	○		○	363	52.5	Wet: 15m, FP: 3m	第一種住専				
静岡県	静岡小浜	静岡市環境保健研究所	3.29	10.23	1.42	CJ	34.97	138.40	○				14	3.6	地上高8m	住宅地				
	静岡北安東	静岡県環境科学研究所	3.15	9.89	1.38	CJ	35.00	138.39	○	○			10	7.1	地上高9.3m	住宅地域(市街地)				
	富山県	射水 ^(注5)	富山県環境科学センター	6.11	15.55	1.80	JS	36.70	137.10	○	○	▲	○	22	8	Wet: 〇m, FP: 〇式: 12.5m	第一種中高層住宅専用地域			
近畿・東海・北陸	石川県	金沢	石川県保健環境センター	2.74	6.93	1.12	JS	36.53	136.71	○	○	○		120	14	地上高14m	第二種住居専用地域			
	福井県	福井	福井県衛生環境研究所	2.41	7.77	0.80	JS	36.07	136.26	○			○	11	18	地上高9m	市街化調整区域			
	岐阜県	伊自良瀬	岐阜県保健環境研究所	2.00	5.52	1.54	CJ	35.57	136.70	☆	☆		☆	140	60	地上高4.3m	林地			
	愛知県	豊橋	愛知県環境調査センター東三河支所	2.36	10.81	4.18	CJ	34.74	137.38	○	○	▲	○	20	6	地上高8m	住居地域			
		名古屋南	名古屋市環境科学調査センター	10.23	51.61	4.70	CJ	35.10	136.92	○	○	▲		0	3	地上高19.2m	準工業地域			
	三重県	四日市桜	三重県保健環境研究所	4.10	17.71	2.31	CJ	34.99	136.49	○				190	15.1	地上高15m	原野			
	滋賀県	大津柳ヶ崎	琵琶湖環境科学研究所	3.92	17.74	1.34	CJ	35.03	135.87	○				87	53	地上高28m	住宅地			
	京都府	京都壬生	京都府衛生保健研究所	3.96	17.81	1.65	CJ	35.00	135.73	○				26	47	地上高21m	準工業地域(市街地)			
	兵庫県	神戸須磨	(公財) ひょうご環境創造協会 兵庫県環境研究センター	10.20	30.41	1.05	CJ	34.65	135.13	○	○		○	15	0.9	Wet: 29m, FP: 17m	準工業地域			
	和歌山県	海南	和歌山県環境衛生研究センター	9.97	14.10	1.12	CJ	34.16	135.21	○	○		○	3	0.4	地上高12.5m	商業			
	中国・四国	鳥取県	若桜	鳥取県衛生環境研究所	0.03	0.50	0.30	JS	35.35	134.49	○		○	▲	800	28.4	地上高2.5m	未指定		
			湯梨浜	鳥取県衛生環境研究所	0.25	1.30	0.86	JS	35.49	133.89	○	○			2	1.3	地上高11m	未指定		
		鳥根県	松江	鳥根県保健環境科学研究所	0.46	2.49	0.56	JS	35.47	133.01	○				5	6	地上高1.2m	区域外		
		広島県	広島安佐南	広島市衛生研究所	3.35	12.32	1.04	WJ	34.46	132.41	○				80	11	地上高10m	住居地域		
	九州・沖縄	山口県	山口	山口県環境保健センター	2.28	5.84	0.63	WJ	34.15	131.43	○				13	13	地上高1m	住居地域		
		徳島県	徳島	徳島県立保健製薬環境センター	2.04	8.03	1.76	CJ	34.07	134.56	○				2	3	地上高18m	住居地域		
		高知県	香北	高知県環境研究センター	0.04	0.46	0.18	WJ	33.71	133.86	○	○			230	21	地上高11.4m	区域外		
		福岡県	太宰府	福岡県保健環境研究所	3.94	21.34	1.90	WJ	33.51	130.50	○	○		○	30	15	Wet: 16.4m, FP: 5.1m	市街化調整区域		
福岡			福岡市保健環境研究所	2.43	14.89	1.38	WJ	33.50	130.31	○				193	9.2	地上高1m	市街化調整区域			
佐賀県		佐賀	佐賀県環境センター	2.50	6.92	1.63	WJ	33.27	130.27	○				4	11	地上高8.5m	第一種住居地域(市街地)			
長崎県		鎌早	長崎県環境保健研究センター	5.88	7.58	1.30	WJ	32.86	130.04	○				23	4	地上高10m	住居地域(市街地)			
		長崎	長崎県環境保健研究センター	1.17	4.99	0.62	WJ	32.76	129.86	◇				4	1.3	地上高2.6m	商業地域			
		佐世保	長崎県環境保健研究センター	4.30	8.39	1.37	WJ	33.18	129.72	◆				38	1.3	地上高38m	住居地域(市街地)			
		阿蘇	熊本県保健環境科学研究所	0.30	1.33	1.72	WJ	32.97	131.05	○				481	46	地上高3m	未指定			
熊本県	宇土	熊本県保健環境科学研究所	2.07	8.38	1.47	WJ	32.67	130.65	○				20	2.7	地上高1m	未指定				
	熊本(錦ヶ丘) ^(注11)	熊本市環境総合センター	1.71	8.83	3.56	WJ	32.79	130.75	○		▲	○	26	12.9	Wet: 9m, 〇式: 10m	住宅地域				
	熊本(画図町) ^(注11)	熊本市環境総合センター	1.65	8.71	2.93	WJ	32.76	130.73	○		▲	○	5	12.0	Wet: 14.7m, 〇式: 15.7m	市街化調整区域				
	大分県	大分久住	大分県衛生環境研究センター	2.07	8.38	1.47	WJ	33.04	131.25	○	○			560	35	地上高4.7m	未指定(牧草地)			
	大分	大分県衛生環境研究センター	15.09	19.72	1.30	WJ	33.16	131.61	○	○			90	11	地上高14.3m	住宅地				
宮崎県	宮崎	宮崎県衛生環境研究所	0.56	3.25	1.14	WJ	31.83	131.42	○	○			20	3.5	地上高14m	都市地域(準工業地域)				
沖縄県	鹿児島島	鹿児島県環境保健センター	1.41	5.88	1.37	WJ	31.35	130.34	○	○		▲	1	0.1	Wet: 4.5m, FP: 21m	準工業地				
	大里	沖縄県衛生環境研究所	6.30	7.83	2.08	SW	26.19	127.75	○	○	▲		109	1.8	地上高8m	未指定				
	辺戸岬	沖縄県衛生環境研究所	0.00	0.05	0.35	SW	26.87	128.25	☆	☆		☆	60	0.2	地上高4.5m	特別地域				
調査地点数																	68	31	26	21

しており、測定項目および分析方法、手順については、湿性沈着モニタリング手引き書—第2版—（以下、手引き書³⁾）に従い、イオンバランス(R_1)および電気伝導率バランス(R_2)により、基準範囲を超える場合は、再分析を行うなどの精度管理を行っている。また、分析精度の確保に関しては、環境省のモニタリングネットワーク（以下、JADS）の測定局を対象に行われている分析機関間比較調査に本調査参加機関も多数参加し、全環研としても解析を行うことにより、分析データの信頼性を確保している。

表2.1.2 調査期間の季節・月区分

季節	月	2015年度	週
春	4	4月6日 ～ 5月7日	4
	5	5月7日 ～ 6月1日	4
夏	6	6月1日 ～ 6月29日	4
	7	6月29日 ～ 7月27日	4
秋	8	7月27日 ～ 9月7日	6
	9	9月7日 ～ 10月5日	4
冬	10	10月5日 ～ 11月2日	4
	11	11月2日 ～ 11月30日	4
春	12	11月30日 ～ 12月28日	4
	1	12月28日 ～ 1月25日	4
夏	2	1月25日 ～ 3月7日	6
	3	3月7日 ～ 4月4日	4

注) 週単位の試料交換日は原則として月曜日とした。

2.2.2 乾性沈着

乾性沈着調査はフィルターパック法、パッシブ法および自動測定機による方法を採用した。フィルターパック法、パッシブ法における測定項目別の捕集ろ紙を表2.2.1に示す。

2.2.2.1 フィルターパック法

フィルターパック法（以下、FP法）は、1段目で粒子状物質を、2段目で HNO_3 などを、3段目で SO_2 、 HCl を、4段目で NH_3 を捕集する4段ろ紙法^{4, 5)}を全環研として採用した。

調査地点は、可能な限り湿性沈着調査地点と同一地点を選定することとなっており、通年調査で、採取単位は1週間～2週間である。なお、解析に用いるデータは月単位である。試料採取は、第3～4次調査⁴⁾と同様に表2.2.1に示した4種のろ紙を装着し、毎分1～5Lの吸引速度で連続採取を行い、積算流量計、あるいは平均流量から採気量を求めている。

なお、全環研のFP法に関するマニュアルは東アジア酸性雨モニタリングネットワーク（以下、EANET）でも英訳されて用いられており、詳細な手順などはこれまでの報告⁴⁾およびEANETの技術資料⁶⁾などを参照されたい。

表2.1.3 全国環境研協議会・酸性雨広域大気汚染調査研究部会組織

部会役職	所 属	氏 名	担当 年度	報告書等 担当部分
部会長	熊本市環境総合センター	藤井 幸三	H27-28	
理事委員	宮崎県衛生環境研究所	瀧田 洋彦	H27-28	
支部委員	岩手県環境保健研究センター	多田 敬子	H27-28	D, 6章
	埼玉県環境科学国際センター	松本 利恵	H27-28	D, 5.3章
	福井県衛生環境研究センター	川下 博之	H27	
	〃	藤田 大介	H28	D, 4章
	徳島県立保健製薬環境センター	河野 明大	H27-28	D, 4章
	沖縄県衛生環境研究所	友寄 喜貴	H27-28	D, 1-3章
委 員	地方独立行政法人 北海道立総合研究機構 環境・地質研究本部 環境科学研究センター	野口 泉	H27	
	〃	山口 高志	H27-28	6章
	新潟県保健環境科学研究所	家合 浩明	H27-28	
	千葉県環境研究センター	横山 新紀	H27-28	6章
	富山県環境科学センター	木戸 瑞佳	H27-28	5.1-5.2章
	三重県保健環境研究所	西山 亨	H28	4章
	公益財団法人 ひょうご環境創造協会 兵庫県環境研究センター	堀江 洋佑	H27-28	1-4章
	名古屋市環境科学調査センター	久恒 邦裕	H28	4章
	鳥取県衛生環境研究所	山添 良太	H27-28	5.3章
	福岡県保健環境研究所	濱村 研吾	H27-28	5.1-5.2章
	沖縄県衛生環境研究所	岩崎 綾	H27-28	1-4章
	国立大学法人 東京農工大学 農学部	松田 和秀	H27-28	
	法政大学 生命科学部	村野 健太郎	H27-28	
	国立研究開発法人 国立環境研究所 地球環境研究センター	向井 人史	H27-28	
有識者	公立大学法人 北九州市立大学	藍川 昌秀	H27-28	
	一般財団法人 日本環境衛生センター アジア大気汚染研究センター	箕浦 宏明	H27-28	
	大気環境学会中国・四国支部	大原 真由美	H26-27	
	環境省	小林 登茂子	H27	
	〃	船越 吾朗	H28	
	〃	甲斐 勇	H27-28	
事務局	熊本市環境総合センター	濱野 晃	H27-28	
	〃	吉田 英美香	H27-28	

注) 「報告書担当部分」におけるDはデータ収集、数字は報告書の章を表す。

表2.2.1 測定項目別の捕集ろ紙

項 目	捕集ろ紙名
F P	粒子状成分
	HNO ₃
	SO ₂
	HCl
	NH ₃
パ ッ シ ブ	NO ₂
	NO _x
	NH ₃
	O ₃
	(SO ₂)*

*第5次調査では測定対象外

2.2.2.2 パッシブ法

パッシブ法は、目的のガス成分を捕集するための試薬が含浸されたろ紙、あるいは目的のガス成分と反応を起こすための試薬が含浸されたろ紙を用い、捕集量あるいは試薬成分変化量を測定し、濃度を求める方法である。パッシブ法においては、そのまま試薬含浸ろ紙をさらす方が捕集量は多くなるが、粒子状物質の沈着や風の強さなどの影響を除くため、目的ガス成分がろ紙にたどり着くまでの抵抗を設ける必要がある。本調査では抵抗方法として、細孔を開けたサンプラーのカバーによる（拡散長抵抗）方法である小川式パッシブ法（以下、パッシブ法）を用いている。

2015年度のパッシブ法の調査地点は28地点である。調査地点は大都市（例えば県庁所在地）・工業地域、中小都市地域、田園地域、山林地域などからその目的に応じ1地点以上選定する。可能ならば1地点はフィルターパック法（以下、FP法）又は自動測定機による測定を実施している地点を選定することとなっている。調査は通年であり、採取単位は原則1ヶ月である。

パッシブ法は、THE OGAWA SAMPLERとして欧米でもモニタリングに用いられている方法であり、測定方法としてはFP法と同様に世界的にも良く知られている。本方法は、拡散長抵抗方法が用いられ、濃度と捕集量の関係が理論的に証明されており、他の方法と比較することなく濃度の算出が可能である。また捕集効率が100%に近く、分子拡散係数が得られれば、他の成分でも測定が可能である。しかし、抵抗が大きく、ブランク値および分析の定量下限値の影響を受けやすい。特にSO₂に関しては、都市部以外の地域では精度の高い測定結果を得るのは困難であるため第5次調査では測定対象となっていない。しかし、従来のマニュアル⁷⁾で用いられていたトリエタノールアミン（TEA）ではなく、K₂CO₃により改良された低濃度用ろ紙の測定結果と、従来法との換算式も報告され

ている⁸⁾。これを受け、メーカーからK₂CO₃含浸ろ紙が市販されるようになった。このことにより、従来のマニュアル⁷⁾に加えて、マニュアルとは異なる点を含む全環研用パッシブ法のマニュアル補足版を作成した。

2.2.2.3 自動測定機の詳細

自動測定機による測定値は、大気汚染常時監視測定局データなどを月単位に集計し用いている。本データはFP法およびパッシブ法による測定結果の精度確認のために用いた。また、一部は乾性沈着量の評価にも用いている。本データには高濃度地域に対応するための常時監視データも含まれており、一部はFP法より精度が低い場合もある。2015年度の自動測定機の調査地点は21地点である。

2.2.3 調査地点の属性および調査内容

広域的な環境調査データを解析する場合、目的に応じてデータおよび地点を選択することが有効である。

環境省の酸性雨モニタリング、EANETなどでは、モニタリングの目的、あるいは発生源（都市域）からの距離に応じて調査地点を区分している。これは、モニタリングデータを解析する場合に、この区分に応じて、近隣の発生源の影響などを考慮し、対象地点を選択して解析するためである。

本調査では、Kannariら（2007）⁹⁾による2000年度ベースのSO₂、NO_xおよびNH₃排出量の情報を用いて、必要に応じて排出量別の解析を実施した。それぞれの排出量は3次メッシュ（約1km四方）で得られており、調査地点周辺（半径20km相当：対象範囲は、測定地点を中心とした半径20kmの円内に3次メッシュの中心点が存在するメッシュとした。）の排出量を算出した。

－ 引用 文 献 －

- 1) 母子里のデータは、北大北方生物圏フィールド科学センターとの共同研究による。
- 2) 天塩FRSのデータは、国立環境研地球環境研究センター、北大北方生物圏フィールド科学センターおよび北大工学研究科との共同研究による。
- 3) 環境省環境保全対策課：湿性沈着モニタリング手引き書（第2版）、2001
http://www.env.go.jp/air/acidrain/man/wet_deposi/index.html
- 4) 全環研：第3次酸性雨全国調査報告書（平成11～13年度のまとめ）、全国環境研会誌、28、2-196、2003
- 5) 松本光弘、村野健太郎：インフアレシヤル法による樹木等への乾性沈着量の評価と樹木衰退の一考察、日本化学会誌、1998(7)、495-505、1998
- 6) Acid Deposition Monitoring Network in East Asia

- : 東アジアにおけるフィルターパック法に関する技術資料, http://www.eanet.cc/jpn/docea_f.html
- 7) 平野耕一郎, 斉藤勝美: 短期暴露用拡散型サンプラーを用いた環境大気中のNO, NO₂, SO₂, O₃およびNH₃濃度の測定方法(改訂版), 2010年8月
<http://www.city.yokohama.lg.jp/kankyo/mamoru/kenkyu/shiryo/pub/d0001/d0001.pdf>
- 8) 恵花孝昭, 野口泉, 樋口慶郎, 2009. 0式パッシブサンプラー法におけるSO₂捕集剤の検討(第2報). 第50回大気環境学会年会講演要旨集, p. 437
- 9) A. Kannari, Y. Tonooka, T. Baba, K. Murano : Development of multiple-species 1 km × 1 km resolution hourly basis emissions inventory for Japan, *Atmos. Environ.*, **41**, 3428-3439, 2007

3. 気象概況および大気汚染物質排出量の状況

降水量が多い場合、湿性沈着成分濃度は低下するが、沈着量は増加する。また気温および日射は乾性沈着成分の生成や存在形態に影響すると考えられる。一方、 SO_2 、 NO_x およびアンモニア NH_3 排出量の状況も成分濃度や沈着量に反映されると考えられる。これらのことから、ここでは気象概況および大気汚染物質排出量の状況を示す。

3.1 2015年度の気象概況

2015年度の概況は、以下のとおりである。平均気温は、夏から秋の一時期を除き、全国的に高温傾向が続いた。ただし、西日本では2年連続の冷夏となった。9月上旬には、台風第17号と第18号の接近により、関東地方や東北地方では記録的な大雨となり、河川の氾濫など甚大な災害が発生した（「平成27年9月関東・東北豪雨」と命名）。

春の平均気温は、北・東・西日本ではかなり高く、沖縄・奄美で高かった。春の降水量は、北日本が多く、東・西日本、沖縄・奄美では平年並だった。春の日照時間は、北日本、東日本日本海側ではかなり多く、東日本太平洋側、西日本日本海側で多かった。西日本太平洋側と沖縄・奄美で平年並だった。

夏の平均気温は、沖縄・奄美でかなり高く、北日本で高かった。一方、西日本では低かった。東日本では平年並だった。夏の降水量は、西日本太平洋側、沖縄・奄美でかなり多く、東日本太平洋側では多かった。東日本日本海側ではかなり少なく、北日本太平洋側では少なかった。北・西日本日本海側では平年並だった。夏の日照時間は、西日本太平洋側でかなり少なく、西日本日本海側と沖縄・奄美では少なかった。北・東日本では平年並だった。

秋の平均気温は、沖縄・奄美でかなり高く、北・東・西日本は平年並だった。秋の降水量は、沖縄・奄美でかなり少なく、東日本日本海側で少なかった。北・東日本太平洋側では、特に9月上旬の「平成27年9月関東・東北豪雨」の影響により、多かった。北日本日本海側と西日本は平年並だった。秋の日照時間は、北・東日本太平洋側、沖縄・奄美で多く、北・東日本日本海側と西日本では平年並だった。

冬の平均気温は、全国的に高く、東・西日本はかなり高かった。冬の降水量は、全国的に多く、西日本と沖縄・奄美ではかなり多かった。冬の降雪の深さ合計は西日本日本海側で多かったが、このうち九州北部でかなり多く、近畿日本海側や山陰ではかなり少なかった。東日本で少なく、北日本でかなり少なかった。西日本太平洋側では平年並だった。冬の最深積雪は、東日本太平洋側で多い所が多かった。冬の日照時間は、沖縄・奄美でかなり少なく、北・西日本日本海側で少なかった。北・西日

本太平洋側と東日本は平年並だった¹⁾。

黄砂観測日数は前年度17日に対し、9日と減少した²⁾。

2015年度の各月における降水量、気温および日射(日照時間)の概況を表3.1.1に示す。

3.2 SO_2 、 NO_x などの排出量のトレンドと分布

北東アジアにおける人為起源の SO_2 および NO_x 排出量は、中国およびインド、極東ロシアが多い³⁾。また図3.2.1に示す中国の SO_2 、 NO_x 排出量のトレンド^{4,5)}は、図3.2.2に示す中国、韓国および日本のエネルギー消費のトレンド⁶⁾とも合致しており、90年代半ばから2000年頃まではやや停滞したが、その後再び排出量が増加し、2007年以降、 SO_2 排出量が漸減したとの報告⁷⁾もあるが、その排出量は多いままである。 NO_x 排出量については、2010年度以降減少傾向にあるが、排出量は多いままである。

国内における人為発生源由来の SO_2 、 NO_x および NH_3 排出量では、 SO_2 および NO_x 排出量は関東から北九州にかけての工業地帯および高速道路などの幹線道路近傍の排出量が多い⁸⁾。また NH_3 排出量は酪農などを含む農業部門からの排出も多い傾向がみられる。なお、1995年度の分布と比べると幹線道路近傍の SO_2 排出量は減少しており、軽油の硫黄分削減効果が認められている⁹⁾。

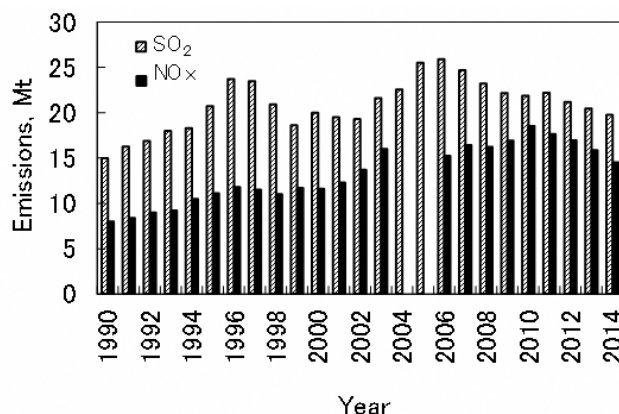


図3.2.1 中国における SO_2 および NO_x 排出量

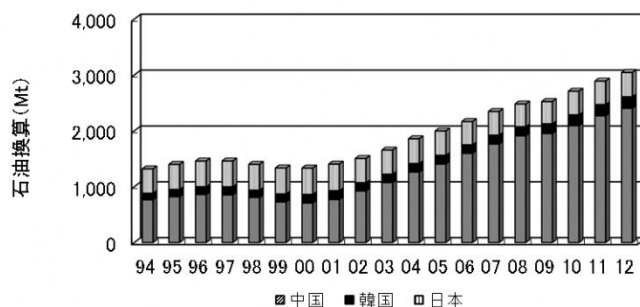


図3.2.2 中国、韓国および日本のエネルギー消費のトレンド

表3.1.1 気象概況(<http://www.jma.go.jp/jma/press/tenko.html>)

平均気温

4月	西日本でかなり高く、北・東日本と沖縄・奄美で高かった。釧路(北海道)で4月の月平均気温の高い方から1位の値を更新した。
5月	全国的にかなり高かった。札幌(北海道)、青森(青森県)など55地点で5月の月平均気温の高い方から1位の値を更新した。
6月	月平均気温は、沖縄・奄美でかなり高く、平年を1℃以上上回った。与那国島、西表島、石垣島、宮古島、久米島(以上、沖縄県)では6月の月平均気温の高い方からの1位の値を更新した。一方、西日本では低かった。北・東日本では平年並だった。
7月	北・東日本で高く、西日本で低かった。沖縄・奄美では平年並だった。
8月	西日本で低かった。北・東日本と沖縄・奄美では平年並だった。
9月	東・西日本で低く、北日本と沖縄・奄美では平年並だった。
10月	北日本で低く、東・西日本と沖縄・奄美では平年並だった。
11月	北日本で高く、東・西日本と沖縄・奄美でかなり高かった。長野(長野県)、京都(京都府)など20地点で11月の月平均気温の高い方から1位の値を更新し、水戸(茨城県)、那覇(沖縄県)など7地点で1位タイの値を記録した。
12月	全国的にかなり高かった。横浜(神奈川県)、高松(香川県)など19地点で12月の平均気温の高い方から1位の値を更新し、京都(京都府)、神戸(兵庫県)など5地点で1位タイの値を記録した。
1月	東・西日本と沖縄・奄美で高かった。北日本では平年並だった。
2月	北・東日本は高かった。父島(東京都)では2月の月平均気温の高い方から1位の値を更新した。西日本と沖縄・奄美は平年並だった。
3月	東・西日本ではかなり高く、北日本で高かった。若松(福島県)、岐阜、高山(以上、岐阜県)では3月の月平均気温の高い方から1位の値を更新し、福島(福島県)、名古屋(愛知県)、津山(岡山県)では、高い方から1位タイの値を記録した。沖縄・奄美では平年並だった。

降水量

4月	西日本日本海側でかなり多く、北日本と東日本日本海側、西日本太平洋側、沖縄・奄美で多かった。米子(鳥取県)、清水(高知県)で4月の月降水量の多い方から1位の値を更新した。東日本太平洋側では平年並だった。
5月	東日本太平洋側ではかなり少なく、北・西日本、東日本日本海側で少なかった。白河(福島県)、軽井沢(長野県)、前橋(群馬県)で5月の月降水量の少ない方から1位の値を更新した。沖縄・奄美では平年並だった。台風第6号の影響で11日から12日にかけて暴風雨となった。
6月	月降水量は、北日本、西日本太平洋側で多かった。枕崎では平年比300%を上回り、鹿児島、枕崎、種子島(以上、鹿児島県)、都城、油津(以上、宮崎県)では6月の月降水量の多い方からの1位の値を更新した。一方、東日本日本海側、沖縄・奄美で少なかった。東日本太平洋側、西日本日本海側では平年並だった。
7月	東・西日本太平洋側と沖縄・奄美ではかなり多く、北日本日本海側で多かった。一方、北日本太平洋側で少なく、東・西日本日本海側では平年並だった。台風第9号が10日頃沖縄・奄美に接近し、沖縄・奄美では暴風雨となった。台風第11号が16日に高知県に上陸し、17日に日本海に進んだ影響で、東・西日本太平洋側を中心に大雨となった。25日から26日にかけては台風第12号が接近し、奄美地方や沖縄本島地方を中心に暴風雨となった。
8月	沖縄・奄美ではかなり多く、東日本太平洋側と西日本で多かった。与那国島、西表島(以上、沖縄県)で8月の月降水量の多い方から1位の値を更新した。一方、南大東島(沖縄県)で8月の月降水量の少ない方から1位の値を更新した。北日本日本海側ではかなり少なかった。北日本太平洋側と東日本日本海側では平年並だった。沖縄・奄美から東日本太平洋側にかけては、前線や上旬に接近した台風第13号、下旬に接近・上陸した台風第15号の影響で月降水量が多く、沖縄・奄美ではかなり多かった。
9月	東日本太平洋側でかなり多く、北日本太平洋側では多かった。千葉(千葉県)、父島(東京都)では9月の降水量の多い方から1位の値を更新した。一方、沖縄・奄美では少なく、北・東日本日本海側と西日本では平年並だった。9日には台風第18号が東海地方に上陸し、東日本太平洋側を中心に広い範囲で大雨となった。さらに、日本の東海上を台風第17号が北上した影響も加わって、関東地方から東北地方では南から湿った空気が長時間にわたって流れ込んだため、記録的な大雨になり、河川の氾濫など大きな被害が生じた(平成27年9月関東・東北豪雨)。
10月	東日本と西日本太平洋側でかなり少なく、沖縄・奄美で少なかった。尾鷲(三重県)、徳島(徳島県)など7か所で10月の降水量の少ない方から1位の値を更新した。北日本と西日本日本海側では平年並だが、紋別(北海道)では10月の降水量の多い方から1位の値を更新した。
11月	東日本太平洋側と西日本日本海側で多く、北日本太平洋側と西日本太平洋側でかなり多かった。一方、北日本日本海側では少なかった。東日本日本海側と沖縄・奄美は平年並だった。
12月	西日本でかなり多く、北・東日本太平洋側と沖縄・奄美で多かった。山口(山口県)、高松(香川県)など8地点では12月の降水量の多い方からの1位の値を更新した。北・東日本日本海側では平年並だった。降雪の深さ月合計、月最深積雪ともに、全国的にかなり少なかった。
1月	沖縄・奄美でかなり多く、北日本太平洋側、東・西日本で多かった。石垣島、宮古島(以上、沖縄県)など5地点では1月の降水量の多い方からの1位の値を更新した。北日本日本海側では平年並だった。降雪の深さ月合計は、西日本日本海側でかなり多く、東・西日本太平洋側で多かった。北日本日本海側ではかなり少なく、東日本日本海側で少なかった。北日本太平洋側では平年並だった。月最深積雪は、東・西日本太平洋側で多い所が多かった。長崎(長崎県)で1月の月最深積雪の大きい方からの1位の値を更新した。
2月	全国的に多く、北日本日本海側ではかなり多かった。与那国島(沖縄県)では2月の降水量の多い方から1位の値を更新した。降雪の深さ月合計は北・東日本日本海側と西日本で少なく、東日本太平洋側でかなり少なかった。北日本太平洋側で平年並だった。月最深積雪は全国的に少ない所が多かった。
3月	沖縄・奄美では多かった。一方、北日本太平洋側と東・西日本日本海側ではかなり少なく、北日本日本海側で少なかった。新潟(新潟県)、松江(島根県)など8か所では3月の降水量の少ない方からの1位の値を更新し、長野(長野県)では少ない方からの1位タイの値を記録した。東・西日本太平洋側では平年並だった。降雪の深さ月合計は東日本太平洋側で少なく、北日本でかなり少なかった。東日本日本海側と西日本で平年並だった。月最深積雪は北日本太平洋側と西日本日本海側で多い所が多かった。

日照時間

4月	東・西日本太平洋側ではかなり少なかった。西日本日本海側では少なかった。北日本日本海側では多かった。北日本太平洋側と東日本日本海側、沖縄・奄美では平年並だった。
5月	北・東日本では少なく、山形(山形県)、宇都宮(栃木県)など11地点で5月の月間日照時間の多い方から1位の値を更新した。西日本では多かった。沖縄・奄美では平年並だった。
6月	月間日照時間は、西日本太平洋側でかなり少なく、北日本日本海側、西日本日本海側で少なかった。一方、沖縄・奄美ではかなり多く、東日本日本海側で多かった。北・東日本太平洋側では平年並だった。
7月	西日本と沖縄・奄美で少なかった。一方、北日本太平洋側でかなり多く、北日本日本海側、東日本で平年並だった。
8月	沖縄・奄美でかなり少なく、北日本日本海側と東日本太平洋側で少なかった。北日本太平洋側と東日本日本海側、西日本では平年並だった。
9月	北・東日本日本海側で少なかった。北・東日本太平洋側、西日本と沖縄・奄美では平年並だった。
10月	北日本太平洋側と東・西日本でかなり多く、北日本日本海側で多かった。仙台(宮城県)、神戸(兵庫県)など37か所で10月の日照時間の多い方から1位の値を更新した。沖縄・奄美では平年並だった。
11月	東日本日本海側で少なく、北・東日本太平洋側と西日本でかなり少なかった。大分(大分県)、徳島(徳島県)など5地点で11月の月間日照時間の少ない方から1位の値を更新した。一方、北日本日本海側と沖縄・奄美では多かった。
12月	北日本と東日本日本海側で多かった。沖縄・奄美ではかなり少なく、東日本太平洋側と西日本日本海側で少なかった。西日本太平洋側では平年並だった。
1月	東日本太平洋側で多かった。東日本日本海側、西日本、沖縄・奄美ではかなり少なく、北日本で少なかった。酒田(山形県)、新潟(新潟県)、人吉(熊本県)で1月の日照時間の少ない方からの1位の値を更新した。
2月	北日本日本海側では少なかった。稚内、羽幌(以上、北海道)では2月の月間日照時間の少ない方から1位の値を更新した。東日本日本海側と西日本では多かった。若松(福島県)では2月の月間日照時間の多い方から1位の値を更新した。北・東日本太平洋側および沖縄・奄美は平年並だった。
3月	北日本太平洋側と西日本日本海側ではかなり多く、北・東日本日本海側と西日本太平洋側で多かった。東日本太平洋側と沖縄・奄美では平年並だった。

－ 引用文献 －

- 1) 気象庁報道発表資料, <http://www.jma.go.jp/jma/press/tenko.html>, 2015
- 2) 気象庁:黄砂, http://www.data.jma.go.jp/gmd/env/kosahp/kosa_table_2015.html, 2015
- 3) J. Kurokawa, T. Ohara, T. Morikawa, S. Hanayama, G. Janssens-Maenhout, T. Fukui, K. Kawashima, and H. Akimoto: Emissions of air pollutants and greenhouse gases over Asian regions during 2000-2008: Regional Emission inventory in ASia (REAS) version 2, *Atmos. Chem. Phys.*, **13**, 11019-11058, 2013
- 4) 国家环境保护总局: http://zls.mep.gov.cn/hjtj/nb/2013tjnb/201411/t20141124_291867.htm, 2014など
- 5) H. Tian, J. Hao, Y. Nie: Recent trends of NO_x Emissions from energy use in China, *Proceeding of 7th International Conference on Acidic Deposition*, **32**, 2005
- 6) 環境省環境統計集, <http://www.env.go.jp/doc/toukei/contents/>, 2015
- 7) 大原利眞: 東アジアにおける広域越境大気汚染モデリングの最新動向, *水環境学会誌*, **35**, 6-9, 2013
- 8) A. Kannari, Y. Tonooka, T. Baba, K. Murano: Development of multiple-species 1 km × 1 km resolution hourly basis emissions inventory for Japan, *Atmos. Environ.*, **41**, 3428-3439, 2007
- 9) 都市環境学教材編集委員会: 都市環境学, 森北出版, 2003

4. 湿性沈着

湿性沈着調査では、日本全域における湿性沈着による汚染実態を把握することが主目的である。ここでは、湿性沈着調査における、2015年度のとりまとめについて報告する。

2015年度の湿性沈着調査に対し、45機関68地点の参加があった。ただし、4.1で示すとおりデータの精度が基準を満たしていない地点については、参考値として扱い、解析からは除外した。

なお、報告値の一部には、他の学術機関との共同研究および国設局との共用データも含まれている（表2.1.1参照）。

4.1 データの精度

地域別・季節別のイオン成分の挙動等について解析する前に、各機関の測定データの精度について、以下の評価を行った。

4.1.1 データの完全度

各機関から報告されたデータにおいて、月間または年間データ同士を比較検討する場合、欠測を考慮したデータの完全度が高いことだけでなく、各データ間の測定（試料採取）期間のズレ（適合度）が小さいことも重要である。そこで、各機関から報告されたデータについて、全国環境研協議会酸性雨広域大気汚染調査研究部会（以下、全環研）で指定した月区切りに基づいて、完全度（測定期間の適合度を含む）の評価を行った。定義については、既報¹⁾を参照頂きたい。

完全度を基に、月間データの場合は60%未満、年間データの場合は80%未満のデータについては解析対象から除外した。ただし、月間データの完全度は基準以下であるがデータが存在する場合、年間データの集計には用いている。

2015年度は、月間データでは790個中57データ（7.3%）が除外され、年間データでは68地点中8地点が除外された。年間データが除外された8地点には、年度内でサンプリング地点を変更したため完全度が基準を満たさなかった3地点を含む。除外されたデータは参考値として扱った。なお、装置の故障等により、ある期間常時開放捕集とな

った地点については、原則としてその期間のデータを参考値扱いとした。

4.1.2 イオンバランス（ R_1 ）および電気伝導率バランス（ R_2 ）と分析精度管理調査結果

表4.1.1に示すように、「湿性沈着モニタリング手引き書（第2版）」²⁾に従って、イオンバランス（以下、 R_1 ）および電気伝導率バランス（以下、 R_2 ）による2つの検定方法を用い、測定値の信頼性を評価した。なお、各機関における試料の採取および分析は、原則週単位で行われているため、本来、 R_1 および R_2 は個々の試料毎に評価すべきである。しかし、全環研への報告値は月区切りを採用しているため、本報告では月単位の加重平均値を用いて、 R_1 および R_2 を評価した。

完全度の基準を満たした地点の月間データにおいて、 R_1 による評価では、全ての項目が測定された790個のデータ中、 R_1 が許容範囲内にあったデータは765個（適合率96.8%）であった。同様に、 R_2 による評価では、 R_2 が許容範囲内にあったデータは781個（適合率98.9%）であった。 R_1 および R_2 の分布を図4.1.1に示す。2004～2014年度における R_1 および R_2 の適合率は、 R_1 : 92～97%、 R_2 : 97～99%の範囲にあり高いレベルで保たれている^{1,3,-12)}。

次に、分析精度管理調査について検討した。環境省が国設大気環境・酸性雨測定所（以下、国設局）を有する自治体を対象に行っている酸性雨測定分析機関間比較調査は、全環研から環境省への要望により、国設局以外の希望自治体についても分析精度管理調査（分析機関間比較調査）として実施されている。同調査は、模擬酸性雨試料（高濃度および低濃度の2種類）を各機関に配布し、その分析結果を解析することにより、分析機関に存在する問題点や測定の信頼性の評価を行っている。環境省の協力のもと、2015年度は全環研会員の自治体のうち国設局を管理している機関（以下、国設局管理機関）18機関を除き37機関（以下、精度管理参加機関）がこの調査に参加した。このうち全環研に湿性沈着の結果を報告している機関（以下、全環研報告機関）は31機関であった。

精度管理機関による測定成分毎のフラグ数と相対標準偏差を表4.1.2に示す。フラグ数は、東アジア酸性雨モニ

表4.1.1 イオンバランス（ R_1 ）および電気伝導率バランス（ R_2 ）の許容範囲

$\Sigma C_i + \Sigma A_i$ ($\mu\text{eq L}^{-1}$)	$R_1(\%) =$ $\{(\Sigma C_i - \Sigma A_i) / (\Sigma C_i + \Sigma A_i)\} \times 100$	Λ_{obs} (mS m^{-1})	$R_2(\%) =$ $\{(\Lambda_{\text{cal}} - \Lambda_{\text{obs}}) / (\Lambda_{\text{cal}} + \Lambda_{\text{obs}})\} \times 100$
<50	± 30	<0.5	± 20
50～100	± 15	0.5～3.0	± 13
>100	± 8	>3.0	± 9

$\Sigma A_i = [\text{SO}_4^{2-}] + [\text{NO}_3^-] + [\text{Cl}^-]$ 但し、当量濃度（ $\mu\text{eq L}^{-1}$ ）

$\Sigma C_i = [\text{H}^+] + [\text{NH}_4^+] + [\text{Na}^+] + [\text{K}^+] + [\text{Ca}^{2+}] + [\text{Mg}^{2+}]$ 但し、当量濃度（ $\mu\text{eq L}^{-1}$ ）

Λ_{cal} ：測定対象イオンの当量濃度に極限等量電気伝導率を乗じた積算値

Λ_{obs} ：降水試料の電気伝導率測定値

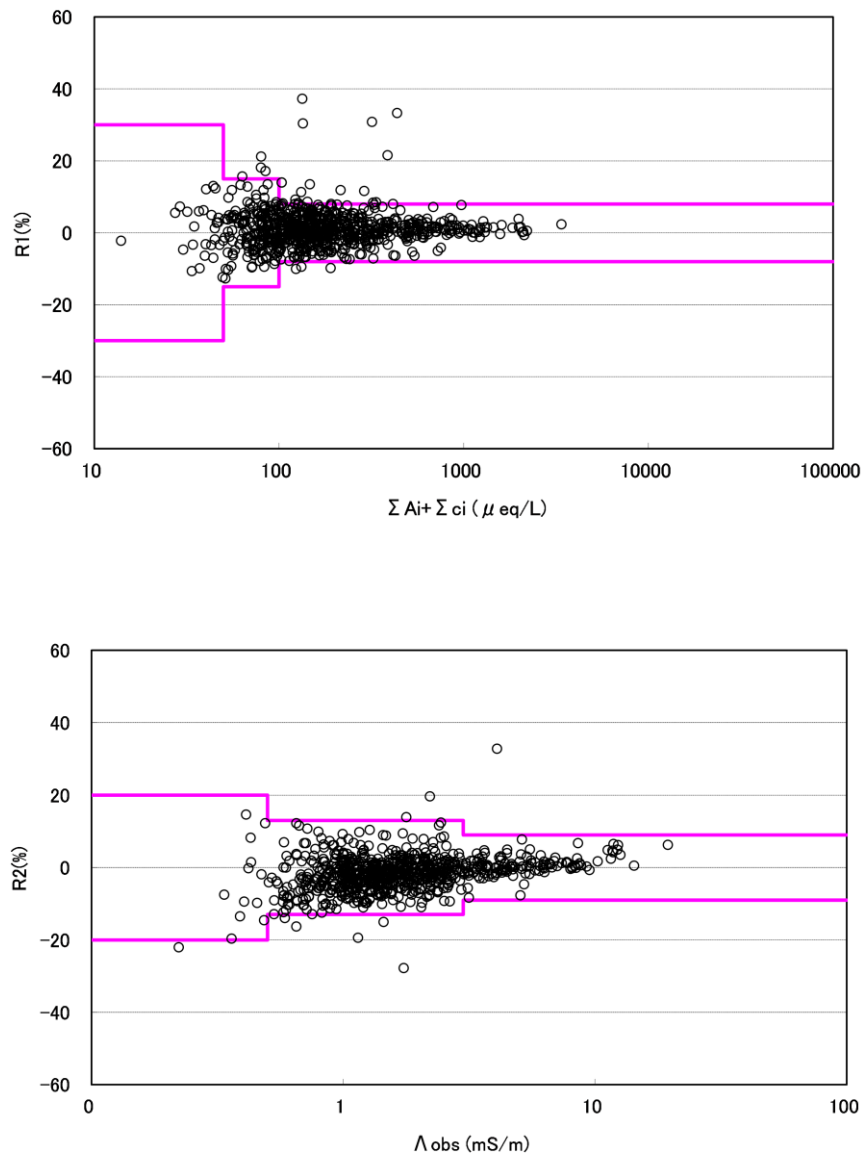


図4.1.1 イオンバランス(R_1)と総イオン濃度($\Sigma A_i + \Sigma C_i$)および電気伝導率バランス(R_2)と実測値との比較

タリングネットワーク (EANET) の精度管理目標値 (DQOs : Data Quality Objectives, 分析の正確さ: $\pm 15\%$) を用い, DQOsの2倍まで ($\pm 15\% \sim \pm 30\%$) の測定値にはフラグEを, DQOsの2倍 ($\pm 30\%$) を超える測定値にはフラグXを付けて判定した。相対標準偏差を求める際には, 分析精度管理調査結果報告書¹³⁾の方法に従い, 平均値から標準偏差の3倍以上はずれている測定値は棄却した。

高濃度試料ではDQOsを満たすデータが97.8%, フラグEまたはフラグXが付いたデータは, それぞれ1.4%および0.8%であった。また, 低濃度試料では, DQOsを満たすデータが93.6%, フラグEまたはフラグXが付いたデータは, それぞれ5.2%および1.1%であった。2014年度¹²⁾に比較して, 高濃度試料, 低濃度試料ともに, フラグ付与率が減少し改善が見られた。フラグは陽イオンに多く, 特に低

濃度試料における付与数が多かった。

一方, 国設局管理機関 (18機関) の2015年度分析精度管理調査¹³⁾では, 高濃度試料ではDQOsを満たすデータが100%, フラグEまたはフラグXが付いたデータは, それぞれ0%であった。低濃度試料では, DQOsを満たすデータが98.9%, フラグEまたはフラグXが付いたデータは, それぞれ1.1%および0%であった。フラグは全て陽イオンの分析データに付与された。

次に, 精度管理参加機関間でバラツキの大きな成分を確認するため, 各成分の測定結果の相対標準偏差を比較した。高濃度試料については, 陰イオンは4%以下で陽イオンは6%以下, 低濃度試料では陰イオンは7%以下で陽イオンは11%以下であった。 K^+ , Ca^{2+} および Mg^{2+} のバラツキが大きかった。国設管理機関が2015年度に行った分析精

度管理調査では、相対標準偏差は高濃度試料については4 %以下、低濃度試料については7 %以下であった。

以上の結果から、全環研報告機関と国設局管理機関のフラグの付与率および相対標準偏差を比較すると、全環研報告機関のほうがフラグ付与率および相対標準偏差ともに高かった。年々、分析精度の向上に努め、概ね精度よく測定が実施されているが、さらなる改善が望まれる。特に低濃度試料に関してはより一層の改善が必要である。

各機関の測定結果のバラツキが大きい成分は、表4.1.2に示すように、高濃度、低濃度試料ともに陽イオンであり、陽イオンにフラグの付与数が多かった。これらの項目の分析精度のさらなる向上により、全体の精度改善につながる事が期待される。また、pHではフラグ付与数が0であり、バラツキも小さいが、H⁺濃度に換算すると、大きなバラツキが予想される。R₁およびR₂の計算過程ではH⁺濃度として効いてくること、実際の降水試料の評価ではH⁺沈着量としての評価も重要であることなどから、pHについては、H⁺濃度として測定機関間のバラツキがより小さくなるよう努力していく必要性が考えられる。

続いて、イオン成分の定量下限値とフラグ付与の関係について調べた。定量下限値は、イオン成分分析用検量線を作成する際の最低濃度標準液を5回以上の繰り返し測定したときの標準偏差(s)から求められる。検出下限値は3s (μmol L⁻¹)、定量下限値は10s (μmol L⁻¹)として計算される。このため、定量下限値は、イオン類測定の際の定量値のバラツキ度合いとみなすことができる。イオン成分の定量下限値が定量下限値に係るDQOsを満たしていない機関数と、その機関のうち分析精度管理調査でフラグが付与された機関数について表4.1.3に示した。定量下限値がDQOsを満たしていない機関数は、Ca²⁺およびMg²⁺

でそれぞれ2機関(5.4 %)であり、NO₃⁻、K⁺およびNH₄⁺でそれぞれ1機関であった。定量下限値がDQOsを満たしていない機関のうち、分析精度管理調査の高濃度試料と低濃度試料でフラグが付与された機関数は、Ca²⁺およびMg²⁺が2機関、K⁺が1機関であった。フラグが付与されたからといって定量下限値>DQOsであるということではなかったが、定量下限値>DQOsの場合にフラグが付与される場合が多かった。

さらなる分析精度向上のためには、日常の実降水試料測定においてのR₁およびR₂の管理だけにとどまらず、酸性雨測定分析精度管理調査を積極的に活用し、配布される模擬酸性雨試料などを「標準参照試料」として利用した日常的な分析精度の管理を実施していくことが望ましいと考える。

4.1.3 フィールドブランク

フィールドブランク（以下、FB）試験を実施する毎に、各機関にて捕集装置の洗浄確認等の自主管理が実行できるようにとの目的から、FB試料濃度の上限値（暫定）を提案した⁵⁾。

FB試料から高濃度が検出された場合や、鳥のふん、黄砂、虫、植物片、種子などの汚染に気付いた際は、採取装置の洗浄を徹底し、チューブの交換などを実施することで、流路からの汚染を低減化する必要があると考えられる。また、現場においてはFB試料に濁りや不溶性のコンタミネーションがみられないかを確認することや、ポータブルの電気伝導率計により電気伝導率を測定することにより、流路からの汚染が少なく保たれているかをチェックすることが望ましい。各機関にてFB試験を実施し、捕集装置の自主管理を実行することを推奨する。

表4.1.2 分析精度管理調査におけるフラグ数と相対標準偏差

		pH	EC	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	NH ₄ ⁺
高濃度試料	フラグE	0	0	1	0	1	1	1	0	1	0
	フラグX	0	0	1	0	0	0	1	0	1	0
	相対標準偏差	1.6% (n=37)	2.8% (n=37)	3.4% (n=36)	3.7% (n=36)	3.1% (n=36)	2.4% (n=36)	5.8% (n=36)	3.9% (n=36)	5.1% (n=36)	2.1% (n=36)
低濃度試料	フラグE	0	1	2	0	0	2	2	6	4	2
	フラグX	0	0	1	0	1	0	1	0	1	0
	相対標準偏差	2.2% (n=37)	4.8% (n=37)	6.8% (n=36)	5.5% (n=36)	3.9% (n=36)	4% (n=36)	8.3% (n=36)	10.6% (n=36)	7.8% (n=36)	6.1% (n=36)

表4.1.3 定量下限値が精度管理目標値を満たしていない機関数、およびその機関のうち分析精度管理調査でフラグが付与された機関数

	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	NH ₄ ⁺
定量下限値がDQOsを満たしていない機関数	0	1	0	0	1	2	2	1
上記機関のうち、高濃度試料のフラグがついた機関数	0	0	0	0	0	0	1	0
上記機関のうち、低濃度試料のフラグがついた機関数	0	0	0	0	1	2	1	0
定量下限値に係るDQOs(μmol L ⁻¹)	0.3	0.5	0.5	0.3	0.3	0.2	0.3	0.8
DQOs:精度管理目標値								



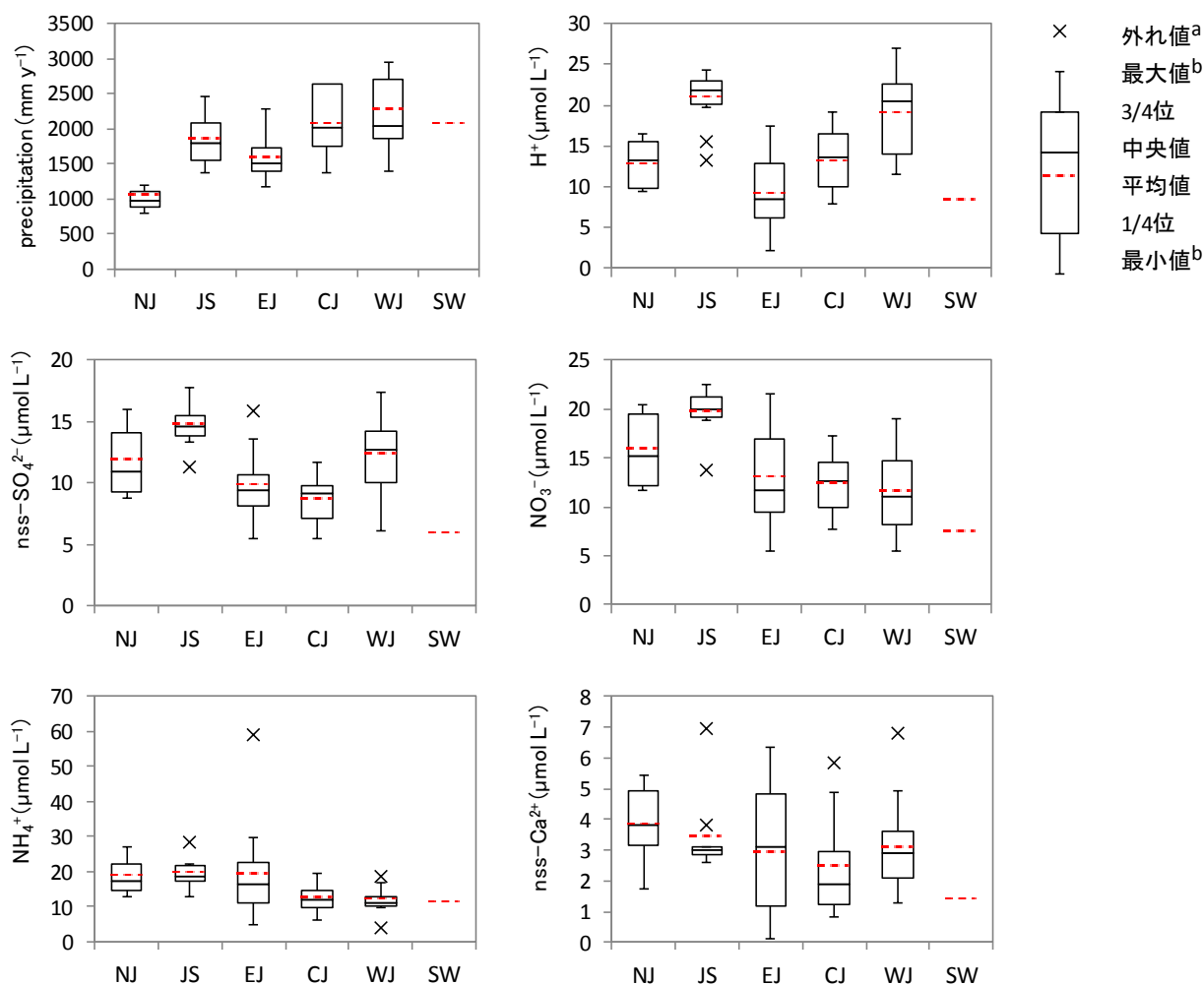
4.2.1 降水量および酸性成分濃度による地域区分

地域毎の特徴を把握するために、全国に分布する調査地点を、「北部（NJ：Northern Japan area）」「日本海側（JS：Japan Sea area）」「東部（EJ：Eastern Japan area）」「中央部（CJ：Central Japan area）」「西部（WJ：Western Japan area）」および「南西諸島（SW：Southwest Islands area）」の6つの地域区分に分類した。地点毎の地域区分を、図4.2.1および表4.2.1に示す。なお、地域区分の設定方法等については、既報¹⁾を参照頂きたい。

〔 全国環境研会誌 〕 Vol.42 No.3 (2017)

表4.2.1 湿性イオン成分等の地点別年加重平均濃度

地点名	地域	排出量(t km ⁻² y ⁻¹)			降水量 (mm)	pH	EC (mS m ⁻¹)	SO ₄ ²⁻	nss-SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	NH ₄ ⁺	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	nss-Ca ²⁺	Mg ²⁺	H ⁺
		SO ₂	NO _x	NH ₃														
利尻	NJ	1.27	0.51	0.02	829	4.77	4.24	22.2	10.1	12.5	232.4	14.4	199.4	5.2	7.9	3.5	23.0	16.9
母子里	NJ	0.12	0.76	0.49	(1497)	(4.81)	(2.95)	(17.1)	(10.1)	(15.4)	(135.3)	(15.8)	(115.2)	(6.5)	(8.5)	(5.9)	(13.8)	(15.6)
札幌北	NJ	5.18	25.61	1.07	1157	4.80	3.13	17.0	9.1	12.0	153.4	15.8	130.7	3.6	6.0	3.0	14.7	16.0
青森東造道	NJ	1.18	3.59	0.44	1011	5.05	4.25	27.8	14.8	20.1	234.2	23.2	214.0	5.7	10.0	5.2	23.8	9.0
鯉ヶ沢舞戸	NJ	0.20	1.15	0.51	856	5.15	5.61	31.7	11.8	17.8	359.2	19.1	327.5	8.0	12.8	5.4	35.6	7.1
涌谷	NJ	1.83	5.75	2.45	964	4.90	1.10	9.7	8.8	11.7	19.1	13.0	15.7	0.7	2.1	1.8	1.9	12.5
秋田千秋	NJ	4.37	6.14	0.53	1444	4.85	3.06	22.9	16.0	20.5	139.0	27.3	114.4	3.6	6.7	4.1	13.5	14.0
郡山朝日	EJ	1.32	6.08	1.37	(483)	(4.8)	(1.05)	(11.2)	(11.0)	(13.8)	(6.0)	(19.3)	(3.8)	(0.6)	(2.5)	(2.4)	(1.0)	(15.8)
三春	EJ	1.31	6.42	1.48	(255)	(5.13)	(0.75)	(7.4)	(6.8)	(10.9)	(11.6)	(8.0)	(9.8)	(0.8)	(4.7)	(4.5)	(1.6)	(7.4)
小名浜	EJ	13.81	16.92	0.99	1039	4.77	1.60	12.7	10.4	9.4	42.2	12.1	36.6	0.7	2.0	1.2	3.2	16.8
新潟曽和	JS	2.60	9.49	1.28	1440	4.62	4.18	25.3	15.0	19.6	197.0	19.2	169.4	4.2	6.7	2.9	19.8	24.1
長岡	JS	2.88	10.93	2.79	2277	4.65	4.13	26.8	16.7	20.6	192.2	22.1	166.5	4.3	6.9	3.1	19.5	22.2
新潟大山	JS	2.75	12.68	1.74	1156	4.87	3.62	26.9	17.8	21.6	166.7	28.5	150.4	4.6	10.3	6.9	17.6	13.3
新潟小新	JS	2.64	9.73	1.66	1510	4.69	4.26	26.6	15.7	20.1	200.0	21.6	179.4	4.9	7.1	3.1	20.8	20.6
日光	EJ	2.49	18.24	3.51	(2089)	(4.97)	(0.84)	(8.5)	(8.3)	(8.2)	(5.1)	(8.4)	(3.4)	(1.1)	(2.1)	(2.0)	(0.6)	(10.6)
宇都宮	EJ	2.88	10.93	2.79	1846	4.89	1.38	14.3	13.6	21.4	14.6	27.3	11.5	0.9	3.4	3.1	1.7	12.8
小山	EJ	8.63	59.68	4.64	1352	5.09	1.16	12.1	11.2	20.0	17.5	29.9	15.6	1.1	4.2	3.9	2.4	8.2
加須	EJ	2.49	18.24	3.51	1389	4.94	1.24	11.2	10.6	21.6	14.1	20.8	9.8	1.4	6.6	6.4	2.0	11.4
さいたま	EJ	7.46	48.21	5.19	1506	4.84	1.26	9.9	9.0	18.5	17.7	21.0	14.6	0.5	2.7	2.4	2.1	14.4
土浦	EJ	1.44	7.73	3.20	1345	5.07	1.24	10.4	9.0	15.3	24.1	16.6	23.0	2.6	3.6	3.1	2.6	8.5
前橋	EJ	4.13	12.96	7.55	(1191)	(4.97)	(1.4)	(13.6)	(13.1)	(24.1)	(11.1)	(39)	(7.2)	(0.5)	(2.9)	(2.7)	(1.3)	(10.7)
市川	EJ	8.63	59.68	4.64	1515	4.88	1.24	12.1	10.7	14.1	31.5	15.2	24.1	0.2	2.2	1.7	3.3	13.2
市原	EJ	13.96	44.28	3.14	1654	4.85	1.28	17.2	15.8	11.2	29.4	15.9	21.6	0.6	5.5	5.0	3.4	14.0
銚子	EJ	10.17	8.98	3.92	1664	5.51	1.82	13.2	8.0	9.5	101.4	23.8	85.3	0.3	2.4	0.7	7.7	3.1
一宮	EJ	0.23	1.97	0.97	1776	5.07	1.61	11.0	6.5	7.3	87.7	8.8	73.7	0.4	2.2	0.8	7.2	8.6
旭	EJ	16.98	74.45	3.11	1734	6.12	1.96	12.4	8.1	11.5	88.8	58.9	70.9	0.5	1.1	0.1	4.5	0.8
佐倉	EJ	2.96	26.96	3.01	1494	4.89	1.09	11.2	10.1	11.7	25.4	11.2	19.2	0.4	2.4	2.0	2.7	12.7
清澄	EJ	0.16	1.14	0.92	1880	5.21	1.22	11.2	8.3	7.1	57.3	5.2	47.6	1.0	6.0	4.9	4.7	6.2
勝浦	EJ	0.16	1.06	0.66	2128	5.05	1.24	8.6	5.5	5.5	63.0	5.1	51.1	0.4	1.7	0.8	5.7	8.8
宮野木	EJ	12.33	42.86	3.97	1302	5.59	0.78	7.7	6.9	7.2	18.6	8.9	13.6	1.2	5.1	4.8	3.0	2.6
平塚	EJ	1.42	17.70	3.03	1636	5.12	1.49	12.1	9.4	17.0	51.3	22.5	43.6	1.2	4.3	3.3	4.8	7.7
川崎	EJ	6.11	15.55	1.80	1492	5.32	1.39	15.0	13.1	12.2	38.8	22.3	32.7	2.8	5.9	5.1	4.7	4.8
長野	CJ	1.35	4.76	0.61	775	4.83	1.05	10.4	10.0	10.8	7.6	13.5	5.2	0.6	2.0	1.9	1.2	14.8
静岡小黒	CJ	3.29	10.23	1.42	2985	5.00	1.13	8.3	6.8	8.7	31.1	7.8	25.2	1.0	1.4	0.8	3.3	10.1
静岡北安東	CJ	3.15	9.89	1.38	2847	5.00	1.06	6.7	5.5	7.8	28.7	6.2	19.2	0.8	1.6	1.2	2.5	10.1
射水	JS	6.11	15.55	1.80	2072	4.70	3.40	22.1	14.3	19.6	144.2	21.8	128.8	3.5	5.5	2.6	14.5	20.0
金沢	JS	2.74	6.93	1.12	2535	4.60	3.63	21.8	13.8	18.9	145.6	17.5	131.7	3.8	5.8	2.8	15.4	24.9
福井	JS	2.41	7.77	0.80	1797	4.64	3.45	22.7	14.9	21.4	146.2	17.8	128.4	3.6	5.9	3.0	14.8	22.7
伊自良湖	CJ	10.23	51.61	4.70	2747	4.77	1.26	10.1	9.3	14.4	16.1	12.0	12.8	0.5	1.6	1.3	1.6	17.2
豊橋	CJ	2.36	10.81	4.18	2066	5.19	1.20	9.6	7.5	12.7	37.8	12.5	33.5	0.9	6.6	5.8	3.8	6.5
名古屋南	CJ	10.23	51.61	4.70	1769	5.10	1.09	9.7	8.8	13.4	18.8	17.0	15.0	1.0	3.2	2.9	2.0	7.9
四日市桜	CJ	4.10	17.71	2.31	2518	4.72	1.44	10.6	9.1	15.6	27.8	19.6	23.6	0.8	1.5	1.0	2.5	19.1
大津柳が崎	CJ	3.92	17.74	1.34	1781	4.86	1.10	9.9	9.5	17.2	9.1	15.8	7.3	1.1	3.1	3.0	1.0	13.7
京都壬生	CJ	3.96	17.81	1.65	(1917)	(4.96)	(0.94)	(6.7)	(6.3)	(10.7)	(6.5)	(10.4)	(6.0)	(0.9)	(2.2)	(2.1)	(1.2)	(11.0)
神戸須磨	CJ	10.20	30.41	1.05	1385	4.76	1.66	13.8	11.7	14.7	39.6	12.0	33.8	2.1	5.6	4.9	5.5	17.2
海南	CJ	9.97	14.10	1.12	1728	4.81	1.22	11.4	10.1	10.3	26.7	10.1	21.5	0.8	2.8	2.3	2.2	15.7
若桜	JS	0.03	0.50	0.30	2104	4.81	1.28	12.9	11.4	13.7	29.5	13.1	25.9	1.8	3.5	3.0	4.2	15.5
湯梨浜	JS	0.25	1.30	0.86	1671	4.67	3.12	21.7	14.1	18.8	143.2	16.8	125.4	4.0	5.6	2.8	14.5	21.5
松江	JS	0.46	2.49	0.56	1781	4.64	3.11	19.7	13.4	22.5	120.0	17.3	103.9	2.8	6.2	3.8	12.8	23.1
広島安佐南	WJ	3.35	12.32	1.04	1257	4.73	1.35	12.1	11.1	14.1	17.5	10.4	15.3	0.7	3.2	2.9	2.1	18.6
山口	WJ	2.28	5.84	0.63	1984	4.65	1.94	16.3	13.7	15.2	48.3	12.9	44.0	2.0	4.4	3.4	5.5	22.3
徳島	CJ	2.04	8.03	1.76	2030	4.91	1.81	10.9	6.7	9.7	79.9	9.7	68.9	2.0	3.5	1.9	7.9	12.2
香北	WJ	0.04	0.46	0.18	2877	4.96	0.91	6.8	6.1	5.5	15.3	4.1	12.4	0.7	5.3	5.0	1.7	10.4
太宰府	WJ	3.94	21.34	1.90	1856	4.63	2.31	20.4	17.4	19.0	56.8	18.7	49.4	1.9	5.3	4.2	6.3	23.7
福岡	WJ	2.43	14.89	1.38	2707	4.65	2.51	18.8	14.0	16.8	92.6	16.9	78.9	2.7	4.5	2.7	9.4	22.5
佐賀	WJ	2.50	6.92	1.63	2007	4.65	1.49	13.9	12.7	11.0	23.5	12.8	20.0	1.0	3.3	2.9	2.5	22.4
諫早	WJ	5.88	7.58	1.30	2387	4.69	1.50	13.6	12.2	10.0	27.1	13.2	22.9	0.7	2.8	2.3	3.4	20.5
長崎	WJ	1.17	4.99	0.62	1767	4.87	1.11	10.7	9.3	7.4	26.0	10.0	22.6	0.7	1.8	1.3	2.9	13.4
佐世保	WJ	4.30	8.39	1.37	2052	4.70	2.07	18.1	15.2	15.3	65.8	11.2	48.4	2.0	7.9	6.8	9.4	19.7
阿蘇	WJ	0.30	1.33	1.72	2728	4.60	1.83	15.5	14.9	8.4	22.9	14.2	9.7	1.6	3.9	3.6	2.1	25.3
宇土	WJ	2.07	8.38	1.47	2415	4.86	1.18	9.8	8.9	7.8	17.1	9.8	15.2	0.9	2.0	1.6	2.0	13.9
錦ヶ丘	WJ	1.71	8.83	3.56	1865	4.88	1.02	9.9	9.4	11.2	10.8	10.2	8.3	0.8	2.4	2.3	1.4	13.1
画図町	WJ	1.65	8.71	2.93														



※SWは2015年度の解析対象が1地点のみであった。

a:箱の端からの距離が箱の長さの1.5倍以上

b:外れ値を除いた最大値又は最小値

図4.2.2 主要イオン成分の年加重平均濃度の分布

4.2.2 pH, ECおよびイオン成分濃度の年加重平均値

2015年度の年間データが有効となった地点(60地点)における、降水量および湿性イオン成分濃度等の年加重平均濃度を表4.2.1に示す。また、主要イオン成分濃度について、地域区別に箱ひげ図を図4.2.2に示す。なお、“nss-”は「非海塩性(nss: non sea salt)」を表し、海塩性イオン(Na⁺をすべて海塩由来として海塩組成比から算出)を差し引いた残りであることを示している。

2015年度の年間降水量は、775(長野)～3,551 mm(宮崎)の範囲にあり、単純平均は1,836 mmであった。地域別では、CJ, WJおよびSWで多く、NJで少ない傾向を示した。

年間平均pHは、4.60(金沢, 阿蘇)～6.12(旭)の範囲で、加重平均は4.82であった。最高値を観測した旭は周辺に大規模な畜産施設があり、その影響を受けたと考えられる。H⁺濃度としては、加重平均は15.1 μmol L⁻¹であり、JSおよびWJで高く、NJおよびEJで低い傾向がみられた。

年間平均ECは、0.78(宮野木)～5.61 mS m⁻¹(鰯ヶ沢舞

戸)の範囲で、加重平均は1.97 mS m⁻¹であった。

海塩粒子からの寄与を示す成分としてはNa⁺が用いられる。年間平均Na⁺濃度では、5.2(長野)～328.1 μmol L⁻¹(辺戸岬)の範囲で、加重平均は60.2 μmol L⁻¹であった。

次に湿性沈着の汚染状況を把握するのに重要なイオン成分(nss-SO₄²⁻, NO₃⁻, NH₄⁺およびnss-Ca²⁺)について記す。

降水の酸性化の原因となる酸性成分については、次のとおりであった。

年間平均nss-SO₄²⁻濃度は、5.5(勝浦, 静岡北安東)～17.8 μmol L⁻¹(新潟大山)の範囲で、加重平均は11.0 μmol L⁻¹であった。地域別では、JSおよびWJで高く、SWで低い傾向を示した。

年間平均NO₃⁻濃度は、5.5(勝浦, 香北)～22.5 μmol L⁻¹(松江)の範囲で、加重平均は13.3 μmol L⁻¹であった。地域別では、JSで高く、SWで低い傾向を示した。

降水中の塩基性成分については、次のとおりであった。

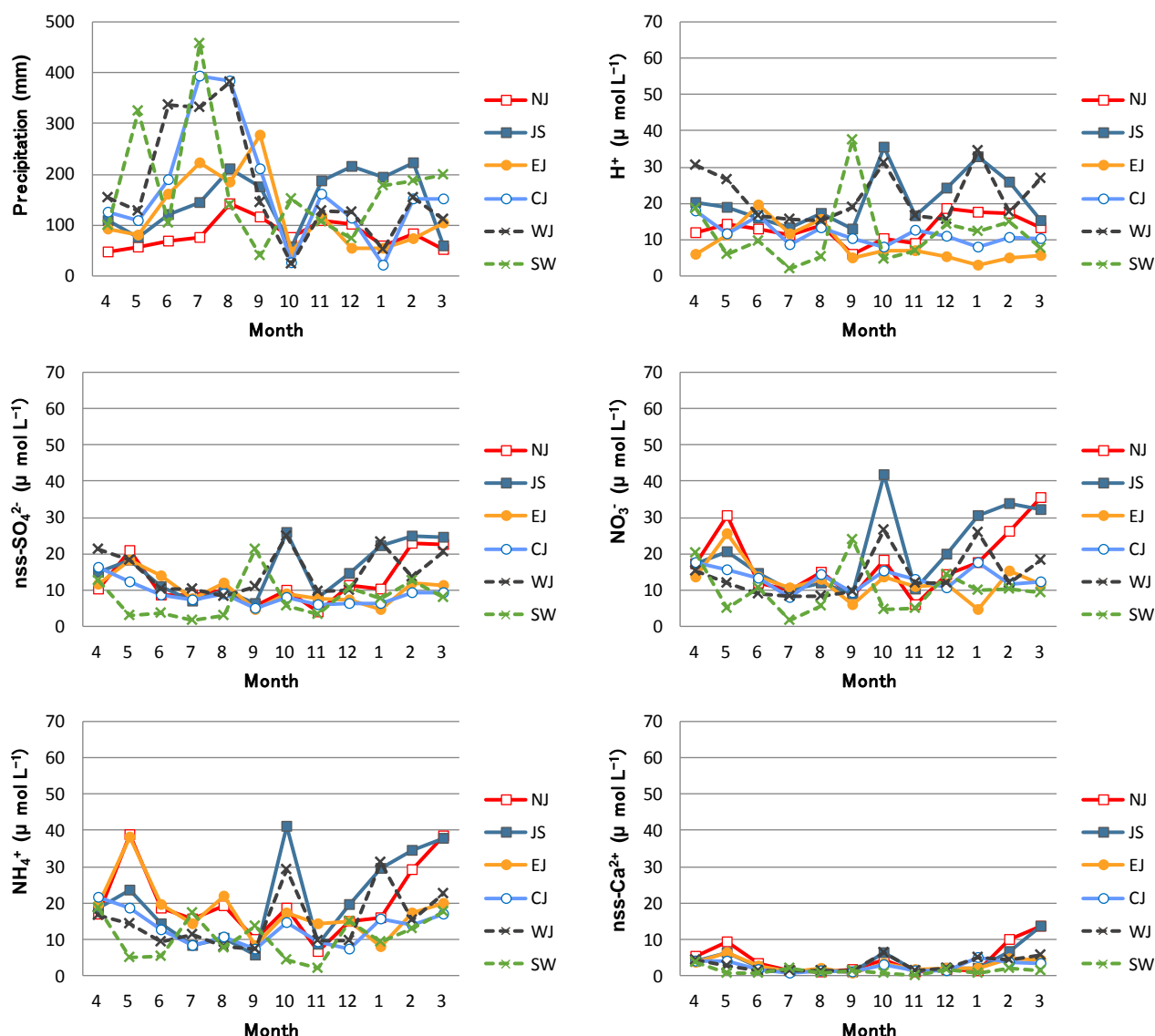


図4.2.3 イオン成分濃度の地域別季節変動（中央値）

年間平均 NH_4^+ 濃度は、4.1(香北)～58.9 $\mu\text{mol L}^{-1}$ (旭)の範囲で、加重平均は15.3 $\mu\text{mol L}^{-1}$ であった。地域別では、NJで高く、SWで低い傾向を示した。

年間平均 nss-Ca^{2+} 濃度は、0.1(旭)～6.9 $\mu\text{mol L}^{-1}$ (新潟大山)の範囲で、加重平均は2.9 $\mu\text{mol L}^{-1}$ であった。地域別では、NJで高く、SWで低い傾向を示した。

4.2.3 pHおよびイオン成分濃度の季節変動

湿性沈着による汚染実態を把握するのに重要と考えられる項目について、2015年度の季節変動を地域区分別に図4.2.3に示す。地域区分別の月間代表値としては、地域区分内での中央値を採用した。なお、中央値を採用した理由は、データ数が比較的小さいため、平均値を採用すると1つの外れ値に引きずられて、代表性が乏しくなると考えられるためである。

降水量は、EJ, CJ, WJおよびSWでは夏季に、NJでは秋季に、JSでは冬季に多い傾向を示した。

H^+ 濃度は、NJおよびJSでは冬季に、EJでは夏季に、CJおよびWJでは春季に、SWでは秋季に高い傾向が見られた。

nss-SO_4^{2-} 濃度は、NJ, EJ, CJおよびWJでは春季に、JSおよびSWでは冬季に高い傾向が見られた。

NO_3^- 濃度は、NJ, EJおよびCJでは春季に、JS, WJおよびSWでは冬季に高い傾向が見られた。

NH_4^+ 濃度はNJ, EJ, CJおよびSWでは春季に、JSおよびWJでは冬季および春季に高い傾向が見られた。

nss-Ca^{2+} 濃度は、他のイオン成分に比較して、年間を通し、低い値で推移していたが、春季に高濃度となる傾向が見られた。

濃度の季節変動において特徴的なことの一つは、JSおよびWJでは、春季および冬季に、 H^+ 、 nss-SO_4^{2-} 濃度が高い傾向がみられたことである。地理的要因や春季および冬季の風向等を考慮すると、大陸からの汚染物質の移流が示唆された。なお、2005年度までは、この大陸から

の越境大気汚染を示唆する傾向は、JSで顕著であった^{1,3,4)}が、2006年度にはその傾向がWJでも確認され⁵⁾、2007～2015年度も引き続き同様の傾向がみられた⁶⁻¹²⁾。

4.3 イオン成分湿性沈着量

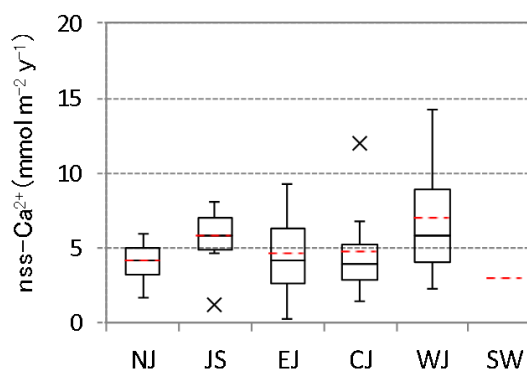
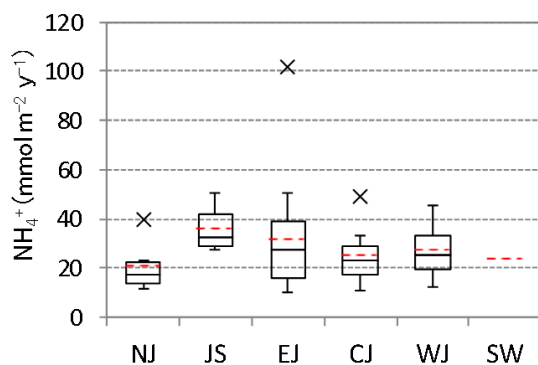
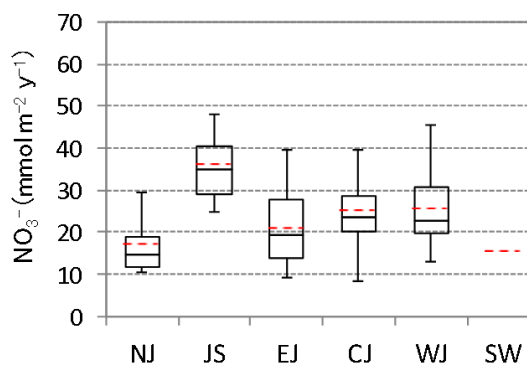
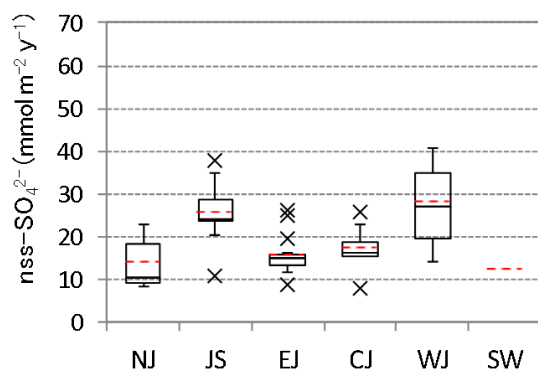
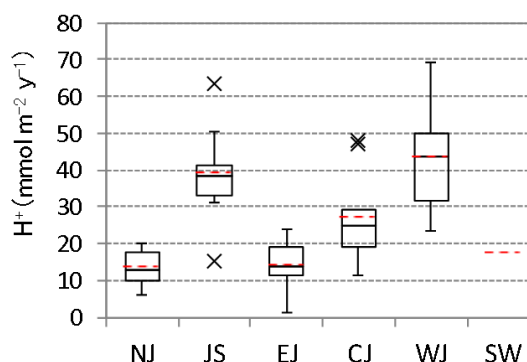
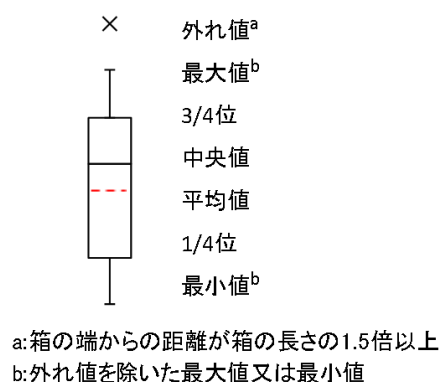
イオン成分の年間沈着量や月間沈着量の、地点間や地域間の比較を行った。解析対象は4.2と同様に扱った。

4.3.1 年間沈着量

2015年度の年間データが有効となった60地点における年間降水量および主要イオン成分の年間沈着量について、表4.3.1に要約した。また、図4.3.1には主要イオン成分の沈着量について、地域区分別に箱ひげ図を示した。なお、年間沈着量は、年平均濃度に年間降水量を掛け合わせるにより算出した。

表4.3.1 降水量と主要イオン成分の年間沈着量

項目	(単位)	中央値	最小値 最大値	(地点名) (地点名)
降水量	(mm y ⁻¹)	1772	775 3551	(長野) (宮崎)
nss-SO ₄ ²⁻	(mmol m ⁻² y ⁻¹)	17.5	7.8 40.9	(長野) (鹿児島)
NO ₃ ⁻	(〃)	22.7	8.4 47.9	(長野) (金沢)
NH ₄ ⁺	(〃)	26.0	9.8 102.1	(清澄) (旭)
nss-Ca ²⁺	(〃)	4.9	0.2 14.3	(旭) (香北)
H ⁺	(〃)	23.7	1.3 69.1	(旭) (阿蘇)



※SWは2015年度の解析対象が1地点のみであった。

図4.3.1 主要イオン成分年間沈着量および降水量の分布

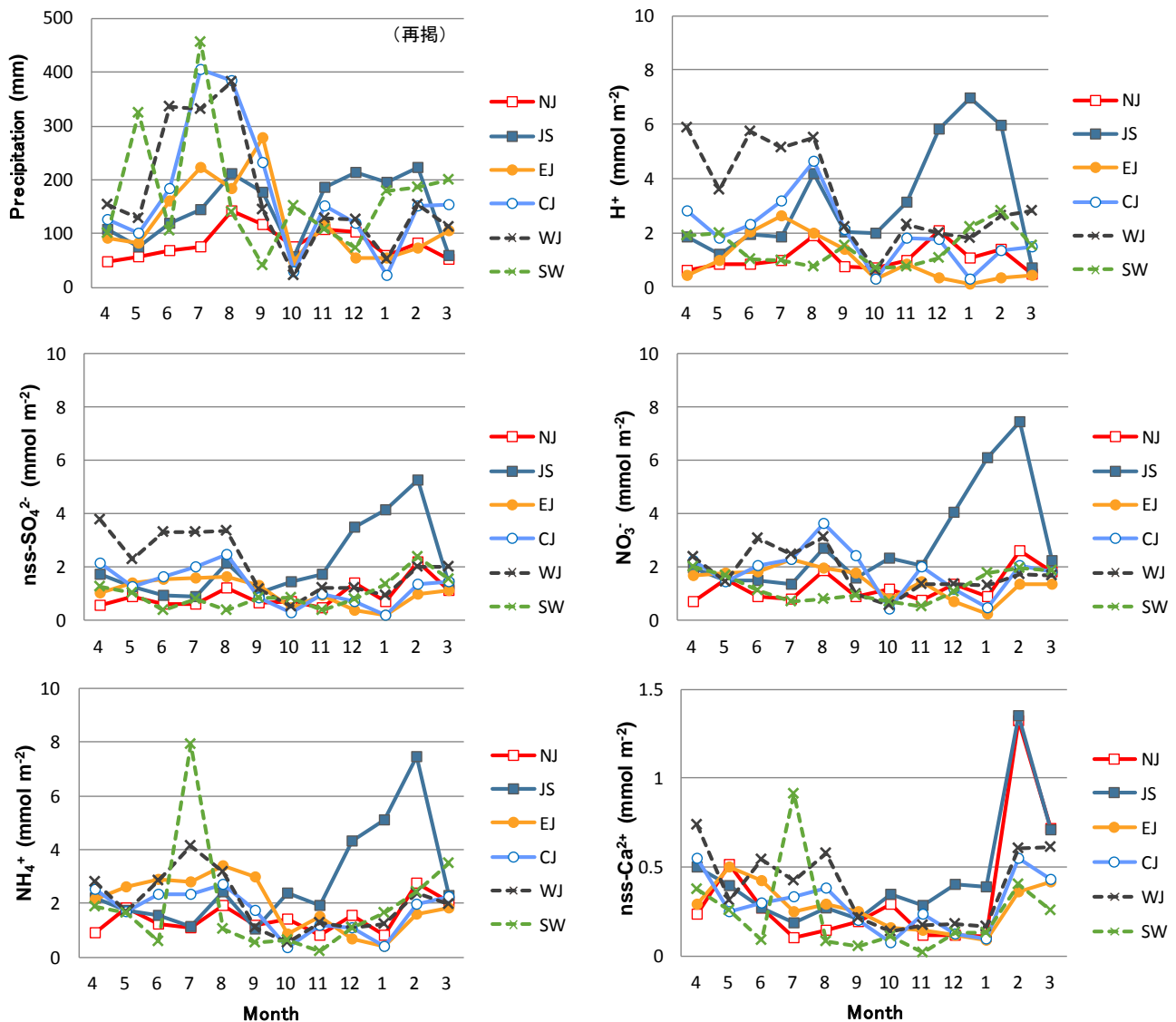


図4.3.2 イオン成分沈着量の地域別季節変動（中央値）

nss-SO₄²⁻およびH⁺沈着量はWJ、次いでJSで多く、WJにおける中央値はそれぞれ27.1および43.9 mmol m⁻² y⁻¹であった。

NO₃⁻沈着量はJSで多い傾向を示し、中央値は34.9 mmol m⁻² y⁻¹、それ以外の地域では中央値が14.6～22.9 mmol m⁻² y⁻¹の間であった。

NH₄⁺沈着量はJSで多く中央値は32.2 mmol m⁻² y⁻¹、それ以外の地域では中央値が17.3～27.6 mmol m⁻² y⁻¹の間であった。

nss-Ca²⁺沈着量は、他の非海塩成分と比較して沈着量が1/4程度少なく、中央値が3.9～5.8 mmol m⁻² y⁻¹の間であった。

4.3.2 沈着量の季節変動

地域別の降水量（再掲）および主要イオン成分沈着量の季節変動を図4.3.2に示す。4.2.3章と同様に、月間代表値として中央値を採用した。

H⁺沈着量は、JSでは12月から2月に最も多い傾向であり、

次いで8月に多く、WJでは4月から8月にかけて、CJでは8月に多かった。同様の傾向がnss-SO₄²⁻沈着量でみられた。

NO₃⁻沈着量はJSで12月～2月に多い傾向であり、NH₄⁺沈着量でも同様の傾向が見られた。またNH₄⁺沈着量はEJでは4月～9月に多い傾向であり、WJとSWでは7月に多くなった。

nss-Ca²⁺沈着量は、JSおよびNJで2月に最も多く、その他の地域では9月～1月以外の月に最多となる傾向であった。

4.4 年平均濃度と年間沈着量の経年変動

第5次酸性雨全国調査期間（6年間）の年平均濃度と年間沈着量の地域間の比較を行った。解析対象は4.2と同様に扱った。

4.4.1 年平均濃度の経年変動

地域別の降水量および主要イオン成分濃度の地域別経年変動（2009～2015年度）を図4.4.1に示す。データは各地域の年平均値の中央値を採用した。

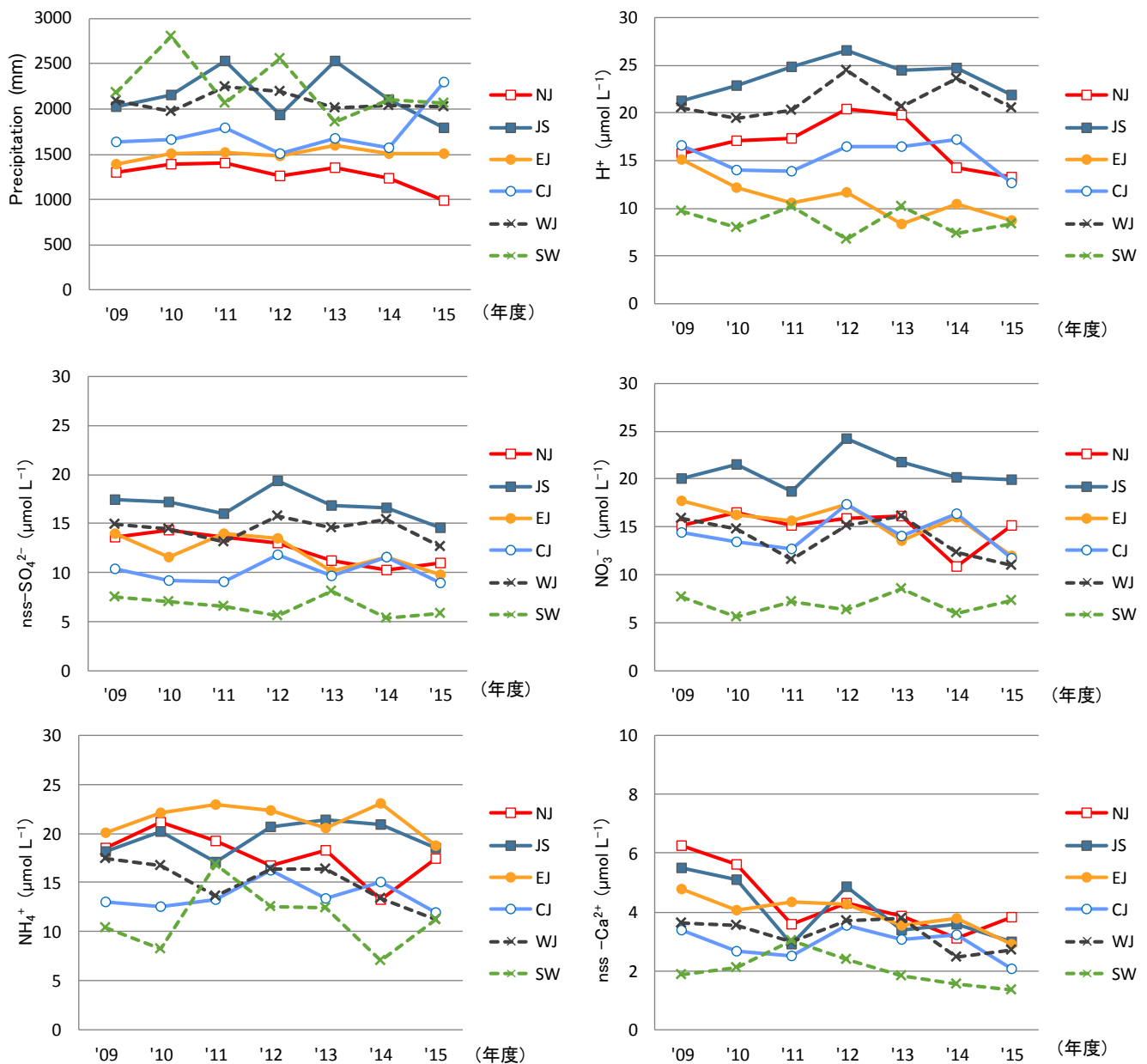


図4.4.1 イオン成分濃度の地域別経年変動（中央値）

降水量はJS, WJ, SWの3地域で多く、NJとEJで7年間を通じて少なかった。7年間の地域別での最多降水量は2158 mm (SW, 2010年度) で、最少降水量は988 mm (NJ, 2015年度) であった。

H⁺濃度はJSで7年間を通じて一貫して最も高い傾向にあり、続いてWJ, NJの順番に高濃度でSWが最も低かった。H⁺濃度の最高値は26.6 μmol L⁻¹ (JS, 2012年度) で、最低値は6.8 μmol L⁻¹ (SW, 2012年度) であった。

nss-SO₄²⁻濃度およびNO₃⁻濃度も同様にJSが7年間を通じて一貫して最も高い傾向にあり、SWが最も低い傾向がみられた。nss-SO₄²⁻濃度の最高値は19.3 μmol L⁻¹ (JS, 2012年度) で、最低値は5.3 μmol L⁻¹ (SW, 2014年度) であり、NO₃⁻濃度の最高値は24.2 μmol L⁻¹ (JS, 2012年度) で、最

低値は5.6 μmol L⁻¹ (SW, 2010年度) であった。

NH₄⁺濃度はEJで高い傾向を示し、SWで低い傾向を示した。NH₄⁺濃度の最高値は23.1 μmol L⁻¹ (EJ, 2014年度) で、最低値は7.0 μmol L⁻¹ (SW, 2014年度) であった。

nss-Ca²⁺濃度に関してはSWで低い傾向を示したが、そのほかの地域では大きな差はみられなかった。nss-Ca²⁺濃度の最高値は6.3 μmol L⁻¹ (NJ, 2009年度) で、最低値は1.4 μmol L⁻¹ (SW, 2015年度) であった。

降水量, H⁺, nss-SO₄²⁻, NO₃⁻およびNH₄⁺濃度については7年間を通じてほぼ横ばいの傾向を示したが、nss-Ca²⁺濃度については、減少傾向がみられた。

4.4.2 年間沈着量の経年変動

地域別の降水量および主要イオン成分沈着量の地域別

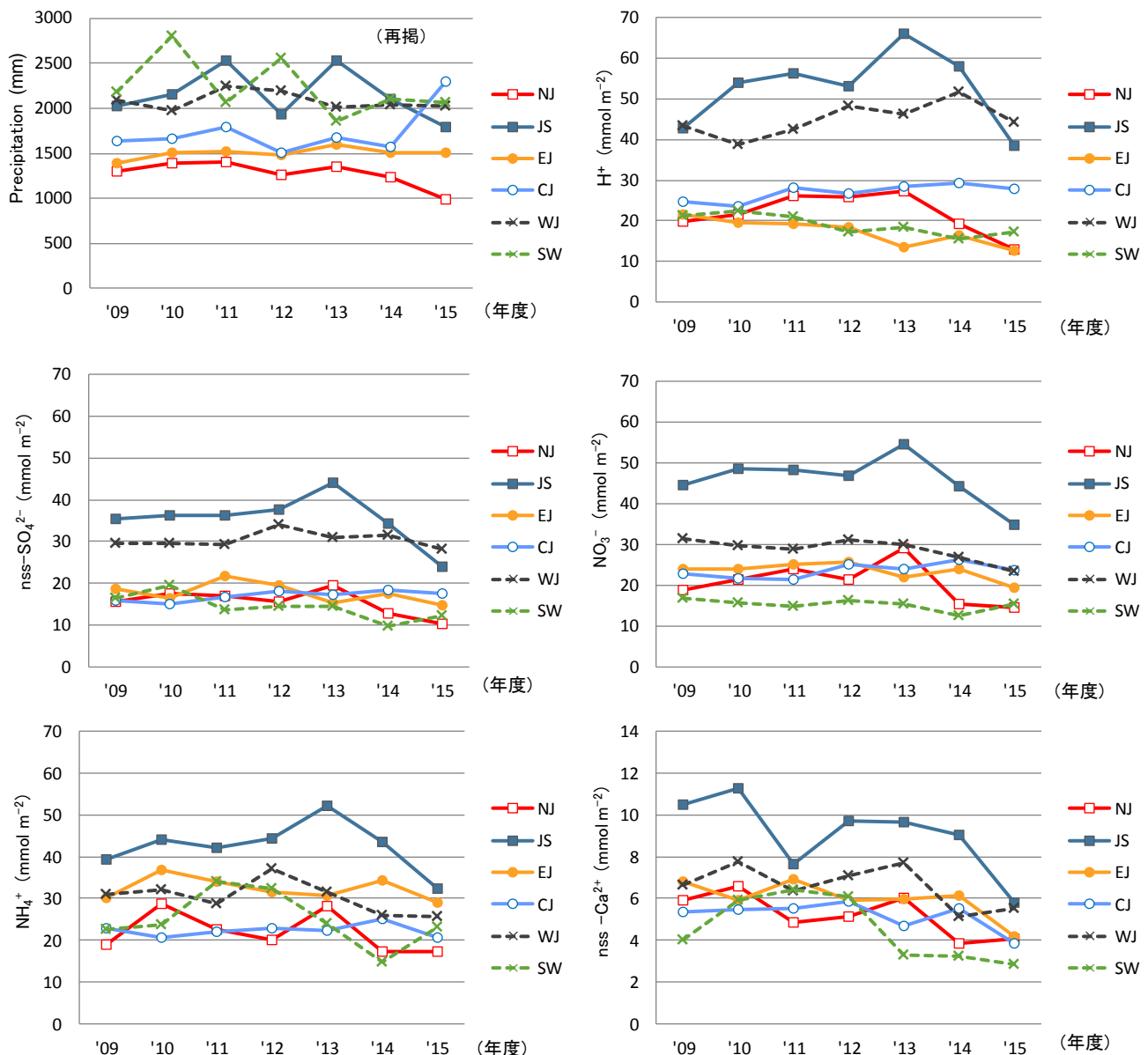


図4.4.2 イオン成分沈着量の地域別経年変動（中央値）

経年変動（2009～2015年度）を図4.4.2に示す。データは各地域の年平均値の中央値を採用した。

2009～2014年度にかけて、図に示した主要成分の沈着量すべて（ H^+ 、 $nss-SO_4^{2-}$ 、 NO_3^- 、 NH_4^+ および $nss-Ca^{2+}$ 沈着量）でJSが多く次にWJが多い傾向がみられた。2015年度には H^+ 、 $nss-SO_4^{2-}$ 沈着量でJSがWJより少なくなったが、降水量の影響が大きいと考えられた。

7年間を通して H^+ 、 $nss-SO_4^{2-}$ 、 NO_3^- および NH_4^+ 沈着量についてJSを除く地域では、ほぼ横ばいもしくは微減傾向を示したが、JSでは2013年度をピークに減少の傾向がみられた。これは、年平均濃度の中央値が2013年度から減少傾向にあることに加え、年平均降水量の中央値が減少傾向であることに起因していると考えられた。また、 $nss-Ca^{2+}$ 沈着量については、各地域とも年平均値の中央値

は減少傾向を示した。

－ 引用文献 －

- 1) 全国環境研協議会：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**，78-152，2007
- 2) 環境省地球環境局環境保全対策課，酸性雨研究センター：湿性沈着モニタリング手引き書（第2版），2001，http://www.env.go.jp/air/acidrain/man/wet_deposi/index.html
- 3) 全国環境研協議会：第4次酸性雨全国調査報告書（平成15年度），全国環境研会誌，**30**，58-135，2005
- 4) 全国環境研協議会：第4次酸性雨全国調査報告書（平成16年度），全国環境研会誌，**31**，118-186，2006
- 5) 全国環境研協議会：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**，126-196，2008
- 6) 全国環境研協議会：第4次酸性雨全国調査報告書（平成19年度），全国環境研会誌，**34**，193-223，2009
- 7) 全国環境研協議会：第4次酸性雨全国調査報告書（平成20年度），全国環境研会誌，**35**，88-138，2010
- 8) 全国環境研協議会 酸性雨広域大気汚染調査研究部会：第5次酸性雨全国調査報告書（平成21年度），全国環境研会誌，**36**，106-146，2011
- 9) 全国環境研協議会 酸性雨広域大気汚染調査研究部会：第5次酸性雨全国調査報告書（平成22年度），全国環境研会誌，**37**，110-158，2012
- 10) 全国環境研協議会 酸性雨広域大気汚染調査研究部会：第5次酸性雨全国調査報告書（平成23年度），全国環境研会誌，**38**，84-126，2013
- 11) 全国環境研協議会 酸性雨広域大気汚染調査研究部会：第5次酸性雨全国調査報告書（平成25年度），全国環境研会誌，**40**，98-142，2015
- 12) 全国環境研協議会 酸性雨広域大気汚染調査研究部会：第5次酸性雨全国調査報告書（平成26年度），全国環境研会誌，**41**，3，2-37，2016
- 13) 一般財団法人日本環境衛生センター アジア大気汚染研究センター：平成27年度酸性雨測定分析精度管理調査結果報告書（国設酸性雨測定所），2016

表5.1.1 FP法による調査結果の有効データ数

成分	地点数	月平均濃度						有効データ割合(%)	年平均濃度						有効データ割合(%)
		欠測数	データ数	完全度 60%未満	その他 参考値	適合数	定量下限 値未満		欠測数	データ数	完全度 80%未満	その他 参考値	適合数	定量下限 値未満	
HNO ₃ (g)	31	3	369	16	1	352	47	95	0	31	1	0	30	3	97
SO ₂ (g)	31	3	369	16	1	352	4	95	0	31	1	0	30	0	97
HCl(g)	31	3	369	16	1	352	4	95	0	31	1	0	30	0	97
NH ₃ (g)	31	3	369	16	1	352	0	95	0	31	1	0	30	0	97
SO ₄ ²⁻ (p)	31	3	369	16	1	352	0	95	0	31	1	0	30	0	97
NO ₃ ⁻ (p)	31	3	369	16	1	352	0	95	0	31	1	0	30	0	97
Cl ⁻ (p)	31	3	369	16	1	352	7	95	0	31	1	0	30	0	97
Na ⁺ (p)	31	3	369	16	1	352	0	95	0	31	1	0	30	0	97
K ⁺ (p)	31	3	369	16	1	352	3	95	0	31	1	0	30	0	97
Ca ²⁺ (p)	31	3	369	16	1	352	0	95	0	31	1	0	30	0	97
Mg ²⁺ (p)	31	3	369	16	1	352	1	95	0	31	1	0	30	0	97
NH ₄ ⁺ (p)	31	3	369	16	1	352	0	95	0	31	1	0	30	0	97

そのため、設定流量の変更等の明確な理由がないにも関わらず流量変動が大きかった場合(年間の平均流量と標準偏差から算出した変動係数が30%以上)は年間を通して参考値としている。2015年度は、流量変動を理由として解析対象から除外された調査地点はなかった。

5.1.2 定量下限値の設定

定量下限値は、EANET³⁾の基準値(粒子:0.01 μg m⁻³, ガス:0.1 ppb)を用いた。吸引流量は1 L min⁻¹を基準とし、X L min⁻¹の場合は1/X倍した値を定量下限値とした。

なお、定量下限値の判定は、月および年平均濃度に対して行い、定量下限値未満の場合は解析対象から除外した。

5.1.3 非海塩成分の算出

SO₄²⁻(p)およびCa²⁺(p)については、試料中のNa⁺(p)濃度と海水中でのモル濃度比とを用いて、以下の式により非海塩(nss: non sea salt)由来成分濃度を算出した。

$$nss-SO_4^{2-}(p) = SO_4^{2-}(p) - 0.0607 \times Na^+(p)$$

$$nss-Ca^{2+}(p) = Ca^{2+}(p) - 0.0224 \times Na^+(p)$$

5.1.4 ガス・粒子間反応の測定結果への影響

サンプリング期間中、大気中と同様に、フィルター上ではガスと粒子の間に様々な可逆あるいは不可逆反応が生じていると考えられるが、フィルターに捕集された後に生じるこれらの反応によるアーティファクトを分別して評価することは困難である。そこで、前年度⁴⁾までと同様に、平衡関係にあると考えられるガスと粒子については、全硝酸(HNO₃(g)+NO₃⁻(p))、全アンモニア(NH₃(g)+NH₄⁺(p))、全塩化物(HCl(g)+Cl⁻(p))のようにガスと粒子の総計でも評価した。

5.2 大気中のガス状および粒子状成分濃度

5.2.1 年平均濃度の地域特性

ガス状成分について、地点別年平均濃度を表5.2.1に、地域区分別の年平均濃度の箱ひげ図を図5.2.1に示す。粒子状成分について、地点別年平均濃度を表5.2.2に、地域区分別の年平均濃度の箱ひげ図を図5.2.2に示す。ガス状および粒子状成分の総計について、地点別年平均濃度を表5.2.3に、地域区分別の年平均濃度の箱ひげ図

表5.2.1 ガス状成分の年平均濃度（地点別）

No.	都道府県市	地点名	SO ₂ (g)	HNO ₃ (g)	HCl(g)	NH ₃ (g)
(nmol m ⁻³)						
1	北海道	利尻	7.1	1.8	16.2	17.8
2	北海道	札幌北	44.4	7.1	15.8	67.4
3	新潟県	新潟曽和	13.2	13.9	23.9	69.2
4	新潟県	長岡	15.1	15.7	16.9	88.4
5	新潟市	新潟小新	17.5	14.2	29.8	77.0
6	群馬県	前橋	22.7	18.6	15.4	447.7
7	埼玉県	加須	23.4	32.7	33.4	204.1
8	千葉県	旭	14.3	4.1	14.9	3545.2
9	千葉県	勝浦	19.6	5.9	27.0	67.6
10	千葉県	清澄	25.7	7.7	26.8	56.6
11	千葉県	市原	93.2	8.7	24.1	131.1
12	千葉県	佐倉	34.4	16.4	34.6	123.9
13	長野県	長野	18.6	19.4	23.4	106.8
14	静岡県	静岡北安東	30.3	24.7	24.3	74.6
15	富山県	射水	24.6	11.4	17.5	81.8
16	石川県	金沢	16.8	10.0	15.4	38.7
17	福井県	福井	38.7	20.0	32.5	81.4
18	岐阜県	伊自良湖	13.4	9.3	7.7	36.8
19	愛知県	豊橋	32.3	19.1	23.7	159.6
20	名古屋市	名古屋南	47.4	26.0	31.3	130.2
21	和歌山県	海南	41.9	23.8	26.5	89.1
22	兵庫県	神戸須磨	70.3	29.6	30.8	80.8
23	鳥取県	湯梨浜	24.2	4.5	16.7	63.4
24	高知県	香北	11.3	10.4	10.0	17.1
25	福岡県	太宰府	45.1	24.9	23.0	126.0
26	大分県	大分久住	80.1	13.1	12.0	60.7
27	大分県	大分	(79.6)	(19.6)	(16.0)	(61.4)
28	宮崎県	宮崎	50.9	11.7	30.7	128.0
29	鹿児島県	鹿児島	78.3	12.4	34.0	107.8
30	沖縄県	大里	15.8	4.0	28.9	317.4
31	沖縄県	辺戸岬	9.7	3.9	41.3	43.0
全国最低値			7.1	3.9	7.7	17.1
全国最高値			93.2	32.7	41.3	3545.2
全国中央値			24.4	13.9	24.0	81.6
全国平均値			32.7	15.4	23.6	221.3

注) 全国最低値は網掛け、全国最高値は白抜き、定量下限値未満は斜字、参考値は()で示した。

注) 定量下限値未満および参考値は最低値、最高値、中央値、平均値から除外した。

表5.2.2 粒子状成分の年平均濃度の分布（地域区分別）

No.	都道府県市	地点名	SO ₄ ²⁻ (p)	nss-SO ₄ ²⁻ (p)	NO ₃ ⁻ (p)	Cl ⁻ (p)	Na ⁺ (p)	K ⁺ (p)	Ca ²⁺ (p)	nss-Ca ²⁺ (p)	Mg ²⁺ (p)	NH ₄ ⁺ (p)
(nmol m ⁻³)												
1	北海道	利尻	25.0	18.9	11.7	94.3	100.3	4.0	4.2	2.0	11.3	24.2
2	北海道	札幌北	27.4	25.1	19.7	29.2	36.8	3.4	7.6	6.8	4.3	42.7
3	新潟県	新潟曽和	36.9	33.8	18.8	35.3	51.4	3.9	5.3	4.2	6.4	50.4
4	新潟県	長岡	35.7	33.9	19.8	17.6	30.7	3.5	5.3	4.6	3.9	57.7
5	新潟市	新潟小新	41.6	35.9	29.3	78.3	93.7	5.0	8.3	6.2	11.1	50.3
6	群馬県	前橋	27.8	26.8	41.5	10.4	17.0	3.5	12.4	12.0	3.5	66.3
7	埼玉県	加須	33.2	31.8	41.1	12.5	23.4	3.5	8.2	7.6	3.4	73.2
8	千葉県	旭	36.9	31.6	43.2	87.4	86.5	1.5	7.0	5.0	9.5	81.3
9	千葉県	勝浦	37.7	32.6	25.5	61.4	82.7	1.4	6.7	4.9	9.1	41.7
10	千葉県	清澄	36.4	32.8	24.9	33.2	60.0	1.0	4.5	3.1	6.3	41.1
11	千葉県	市原	47.5	42.4	56.2	79.1	83.4	3.6	48.3	46.4	12.1	48.5
12	千葉県	佐倉	36.8	34.6	30.6	12.8	36.7	1.2	5.5	4.7	4.3	50.6
13	長野県	長野	36.9	36.1	14.7	3.2	12.7	2.8	3.9	3.6	1.5	63.9
14	静岡県	静岡北安東	36.3	34.7	26.9	11.3	25.2	3.7	5.0	4.5	3.4	55.1
15	富山県	射水	34.4	32.8	16.7	12.9	27.4	2.9	4.1	3.5	3.5	58.5
16	石川県	金沢	34.7	33.0	13.6	12.3	28.3	3.5	5.2	4.6	4.1	48.4
17	福井県	福井	51.8	48.4	25.1	38.4	54.7	5.6	9.2	8.0	9.1	80.8
18	岐阜県	伊自良湖	32.5	31.8	7.1	1.4	10.7	2.3	0.9	0.7	4.6	47.8
19	愛知県	豊橋	41.3	38.8	46.2	20.9	40.8	3.9	11.7	10.8	5.1	74.7
20	名古屋市	名古屋南	40.0	38.2	42.4	17.6	30.3	3.3	12.7	12.0	4.5	66.2
21	和歌山県	海南	43.0	40.9	25.2	14.6	35.6	3.9	10.5	9.7	4.3	62.2
22	兵庫県	神戸須磨	48.3	44.8	45.6	33.5	57.0	5.8	12.3	11.0	6.2	84.4
23	鳥取県	湯梨浜	39.8	36.9	20.1	31.8	47.8	5.4	5.4	4.3	6.8	64.8
24	高知県	香北	40.2	39.4	6.3	1.5	13.2	2.3	5.8	5.5	1.8	55.1
25	福岡県	太宰府	55.7	53.1	50.0	26.0	42.7	6.1	13.2	12.3	6.4	102.1
26	大分県	大分久住	39.4	38.7	18.9	3.3	12.5	2.5	4.9	4.6	2.5	69.4
27	大分県	大分	(51.3)	(50.1)	(21.3)	(3.6)	(18.6)	(3.7)	(5.6)	(5.1)	(3.2)	(83.9)
28	宮崎県	宮崎	59.5	55.5	36.5	47.0	66.8	4.3	6.1	4.6	6.7	114.2
29	鹿児島県	鹿児島	48.5	44.8	33.9	43.7	60.3	4.2	8.0	6.7	7.2	86.9
30	沖縄県	大里	41.9	34.8	24.8	96.2	116.2	4.5	9.8	7.2	14.0	39.6
31	沖縄県	辺戸岬	49.6	36.2	26.6	202.4	219.9	6.4	9.2	4.3	25.4	30.8
全国最低値			25.0	18.9	6.3	1.4	10.7	1.0	0.9	0.7	1.5	24.2
全国最高値			59.5	55.5	56.2	202.4	219.9	6.4	48.3	46.4	25.4	114.2
全国中央値			38.5	35.4	25.4	27.6	41.8	3.6	6.8	4.9	5.6	58.1
全国平均値			39.9	36.6	28.1	39.0	53.5	3.6	8.7	7.5	6.7	61.1

注) 全国最低値は網掛け、全国最高値は白抜き、参考値は()で示した。

注) 参考値は最低値、最高値、中央値、平均値から除外した。

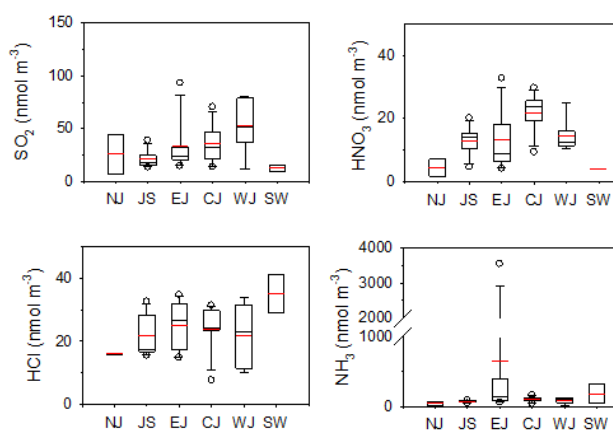


図5.2.1 ガス状成分の年平均濃度の分布（地域区分別）

を図 5.2.3 に示す。箱ひげ図は、各地域区分の地点別年平均濃度の 25%点と 75%点がボックスの両端で表され、そのボックス内の黒線は中央値を、赤線は平均値を表す。エラーバーは 10%点と 90%点を表し、10～90%点から外れる値は○で示されている。

5.2.1.1 ガス状成分

SO₂(g)の年平均濃度の範囲は7.1～93.2 nmol m⁻³(平均値32.7 nmol m⁻³)であり、最高値は市原、次いで大分久住、最低値は利尻であった。市原は重油ボイラーが多く存在する工業地帯の影響でSO₂(g)濃度が高いと考えられる。SO₂(g)はWJで高く、NJ、JSおよびSWで低い傾向がみられた。

HN₃(g)の年平均濃度の範囲は3.9～32.7 nmol m⁻³(平均値15.4 nmol m⁻³)であり、最高値は加須、次いで神戸須磨、最低値は辺戸岬であった。HN₃(g)はCJで高く、NJおよびSWで低い傾向がみられた。

HCl(g)の年平均濃度の範囲は7.7～41.3 nmol m⁻³(平均値23.6 nmol m⁻³)であり、最高値は辺戸岬、次いで佐倉、最低値は伊自良湖であった。HCl(g)はSWで高く、NJで低

表5.2.3 ガス状および粒子状成分の総計の
年平均濃度（地点別）

No.	都道府県市	地点名	全硫黄	全硝酸	全塩化物	全アンモニア
			$\text{SO}_2(\text{g})+\text{ms-}\text{SO}_4^{2-}(\text{p})$	$\text{HNO}_3(\text{g})+\text{NO}_3^-(\text{p})$	$\text{HCl}(\text{g})+\text{Cl}^-(\text{p})$	$\text{NH}_3(\text{g})+\text{NH}_4^+(\text{p})$
			(nmol m ⁻³)			
1	北海道	利尻	26.0	10.0	110.5	42.0
2	北海道	札幌北	69.5	26.8	45.0	110.0
3	新潟県	新潟曽和	46.9	32.7	59.2	119.7
4	新潟県	長岡	48.9	35.5	34.5	146.2
5	新潟市	新潟小新	53.4	43.6	108.2	127.3
6	群馬県	前橋	49.5	60.1	25.8	514.1
7	埼玉県	加須	55.1	73.8	45.9	277.4
8	千葉県	旭	46.0	39.1	102.2	3626.6
9	千葉県	勝浦	52.2	31.4	88.4	109.3
10	千葉県	清澄	58.5	32.6	59.9	97.7
11	千葉県	市原	135.6	64.9	103.2	179.7
12	千葉県	佐倉	69.0	47.0	47.4	174.5
13	長野県	長野	54.7	34.1	26.6	170.6
14	静岡県	静岡北安東	65.1	51.6	35.5	129.7
15	富山県	射水	57.3	28.1	30.4	140.3
16	石川県	金沢	49.9	23.6	27.7	87.1
17	福井県	福井	87.2	45.1	70.9	162.2
18	岐阜県	伊自良湖	45.2	16.4	9.1	84.6
19	愛知県	豊橋	71.0	65.3	44.6	234.4
20	名古屋市	名古屋南	85.6	68.4	48.9	196.5
21	和歌山県	海南	82.8	49.0	41.1	151.3
22	兵庫県	神戸須磨	115.1	75.2	64.3	165.2
23	鳥取県	湯梨浜	61.1	15.6	48.5	128.1
24	高知県	香北	50.7	16.6	11.5	72.1
25	福岡県	太宰府	98.2	74.9	49.1	228.0
26	大分県	大分久住	118.8	32.0	15.3	130.1
27	大分県	大分	(129.7)	(40.8)	(19.6)	(145.3)
28	宮崎県	宮崎	106.4	48.2	77.7	242.2
29	鹿児島県	鹿児島	123.2	46.3	77.6	194.7
30	沖縄県	大里	50.6	28.7	125.1	357.0
31	沖縄県	辺戸岬	45.9	30.5	243.7	73.8
全国最低値			26.0	10.0	9.1	42.0
全国最高値			135.6	75.2	243.7	3626.6
全国中央値			57.9	37.3	48.7	148.7
全国平均値			69.3	41.6	62.6	282.4

注) 全国最低値は網掛け、全国最高値は白抜き、参考値は()で示した。
注) 参考値は最低値、最高値、中央値、平均値から除外した。

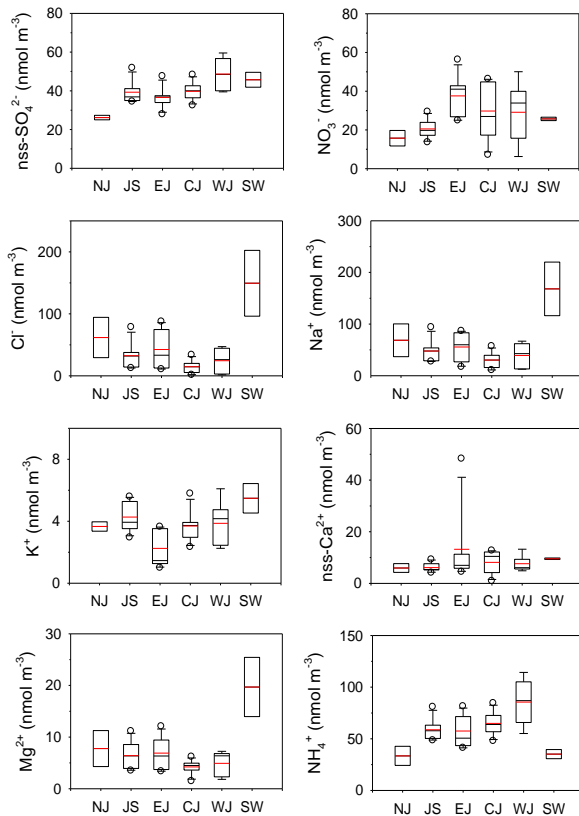


図5.2.2 粒子状成分の年平均濃度の分布
(地域区別)

い傾向がみられた。

$\text{NH}_3(\text{g})$ の年平均濃度の範囲は17.1～3545.2 nmol m⁻³ (平均値221.3 nmol m⁻³)であり、最高値は旭、次いで前橋、最低値は香北であった。 $\text{NH}_3(\text{g})$ 濃度はEJの旭や前橋、SWの大里のように畜産業の影響を受けていると考えられる地点や都市部で高い傾向がみられた。

5.2.1.2 粒子状成分

$\text{SO}_4^{2-}(\text{p})$ の年平均濃度の範囲は25.0～59.5 nmol m⁻³ (平均値39.9 nmol m⁻³)、 $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ は18.9～55.5 nmol m⁻³ (平均値36.6 nmol m⁻³)であり、いずれも最高値は宮崎、次いで太宰府、最低値は利尻であった。 $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ 濃度はWJおよびSWで高く、NJで低くなり、西高東低の傾向がみられた。このような $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ 濃度の分布は、Aikawa et al. (2008)⁵⁾ が指摘しているように、アジア大陸の汚染大気の流れの影響を反映していると考えられる。

$\text{NO}_3^-(\text{p})$ の年平均濃度の範囲は6.3～56.2 nmol m⁻³ (平均値28.1 nmol m⁻³)であり、最高値は市原、次いで太宰府、最低値は香北であった。 $\text{NO}_3^-(\text{p})$ 濃度はEJで高く、NJで低い傾向がみられた。

$\text{Cl}^-(\text{p})$ の年平均濃度の範囲は1.4～202.4 nmol m⁻³ (平均値39.0 nmol m⁻³)であり、最高値は辺戸岬、次いで大里、最低値は伊自良湖であった。 $\text{Cl}^-(\text{p})$ 濃度はSWで高い傾向がみられた。

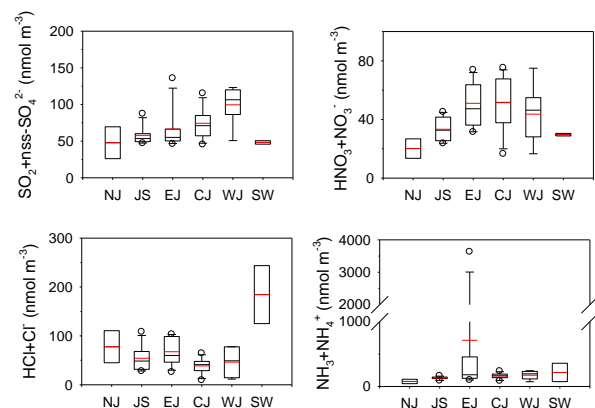


図5.2.3 ガス状および粒子状成分の
年平均濃度の分布（地域区別）

$\text{Na}^+(\text{p})$ の年平均濃度の範囲は10.7～219.9 nmol m⁻³ (平均値53.5 nmol m⁻³)であり、最高値は辺戸岬、次いで大里、最低値は伊自良湖であった。 $\text{Na}^+(\text{p})$ 濃度はSWで高い傾向がみられた。

$\text{K}^+(\text{p})$ の年平均濃度の範囲は1.0～6.4 nmol m⁻³ (平均値3.6 nmol m⁻³)であり、最高値は辺戸岬、次いで太宰府、最低値は清澄であった。 $\text{K}^+(\text{p})$ 濃度はSWで高い傾向がみられた。

$\text{Ca}^{2+}(\text{p})$ の年平均濃度の範囲は0.9～48.3 nmol m⁻³ (平均値8.7 nmol m⁻³)、 $\text{nss-Ca}^{2+}(\text{p})$ は0.7～46.4 nmol m⁻³ (平均値7.5 nmol m⁻³)であり、いずれも最高値は市原、次いで

太宰府、最低値は伊自良湖であった。 $\text{nss-Ca}^{2+}(\text{p})$ 濃度はEJで高い傾向がみられた。

$\text{Mg}^{2+}(\text{p})$ の年平均濃度の範囲は $1.5 \sim 25.4 \text{ nmol m}^{-3}$ (平均値 6.7 nmol m^{-3})であり、最高値は辺戸岬、次いで大里、最低値は長野であった。 $\text{Mg}^{2+}(\text{p})$ 濃度はSWで高い傾向がみられた。

$\text{NH}_4^+(\text{p})$ の年平均濃度の範囲は $24.2 \sim 114.2 \text{ nmol m}^{-3}$ (平均値 61.1 nmol m^{-3})であり、最高値は宮崎、次いで太宰府、最低値は利尻であった。 $\text{NH}_4^+(\text{p})$ 濃度はWJで高く、NJおよびSWで低い傾向がみられた。

5.2.1.3 ガス状および粒子状成分濃度の総計

非海塩由来の全硫黄($\text{SO}_2(\text{g}) + \text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$)の年平均濃度の範囲は $26.0 \sim 135.6 \text{ nmol m}^{-3}$ (平均値 69.3 nmol m^{-3})であり、最高値は市原、次いで鹿児島、最低値は利尻であった。全硫黄濃度はWJで高く、NJで低い傾向がみられた。

全硝酸($\text{HNO}_3(\text{g}) + \text{NO}_3^-(\text{p})$)の年平均濃度の範囲は $10.0 \sim 75.2 \text{ nmol m}^{-3}$ (平均値 41.6 nmol m^{-3})であり、最高値は神戸須磨、次いで太宰府、最低値は利尻であった。全硝酸濃度はEJおよびCJで高く、NJで低い傾向がみられた。

全塩化物($\text{HCl}(\text{g}) + \text{Cl}^-(\text{p})$)の年平均濃度の範囲は $9.1 \sim 243.7 \text{ nmol m}^{-3}$ (平均値 62.6 nmol m^{-3})であり、最高値は辺戸岬、次いで大里、最低値は伊自良湖であった。全塩

化物濃度はSWで高い傾向がみられた。

全アンモニア($\text{NH}_3(\text{g}) + \text{NH}_4^+(\text{p})$)の年平均濃度の範囲は $42.0 \sim 3626.6 \text{ nmol m}^{-3}$ (平均値 $282.4 \text{ nmol m}^{-3}$)であり、

最高値は旭、次いで前橋、最低値は利尻であった。全アンモニア濃度はEJとSWのように周辺の畜産業の影響を受けている地点や都市部で高い傾向が見られた。

5.2.2 経月変化および地域特性

地点別月平均濃度を見ると、ほとんどの成分は6つの地域区分(NJ, JS, EJ, CJ, WJ, SW)ごとに濃度変動パターンが似ていた。ここでは、外れ値の影響を小さくするため、地域区分別の中央値をもとに、月変化や包括的な地域特性を述べる。なお、気象庁の予報用語⁶⁾に従い、文中、春季(春)は3～5月、夏季(夏)は6～8月、秋季(秋)は9～11月、冬季(冬)は12～2月のことをそれぞれ指す。

5.2.2.1 ガス状成分

地域区分別のガス状成分濃度の経月変化を図5.2.4に示す。 $\text{SO}_2(\text{g})$ 濃度は、冬季から春季に高くなる傾向がみられた。冬季の $\text{SO}_2(\text{g})$ 濃度の増加はNJで顕著であり、冬季の暖房等の使用に伴う地域汚染の影響が考えられる。 $\text{SO}_2(\text{g})$ 濃度はWJで最も高く、アジア大陸に近いWJでは、大陸から排出される $\text{SO}_2(\text{g})$ の影響を強く受けている可能性がある。また、WJでは2015年5月に爆発的噴火が起こった口永良部島や、活発な噴火活動が継続する桜島や阿蘇

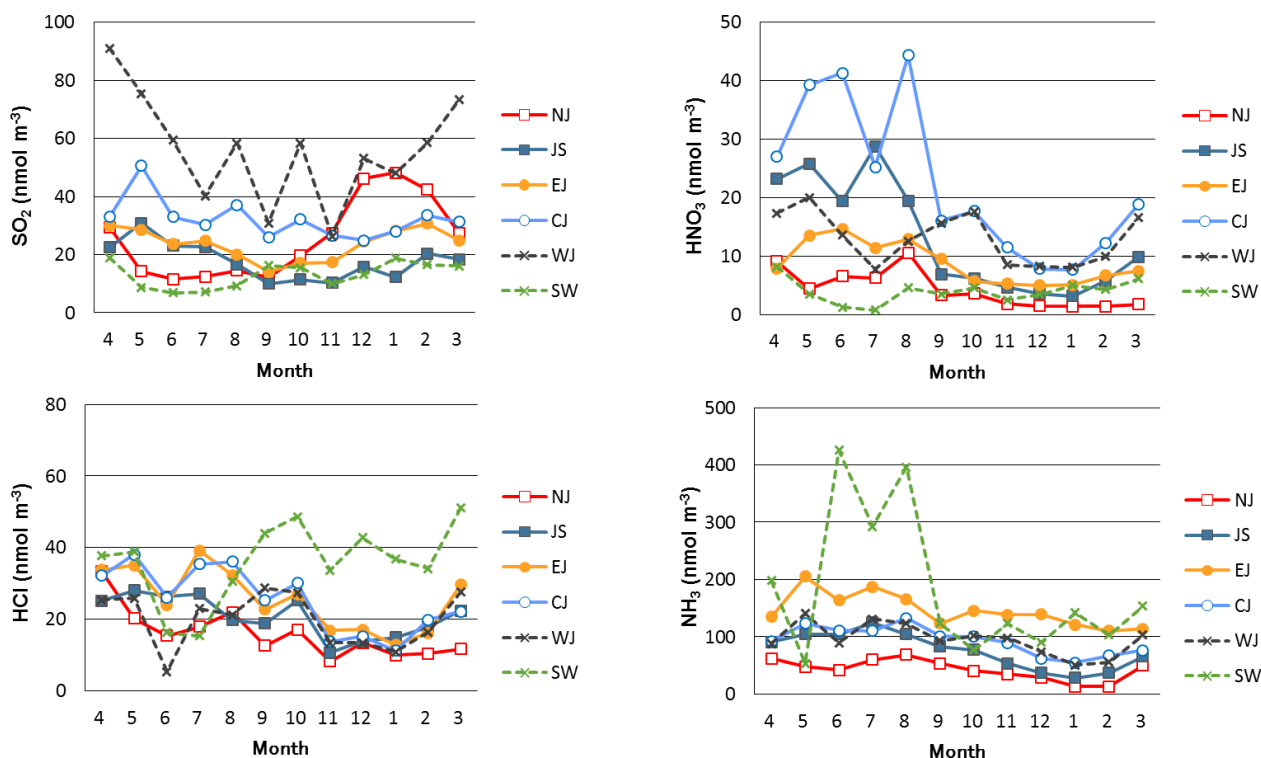


図5.2.4 ガス状成分濃度の経月変化（地域区分別）

山⁷⁾を起源とする火山ガスの影響を受けていることも考えられる。

$\text{HNO}_3(\text{g})$ 濃度は春季から夏季にかけて高く、秋季から冬季にかけて低くなる傾向がみられた。春季から夏季にかけての高濃度はCJおよびJSで特に顕著であった。春季から夏季に $\text{HNO}_3(\text{g})$ 濃度が高くなる要因としては、気温の上昇によって光化学反応が活発になり窒素酸化物から $\text{HNO}_3(\text{g})$ への酸化が促進されるためや、揮発性粒子である NH_4NO_3 などの解離が進むためなどが考えられる。

$\text{HCl}(\text{g})$ 濃度はSWを除いて冬季に低くなる傾向がみられた。 $\text{HCl}(\text{g})$ の発生源としては、廃棄物焼却施設、火山ガス、海塩粒子のクロリンロスなどが考えられる。

$\text{NH}_3(\text{g})$ 濃度は、夏季に高く冬季に低くなる傾向がみられた。 $\text{NH}_3(\text{g})$ 濃度の季節変化は、気温が上昇すると NH_4NO_3 などの揮発性粒子が解離することによりガス化し、逆に気温が低下すると粒子化することによると考えられる。 $\text{NH}_3(\text{g})$ 濃度の高いSWおよびEJでは地域汚染の影響が強いと考えられる。特に、EJの旭では、周辺に養豚場、養鶏場および肥料工場が立地するため、ごく近傍の発生源の影響を強く受けて一年中 $\text{NH}_3(\text{g})$ 濃度が高い(月平均濃度：2910～4510 nmol m^{-3})。SWでは夏季の高濃度が顕著であるが、これは大里で極めて高い濃度を示したためである。大里も周辺の畜産業の影響を強く受けていると考えられる。

5.2.2.2 粒子状成分

粒子状成分の地域別年平均当量濃度を図5.2.5に示す。どの地域でも陰イオンと陽イオンは同量程度であり、分析した8成分でイオンバランスはおおむねとれていた。総当量濃度は、SWで最も高かった。NJおよびSWを除く地域では、陰イオンは SO_4^{2-} 、陽イオンは NH_4^+ の占める割合が高かった。NJおよびSWでは Na^+ と Cl^- の占める割合が高く、海塩粒子の寄与が大きいと考えられる。EJでは、他の地域と比べて NO_3^- の割合が高かった。

粒子状成分濃度の経月変化を図5.2.6に示す。 $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ 濃度は、春季から夏季にかけて高くなる地域が多かった。また、夏季を除いてSWやWJで高く、NJで低い傾向がみられた。

$\text{NO}_3^-(\text{p})$ 濃度は全国的に、夏季に低くなる傾向がみられた。夏季の低濃度は、 NH_4NO_3 などの揮発性粒子が解離した影響が考えられる。

$\text{NH}_4^+(\text{p})$ 濃度はWJで高い傾向がみられた。 $\text{NH}_4^+(\text{p})$ 濃度の変動は、 $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ 濃度とよく似ていた。

$\text{nss-Ca}^{2+}(\text{p})$ 濃度は春季に高い傾向がみられた。2015年度は4～6月に気象庁によって黄砂が観測されており³⁾、黄砂の飛来を受けて $\text{nss-Ca}^{2+}(\text{p})$ 濃度は高くなったと考えられる。 $\text{nss-Ca}^{2+}(\text{p})$ の高濃度は、黄砂以外に地域的発生源の影響が大きいと考えられ、年平均 $\text{Ca}^{2+}(\text{p})$ 濃度

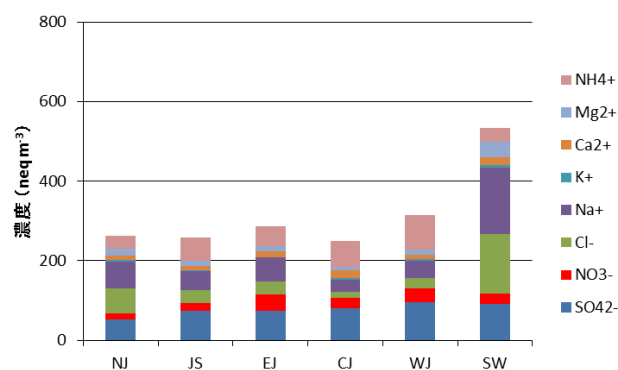


図5.2.5 粒子状成分の年平均当量濃度（地域区分別）

が最も高い市原では、近傍のセメント工場や石灰工場の影響を受けている可能性が高いと考えられる。

$\text{K}^+(\text{p})$ 濃度は、SWにおいてやや高かった。 $\text{K}^+(\text{p})$ は、海塩粒子やバイオマス燃焼の影響が考えられる。

$\text{Na}^+(\text{p})$ 、 $\text{Cl}^-(\text{p})$ および $\text{Mg}^{2+}(\text{p})$ 濃度は、1年を通してSWで高かった。SWの調査地点は海に近いので、海塩粒子の影響が大きいと考えられる。

5.2.2.3 ガス状および粒子状成分の総計

非海塩由来の全硫黄($\text{SO}_2(\text{g}) + \text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$)、全硝酸($\text{HNO}_3(\text{g}) + \text{NO}_3^-(\text{p})$)、全塩化物($\text{HCl}(\text{g}) + \text{Cl}^-(\text{p})$)、全アンモニア($\text{NH}_3(\text{g}) + \text{NH}_4^+(\text{p})$)濃度の経月変化を図5.2.7に示す。

非海塩由来の全硫黄($\text{SO}_2(\text{g}) + \text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$)濃度は全国的に、冬季から春季にかけて高い傾向がみられた。地域分布をみると、越境汚染や火山ガスの影響を受けやすいと考えられるWJで高かった。

全硝酸($\text{HNO}_3(\text{g}) + \text{NO}_3^-(\text{p})$)濃度は、春季に高くなる傾向がみられた。

全塩化物($\text{HCl}(\text{g}) + \text{Cl}^-(\text{p})$)濃度の季節変化は明確でなかった。SWでは1年を通して高濃度であった。

全アンモニア($\text{NH}_3(\text{g}) + \text{NH}_4^+(\text{p})$)濃度は、春季から夏季に高い傾向がみられた。地域分布をみると、周辺の発生源からのアンモニアの寄与が大きいと考えられるEJやSWで高く、NJで低かった。

5.2.3 自動測定機による SO_2 濃度との比較

FP法によって測定した $\text{SO}_2(\text{g})$ 濃度と、自動測定機によって測定した $\text{SO}_2(\text{g})$ 濃度との比較を図5.2.8に示す。図には、12地点(利尻、札幌北、長岡、前橋、加須、長野、射水、豊橋、海南、太宰府、鹿児島および辺戸岬)の月平均値を用いている。図から、両濃度がほぼ一致する地点と、自動測定機による $\text{SO}_2(\text{g})$ 濃度の方が高い傾向を示す地点がみられたが、おおむね0.5～2倍の範囲内であった。自動測定機による $\text{SO}_2(\text{g})$ 濃度の方が高くなる要因としては、FP法の捕集不良や分析誤差、装置設置場所の違い(FP法は屋上、自動測定機は地上で測定など)に加えて、紫外線

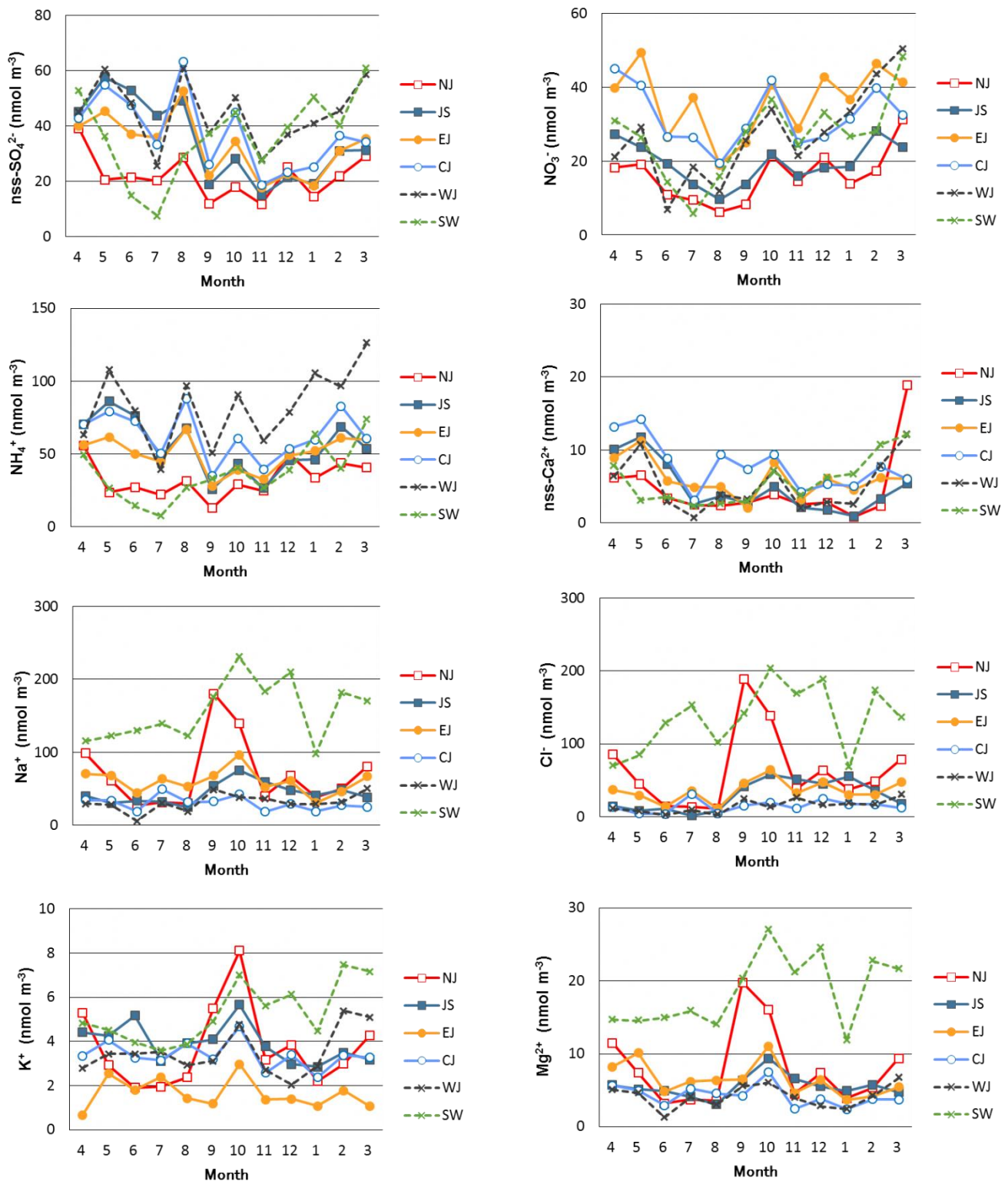


図5.2.6 粒子状成分濃度の経月変化（地域区別）

蛍光法自動測定機の1時間平均値の測定レンジ(0～0.01 ppmから0～1.00 ppm)⁹⁾ が実際の大气濃度と比べて高いことも考えられる。今回、濃度差が大きかった地点（図中に○で示したデータ）では、自動測定機の不具合を発見することができたことから、FP法と自動測定機の値を比較することで、測定の精度管理につながる事が期待

できる。

5.2.4 ガス状および粒子状成分の経年変化

アジア地域では、1980年代後半から中国を中心に硫黄酸化物や窒素酸化物などの大気汚染物質の排出量が増大しており、日本の大気環境に影響を与えていると考えられる¹⁰⁾。これまでの本調査からは、1999～2006年度に

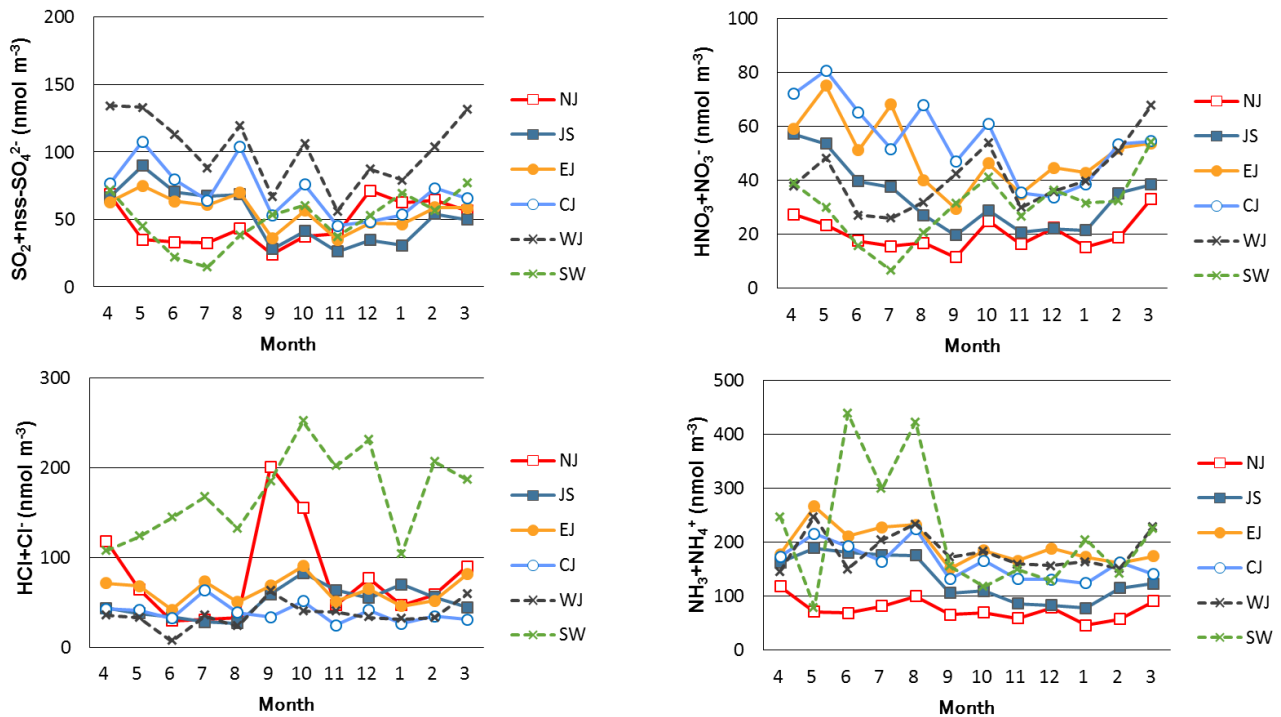


図5.2.7 ガス状および粒子状成分濃度の総計の経月変化（地域区別）

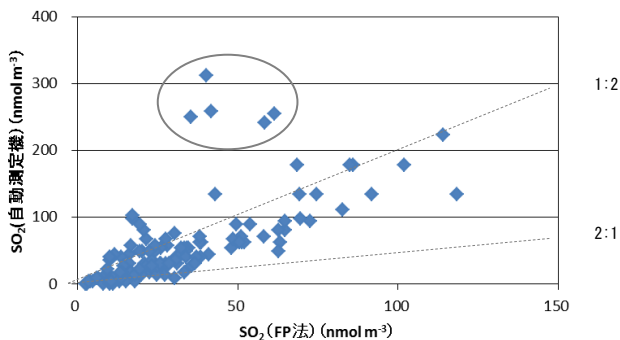


図5.2.8 FP法および自動測定機によるSO₂濃度

nss-SO₄²⁻(p)濃度が経年的に増加していたが、2005～2007年度を境に減少傾向に転じている傾向がみられ、特にWJとJSで越境大気汚染の影響を強く受けている可能性が示唆されている^{11,12)}。また、2003～2012年度の結果からは、SO₂(g)、HNO₃(g)、NH₃(g)、nss-SO₄²⁻(p)、NH₄⁺(p)濃度は減少傾向がみられたが、それ以外の成分では目立った変動はみられなかったことが報告されている¹³⁾。ここでは、第4次調査(2003～2008年度)および第5次調査(2009～2015年度)の結果をもとに、ガス状および粒子状成分濃度の経年変化を検討する。

表5.2.4および図5.2.9に示したのはガス状および粒子状成分濃度の年度別全国中央値である。年によって調査地点は異なるうえ、地域汚染の影響を強く受ける地点もあるため、中央値を用いて日本全体の濃度変動を把握し

た。2003年度から2015年度にかけて、SO₂(g)、HNO₃(g)およびNH₃(g)濃度は減少傾向がみられた。SO₂(g)やHNO₃(g)濃度の減少傾向は、日本の平均SO₂(g)やNO_x濃度がゆるやかに減少している状況と一致する¹⁴⁾。HNO₃(g)やNH₃(g)濃度が年々減少しているのに対して、SO₂(g)濃度は2011～2013年度に増加し、2014～2015年度に再び減少しており、2011～2013年度に濃度が増加した要因は興味深い。

nss-SO₄²⁻(p)濃度は、2005年度をピークに減少し、2013年度から2014年度にかけて一旦増加したが、その後再び減少した。NH₄⁺(p)濃度はnss-SO₄²⁻(p)濃度とよく似た変化であった。

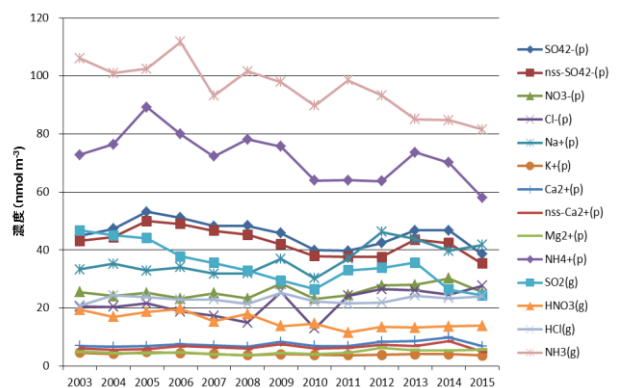


図5.2.9 ガス状および粒子状成分の全国中央値の経年変化

表5.2.4 ガス状および粒子状成分の全国中央値 (nmol m⁻³)

	2003	2004	2005	2006	2007	2008	2009	2010	2011	2012	2013	2014	2015
SO ₄ ²⁻ (p)	45.0	47.3	53.2	51.1	48.3	48.4	45.8	39.9	39.7	42.4	46.7	46.7	38.5
nss-SO ₄ ²⁻ (p)	43.2	44.4	50.0	49.0	46.7	45.2	41.9	37.9	37.7	37.5	43.5	42.3	35.4
NO ₃ ⁻ (p)	25.5	24.1	25.2	23.3	25.1	23.3	28.4	23.1	24.4	27.8	28.0	30.2	25.4
Cl ⁻ (p)	20.5	20.3	21.6	18.8	17.3	14.9	25.5	12.9	24.2	26.5	26.0	24.6	27.6
Na ⁺ (p)	33.3	35.2	32.9	34.1	31.8	31.9	36.9	30.2	37.1	46.3	43.8	39.7	41.8
K ⁺ (p)	4.6	4.2	4.8	4.5	4.2	3.8	4.0	3.8	3.7	3.9	4.1	4.1	3.6
Ca ²⁺ (p)	7.0	6.6	6.8	7.6	7.1	6.7	8.3	7.0	6.9	8.5	8.7	10.0	6.8
nss-Ca ²⁺ (p)	6.1	5.6	5.8	6.8	6.4	6.0	7.4	6.0	6.3	7.3	6.9	8.5	4.9
Mg ²⁺ (p)	4.9	4.5	4.4	4.7	4.1	3.8	4.5	4.1	4.6	6.3	5.4	5.3	5.6
NH ₄ ⁺ (p)	72.8	76.4	89.2	80.0	72.3	78.1	75.6	64.0	64.1	63.7	73.6	70.2	58.1
SO ₂ (g)	46.8	45.0	44.0	37.8	35.5	32.9	29.5	26.4	33.0	33.8	35.6	26.4	24.4
HNO ₃ (g)	19.4	17.0	18.7	19.8	15.4	17.9	13.8	14.7	11.6	13.5	13.3	13.6	13.9
HCl(g)	20.8	24.4	23.8	22.8	23.0	21.5	25.3	22.2	21.6	21.9	24.3	23.3	24.0
NH ₃ (g)	106.1	100.9	102.5	111.8	93.2	101.6	97.9	89.7	98.6	93.3	85.1	84.7	81.6
調査地点数	28	32	30	26	22	27	27	28	32	32	34	26	30

※調査地点数は、年データが80%以上の地点数を表す。

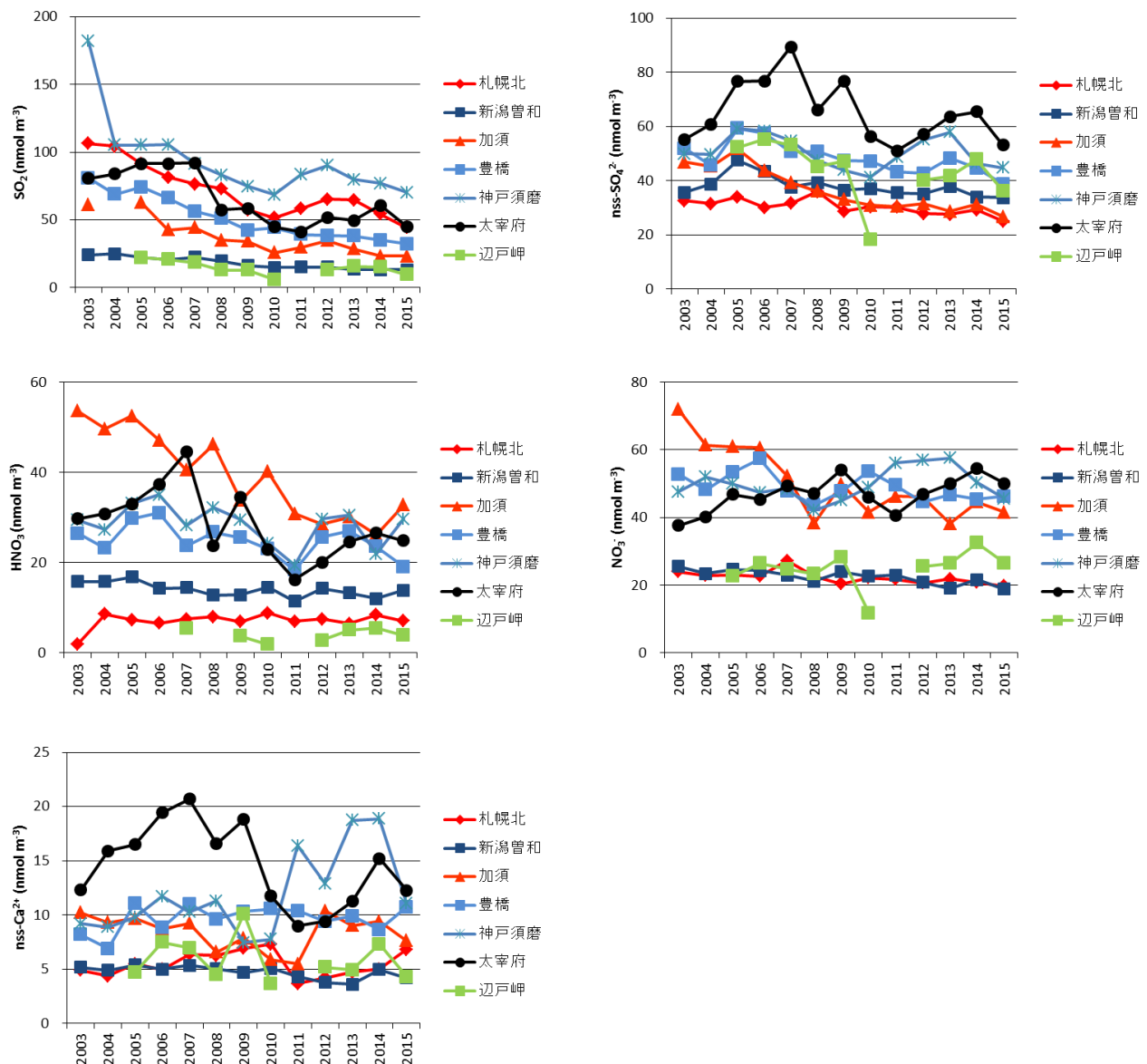


図5.2.10 ガス状および粒子状成分の年平均濃度の経年変化

$\text{Na}^+(\text{p})$ や $\text{Cl}^-(\text{p})$ 濃度は、2003～2008年度と比べて、2011年度以降に濃度が高くなる傾向を示した。 $\text{Mg}^{2+}(\text{p})$ 濃度も同様の増加傾向がみられることから、海塩粒子の影響が考えられる。海塩粒子の増加の要因は、台風の影響や海岸に近い千葉県の観測地点が増えたことが関係すると考えられる。

$\text{nss-Ca}^{2+}(\text{p})$ や $\text{NO}_3^-(\text{p})$ 濃度は微増傾向がみられており、黄砂および黄砂とともに運ばれる大気汚染物質の影響を受けている可能性がある。

これらの濃度の経年変化には、発生源の状況や気象状況、降水量など様々な要因が複雑に絡んでいると考えられる。そこで、経年変化の地域特性を明らかにするために、既報¹³⁾と同様の7地点(札幌北、新潟曽和、加須、豊橋、神戸須磨、太宰府、辺戸岬)について $\text{SO}_2(\text{g})$ 、 $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ 、 $\text{HNO}_3(\text{g})$ 、 $\text{NO}_3^-(\text{p})$ 、 $\text{nss-Ca}^{2+}(\text{p})$ 濃度の経年変化(年平均値)を示したものが図5.2.10である。辺戸岬では2005年度より調査を行っている。

$\text{SO}_2(\text{g})$ 濃度は、神戸須磨、札幌北、太宰府で高く、辺戸岬や新潟曽和で低かった。太宰府以外の $\text{SO}_2(\text{g})$ 濃度は2003年度から2015年度にかけて減少傾向を示した。太宰府では、2007年度まではやや増加傾向で、それ以降は減少傾向に転じているようにみえる。どの地点も、2011～2013年度に増加しているが、その後は減少した。

$\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ 濃度は、太宰府で最も高く、札幌北で最も低くなり、東へ行くほど濃度は低下する傾向がみられた。2003～2011年度までの $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ 濃度は、太宰府と辺戸岬以外の地点では2005年度まで増加しその後減少、太宰府と辺戸岬では2006年度または2007年度まで増加しその後減少した。このように、地点によって若干異なるが、 $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ 濃度は2005～2007年度までは増加傾向、それ以降は減少傾向がみられた。Lu et al. (2010)¹⁵⁾や大原(2012)¹⁶⁾は、2000年以降増加傾向にあった中国における SO_2 排出量が2006年頃を境に減少したことを報告しており、中国における SO_2 排出量の経年変化と本調査で得られた $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ 濃度の経年変化とはよく似ている。このことは、日本の $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ 濃度はアジア大陸から排出される SO_2 の影響を強く受けていることを示唆する。2011年度から2013～2014年度までの増加の原因については不明であるが、今後は、中国等の SO_2 排出量の推移に注視するとともに、桜島・霧島等の火山や船舶など国内発生源の影響についても検討する必要がある。

$\text{HNO}_3(\text{g})$ 濃度は、加須や太宰府で高く、辺戸岬や札幌北で低かった。太宰府の経年変化ははっきりしないが、加須、豊橋および神戸須磨では減少傾向、新潟曽和、札幌北および辺戸岬では横ばいであった。 $\text{NO}_3^-(\text{p})$ 濃度は、加須、豊橋、神戸須磨、太宰府で高く、新潟曽和、札幌北、辺戸岬で低かった。 $\text{NO}_3^-(\text{p})$ 濃度は、加須では減少傾

向、太宰府と辺戸岬ではやや増加傾向が見られるが、他の地点では横ばいであった。太宰府と辺戸岬の $\text{NO}_3^-(\text{p})$ 濃度の増加傾向は中国の NO_x 排出量の増加傾向¹⁶⁾と似ており興味深い。 HNO_3 は水に溶けやすく大気中から除去されやすいため SO_2 と比べて長距離輸送されにくいと考えられるが、太宰府や辺戸岬の $\text{NO}_3^-(\text{p})$ は $\text{SO}_2(\text{g})$ や $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ と同様にアジア大陸の影響を受けている可能性がある。

$\text{nss-Ca}^{2+}(\text{p})$ 濃度は、太宰府や神戸須磨で高く、新潟曽和で低かった。 $\text{nss-Ca}^{2+}(\text{p})$ 濃度は年によって変動が大きいが、太宰府は2007年度以降に減少傾向、神戸須磨は2011年度以降に増加傾向がみられた。加須は2003年度から2011年度にかけて減少したが、2012年度以降はやや高い濃度で推移している。 $\text{nss-Ca}^{2+}(\text{p})$ 濃度の変動は、黄砂や地獄的汚染の影響が考えられる。

－ 引 用 文 献 －

- 1) 環境省：平成27年度酸性雨調査結果について、
<http://www.env.go.jp/air/acidrain/monitoring/h27/index.html>
- 2) 全国環境研協議会 酸性雨調査研究部会：第3次酸性雨全国調査結果，全国環境研会誌，**28**，126-196，2003
- 3) Acid Deposition Monitoring Network in East Asia：東アジアにおけるフィルターバック法に関する技術資料，http://www.eanet.cc/jpn/docea_f.html
- 4) 全国環境研協議会 酸性雨広域大気汚染調査研究部会：第5次酸性雨全国調査報告書（平成26年度），全国環境研会誌，**41(3)**，2-37，2016
- 5) M. Aikawa, T. Hiraki, M. Yamagami, M. Kitase, Y. Nishikawa, I. Uno: Regionality and particularity of a survey site from the viewpoint of the SO_2 and SO_4^{2-} concentrations in ambient air in a 250-km × 250-km region of Japan, *Atmos. Environ.*, **42**, 1389-1398, 2008
- 6) 気象庁：予報用語，http://www.jma.go.jp/jma/kishou/known/yougo_hp/mokuji.html
- 7) 気象庁：年間の日本の主な火山活動，http://www.data.jma.go.jp/svd/vois/data/tokyo/STOCK/monthly_v-act_doc/annual.htm
- 8) 気象庁：[地球環境のデータバンク] 黄砂，http://www.data.jma.go.jp/gmd/env/kosahp/kosa_data_index.html
- 9) 環境省：環境大気常時監視マニュアル（第6版）
- 10) T. Ohara, H. Akimoto, J. Kurokawa, N. Horii, K. Yamaji, X. Yan, T. Hayasaka: An Asian emission inventory of anthropogenic emission source for the period 1980-2020, *Atmos. Chem. Phys.*, **7**, 4419-4444, 2007

- 11) 全国環境研協議会 酸性雨調査研究部会: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**, 126-196, 2008
- 12) 全国環境研協議会 酸性雨調査研究部会:第4次酸性雨全国調査報告書(平成22年度), 全国環境研会誌, **37**, 110-158, 2012
- 13) 全国環境研協議会 酸性雨調査研究部会:第5次酸性雨全国調査報告書(平成24年度), 全国環境研会誌, **39**, 100-145, 2014
- 14) 環境省:環境白書 循環型社会白書/生物多様性白書(平成28年版), p.424, 2016
- 15) Z. Lu, D. G. Streets, Q. Zhang, S. Wang, G. R. Carmichael, Y. F. Cheng, C. Wei, M. Chin, T. Diehl, Q. Tan: Sulfur dioxide emissions in China and sulfur trends in East Asia since 2000, *Atmos. Chem. Phys.*, **10**, 6311-6331, doi:10.5194/acp-10-6311-2010, 2010
- 16) 大原利眞:東アジアにおける広域越境大気汚染モデリングの最新動向, 水環境学会誌, **35**, 6-9, 2012

5.3 乾性沈着量の推計

5.3.1 乾性沈着推計ファイル

インファレンシャル法による乾性沈着量の推計を行った。インファレンシャル法は気象データなどから沈着速度(V_d)を算出し、乾性沈着量を求める方法である¹⁾。

このモデルは以下の式で表される。

$$F = V_d(z) \times C$$

F: 沈着面への沈着物質のフラックス(沈着量)

$V_d(z)$: 基準高さzにおける沈着速度

C: 沈着物質の大気中濃度

したがって、 V_d が決定されれば、大気中の物質濃度から乾性沈着量が求められる。 V_d は沈着成分の輸送されやすさ、沈着しやすさによって変化し、風速や気温などの気象データ、また対象成分の溶解度や地表面の被覆状況(土地利用状況)などから推定する。

V_d の算出には、野口らが表計算ソフト(MS Excel)のファイルとして開発した乾性沈着推計ファイルVer. 4-2を用いた²⁾。このファイルは、北海道立総合研究機構環境科学研究センターのHPで公開されており³⁾、ダウンロードが可能である。ファイルの詳細についてはそちらを参照していただきたい。

この乾性沈着推計ファイルは、現在も改良が続けられているため、今回用いたVer. 4-2による計算は、過去に報告した計算結果と必ずしも一致しない。また、乾性沈着推計ファイルVer. 4-2では、市街地の粒子状物質の V_d に上限値が設定されているが本報告では上限値を外して計算した。

5.3.2 乾性沈着量の推計方法

乾性沈着量の推計はFP法で大気濃度の測定を実施した31地点について実施した。また、FP法調査地点のうち自動測定機またはパッシブ法で NO_2 、 NO 測定を実施した17地点は NO_2 、 NO についても推計した。

V_d の算出において、乾性沈着推計ファイルに入力する気象データ(風速、気温、湿度、日射量、雲量)は、調査実施機関が指定する各調査地点に近い気象官署、アメダス⁴⁾、大気汚染常時監視測定局の1時間値を用いた。

季節区分(春、夏、秋、冬(積雪なし)、冬(積雪あり))

は、温量指数と季節区分指標を用いる方法とした。

V_d は表面の状況により異なるため、土地利用状況別に、粒子状物質(SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+ 、以後(p)をつけて表示)およびガス状物質(SO_2 、 HNO_3 、 NH_3 、以後(g)をつけて表示、 NO 、 NO_2)の V_d をそれぞれ算出した。

各調査地点で対象成分ごとに算出した土地利用状況別 V_d (cm s^{-1})の年平均値を参考として表5.3.1に示す。

乾性沈着量は、土地利用状況別 V_d を調査地点周辺の土地利用割合で加重平均し、大気濃度との積を求めた。環境省の越境大気汚染・酸性雨長期モニタリング報告書(平成20～24年度)⁵⁾では、測定局周辺約1kmの森林と草地の利用割合で計算されているが、本報告書では、測定局周辺半径約20kmを推計対象として、土地利用の分類を市街地(建物用地、幹線交通用地、その他)、森林地域(森林)、農地(田、その他の農用地)、草地(ゴルフ場などの草地、荒地)、水面(河川および湖沼、海浜)とした。土地利用状況によって V_d が大きく異なるため(表5.3.1)、土地利用の割合は推計結果に大きな影響を及ぼす。市街地の V_d 推計のためのパラメーターについては十分に検証が行われていないなど不確実な部分が多いが、本調査では市街地にある測定地点が多いことからこの条件設定とした。また、気象データの測定点が、FP法の測定地点と異なる地点が多いことから半径20kmとした。土地利用割合は国土地理院のデータ⁶⁾からFP法の測定地点周辺の海を除く半径20kmにかかるメッシュ値を抽出して求めた。最多頻度の季節が冬(積雪あり)となった月については、農地、草地の V_d の代わりに、積雪の V_d を推計に用いた。なお、これらの条件設定については、さらに検討が必要である。

大気濃度はFP法で測定した nss-SO_4^{2-} (p)、 NO_3^- (p)、 NH_4^+ (p)、 SO_2 (g)、 HNO_3 (g)、 NH_3 (g)、自動測定機またはパッシブ法で測定した NO_2 、 NO の月平均濃度を用いた。月ごとに乾性沈着量を求め、それらを合計して年間乾性沈着量を算出した。

FP法では粒子状物質とガス状物質の完全な分別捕集は難しい。しかし、乾性沈着ではガス状物質と粒子状物質の沈着速度が異なるため、FP法で得られた HNO_3 (g)と NO_3^- (p)、 NH_3 (g)と NH_4^+ (p)濃度を用いて乾性沈着量を算出

表5.3.1 土地利用状況別の平均沈着速度(2015年度)

	(単位: cm s^{-1})							
	SO_4^{2-} (p)	NO_3^- (p)	NH_4^+ (p)	SO_2 (g)	HNO_3 (g)	NH_3 (g)	NO_2 (g)	NO (g)
市街地	0.17	0.17	0.17	0.17	4.3	0.045	0.031	4.8E-09
森林地域	0.52	0.75	0.58	1.2	3.9	0.53	0.10	0.0024
農地	0.13	0.13	0.13	0.62	1.2	0.38	0.14	0.0020
草地	0.16	0.16	0.16	0.66	1.6	0.35	0.10	0.0020
積雪	0.10	0.10	0.10	0.40	0.40	0.44	0.0014	0.00027
水面	0.086	0.086	0.086	0.27	0.27	0.29	0.0011	0.00022

注) 各調査地点で、対象成分ごとに土地利用別に算出した日沈着速度 V_d (cm s^{-1})の年間平均値

表5.3.2 年間乾性沈着量(2015年度地点別)

No.	都道府県市	地点名	SO ₂ (g)	HNO ₃ (g)	NH ₃ (g)	nss-SO ₄ ²⁻ (p)	SO ₄ ²⁻ (p)	NO ₃ ⁻ (p)	NH ₄ ⁺ (p)	NO ₂ (g)	NO (g)
			mmol m ⁻²								
1	北海道	利尻	1.4	1.0	3.5	1.2	1.6	1.1	1.7	0.6	0.001
2	北海道	札幌北	6.1	6.7	5.4	2.1	2.2	1.8	3.5	6.5	0.016
3	新潟県	新潟曽和	2.2	10.2	6.4	2.0	2.1	1.1	2.9	8.3	0.014
4	新潟県	長岡	3.7	13.1	11.2	3.4	3.5	2.6	6.2	6.4	0.014
5	新潟市	新潟小新	2.8	10.2	6.9	2.0	2.2	1.7	2.7	8.3	0.029
6	群馬県	前橋	4.2	15.2	51.1	2.1	2.2	4.1	5.7	7.8	0.027
7	埼玉県	加須	2.4	18.3	12.7	1.5	1.5	1.9	3.3	11.6	0.016
8	千葉県	旭	5.3	4.9	579.9	2.7	3.1	4.5	7.3	—	—
9	千葉県	勝浦	7.8	5.4	11.7	4.1	4.7	4.8	5.9	—	—
10	千葉県	清澄	10.5	7.7	11.5	4.7	5.2	5.3	6.8	—	—
11	千葉県	市原	15.0	8.6	9.2	2.6	2.9	4.0	3.1	—	—
12	千葉県	佐倉	5.9	15.7	10.2	2.6	2.8	2.5	3.7	—	—
13	長野県	長野	3.8	17.1	13.4	3.1	3.2	1.5	5.8	5.6	0.023
14	静岡県	静岡北安東	5.7	19.9	7.5	2.7	2.8	2.7	4.5	—	—
15	富山県	射水	4.1	8.5	7.8	2.1	2.2	1.3	3.8	8.8	0.019
16	石川県	金沢	4.2	9.0	4.5	2.8	2.9	1.5	4.3	—	—
17	福井県	福井	9.6	16.7	11.4	3.7	4.0	2.6	6.7	9.0	0.049
18	岐阜県	伊自良湖	1.5	2.0	3.3	0.6	0.7	0.2	1.1	—	—
19	愛知県	豊橋	9.4	25.0	23.7	5.3	5.6	8.1	10.8	14.9	0.047
20	名古屋市	名古屋南	4.7	26.9	6.5	2.1	2.2	2.4	3.6	—	—
21	和歌山県	海南	6.0	17.3	7.0	2.7	2.8	1.9	4.2	10.4	0.018
22	兵庫県	神戸須磨	12.1	39.5	5.4	4.9	5.3	6.0	9.4	—	—
23	鳥取県	湯梨浜	10.1	5.8	10.9	7.2	7.7	5.7	13.8	1.4	0.062
24	高知県	香北	1.7	5.8	1.6	2.3	2.3	0.5	3.5	1.6	0.041
25	福岡県	太宰府	9.0	20.8	12.2	4.5	4.8	5.5	9.3	16.8	0.055
26	大分県	大分久住	14.8	9.0	6.0	3.0	3.1	1.8	5.7	—	—
27	大分県	大分	(14.8)	(14.0)	(6.2)	(3.4)	(3.5)	(1.9)	(6.1)	—	—
28	宮崎県	宮崎	15.5	9.5	21.7	5.6	6.0	5.6	13.2	—	—
29	鹿児島県	鹿児島	20.7	10.4	13.4	3.3	3.6	3.3	7.0	—	—
30	沖縄県	大里	3.4	8.3	27.4	4.2	5.0	3.4	4.8	1.5	0.005
31	沖縄県	辺戸岬	6.2	7.1	7.3	10.5	14.9	11.0	9.9	1.1	0.002
		最低値	1.4	1.0	1.6	0.6	0.7	0.2	1.1	0.6	0.001
		最高値	20.7	39.5	579.9	10.5	14.9	11.0	13.8	16.8	0.062
		中央値	5.8	9.8	9.7	2.7	3.0	2.6	5.2	7.8	0.019
		平均値	7.0	12.5	30.4	3.4	3.8	3.3	5.8	7.1	0.026

注) 全国最低値は網掛け，全国最高値は白抜きで示した。参考値は（ ）で示した。

している。そのため，これらの乾性沈着量はFP法におけるアーティファクトの影響を受けている可能性がある。

5.3.3 乾性沈着量の推計結果

各地点の年間乾性沈着量の推計結果は表5.3.2のとおり。乾性沈着量はFP法で測定した大気濃度の年平均値が欠測または参考値となった調査地点を除いて評価した。

ガス状物質の乾性沈着量は，SO₂(g)が1.4(利尻)～20.7(鹿児島) (平均値7.0) mmol m⁻² y⁻¹，HNO₃(g)が1.0(利尻)～39.5(神戸須磨) (平均値12.5) mmol m⁻² y⁻¹，NH₃(g)が1.6(香北)～579.9(旭) (平均値30.4) mmol m⁻² y⁻¹だった。

粒子状物質の乾性沈着量は，nss-SO₄²⁻(p)が0.6(伊自良湖)～10.5(辺戸岬) (平均値3.4) mmol m⁻² y⁻¹，NO₃⁻(p)が0.2(伊自良湖)～11.0(辺戸岬) (平均値3.3) mmol m⁻² y⁻¹，NH₄⁺(p)が1.1(伊自良湖)～13.8(湯梨浜) (平均値5.8)

mmol m⁻² y⁻¹だった。

ガス状物質と粒子状物質を合わせた乾性沈着量は，非海塩由来硫黄成分(SO₂(g)+nss-SO₄²⁻(p))が2.1(伊自良湖)～23.9(鹿児島) (平均値10.4) mmol m⁻² y⁻¹，NO_x(=NO₂+NO)を含まない酸化態窒素成分(HNO₃(g)+NO₃⁻(p))が2.1(利尻)～45.5(神戸須磨) (平均値15.9) mmol m⁻² y⁻¹，還元態窒素成分(NH₃(g)+NH₄⁺(p))が4.4(伊自良湖)～587.2(旭) (平均値36.2) mmol m⁻² y⁻¹だった。

NO_x測定地点のNO₂の乾性沈着量は0.6(利尻)～16.8(太宰府) (平均値7.1) mmol m⁻² y⁻¹，NOの乾性沈着量は0.001(利尻)～0.062(湯梨浜) (平均値0.026) mmol m⁻² y⁻¹だった。酸化態窒素成分にNO_xを加えた窒素酸化物成分は2.7(利尻)～48.0(豊橋) (平均値22.6) mmol m⁻² y⁻¹だった。

5.3.4 乾性沈着量と湿性沈着量との比較

湿性沈着およびFP法による大気濃度の年平均値が全て有効となった28地点について、湿性沈着（以後(wet)をつけて表示）と乾性沈着を合わせた総沈着量を図5.3.1に示す。ここで、総沈着量は、非海塩由来硫黄成分(SO_2 (g), nss-SO_4^{2-} (p), nss-SO_4^{2-} (wet)), 酸化態窒素成分(HNO_3 (g), NO_3^- (p), NO_3^- (wet))および還元態窒素成分(NH_3 (g), NH_4^+ (p), NH_4^+ (wet))に分類して考察した。また、 NO_x の乾性沈着量は、 NO_2 の乾性沈着量の年平均値が有効となった17地点について酸化態窒素成分と合わせて示した。

総沈着量の年間値は、非海塩由来硫黄成分が10.9(利尻)～64.8(鹿児島) (平均値31.1) $\text{mmol m}^{-2} \text{y}^{-1}$, 酸化態窒素成分が12.5(利尻)～65.9(神戸須磨) (平均値41.6 $\text{mol m}^{-2} \text{y}^{-1}$, 還元態窒素成分が17.0(香北)～689.3(旭) (平均値66.6) $\text{mmol m}^{-2} \text{y}^{-1}$ だった。 NO_x の乾性沈着量を含めた酸化態窒素成分は13.1(利尻)～78.3(太宰府) (平均値49.3) $\text{mmol m}^{-2} \text{y}^{-1}$ だった。

総沈着量に占める乾性沈着量の比率(=乾性沈着量/(乾性沈着量 + 湿性沈着量)×100(%))は、非海塩由来硫黄成分が8%(伊自良湖)～58%(辺戸岬) (平均値33%), 酸化

態窒素成分が5%(伊自良湖)～69%(神戸須磨) (平均値39%), 還元態窒素成分が12%(伊自良湖)～85%(旭) (平均値40%)だった。

湿性沈着および大気濃度の年平均値が有効となった28地点について、6つの地域区分別(北部(NJ, 2地点), 日本海側(JS, 7), 東部(EJ, 7), 中央部(CJ, 7), 西部(WJ, 4), 南西諸島(SW, 1))に年間総沈着量の中央値を図5.3.2に示す。 NO_x の乾性沈着量についても酸化態窒素成分に合わせて示した。

総沈着量は、非海塩由来硫黄成分はWJで、酸化態窒素成分はJS, CJ, WJで、還元態窒素成分はWJ, JS, EJが多かった。NJでは、いずれの成分の総沈着量も他の地域区分に比べ少なかった。SWでは、いずれの成分も粒子の乾性沈着量が他の地域区分に比べ多かった。

中央値から算出した総沈着量に乾性沈着量が占める割合は、非海塩由来硫黄成分はSWで、酸化態窒素成分はCJ, EJ, WJで大きく、還元態窒素成分はJS, NJで小さかった。

大陸の影響を検討するために、非海塩由来硫黄成分の総沈着量と経度を比較した(図5.3.3)。WJは火山の影響も考えられるが、全体的にみると大陸に近い経度の小さ

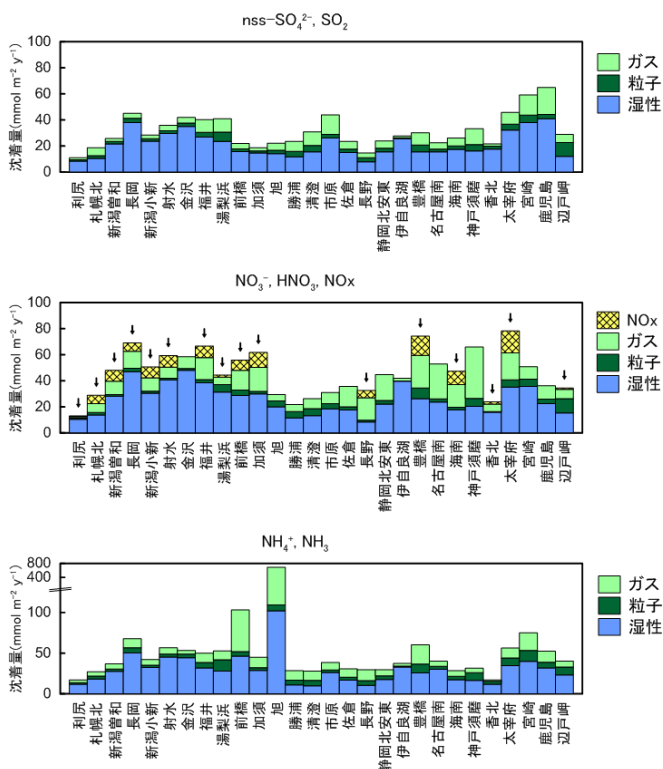


図5.3.1 調査地点の年沈着量(2015年度)

注)湿性沈着およびフィルターバック法による対象測定項目の年間値がすべて有効となった調査地点

注) NO_x ($\text{NO}+\text{NO}_2$)は、自動測定器または0式パッシブ法による測定地点のみ表示(図内↓印)

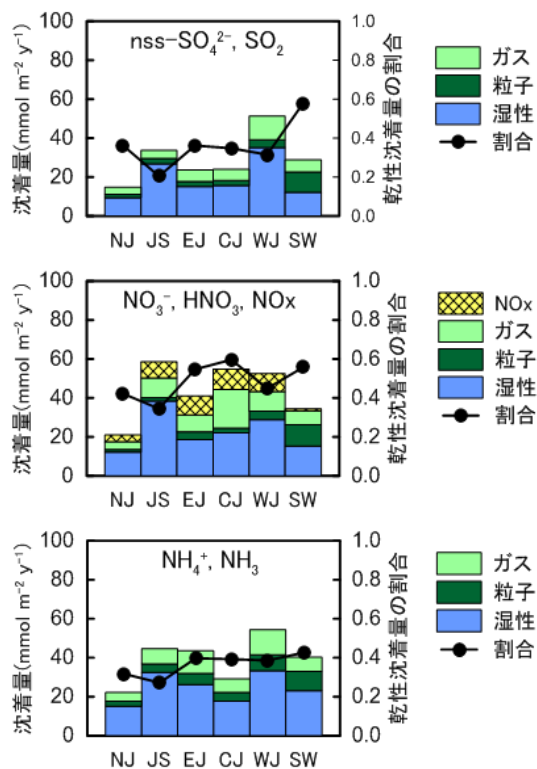


図5.3.2 各地域区分別の年沈着量(2015年度中央値)

注)総沈着量に占める乾性沈着量の比率 = 乾性沈着量 / (乾性沈着量 + 湿性沈着量), 中央値より求めた。

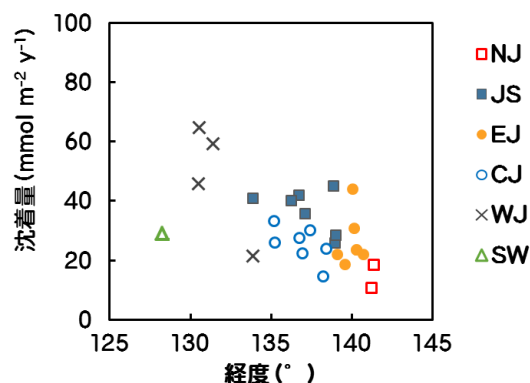


図5.3.3 地域区別の非海塩由来硫黄成分の総沈着量と経度の関係



図5.3.4 地域区別の無機態窒素沈着量（2015年度中央値）

い地点で総沈着量が多くなる傾向がみられた。

5.3.5 乾性沈着の全無機態窒素沈着量

土壌の酸性化や湖沼の富栄養化への観点から乾性沈着量を含む無機態窒素沈着量について検討を行った。ただし、土壌の酸性化の指標である潜在水素イオン ($H_{\text{eff}} = H^+ + 2NH_4^+$) については、大気中の H^+ を測定していないため評価できない。そのため湖沼の富栄養化の指標である

全無機態窒素 ($\Sigma N = NO_3^- + NH_4^+$) についてのみ検討することとした。また、乾性沈着量についてはガス状成分の $HN O_3(g)$ と $NH_3(g)$ も湖沼に付加すると硝酸イオン、アンモニウムイオンとして寄与すると考えられるので、粒子状成分 ($NO_3^-(p)$, $NH_4^+(p)$) とガス状成分 ($HN O_3(g)$, $NH_3(g)$) を含めた全無機態窒素 ($\Sigma N_{(p+g)}$) を対象とした。

図5.3.4に湿性沈着およびFP法による大気濃度の年平均

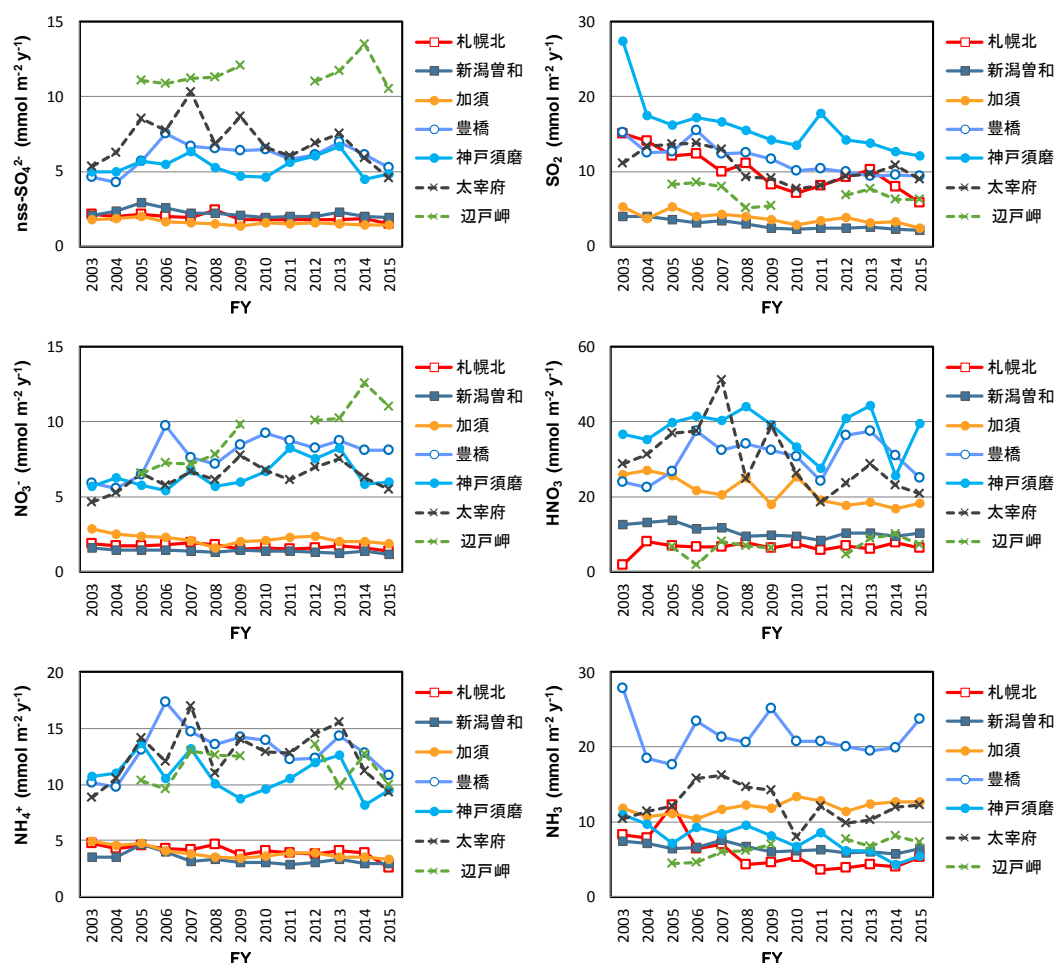


図5.3.5 継続調査地点における乾性沈着量の経年変化（2003～2015年度）

均値が全て有効となった地点の、湿性沈着量および乾性沈着量の全無機態窒素の地域区分別年間中央値を示す。

湿性沈着量による ΣN はJS, WJで、乾性沈着量による $\Sigma N_{(p+g)}$ はWJ, SWで多かった。 $\Sigma N_{(p+g)}$ は、湿性沈着量も含めた全無機態窒素の2～5割を占めた。

5.3.6 乾性沈着量の経年変化

FP法による大気濃度測定の実施を継続して実施している地点のうち、札幌北、新潟曽和、加須、豊橋、神戸須磨、太宰府、辺戸岬の7地点について、2003年度からの乾性沈着量の経年推移を比較した(図5.3.5)。

粒子状成分の乾性沈着量は、豊橋、神戸須磨、太宰府、辺戸岬で多く、札幌北、新潟曽和、加須では少ない傾向がみられた。経年変化をみると、 $nss-SO_4^{2-}(p)$ と $NH_4^+(p)$ は、豊橋と太宰府で2006～2007年まで増加し、それ以降横ばいまたは減少に転じる傾向がみられた。 $NO_3^-(p)$ は、豊橋、神戸須磨、太宰府、辺戸岬で増加傾向を示していたが、この2年間は辺戸岬を除き横ばいまたは減少している。

ガス状成分の乾性沈着量の経年変化は、横ばいまたは減少傾向を示す地点が多かった。

－ 引用 文 献 －

- 1) EANET : Technical Manual on Dry Deposition Flux Estimation in East Asia,
<http://www.eanet.asia/product/manual/techacm.pdf>
- 2) 野口泉, 松田和秀: 乾性沈着ファイルの開発, 北海道環境科学研究センター所報, **30**, 23-28, 20033) 全国環境研協議会: 第4次酸性雨全国調査報告書(平成15年度), 全国環境研会誌, **30**, 58-135, 2005
- 3) 全国環境研協議会: 乾性沈着推計ファイルVer.4-2,
http://www.ies.hro.or.jp/seisakuka/acid_rain/kanseichinchaku/kanseichinchaku.htm
- 4) (財)気象業務支援センター: 気象観測月報2015年3月～2016年4月, (CD-ROM)
- 5) 環境省: 越境大気汚染・酸性雨長期モニタリング報告書(平成20～24年度), 2014
<http://www.env.go.jp/air/acidrain/monitoring/rep3.html>
- 6) 国土交通省国土政策局国土情報課: 国土数値情報ダウンロードサービス,
<http://nlftp.mlit.go.jp/ksj/index.html>

O_3 は近年越境大気汚染の影響により、国内の大都市地域以外の、郊外や遠隔地でも高濃度が観測されている。このことから、パッシブサンプラーにより常時監視局の少ない郊外や遠隔地における O_3 濃度を把握することを目的としている。

測定値について、いずれの項目も定量下限値としてEUNETにおける定量下限値(0.1 ppb)を用いた。データの有効判定はFP法と同様に、期間適合度60%以上を有効とした。測定方法については第4次調査と同様とした²⁾。

調査地点は大都市、工業地域、中小都市域、田園地域、森林地域から目的に応じ、1地点以上選定することとなつ

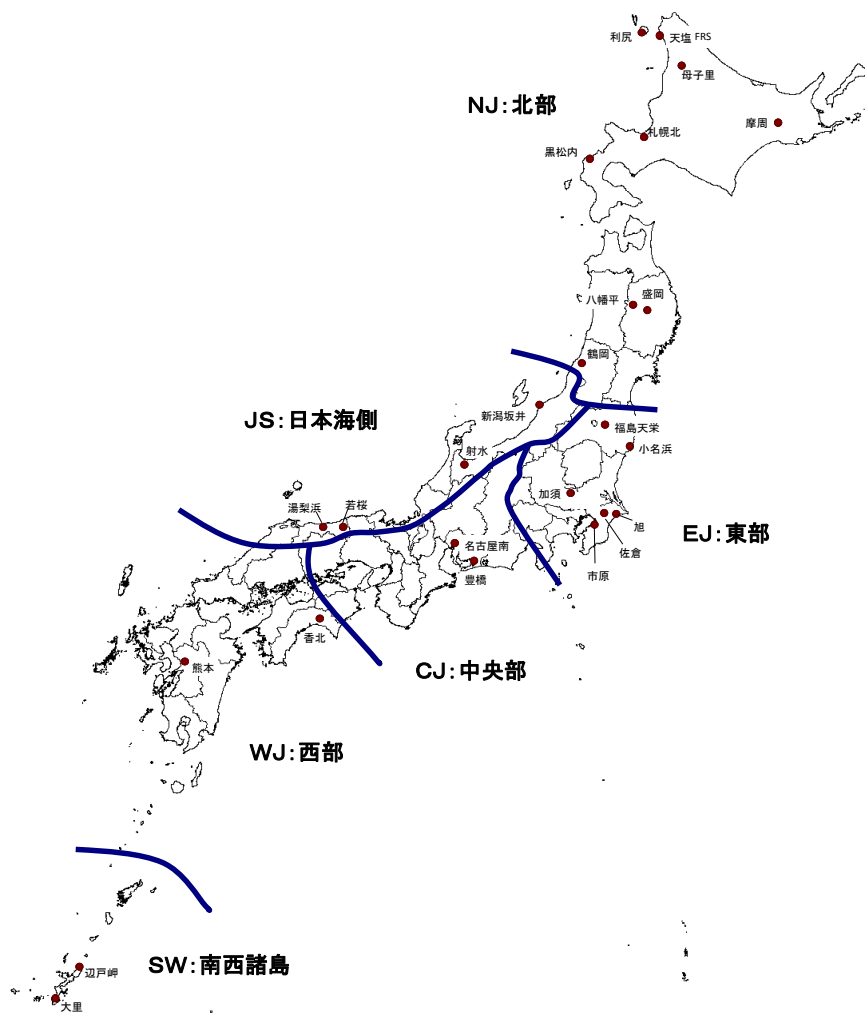


図6.1.1 パッシブサンプラー測定地点および地域区分

表6.2.1 データ概況（2015年度）

項目	地点数	月別						年間					
		欠測数	データ数	適合数	有効割合	＜適合度	＜DL値*	欠測数	データ数	適合数	有効割合	＜適合度	＜DL値*
NO ₂	16	1	192	186	97%	5	3	0	16	16	100%	0	0
NO	16	5	163	153	94%	5	22	0	16	16	100%	0	0
NO _x	16	5	187	177	95%	5	0	0	16	16	100%	0	0
O ₃	15	0	180	175	97%	5	0	0	15	15	100%	0	0
NH ₃	25	2	300	293	98%	5	12	0	25	25	100%	0	0

(*:＜DL値はNDの数を示す)

ている。調査は通年で行い、試料捕集周期は1ヶ月(4週間または6週間)とした。2015年度は15機関25地点で実施された。測定地点図を図6.1.1に示す。なお地点により測定項目は異なる。また全国を地域区分した評価を行っているが、全地点で全項目を測ってはいないこと、地点数が少ない地域、土地利用の偏りがある地域もあることなどから、必ずしも地域代表性に乏しい面があり、解釈には注意が必要である。NO_xとO₃については、都市部のパッシブサンプラーによる測定地点は少なくなっており、測定地点の多くは田園及び森林地域に位置する。このため、地域平均濃度も都市部よりは田園や森林地域の濃度をより強く反映している。

またこれは電源を要しないパッシブサンプラーの特徴を活かしているとも言える。

6.2 測定結果

NO_xの年平均濃度と周辺排出量の相関を図6.2.1に、地域別季節変動を図6.2.2に示す。また2015年度データの欠測数および期間適合度60%以上の割合を表6.2.1に示す。完全度の計算方法は、月毎の完全度は「月毎の観測期間/月毎の予定された期間」、年の完全度は「年の観測期間/年の予定された期間」として計算している。全地点の年平均濃度を表6.2.2に示す。

6.2.1 NO₂

最高年平均濃度は札幌北(11.8 ppb)、最低年平均濃度は天塩FRS(0.3 ppb)と昨年度とほぼ同様である(表6.2.2)。経月変化は全体的には例年と同様に、冬季(12～2月)に高く、夏季(6～9月)に低い傾向にある(図6.2.2)。NJ, EJ, 冬季に濃度が高くなる傾向が都市部だけではなく黒松内、母子里など周辺排出量の少ない地域でも確認される。これは暖房などの地域発生の寄与と思われる。また八幡平でも冬季の濃度が高い傾向にあり、盛岡など都市域からの影響と考えられる。

6.2.2 NO

最高年平均濃度は札幌北(6.6 ppb)、最低年平均濃度は福島天栄(0.1 ppb)だった(表6.2.2)。福島天栄では欠測が3ヶ月あるため、この値の取扱には注意が必要である。その次に低濃度だったのは八幡平(0.3 ppb)で、これは例年と同程度の濃度である。季節変化はNO₂と同様で冬季に高い傾向にある。

6.2.3 NO_x

最高年平均濃度は札幌北(19.0 ppb)、最低年平均濃度は天塩FRS(0.7 ppb)であり、昨年度とほぼ同様の結果である(表6.2.2)。地域別季節変動ではNO, NO₂同様に冬季に高く夏季に低い傾向にある(図6.2.2)。今回、EJの4～6月の濃度が高いが、これは欠測に伴い測定地点数が変化したためである。それ以外の地域毎の傾向は概ね例年のとおりだが、NJ, JS, EJで1月に濃度が低くなっている。何らかの広域の気象要因によるものかもしれない。

6.2.4 O₃およびPO

O₃では最低年平均濃度は盛岡(23.7 ppb)、最高年平均濃度は摩周(44.3 ppb)で、昨年とほぼ同様の結果だった(表6.2.2)。

全体的な濃度変動は例年どおり冬～春季(2～5月)に高く、夏季まで減少を続け、秋季(9～11月)以降増加する傾向だった(図6.2.2)。今年度はWJ, EJで10月にやや濃度が上昇している。

PO(ポテンシャルオゾン)濃度は次式により算出した。

$$PO = O_3 + NO_2 - 0.1NO_x$$

(NO₂: 二酸化窒素濃度, NO_x: 窒素酸化物濃度)

都市部の地点が少ないためNO_xの影響も小さく、POは概ねO₃と同じ傾向である。

6.2.5 NH₃

例年どおり千葉県旭が突出して高く(105.1ppb)(表6.1.2)、それを反映してEJの濃度が高くなっている。都市部と一部田園地域で濃度が高い傾向にあり、自動車排ガス由来と農業由来の影響と考えられる。最低年平均濃度は八幡平と香北(0.2 ppb)だった。千葉県を除いた地点では年平均濃度は昨年同様に大里(9.4 ppb)が最も高い。

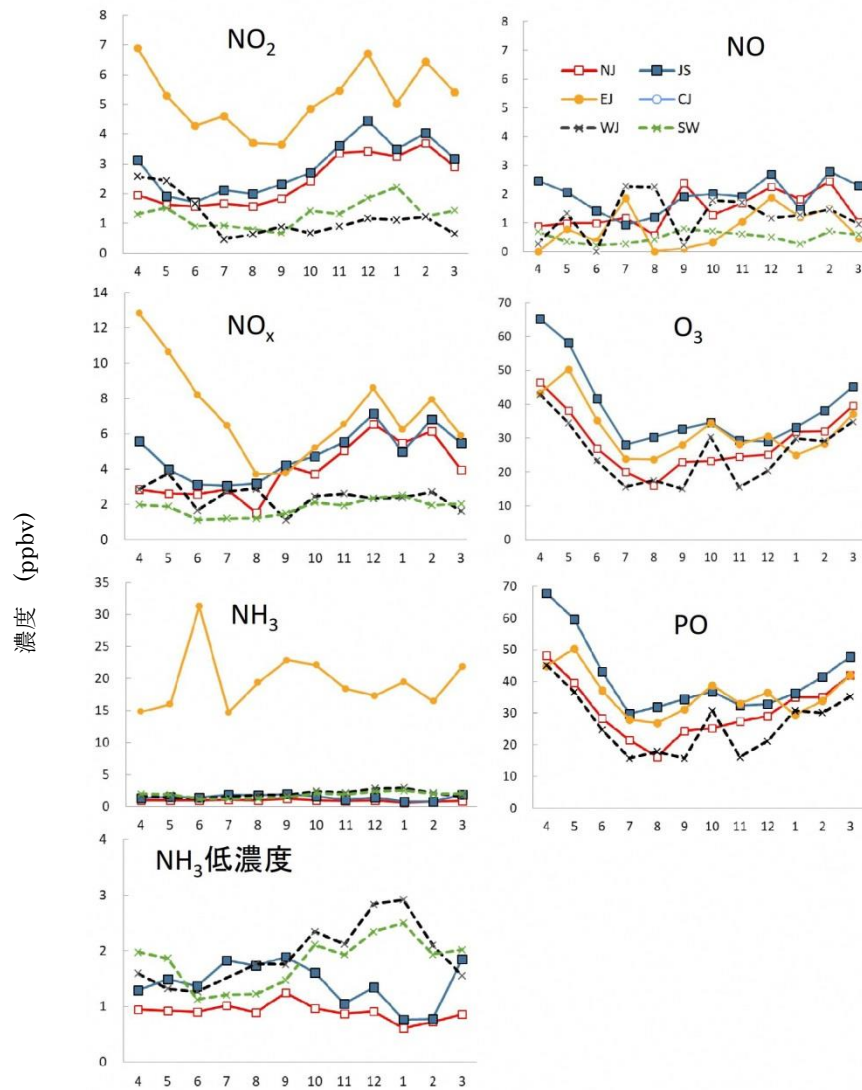


図6.2.2 地域別季節変動

表6.2.2 ガス状物質の地点別年平均濃度 (ppb)

地域区分	自治体	地点	NO ₂	NO	NO _x	O ₃	PO	NH ₃	FPIによる NH ₃ (ppb)
NJ	北海道	利尻	0.4	0.4	0.8	37.2	37.6	0.3	0.4
NJ	北海道	天塩FRS	0.3	0.4	0.7	29.0	29.2	0.3	
NJ	北海道	母子里	1.1	0.8	1.9	28.5	29.4	0.8	
NJ	北海道	黒松内	2.0	1.6	3.6	25.3	27.0		
NJ	北海道	札幌北	11.8	6.6	19.0	24.8	34.7	1.4	1.6
NJ	北海道	摩周	0.3	1.6	1.9	44.3	44.3		
NJ	岩手県	盛岡	5.3	1.0	6.8	19.0	23.7	1.0	
NJ	岩手県	八幡平	0.5	0.3	0.8	24.6	25.1	0.2	
NJ	山形県	鶴岡	0.7	1.0	1.7	25.8	26.3	0.8	
EJ	福島県	福島天栄	0.8	0.1	0.9	41.3	42.0	0.4	
EJ	いわき市	小名浜	9.6	1.4	11.0	22.4	30.9	2.2	
JS	新潟市	新潟坂井	7.3	2.4	9.7	35.6	41.9	1.6	
EJ	埼玉県	加須						3.1	5.0
EJ	千葉県	市原						3.1	3.2
EJ	千葉県	旭						105.1	86.7
EJ	千葉県	佐倉						2.7	3.0
JS	富山県	射水						1.3	
CJ	愛知県	豊橋						4.6	3.9
CJ	名古屋市	名古屋南						1.2	3.2
JS	鳥取県	若桜	0.5	1.6	2.1	43.7	44.0	0.9	
JS	鳥取県	湯梨浜	1.5	2.2	3.7	36.3	37.4	1.5	1.4
WJ	高知県	香北	1.2	1.2	2.4	25.5	26.4	0.2	0.4
WJ	熊本市	熊本						3.8	
SW	沖縄県	辺戸岬						2.1	1.1
SW	沖縄県	大里	1.3	0.5	1.8			9.4	7.8

*全国最低値は網掛け，全国最高値は白抜きで示した。

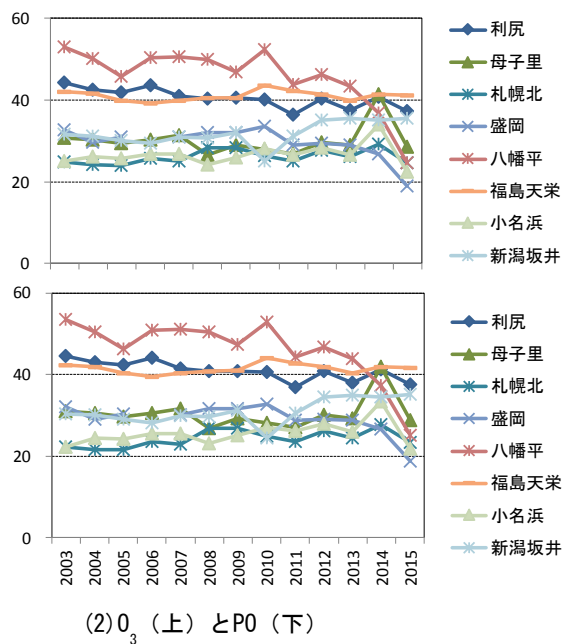
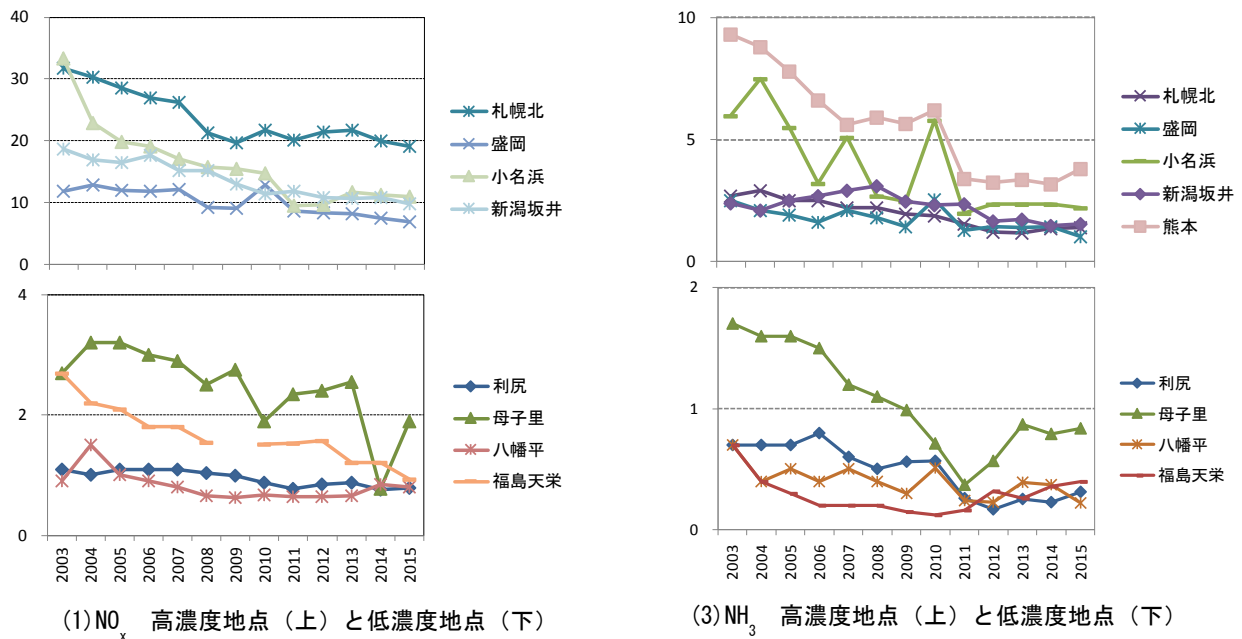


図6.2.3 継続地点の経年変化 (ppb)

ー 引用文献ー

- 1) 野口泉：ガス状および粒子状アンモニアの捕集測定方法(拡散デニューダ法, フィルターパック法およびパッシブ法), 第48回大気環境学会講演要旨集, 244-245, 2007
- 2) 全国環境研協議会 酸性雨広域大気汚染調査研究会, 全国環境研会誌, **34(3)**, 193-223, 2009
- 3) 山口高志他:全国酸性雨調査(81)乾性沈着(パッシブ法によるアンモニア濃度測定結果), 第54回大気環境学会講演要旨集, 266, 2013

7. まとめ

2015年度および第5次酸性雨全国調査の結果概要は以下の通りである。

7.1 湿性沈着

JSおよびWJでは、冬季および春季に nss-SO_4^{2-} および H^+ 濃度が高い傾向を示しており、この傾向は、2005年度まではJSで顕著であったが、2006年度にはWJでも冬季に高濃度となる傾向が確認され、2014年度まで引き続き同様の傾向にあった。 nss-SO_4^{2-} および H^+ 沈着量はWJ、次いでJSで多い傾向を示した。季節変動は H^+ 、 NO_3^- および nss-SO_4^{2-} 沈着量についてJSで冬季に多い傾向が顕著であり、WJでは4月および6～8月に多い傾向があった。

第5次調査の経年変動について、イオン成分濃度では、地域区分別には nss-SO_4^{2-} および NO_3^- 濃度でJSが一貫して高濃度であった。また、 nss-Ca^{2+} 濃度は低下傾向にあったが、その他の主要イオン成分濃度はほぼ横ばいの傾向があった。沈着量では、地域区分別には主要イオン成分沈着量でJSがほぼ一貫して多く、次いでWJで多かった。また、 nss-Ca^{2+} 沈着量は減少傾向にあったが、その他の主要イオン成分沈着量はほぼ横ばいもしくは微減傾向を示した。このうちJSでは2013年度をピークに減少の傾向がみられ、年平均濃度および降水量の減少に起因していると考えられた。

7.2 乾性沈着（フィルターパック法）

全国31地点でFP法による乾性沈着調査を実施したところ、2015年度の大気中のガス状および粒子状成分の年平均値は、昨年度と同程度であった。 $\text{SO}_2(\text{g})$ 濃度はWJで、 $\text{HNO}_3(\text{g})$ 濃度はCJで、 $\text{NH}_3(\text{g})$ 濃度は畜産業の影響を受けていると考えられる地点や都市部で高かった。粒子状成分

の総当量濃度はSWで最も高く、NJおよびSWを除く地域では、陰イオンは SO_4^{2-} 、陽イオンは NH_4^+ の占める割合が高かった。NJおよびSWでは Na^+ と Cl^- の占める割合が高く、EJでは NO_3^- の割合が高かった。

第4次および第5次調査で得られた年度別全国中央値の経年変化をみると、 $\text{HNO}_3(\text{g})$ および $\text{NH}_3(\text{g})$ 濃度は2003年度から2015年度にかけて減少傾向を示した。 $\text{SO}_2(\text{g})$ 濃度は2003年度以降に減少しているが、2011～2013年度に一旦増加し、2014～2015年度に再び減少した。 $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ 濃度は、2005年度をピークに減少し、2013年度から2014年度にかけて一旦増加したが、その後再び減少した。 $\text{nss-Ca}^{2+}(\text{p})$ 濃度は微増傾向がみられた。日本の $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ および $\text{nss-Ca}^{2+}(\text{p})$ 濃度の経年変化はアジア大陸を起源とする SO_2 や黄砂の影響を強く受けていると考えられる。

7.3 乾性沈着量

FP法の測定結果から、乾性沈着推計ファイルを用いてインファレンシャル法による乾性沈着量の推計を行った。ガス状物質と粒子状物質を合わせた乾性沈着量の全国平均値は、非海塩由来硫黄成分 $10.4 \text{ mmolm}^{-2} \text{ y}^{-1}$ 、 NO_x を含まない酸化態窒素成分が $15.9 \text{ mmolm}^{-2} \text{ y}^{-1}$ 、還元態窒素成分が $36.2 \text{ mmolm}^{-2} \text{ y}^{-1}$ だった。

7.4 ガス成分濃度（パッシブ法）

今年度のパッシブ法による NO_2 、 NO 、 O_3 、および NH_3 の測定結果は概ね例年通りで、 O_3 は山岳部や海岸部の地点は内陸部より高く、 NH_3 は都市部と酪農業の盛んな地域で高い傾向にあった。2003年から継続している測定地点の長期傾向を検討すると、 NO_x と NH_3 は減少傾向にあった。一方 O_3 は概ね横ばいだった。