

＜特 集＞

第6次酸性雨全国調査報告書2021（令和3）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

岩永恵，加藤真美，倉橋雅宗，千島克隆，堤清香，豊岡久美子，久恒邦裕，
宮崎康平，家合浩明，山口高志，風見千夏，工平晴俊，武蔵沙織

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。

当報告書では，第6次調査の6年目である2021年度の調査結果を報告します。

これまで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（パルク）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，硫黄酸化物や窒素酸化物の地域特性，さらに大気中のガス状成分，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酸化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。

第5次調査（2009～2015年度）では，これまでの調査に加え，窒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行いました。

第6次調査（2016年度～）では，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調査を実施しています。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。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多くの皆様に，この場をお借りしまして，深くお礼申し上げます。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。

令和5年9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 青木 政浩

（山形県環境科学センター所長）

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年度から酸性雨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年間の調査の後、1年間の準備期間を経て次の調査を行ってきた。第4次調査は2003～2005年度の予定で開始したが、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年、計6年間の調査を2008年度まで実施した。その後は準備期間をおかずに第5次調査を2009年度から実施し、これまでの調査に加え、窒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行った。調査の目的が果たせたことから2015年度で第5次調査を終了し、第6次調査を2016年度から開始した。

第6次調査は、日本全域における大気汚染物質濃度およびその沈着量の把握を目的として湿性沈着および乾性沈着のモニタリングを実施している。湿性沈着に関しては、

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を、乾性沈着に関しては、大気中のガス/エアロゾル濃度の測定により沈着量の見積りを行う。なお、乾性沈着調査は(i)ガス/エアロゾル濃度の測定を行うフィルターパック法（以下、FP法）、(ii)ガス濃度の測定を行うパッシブ法、(iii)自動測定機による測定の方法の3つの手法を併用して行う。第6次調査の特徴としては、①第5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窒素沈着の実態把握をテーマの一つとしたこと、③FP法において粗大粒子と微小粒子（PM_{2.5}）とを分けた採取を推奨していることである。②については、反応性窒素成分である湿性のNO₃⁻およびNH₄⁺、乾性の粒子状NO₃⁻およびNH₄⁺、ガス状のHNO₃（測定されている場合はHONOも含む）、NO₂、NOおよびNH₃を対象に窒素沈着量を評価することを目標にしている。③については、従来の4段ろ紙法の構成に加え、前段にインパクト（I0ろ紙）を装備した5段構成により行う。この利点として、(i)粒径別の成分の挙動を把握するとともに、乾性沈着量推計において粒径の影響を考慮することができる。

表1.1.1 全国環境研協議会・酸性雨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			
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		
調査 地点数	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：28地点 2007年度：28地点 2008年度：29地点	2003年度：59地点 2004年度：61地点 2005年度：59地点 2006年度：39地点 2007年度：34地点 2008年度：37地点	
	ろ過式採取法（バクル採取）による原則1週間単位の試料採取	バケツ（バクル採取）による1日単位の試料採取	降水時間開放型捕集装置（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	フィルターバック法による原則1-2週間単位の試料採取	降水時間開放型捕集装置（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	フィルターバック法によるガスおよび粒子状成分調査、原則1-2週間単位の試料採取	バッシブサンプラー（O式およびN式）によるガス成分調査、月単位の試料採取	
	調査期間	通年調査	夏季および冬季の2週間調査	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に掲載 http://db.cger.nies.go.jp/dataset/acidrain/ja/01/index.html	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 http://db.cger.nies.go.jp/dataset/acidrain/ja/02/index.html	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 http://db.cger.nies.go.jp/dataset/acidrain/ja/03/index.html		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 http://db.cger.nies.go.jp/dataset/acidrain/ja/04/index.html		
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））			
	第5次酸性雨全国調査			第6次酸性雨全国調査				
調査対象	湿性沈着	乾性沈着		湿性沈着	乾性沈着			
調査 地点数	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：34地点 2015年度：31地点	2009年度：42地点 2010年度：41地点 2011年度：38地点 2012年度：36地点 2013年度：30地点 2014年度：28地点 2015年度：26地点	2016年度：64地点 2017年度：63地点 2018年度：60地点 2019年度：59地点 2020年度：55地点 2021年度：53地点	2016年度：30地点 2017年度：28地点 2018年度：29地点 2019年度：27地点 2020年度：26地点 2021年度：26地点	2016年度：22地点 2017年度：20地点 2018年度：17地点 2019年度：15地点 2020年度：13地点 2021年度：13地点		
	降水時間開放型捕集装置（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	フィルターバック法によるガスおよび粒子状成分調査、原則1-2週間単位の試料採取	バッシブサンプラー（O式）によるガス成分調査、月単位の試料採取	降水時間開放型捕集装置（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	フィルターバック法によるガスおよび粒子状成分調査、原則1-2週間単位の試料採取、インパクト装備による粗大粒子と微小粒子（PM _{2.5} ）とを分けた採取を推奨	バッシブサンプラー（O式）によるガス成分調査、月単位の試料採取		
	調査期間	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に掲載 http://db.cger.nies.go.jp/dataset/acidrain/ja/05/index.html			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（2018年度まで） http://db.cger.nies.go.jp/dataset/acidrain/ja/06/index.html			
	報告書の公表	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）） 全国環境研会誌 VOL.42, NO.3,（第5次酸性雨全国調査報告書（平成27年度））			全国環境研会誌 VOL.43, NO.3,（第6次酸性雨全国調査報告書（平成28年度）） 全国環境研会誌 VOL.44, NO.3,（第6次酸性雨全国調査報告書（平成29年度）） 全国環境研会誌 VOL.45, NO.3,（第6次酸性雨全国調査報告書2018（平成30）年度） 全国環境研会誌 VOL.46, NO.3,（第6次酸性雨全国調査報告書2019（令和元）年度） 全国環境研会誌 VOL.47, NO.3,（第6次酸性雨全国調査報告書2020（令和2）年度）			

(ii)PM_{2.5}成分データを得ることにより、PM_{2.5}対策へ貢献することが可能となる、という点が挙げられる。

go.jp/dataset/acidrain/ja/index.html）に掲載されており、今後も掲載予定である。

なお、第1～5次調査結果および第6次調査のうち2018年度までの結果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.

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 (t km ⁻² y ⁻¹)			地域 区分 注1)	緯度 (度)	経度 (度)	湿性 注2)	乾性注2) 注3)			標高 (m)	海岸から の距離 (km)	サンプラー設置位 置地上高(m)			土地利用
				SO ₂	NO _x	NH ₃					FP	O式	自動 NO _x			湿性	FP	O式	
北海道・東北	北海道	利尻	北海道立総合研究機構 エネルギー・環境・地質研究所	0.81	0.44	0.02	NJ	45.1200	141.2097	☆	☆	○	☆	46	0.7	3	3	4	未指定（草、笹）
		札幌北	北海道立総合研究機構 エネルギー・環境・地質研究所	2.76	14.57	1.16	NJ	43.0818	141.3336	☆	○	○	☆	12	13	8	9	9	住居地域（市街地）
		札幌白石	札幌市衛生研究所	2.72	14.72	1.27	NJ	43.0626	141.3819	○	○			15	16.7	14	14		住居地域（市街地）
	青森県	青森東道	青森県環境保健センター	0.74	2.18	0.42	NJ	40.8303	140.7918	○				3	0.7	20			住居地域（市街地）
		鯉ヶ沢舞戸	青森県環境保健センター	0.12	0.61	0.44	NJ	40.7831	140.2382	○				30	0.4	13			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	0.77	3.24	1.30	NJ	39.6781	141.1328		○			125	70		12		準工業地域
	宮城県	涌谷	宮城県保健環境センター	1.02	3.61	2.32	NJ	38.5537	141.1720	○				165	19	3			未指定（草、雑）
	秋田県	秋田千秋	秋田県健康環境センター	3.39	4.16	0.48	NJ	39.7197	140.1264	○				15	5.5	20			第一種住居地域
	山形県	鶴岡	山形県環境科学研究所	0.07	0.38	0.34	NJ	38.5525	139.8650			○		220	26			5	未指定（森林）
	福島県	福島天栄	福島県環境創造センター	0.40	0.64	0.42	EJ	37.2526	140.0445			○		941	84			1	未指定（森林）
三春 ^{注4)}		福島県環境創造センター	0.64	3.61	1.29	EJ	37.4347	140.5194	○				423	46	10			工業地域	
小名浜		いわき市環境監視センター	9.47	11.49	0.78	EJ	36.9633	140.8927	○		○	○	3	2.5	5		2	住居地域（市街地）	
新潟曽根		新潟県保健環境科学研究所	1.42	6.13	1.02	JS	37.8453	138.9443	○	○		○	2	3.1	4	2		市街化調整区域	
長岡		新潟県保健環境科学研究所	0.65	2.82	0.59	JS	37.4462	138.8681	○	○			27	19	6	7		住居地域	
栃木県		宇都宮 ^{注5)}	栃木県保健環境センター	1.63	6.11	2.54	EJ	36.6004	139.9404	○				140	65	10			住宅地
埼玉県		さいたま	さいたま市健康科学研究所	3.62	28.04	4.63	EJ	35.8621	139.6455	○				15	35	16			商業地域
関東・甲信・静岡	群馬県	前橋	群馬県衛生環境研究所	1.87	7.46	6.76	EJ	36.4044	139.0961	○	○		○	103	110	20	20		市街化調整区域
		市原	千葉県環境研究センター	9.68	36.26	2.76	EJ	35.5259	140.0682	○	○	▲		3	1.2	5	10	10	工業地域
	千葉県	銚子	千葉県環境研究センター	8.59	6.82	3.62	EJ	35.7351	140.7447	○				50	4.5	5			農業地域
		一宮	千葉県環境研究センター	0.11	1.12	0.84	EJ	35.3485	140.3805	○				5	1.0	3			農業地域
		旭	千葉県環境研究センター	8.59	6.93	3.87	EJ	35.7271	140.7202	○	○	▲		58	4.7	1	1	1	農業地域
		佐倉	千葉県環境研究センター	1.75	16.29	2.66	EJ	35.7279	140.2065	○	○	▲		28	19	3	3	3	住居地域
		清澄	千葉県環境研究センター	0.08	0.65	0.86	EJ	35.1634	140.1555	○	○			356	4.5	1	1		未指定（森林）
		勝浦	千葉県環境研究センター	0.09	0.61	0.61	EJ	35.1795	140.2659	○	○			97	4.4	5	3		農業地域
		習志野	千葉県環境研究センター	7.40	31.35	3.70	EJ	35.6858	140.0304	○				14	3.1	3			住居地域
		神奈川県	平塚	神奈川県環境科学センター	0.52	10.36	2.57	EJ	35.3476	139.3514	○				9	3.7	22		
	川崎 ^{注6)}	川崎市環境総合研究所	11.93	55.66	3.48	EJ	35.5411	139.7540	○				4	3.2	20			準工業地域	
	長野県	長野県環境保全研究所	0.88	2.63	0.57	CJ	36.6354	138.1786	○	○			363	52.5	15	3		第一種住専	
	富山県	射水 ^{注7)}	富山県環境科学センター	5.03	11.55	1.43	JS	36.7006	137.0997	○	○	▲	○	25	8	2	14	14	住居地域（市街地）
	近畿・東海・北陸	石川県	金沢	石川県保健環境センター	1.48	3.76	0.95	JS	36.5270	136.7058	○	○			120	14	14	14	
福井県		福井	福井県衛生環境研究センター	1.28	4.47	0.68	JS	36.0741	136.2615	○			○	12	18	9			市街化調整区域
岐阜県		伊自良湖	岐阜県保健環境研究所	1.11	3.10	1.24	CJ	35.5706	136.6975	☆	☆		☆	140	58	4	4		山林
愛知県		豊橋	愛知県環境調査センター東三河支所	1.42	6.54	3.81	CJ	34.7423	137.3840	○	○	▲		19	6	8	8	8	住居地域
		大崎	愛知県環境調査センター東三河支所	1.29	6.00	3.80	CJ	34.7171	137.3443				○	17	1				住居地域
		名古屋南	名古屋市環境科学調査センター	8.87	35.36	3.81	CJ	35.0990	136.9156	○	○			0	3	19	19		工業地域
滋賀県		大津柳が崎	琵琶湖環境科学研究所	1.48	10.63	1.30	CJ	35.0265	135.8671	○				87	53	28			住宅地
兵庫県		神戸須磨	兵庫県環境研究センター	6.65	18.73	1.12	CJ	34.6487	135.1318	○	○		○	15	0.9	29	17		準工業地域
和歌山県		和歌山 ^{注8)}	和歌山県環境衛生研究センター	8.97	13.33	0.87	CJ	34.2143	135.1626	○			○	13	1	13			商業
中国・四国		鳥取県	湯梨浜	鳥取県衛生環境研究所	0.10	0.72	0.80	JS	35.4934	133.8852	○				2	1.3	11		
	島根県	松江	島根県保健環境科学研究所	0.26	1.36	0.49	JS	35.4750	133.0131	○				6	6	1			区域外
	広島県	広島安佐南	広島市衛生研究所	1.87	7.27	0.99	WJ	34.4615	132.4074	○				73	11	10			住居地域
	山口県	山口	山口県環境保健センター	1.05	3.34	0.57	WJ	34.1528	131.4335	○				13	13	1			住居地域（市街地）
	徳島県	徳島	徳島県立保健製薬環境センター	1.10	4.60	1.46	CJ	34.0700	134.5608	○				2	3	18			住居地域（市街地）
	愛媛県	松山	愛媛県立衛生環境研究所	5.86	9.87	0.89	WJ	33.8382	132.7542	○				17	5	19			商業地域
	福岡県	太宰府	福岡県保健環境研究所	2.43	12.87	1.92	WJ	33.5116	130.4995	○	○		○	30	15	18	5		市街化調整区域
		曲洲 ^{注9)}	福岡市保健環境研究所	1.53	8.98	1.43	WJ	33.4974	130.3072	○				193	9.2	1			市街化調整区域
		城南	福岡市保健環境研究所	1.65	10.79	1.61	WJ	33.5757	130.3699	○				3	2.6	14			商業地域
		佐賀県	佐賀	佐賀県環境センター	1.20	3.89	1.48	WJ	33.2735	130.2727	○				4	11	9		
九州・沖縄	長崎県	長崎	長崎県環境保健研究センター	0.57	2.91	0.62	WJ	32.7621	129.8629	◇				4	1.3	8			商業地域
	熊本県	宇土	熊本県保健環境科学研究所	1.16	5.03	1.35	WJ	32.6661	130.6531	○				20	2.7	1			未指定
		阿蘇一の宮	熊本県保健環境科学研究所	0.15	0.63	1.21	WJ	32.9387	131.1143	○				534	50	12			未指定
		画図町 ^{注10)}	熊本市環境総合センター	0.96	4.93	2.85	WJ	32.7642	130.7346	○		▲		5	12	15	15		市街化調整区域
	大分県	大分	大分県衛生環境研究センター	11.58	17.02	1.16	WJ	33.1583	131.6136	○	○			90	11	14	14		住宅地
	宮崎県	宮崎	宮崎県衛生環境研究所	0.31	1.86	1.04	WJ	31.8321	131.4161	○	○			14	3.5	14	14		都市地域（準工業地域）
	鹿児島県	鹿児島	鹿児島県環境保健センター	0.96	3.54	1.29	WJ	31.5846	130.5644	○	○			1	0.1	5	21		準工業地
沖縄県	うるま ^{注11)}	沖縄県衛生環境研究所	10.03	9.22	1.28	SW	26.3772	127.8345	○		▲		34	3	10	11	11	未指定	
	辺戸岬	沖縄県衛生環境研究所	0.00	0.03	0.33	SW	26.8670	128.2483	☆	☆	▲	☆	60	0.2	2	5	5	特別地域	
調査機関数				42				調査地点数				53	26	13	15				

注1) NJ：北部，JS：日本海側，EJ：東部，CJ：中央部，WJ：西部，SW：南西諸島

注2) ☆：環境省の委託事業，◇：長崎市からデータ提供，◆：佐世保市からデータ提供，▲：一部実施

注3) FP：インパクト付き5段折紙法または4段折紙法，O式：パンプ法，自動NO_x：常時監視用自動測定装置によるNO・NO₂測定結果

注4) 2015/11/2から測定地点変更 注5) 旧名称は河内 注6) 2013/1/23から測定地点変更 注7) 旧名称は小杉

注8) 2017/9/11から測定地点変更(海軍市役所→日方小学校)、2018/4から地点変更(海南→和歌山)

注9) 旧名称は福岡 注10) 2016/3/7から測定地点変更(熊本→画図町) 注11) 2017/3/6から測定地点変更(大里→うるま)

2. 調査内容

2.1 調査概要

2021年度の調査参加機関は表2.1.1に示す42機関であり、湿性沈着調査地点は53地点、乾性沈着調査地点は33地点（FP法：26地点、パッシブ法：13地点、自動測定機：15地点）であった。調査地点は一部、国設局との共用データも含まれる。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）が一部異なるため、数値が一致しない場合がある。

2021年度の調査期間は原則として2021年3月29日～2022年3月28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。2021～2022年度の部会組織および報告書の担当を表2.1.3に示す。

表2.1.2 調査期間の季節・月区分

季節	月	2021年度		週
春	4	3月29日	～ 4月26日	4
	5	4月26日	～ 6月7日	6
夏	6	6月7日	～ 7月5日	4
	7	7月5日	～ 8月2日	4
	8	8月2日	～ 8月30日	4
秋	9	8月30日	～ 9月27日	4
	10	9月27日	～ 10月25日	4
	11	10月25日	～ 12月6日	6
冬	12	12月6日	～ 1月4日	4
	1	1月4日	～ 1月31日	4
	2	1月31日	～ 2月28日	4
春	3	2月28日	～ 3月28日	4

注）週単位の試料交換日は原則として月曜日とした。

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	千葉市環境保健研究所	大塚 正毅	2021	
	〃	西村 正樹	2022	
理事委員	神奈川県環境科学センター	長谷川 陽一	2021	
	〃	池貝 隆宏	2022	
支部委員	山形県環境科学研究センター	渡邊 一史	2021	D
	〃	千島 克隆	2022	D
	茨城県霞ヶ浦環境科学センター	豊岡 久美子	2021-2022	D
	石川県保健環境センター	加藤 真美	2021-2022	D
	島根県保健環境科学研究所	藤井 未希	2021	D
	〃	倉橋 雅宗	2022	D
	長崎県環境保健研究センター	横田 哲朗	2021	D
	〃	堤 清香	2022	D
委員	地方独立行政法人 北海道立総合研究機構 産業技術環境研究本部 エネルギー・環境・地質研究所	山口 高志	2021-2022	1-3, 6章
	新潟県保健環境科学研究所	家合 浩明	2021-2022	総括, 1-3, 5.3章
	名古屋市環境科学調査センター	久恒 邦裕	2021-2022	4章
	山口県環境保健センター	岩永 恵	2021-2022	1-3, 5.3章
	福岡県保健環境研究所	宮崎 康平	2021-2022	5.1-5.2章
有識者	国立大学法人 東京農工大学 農学部	松田 和秀	2021-2022	
	京都大学	村野 健太郎	2021-2022	
	公立大学法人 北九州市立大学	藍川 昌秀	2021-2022	
	京都大学フィールド科学教育研究センター	徳地 直子	2021-2022	
	国立研究開発法人 国立環境研究所 気候変動適応センター	向井 人史	2021-2022	
	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	弓場 彬江	2021-2022	
	大気環境学会中国・四国支部	大原 真由美	2021-2022	
	環境省	馬島 貴教	2021	
	〃	吉本 隆寿	2022	
事務局	千葉市環境保健研究所	工平 晴俊	2021-2022	
	〃	武蔵 沙織	2021-2022	
	〃	風見 千夏	2021-2022	

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。

2.2 調査方法

2.2.1 湿性沈着

調査は通年調査とし、1週間単位での採取を原則とした。2週間単位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た。試料採取日は原則月曜日とした。得られた試料の測定データを表2.1.2に示す月単位に集計して解析に用いた。

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、ヒーターの使用が無理な場合は、冬季間バルク捕集となることも可とした。また、ロート部および導管部の洗浄については、月単位の切れ目の日に実施することとし、洗浄後にフィールドブランク試料を採取し精度管理指標とした。

降水量は、貯水量を捕集面積で割って算出し、その他の測定項目、分析方法および手順については、湿性沈着モニタリング手引き書（第2版）¹⁾に従った。また、イオンバランス（ R_1 ）および電気伝導率バランス（ R_2 ）が許容範囲を超える場合は再分析を行うなど、値の信頼性を確保した。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、全環研として解析を行った。

2.2.2 乾性沈着

乾性沈着調査はFP法、パッシブ法および自動測定機による方法を採用した。FP法およびパッシブ法における捕集ろ紙を表2.2.1に示す。

2.2.2.1 フィルターパック法

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 と HCl を、4段目で NH_3 を捕集する従来の4段ろ紙法^{2,3)}の構成に加え、前段にインパクト（I0ろ紙）を装備し、粗大粒子と $\text{PM}_{2.5}$ 成分とを分けて採取する5段構成のFP法を推奨した。なお、従来の4段ろ紙法による採取も可とした。さらに、それらに HONO 測定を加えた構成（F2で採取された妨害分の一部の NO_2 ガス量を評価するためのF2'ろ紙をF2の後段に加える）をオプションとして設定した。

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し、通年調査で採取単位は1週間～2週間であった。なお、解析に用いたデータは月単位とした。試料採取は表2.2.1に示した5種または4種のろ紙を装着し、吸引速度はインパクトを用いた場合は指定された流量である 2 L min^{-1} で、その他の場合は $1 \sim 5 \text{ L min}^{-1}$ の範囲で設定して連続採取を行い、積算流量計あるいは平均流量から採気量を求めた。

なお、全環研の4段ろ紙を用いたFP法に関するマニユ

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いる。詳細な手順などはこれまでの報告²⁾およびEANETの技術資料⁴⁾などを参照されたい。

表2.2.1 FP法およびパッシブ法の捕集ろ紙

構 造		捕集ろ紙名
F P 法 4 段	1段目（F0）	テフロン（PTFE）
	2段目（F1）	ポリアミド
	3段目（F2）	K_2CO_3 含浸セルロースろ紙
	4段目（F3）	リン酸含浸セルロースろ紙
F P 法 5 段	1段目（I0）	ポリカーボネート製 $\text{PM}_{2.5}$ インパクト +石英繊維ドーナツろ紙
	2段目（F0）	テフロン（PTFE）
	3段目（F1）	ポリアミド
	4段目（F2）	K_2CO_3 含浸セルロースろ紙
	5段目（F3）	リン酸含浸セルロースろ紙
項 目		捕集ろ紙名
パ ッ シ ブ 法	NO_2	トリエタノールアミン（TEA）含浸ろ紙
	NO_x	（TEA+PTIO）含浸ろ紙
	NH_3	クエン酸含浸ろ紙
	O_3	（ $\text{NaNO}_2+\text{K}_2\text{CO}_3$ ）含浸ろ紙

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試薬、あるいは目的のガス成分と反応する試薬が含浸されたろ紙を一定期間大気に暴露させることにより、大気中ガス濃度を求める方法である。本調査では、分子拡散の原理に基づいた小川式パッシブ法（以下、パッシブ法）を用いており、風速や粒子状物質による汚染の影響を除くために捕集の前面に細孔を設けている。測定したガス成分の捕集量と理論的に証明されている計算式により、大気中ガス濃度が算出される。

パッシブ法の調査地点は大都市（例えば県庁所在地）、工業地域、中小都市地域、田園地域および山林地域などから目的に応じ1地点以上選定することとしている。複数地点を選定する場合は、可能ならば1地点はFP法または自動測定機による測定地点とすることとしている。調査は通年であり、採取単位は原則1か月であった。

SO_2 は NO_x に比べて大気中濃度が低く捕集量が少ない。このため、都市部以外では精度の高い測定が困難であり、本調査では測定対象としていない。しかし、従来のトリメタノールアミンに代わり、 K_2CO_3 により改良された低濃度用ろ紙による SO_2 の測定結果と従来法との換算式が報告され⁵⁾、 K_2CO_3 含浸ろ紙が市販されている。これを受け、従来のマニュアル⁶⁾に加えて、マニュアルとは異なる点を含む全環研用マニュアル改定版を作成した。詳細については全環研用パッシブ法のマニュアル改定版を参照されたい。

2.2.2.3 自動測定機の特徴

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た。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た。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った。

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、福井ら（2014）⁷⁾による2010年度ベースのSO₂、NO_x排出量およびNH₃発生量の情報を用いて、必要に応じて排出量別の解析を実施した。排出量は3次メッシュ（約1km四方）ごとに得られており、調査地点周辺の半径20km内のメッシュの排出量から算出した。なお対象メッシュは測定地点からメッシュの中心点までの距離が20km以内のものとした。周辺排出量の計算は、（排出量合計）／（半径20kmの円の面積）で行った。

ー 引用文献 ー

- 1) 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（2022.1.6アクセス）
- 2) 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
- 3) 松本光弘，村野健太郎：インフレーション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
- 4) Acid Deposition Monitoring Network in East Asia：Technical Manual for Air Concentration Monitoring in East Asia，<https://www.eanet.asia/publications/>（2022.1.6アクセス）
- 5) 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
- 6) 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，https://www.city.yokohama.lg.jp/kurashi/machizukuri-kankyo/kankyohozen/kansoku/science/shiryo/sonotahoukokusyo/201008.files/0004_20200821.pdf（2022.1.6アクセス）

uri-kankyo/kankyohozen/kansoku/science/shiryo/sonotahoukokusyo/201008.files/0004_20200821.pdf（2022.1.6アクセス）

- 7) 福井哲央，國領和夫，馬場剛，神成陽容：大気汚染物質排出インベントリーEAGrid2000-Japanの年次更新．大気環境学会誌，49，117-125，2014

3. 気象概況および大気汚染物質排出量の状況

3.1 気象概況

2021年の概況を表3.1.1に示す。また、黄砂観測日数は2019年度が8日，2020年度が12日に対し，2021年度は，4月に2日，5月に5日および3月に5日観測された²⁾。

表3.1.1 気象概況¹⁾

春	平均気温は全国的にかなり高かった。 3月に日本付近への寒気の南下が顕著に弱かったことなどから、春の平均気温は全国的にかなり高かった。
	日照時間は沖縄・奄美でかなり多かった。 移動性高気圧や太平洋高気圧の影響を受け、梅雨前線の影響が小さかった沖縄・奄美では日照時間がかなり多かった。
	降水量は北日本と西日本太平洋側でかなり多かった。 期間を通して低気圧や前線の影響を受けやすかった北日本と、5月に梅雨前線の影響を受けた西日本太平洋側では降水量がかなり多かった。なお、梅雨前線が平年より早く北上したため、西日本の各地方と東海地方では、平年よりかなり早く梅雨入りしたとみられる。
	北日本の日照時間はかなり多く、気温はかなり高く、北日本日本海側の降水量はかなり少なかった。 7月後半を中心に太平洋高気圧に覆われ、その前後も高気圧に覆われやすかったため、北日本の夏の日照時間はかなり多く、気温はかなり高く、北日本日本海側の降水量はかなり少なかった。
夏	沖縄・奄美の降水量は多く、日照時間は少なかった。 沖縄・奄美では、7月の終わりに台風第6号が沖縄付近をゆっくり進んだのをはじめ、熱帯低気圧や台風の影響をたびたび受けたため、夏の降水量は多く、日照時間は少なかった。
	東日本太平洋側と西日本で降水量がかなり多かった。 東日本太平洋側の7月上旬の梅雨前線による大雨や、8月中旬を中心に本州付近に停滞した前線の大雨で、東日本太平洋側と西日本の夏の降水量はかなり多かった。
	平均気温は北・西日本で高かった。 北日本では、11月を中心に寒気の影響が弱く、加えて低気圧の前面で南から暖かい空気が流れ込みやすかったため、気温が高くなった。また、西日本では、9月から10月にかけて高気圧に覆われて晴れた日が多かったことなどから、気温が高くなった。
秋	日照時間は全国的に多く、北日本日本海側、東日本と沖縄・奄美ではかなり多かった。 日照時間は全国的に多く、9月に高気圧に覆われやすかった北日本日本海側、10月から11月にかけて覆われやすかった東日本、9月から10月にかけて覆われやすかった沖縄・奄美ではかなり多かった。
	降水量は北日本日本海側で多く、東日本太平洋側、西日本と沖縄・奄美で少なかった。 北日本日本海側では、10月から11月にかけて低気圧や前線の影響を受けやすかったため降水量が多くなった。一方、秋雨前線や台風の影響が小さかった東日本太平洋側、西日本と沖縄・奄美では降水量が少なかった。
冬	平均気温は東・西日本で低かった。 東・西日本では12月下旬以降に強い寒気の影響を受けたため、気温が低くなった。
	日照時間は北・西日本と東日本太平洋側で多く、沖縄・奄美で少なかった。 日照時間は、冬の間、断続的に冬型の気圧配置が解消する時期があった北日本と、低気圧の影響を受けにくかった西日本と東日本太平洋側で多かった。寒気や低気圧の影響を受けやすかった沖縄・奄美では少なかった。
	北日本日本海側の冬の降水量はかなり多く、降雪量は多く、西日本の冬の降水量はかなり少なかった。 北日本日本海側では、12月下旬以降の低気圧の通過や冬型の気圧配置の強まりのため、降水量がかなり多く、降雪量は多かった。1月下旬から2月にかけて前線や低気圧の影響を受けやすかった沖縄・奄美でも降水量は多かった。一方、西日本では高気圧に覆われやすく、冬を通して低気圧の影響を受けにくかったことから、降水量はかなり少なかった。

3.2 SO₂, 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SO₂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⁾。図3.2.1に中国のSO₂, NO_x排出量のトレンド^{4,5)}を示した。NO_x排出量は2011年からMinistry of Ecology and Environment of the People's Republic of Chinaの報告において自動車起源が加算されたため、グラフに*印を付けて示した。中国のSO₂排出量については、1990年代半ばから2000年頃までは排出量がやや停滞したがその後再び増加し、2007年以降漸減したとの報告⁶⁾があり、図3.2.1より、その排出量は2006年から2020年まで減少傾向であった。今後も傾向を注視する必要がある。

NO_x排出量については、2011年以降減少傾向にある。国内における人為発生源由来のSO₂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⁷⁾。またNH₃発生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ている。なお、1995年度の分布と比べると幹線道路近傍のSO₂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⁸⁾。

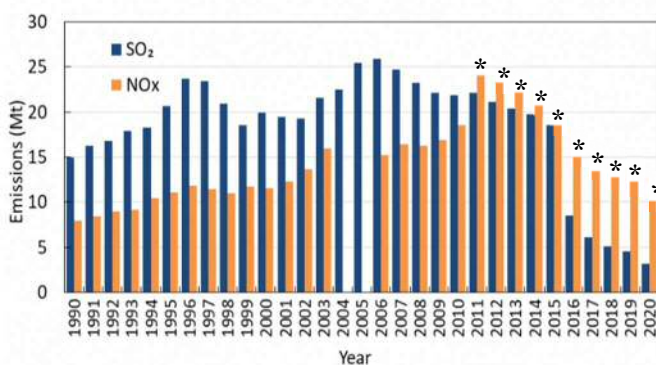


図3.2.1 中国におけるSO₂およびNO_x排出量⁴⁾
(*2011年以降はNO_xに自動車起源が加算)

－ 引用文献 －

- 1) 気象庁報道発表資料, <http://www.jma.go.jp/jma/press/topics.html> (2022.11.2 アクセス)
- 2) 気象庁：黄砂, http://www.data.jma.go.jp/gmd/ev/kosahp/kosa_index.html (2022.11.2 アクセス)
- 3) Kurokawa J., Ohara T., Morikawa T., Hanayama S., Janssens-Maenhout G., Fukui T., Kawashima K., and Akimoto H.: 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) Annual report on ecological environment statistics : Ministry of Ecology and Environment of the People's Republic of China, <https://www.mee.gov.cn/hjzl/> (2022.11.3 アクセス)
- 5) Tian H., Hao J., Nie Y.: Recent trends of NO_x Emissions from energy use in China, *Proceeding of 7th International Conference on Acidic Deposition*, **32**, 2005
- 6) 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
- 7) Kannari A., Tonooka Y., Baba T., Murano K.: Development of multiple-species 1 km × 1 km resolution hourly basis emissions inventory for Japan, *Atmos. Environ.*, **41**, 3428-3439, 2007
- 8) 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、2021年度のとりまとめについて報告する。

2021年度の湿性沈着調査に対し、42機関53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。

2021年度は、月間データでは616個中8データ（1.3 %）が除外され、年間データでは53地点中3地点が除外された。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も、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616個のデー

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

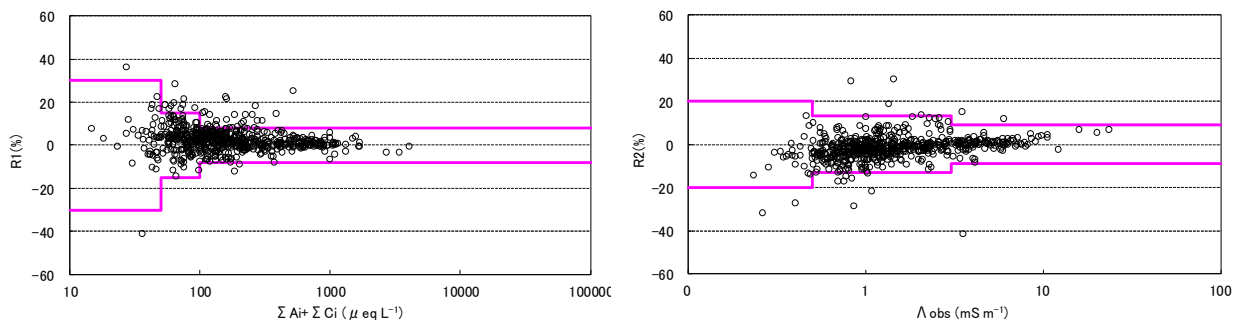


図4.1.1 イオンバランス（ R_1 ）と総イオン濃度（ $\Sigma A_i + \Sigma C_i$ ）および電気伝導率バランス（ R_2 ）と実測値との比較

タ中、 R_1 が許容範囲内にあったデータは575個（適合率93.3%）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599個（適合率97.2%）であった。 R_1 および R_2 の分布を図4.1.1に示す。2012～2021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)}。ただし、近年は以前と比較すると R_1 が下がっている。各機関において、連続して許容範囲を外れる場合などには、分析手順等の見直しの機会として頂きたい。

次に、分析精度管理調査について検討した。環境省が国設酸性雨測定所（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、2021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）15機関を除き32機関

（以下、精度管理参加機関）がこの調査に参加した。このうち全環研の酸性雨全国調査に参加している機関（以下、全環研報告機関）は24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タリングネットワーク（EANET）の精度管理目標値（DQO：Data Quality Objectives、分析の正確さ：±15%）を用い、DQOの2倍まで（±15%～±30%）の測定値にはフラグEを、DQOの2倍（±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、酸性雨測定分析機関間比較調査結果報告書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DQOを満たすデータが98.1%、フラグEが付いたデータは1.9%で、フラグXが付いた機関はなかった。また、低濃度試料では、DQOを満たすデータが93.4%、フラグEが付いたデータは5.0%で、フラグXが付いた機関は1.6%であった。フラグ付与率は高濃度試料、低濃度試料ともに2020年度¹²⁾から増加した。フラグが陽イオン（特に低濃度試料）に多く付与される傾向は2020年度¹²⁾と同様であった。

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	0	1	0	0	2	1	2	0
	フラグX	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	相対標準偏差	2.5	2.2	2.6	3.6	3.1	3.6	7.4	5.0	5.4	4.1
		(n=31)	(n=31)	(n=32)	(n=31)	(n=32)	(n=32)	(n=32)	(n=31)	(n=31)	(n=32)
低濃度試料	フラグE	0	0	0	2	0	1	5	1	5	2
	フラグX	0	0	0	1	0	1	1	1	1	0
	相対標準偏差	2.3	3.3	4.3	6.1	4.2	5.0	9.0	6.6	7.6	4.6
		(n=32)	(n=32)	(n=32)	(n=31)	(n=32)	(n=31)	(n=31)	(n=31)	(n=31)	(n=31)

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	0	0	2	0	3	1	0
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	1	0	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	0	1	0	0
検出下限値に係る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

一方、国設局管理機関（15機関）の2021年度分析精度管理調査¹³⁾では、高濃度試料でDQ0を満たすデータは99.3%，フラグEが付いたデータは0.7%であり、フラグXが付いたデータはなかった。また、低濃度試料では、DQ0を満たすデータは98.0%，フラグEが付いたデータは2.0%，フラグXが付いたデータはなかった。高濃度試料、低濃度試料ともpHおよび陰イオンにフラグが付与されたデータはなかった。

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。2021年度の相対標準偏差は、高濃度試料は陰イオン：2.6～3.6%，陽イオン：3.6～7.4%，低濃度試料は陰イオン：4.2～6.1%，陽イオン：4.6～9.0%であり、2020年度¹²⁾と同様に K^+ 、 Ca^{2+} および Mg^{2+} のバラツキが大きかった。国設局管理機関における2021年度分析精度管理調査¹³⁾の相対標準偏差は、高濃度試料では陰イオン：1.2～1.7%，陽イオン：1.9～5.0%，低濃度試料では陰イオン：2.3～4.1%，陽イオン：3.1～8.2%であった。

以上の結果から、フラグ付与率および相対標準偏差は、全環研報告機関のほうが国設局管理機関より高かった。

どの機関もおおむね精度よく測定が実施されているが、各機関において分析精度管理調査結果を有効に利用することでさらなる改善が期待できる。特に低濃度試料の陽イオンに関してはより一層の改善が望まれる。

精度管理参加機関の測定結果で相対標準偏差が大きい成分は、表4.1.2に示すように、低濃度試料では陽イオンであり、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、全体の精度改善に繋がることが期待される。また、pHはフラグが付与されたデータはなく、相対標準偏差も小さい（高濃度試料：2.5%，低濃度試料：2.3%）が、 H^+ 濃度に換算すると大きなバラツキが予想される。 R_1 および R_2 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 ($\mu\text{mol L}^{-1}$)、定量下限値は10s ($\mu\text{mol L}^{-1}$)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DQ0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DQ0を満たしていない機関数は、 Ca^{2+} で3機関と最も多く、 Na^+ で2機関および Mg^{2+} で1機関であった。定量下

限値がDQ0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、定量下限値がDQ0を満たしていない機関があったての測定項目において1機関のみであった。フラグが付与されたからといって定量下限値>DQ0であるということではなかった。

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 R_1 および R_2 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。また、分析に関する質問などがある場合には、当部会の相談窓口や各支部の担当者会議を活用していただきたい。

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試料濃度の上限值（暫定）を提案した⁴⁾。

FB試料から高濃度が検出された場合や、鳥の糞、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。

4.2 ECおよびイオン成分濃度

ここでは、2021年度の湿性沈着調査におけるpH、ECおよびイオン成分濃度について報告する。

解析対象は、4.1.1章で示したとおり、完全度（測定期間の適合度を含む）が、月間データで60%以上、年間データで80%以上の地点のデータを有効とした。なお、試料採取時にオーバーフローがあり、降水量の算出ができない試料については、近接の気象観測所等の降水量データを採用した。

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。

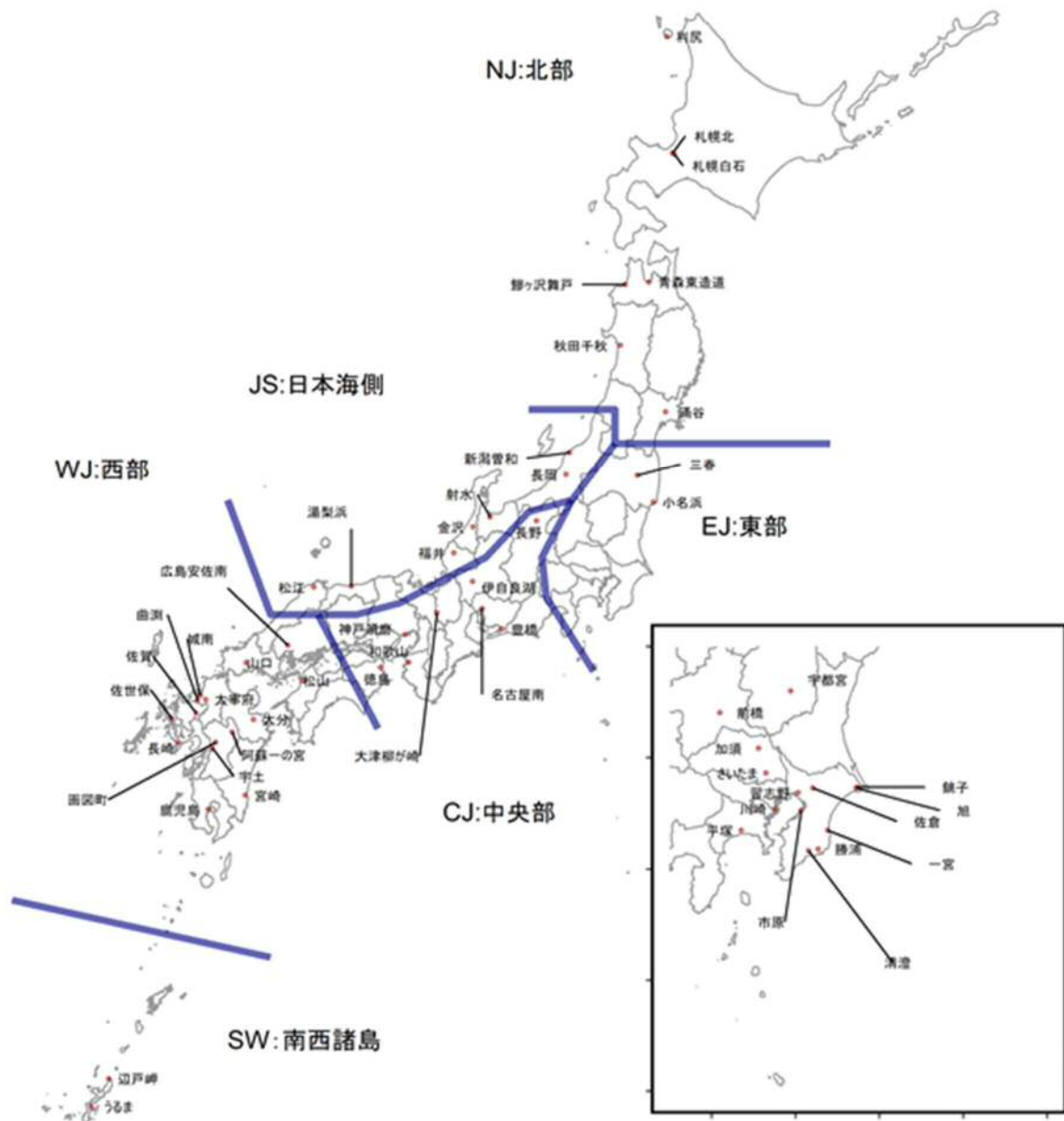


図4.2.1 地域区分

4.2.2 pH, ECおよびイオン成分濃度の年加重平均値

2021年度の年間データが有効となった地点(50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、地域区分別に箱ひげ図を図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。

4.2.3 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、2021年度の季節変動（中央値）を地域区分別に図4.2.3に示す。

ほとんどの地域において夏季に濃度が低下し、冬季に多くの物質の濃度が高くなる傾向が確認された。地理的要因や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、日本海側で顕著

であった¹⁾が、2006年度にはその傾向が西部でも確認され³⁾、2007～2021年度も引き続き同様の傾向がみられた⁴⁻¹²⁾。

4.2.4 イオン成分濃度の経年変動

重要と考えられる項目の経年変動について、図4.2.4に示す。各年度のすべての測定地点の年平均値を箱ひげ図として示した。また、2012～2021年度の10年間のうち7年以上参加している地点を用いて年度ごとの平均値を計算し、赤丸と折れ線グラフで示した。一定年数以上の参加地点のみを平均の対象としたのは、年度ごとの地点の変動による影響を緩和するためである。

降水量については、いずれの地点においても一定の範囲内で推移していた。多くの成分および地域において、経年的に減少または横ばい傾向が確認できる。

表4.2.1 湿性イオン成分等の地点別加重平均濃度

地点名	地域 区分 ¹⁾	排出量(t・km ⁻² ・y ⁻¹)			降水量 (mm)	pH	EC (mS m ⁻¹)	SO ₄ ²⁻	ns-s-SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	NH ₄ ⁺	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	ns-s-Ca ²⁺	Mg ²⁺	H ⁺
		SO ₂	NO _x	NH ₃														
利尻	NJ	0.81	0.44	0.02	854	5.04	4.30	22.4	8.9	15.7	249.2	18.0	222.0	5.7	10.2	5.2	27.2	9.0
札幌北	NJ	2.76	14.57	1.15	1087	5.04	2.44	13.2	6.7	9.5	127.0	12.3	108.6	3.0	5.2	2.8	13.3	9.2
札幌白石	NJ	2.72	14.72	1.27	1157	5.09	2.48	13.8	6.8	9.0	135.5	12.4	114.1	2.8	5.5	2.9	13.1	8.1
青森東道	NJ	0.74	2.19	0.42	1315	5.08	4.25	22.5	9.2	17.8	266.1	16.2	219.4	4.6	8.0	3.1	24.4	8.3
鶴ヶ沢舞戸	NJ	0.12	0.61	0.44	(833)	(5.02)	(5.95)	(30.3)	(9.2)	(18.2)	(418.1)	(15.2)	(346.6)	(7.5)	(10.8)	(3.1)	(38.7)	(9.7)
浦谷	NJ	1.07	3.64	2.28	964	5.17	0.99	5.5	3.7	7.8	34.7	8.6	29.8	0.9	2.2	1.5	3.2	6.8
秋田千秋	NJ	3.40	4.17	0.48	1701	5.18	3.21	18.2	8.7	17.6	181.8	21.6	158.2	3.7	6.9	3.4	18.0	6.7
三春	EJ	0.64	3.60	1.29	1302	5.29	0.53	4.7	4.3	9.7	8.0	10.5	6.2	0.6	3.2	3.1	1.5	5.1
小浜	EJ	9.47	11.50	0.78	1365	5.05	1.26	9.5	6.9	8.0	53.0	7.7	43.8	0.9	2.3	1.3	4.6	8.8
新潟曾和	JS	1.41	6.04	1.00	1890	5.03	3.06	15.8	7.1	15.7	166.9	15.5	144.2	3.8	6.3	3.1	16.7	9.4
長岡	JS	0.66	2.83	0.59	1825	5.03	3.09	17.4	8.7	17.2	164.6	19.0	142.7	3.6	6.3	3.1	16.6	9.3
宇都宮	EJ	1.63	6.12	2.53	1598	6.08	0.79	6.7	6.1	15.4	11.5	21.4	9.7	0.5	2.3	2.1	1.2	0.8
さいたま	EJ	3.70	28.65	4.67	1509	5.12	0.99	7.7	6.8	18.3	17.3	21.4	14.3	0.5	3.3	3.0	1.9	7.6
前橋	EJ	1.89	7.58	6.83	1067	5.51	0.87	7.1	6.6	19.1	11.1	34.1	9.1	0.8	2.8	2.6	1.4	3.1
市原	EJ	9.71	36.61	2.79	1512	5.44	1.07	11.6	9.8	6.8	36.1	11.2	29.5	1.2	7.3	6.6	4.4	3.6
銚子	EJ	8.61	6.89	3.67	1312	5.81	2.32	10.7	3.4	5.4	142.9	15.9	119.0	3.3	4.1	1.4	14.1	1.6
一宮	EJ	0.11	1.12	0.85	1757	5.57	1.35	7.3	3.6	6.2	71.8	8.7	60.6	1.8	3.2	1.9	7.1	2.7
旭	EJ	8.59	6.93	3.87	2492	6.28	2.09	9.5	4.6	10.1	209.8	38.5	79.6	1.7	5.2	3.4	8.7	0.5
佐倉	EJ	1.72	15.47	2.54	1864	5.25	0.86	5.8	4.6	9.8	25.8	9.6	18.5	0.4	6.2	5.8	2.3	5.6
清澄	EJ	0.08	0.64	0.84	2076	5.68	1.80	10.6	6.0	10.3	91.9	8.1	76.1	6.8	6.6	4.9	9.9	2.1
勝浦	EJ	0.09	0.60	0.60	1233	5.68	1.34	7.0	3.2	5.4	73.7	5.6	62.0	3.5	3.9	2.5	7.5	2.1
習志野	EJ	7.35	31.11	3.69	1515	5.30	0.95	7.7	6.3	11.1	28.5	12.1	23.4	0.9	4.1	3.6	3.0	5.1
平塚	EJ	0.52	10.46	2.61	1708	5.45	1.10	7.0	4.6	10.9	47.0	12.9	38.8	1.2	4.1	3.2	4.5	3.5
川崎	EJ	11.95	55.76	3.48	1835	5.87	0.96	8.7	6.9	8.0	37.6	14.8	28.3	5.9	4.8	4.1	3.5	1.4
長野	CJ	0.87	2.64	0.57	995	5.29	0.62	5.3	5.0	10.8	7.2	12.9	5.5	0.5	2.5	2.4	0.9	5.1
射水	JS	5.03	11.55	1.43	2428	4.95	2.55	14.5	8.3	17.6	119.7	16.8	103.5	2.8	5.7	3.4	12.3	11.2
金沢	JS	1.49	3.78	0.97	2669	4.91	2.76	14.3	7.4	16.5	126.4	15.1	113.4	2.9	5.9	3.4	13.0	12.4
福井	JS	1.31	4.50	0.68	2526	4.96	2.72	15.3	8.2	17.9	132.8	14.9	116.5	2.9	5.0	2.4	13.5	11.1
伊自良湖	CJ	1.12	3.14	1.25	3715	5.06	0.82	5.7	4.8	9.7	18.0	9.3	15.1	0.5	1.9	1.6	2.0	8.6
豊橋	CJ	1.42	6.49	3.81	2051	5.52	0.93	6.4	4.6	8.0	37.0	9.1	29.0	1.3	3.3	2.6	4.8	3.0
名古屋南	CJ	8.83	35.50	3.82	1650	5.30	0.95	7.5	6.5	10.8	20.6	15.2	16.4	1.2	2.8	2.5	1.9	5.0
大津柳が崎	CJ	1.46	10.52	1.29	1997	5.08	0.71	3.8	3.3	8.7	8.3	10.1	8.3	1.0	2.5	2.3	1.3	8.3
神戸須磨	CJ	6.64	18.72	1.13	1409	4.83	1.26	8.2	5.9	11.0	43.7	8.9	36.9	1.1	2.6	1.8	4.1	15.0
和歌山	CJ	8.97	13.33	0.87	1705	5.04	1.21	7.6	5.4	8.5	43.1	7.6	35.9	1.0	2.7	1.9	4.4	9.2
湯梨浜	JS	0.10	0.72	0.77	1960	4.99	3.60	18.2	7.1	16.3	202.5	17.0	183.1	4.3	7.1	3.0	19.5	10.2
松江	JS	0.26	1.38	0.50	2114	4.86	2.53	13.6	7.4	16.9	116.3	16.1	102.1	2.8	5.4	3.1	11.9	13.8
広島安佐南	WJ	1.89	7.35	0.99	2394	4.87	1.09	7.9	6.8	11.6	20.0	8.8	17.7	0.6	1.8	1.4	2.1	13.4
山口	WJ	1.17	7.33	0.57	1993	5.12	1.01	10.1	8.6	12.4	25.2	10.3	25.0	1.0	3.0	2.4	2.7	7.5
徳島	CJ	1.10	4.60	1.46	1397	5.08	1.16	7.0	4.8	10.6	43.0	11.4	36.5	1.1	2.6	1.8	4.4	8.4
松山	WJ	5.86	9.87	0.89	1554	4.85	1.05	8.4	7.5	10.0	16.4	11.5	14.7	0.3	2.4	2.1	2.2	14.3
大宰府	WJ	2.44	12.89	1.92	(1802)	(5.26)	(0.56)	(5.4)	(4.8)	(8.3)	(12.4)	(9.9)	(10.3)	(0.8)	(2.3)	(2.1)	(1.1)	(5.4)
曲淵	WJ	1.52	9.07	1.44	2539	5.10	1.10	7.2	5.0	9.1	40.6	8.6	35.6	1.2	2.3	1.5	4.2	7.9
城南	WJ	1.65	10.79	1.61	1947	5.09	1.14	7.7	5.6	10.4	39.7	11.7	34.7	1.0	2.4	1.6	4.1	8.1
佐賀	WJ	1.20	3.87	1.46	2412	4.98	0.79	7.3	6.6	8.3	15.5	9.6	12.2	0.5	2.1	1.8	1.7	10.6
長崎	WJ	0.57	2.86	0.61	2315	5.07	1.11	8.1	6.3	9.4	34.4	8.9	28.7	1.0	2.6	2.0	3.8	8.6
宇土	WJ	1.19	5.04	1.36	2289	4.78	0.91	6.3	5.5	7.3	16.7	8.4	13.7	0.8	1.5	1.2	1.7	16.6
阿蘇一の宮	WJ	0.15	0.63	1.21	1797	4.67	1.17	11.1	10.7	6.8	14.2	16.9	7.8	0.9	2.3	2.1	1.2	21.2
画図町	WJ	0.95	4.88	2.72	2477	4.96	0.78	6.9	6.3	7.9	12.2	10.2	9.5	0.9	2.1	1.9	1.4	10.9
大分	WJ	11.58	17.02	1.16	1683	4.89	0.97	8.6	8.1	10.1	13.5	7.7	7.5	0.4	1.8	1.6	1.1	13.0
宮崎	WJ	0.31	1.84	1.02	3556	5.21	1.10	7.7	5.3	6.1	43.9	7.4	39.0	0.9	2.2	1.3	4.6	6.2
鹿児島	WJ	1.00	3.55	1.31	1703	4.55	2.08	13.4	11.1	8.9	56.2	11.3	38.0	1.2	3.4	2.6	4.2	27.9
うるま	SW	10.14	9.25	1.28	2471	5.40	2.13	11.2	4.9	8.7	120.5	8.8	103.7	2.3	8.8	6.4	13.0	4.0
辺戸岬	SW	0.00	0.03	0.32	(-)	(-)	(-)	(-)	(-)	(-)	(-)	(-)	(-)	(-)	(-)	(-)	(-)	(-)
最低値					854	4.55	0.62	3.8	3.2	5.4	7.2	5.6	5.5	0.3	1.5	1.2	0.9	0.5
最高値					3715	6.28	4.30	22.5	11.1	19.1	266.1	38.5	222.0	6.8	10.2	6.6	27.2	27.9
加重平均値※					1723	5.08	1.6	9.9	6.3	11.1	68.9	12.9	58.5	1.9	4.0	2.7	6.9	8.2

¹⁾地域区分 (NJ: 北部、JS: 日本海側、EJ: 東部、CJ: 中央部、WJ: 西部、SW: 南西諸島)

※降水量は、単純平均値

最大値: 白抜き

最小値: 斜体

参考値: (括弧)

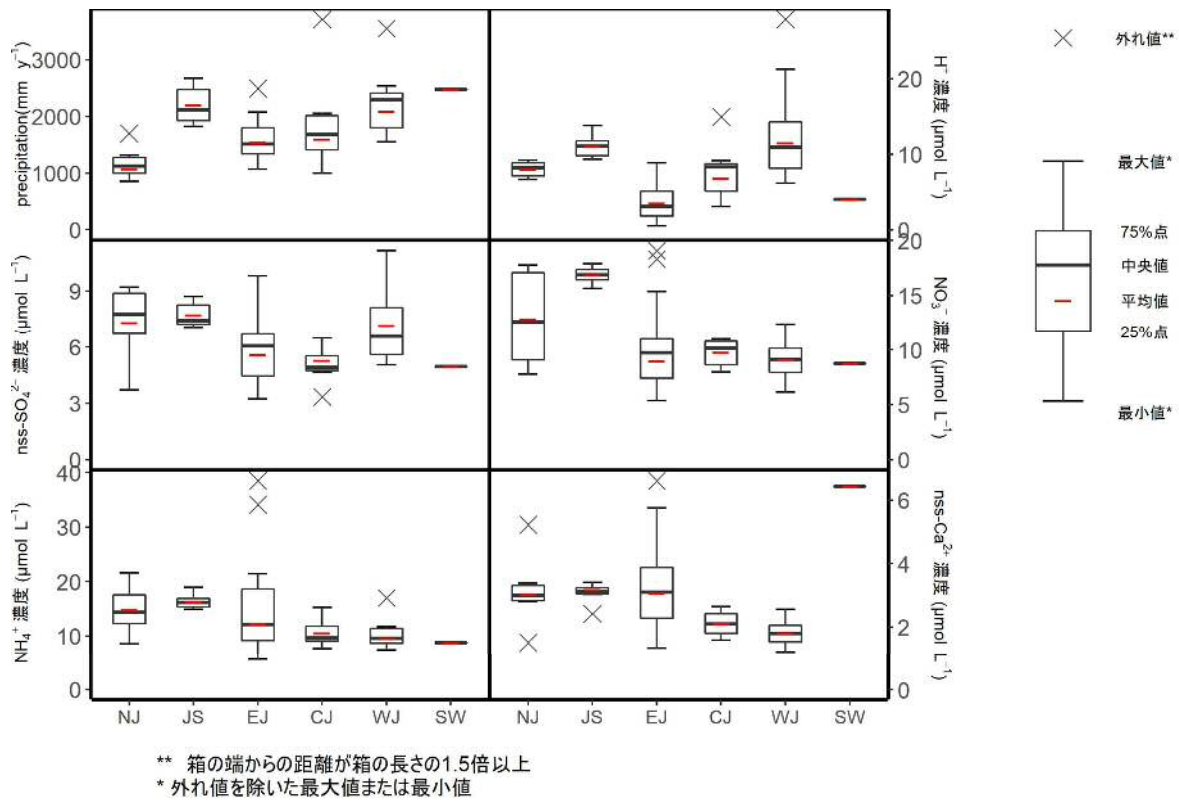


図4.2.2 主要イオン成分の年加重平均濃度の分布

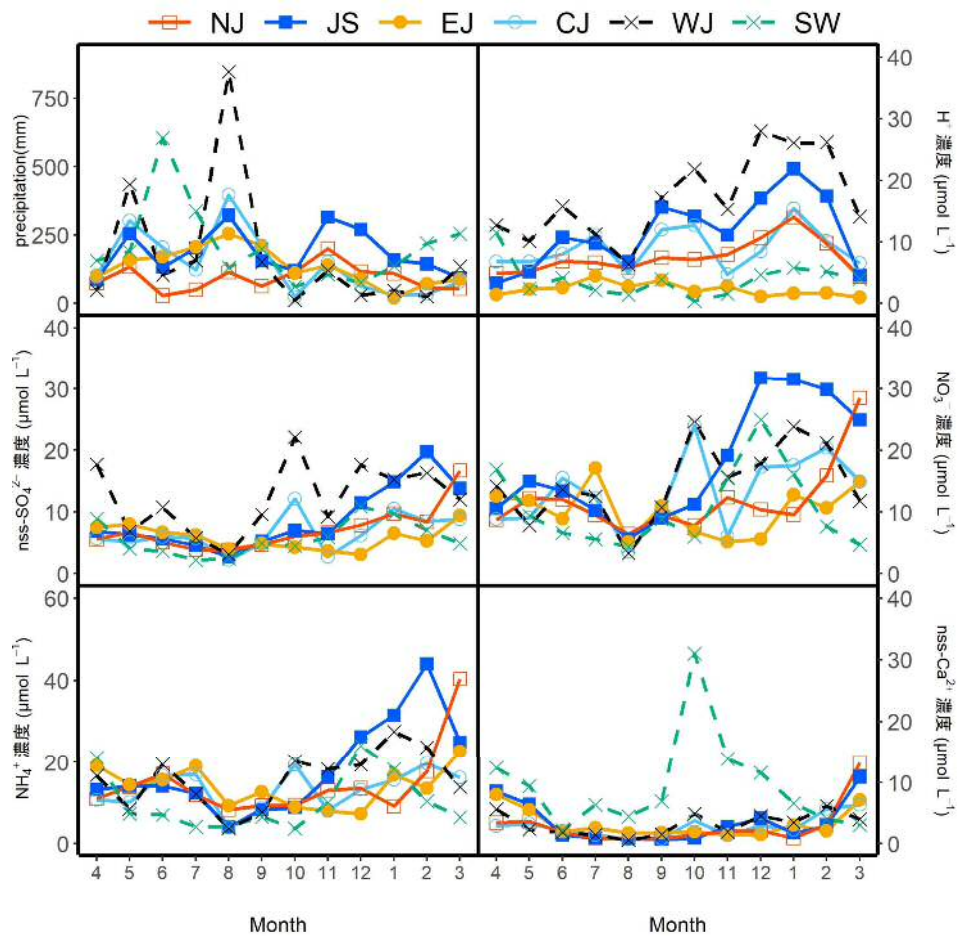


図4.2.3 主要イオン成分濃度の地域別季節変動（中央値）

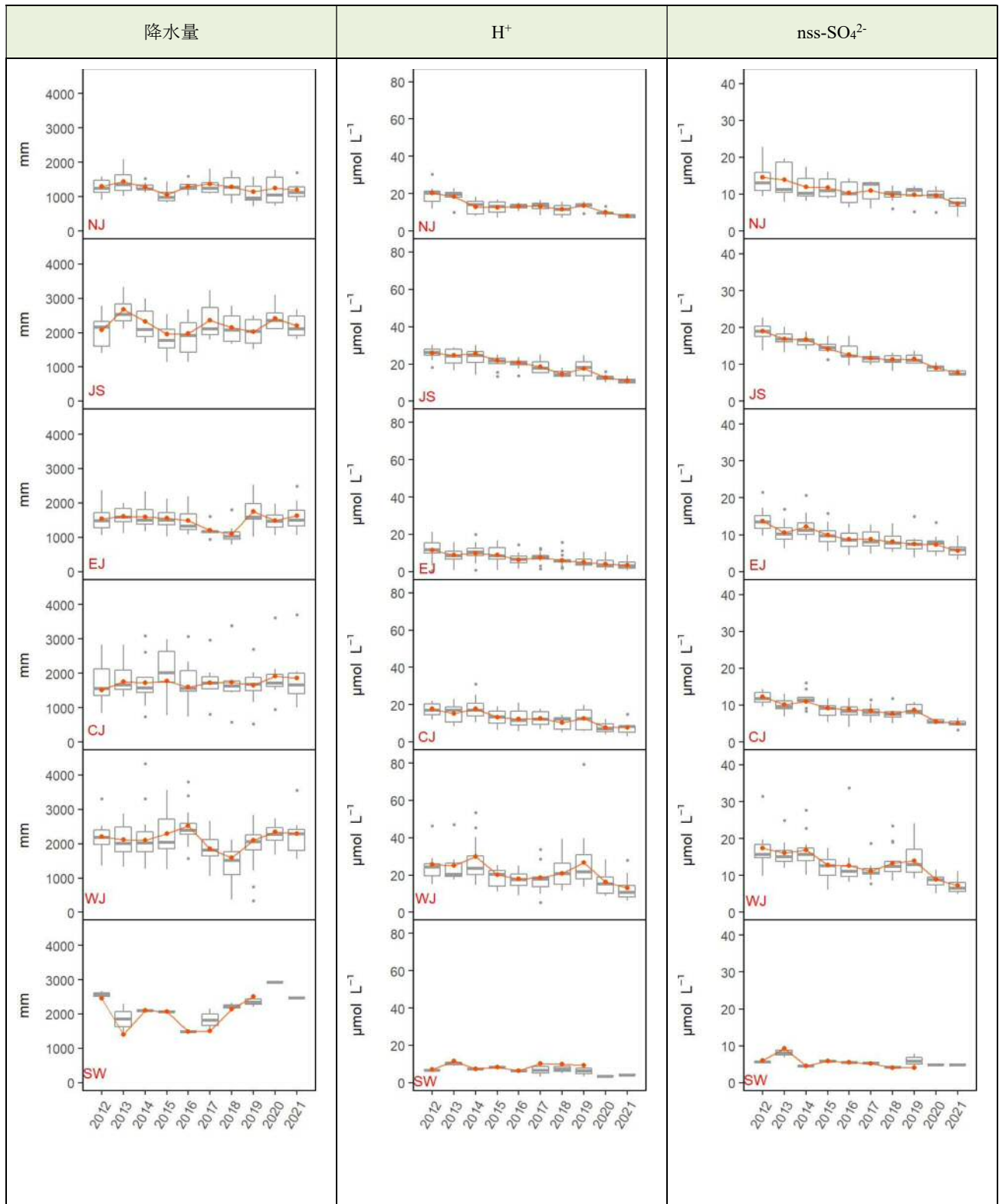


図4. 2. 4イオン成分濃度の地域別経年変動（降水量，H⁺，nss-SO₄²⁻）

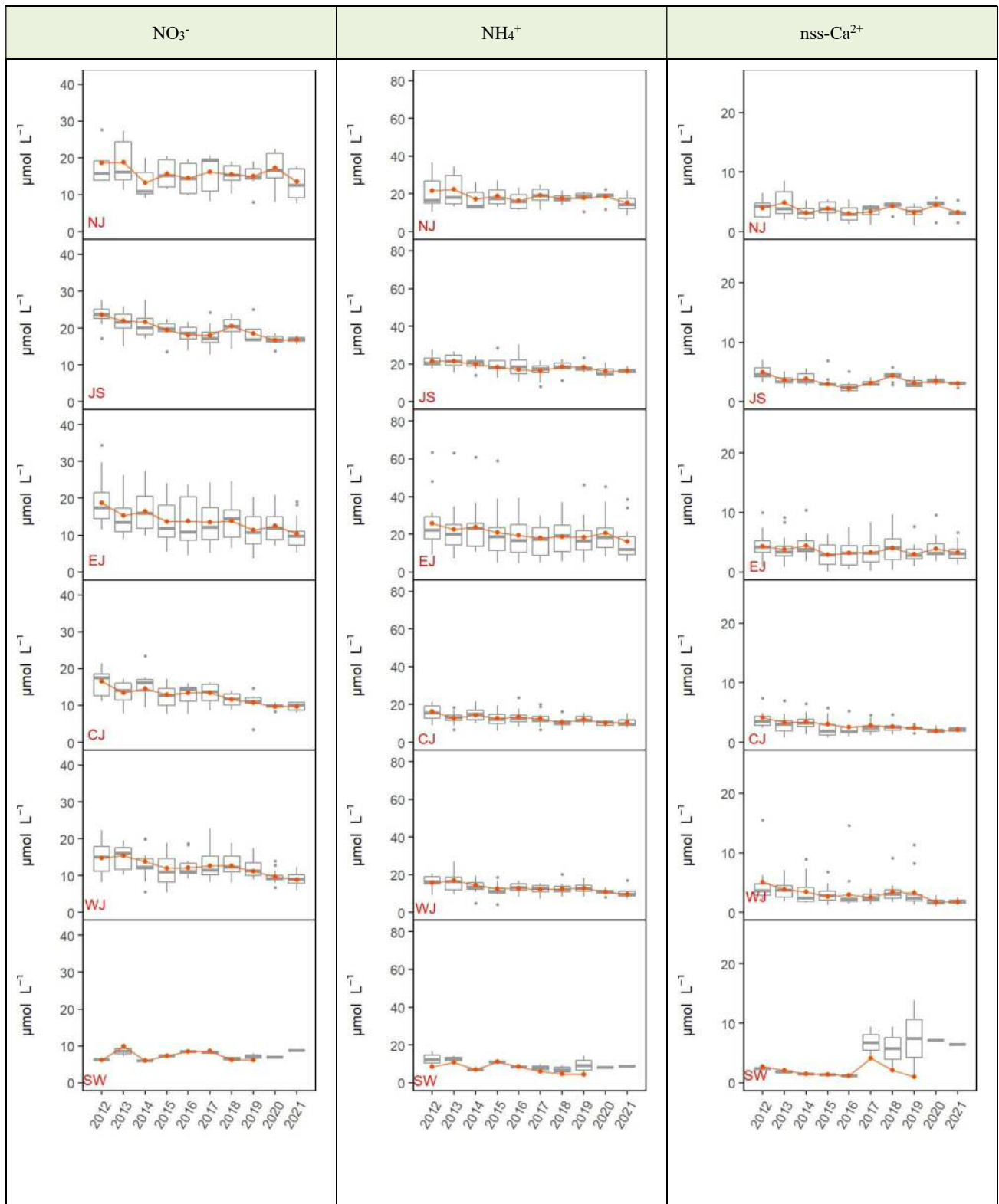


図4.2.4 イオン成分濃度の地域別経年変動(NO_3^- , NH_4^+ , nss-Ca^{2+})

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

2021年度の年間データが有効となった50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ことで算出した。

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)	1732	854 3715	(利尻) (伊自良湖)
nss-SO ₄ ²⁻	(mmol m ⁻² y ⁻¹)	11.6	3.6 20.8	(涌谷) (福井)
NO ₃ ⁻	(〃)	18.0	6.7 45.2	(勝浦) (福井)
NH ₄ ⁺	(〃)	20.7	6.9 96.0	(勝浦) (旭)
nss-Ca ²⁺	(〃)	4.4	1.5 15.9	(涌谷) (うるま)
H ⁺	(〃)	11.6	1.3 47.5	(旭) (鹿児島)

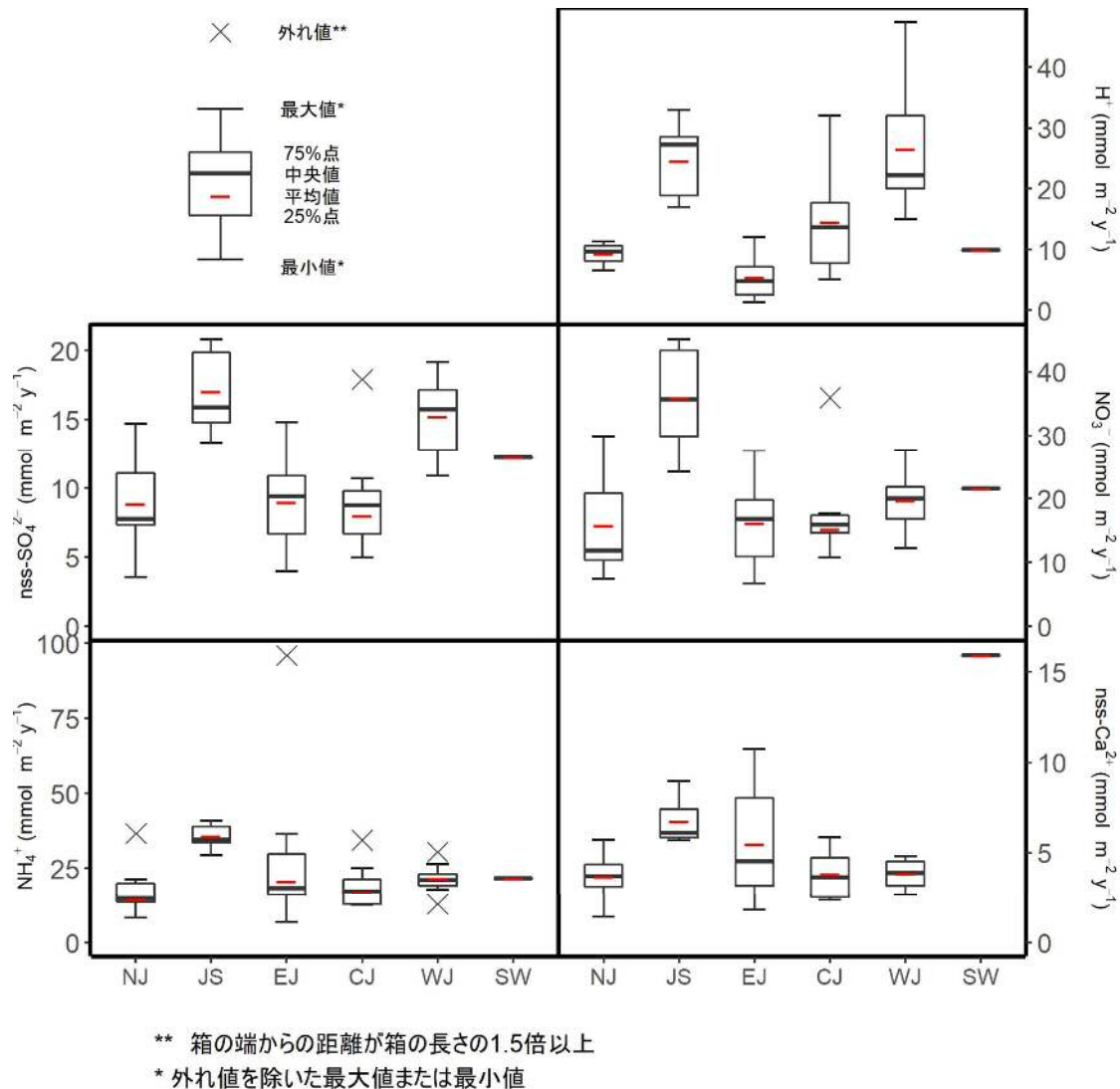


図4.3.1 主要イオン成分年間沈着量および降水量の分布

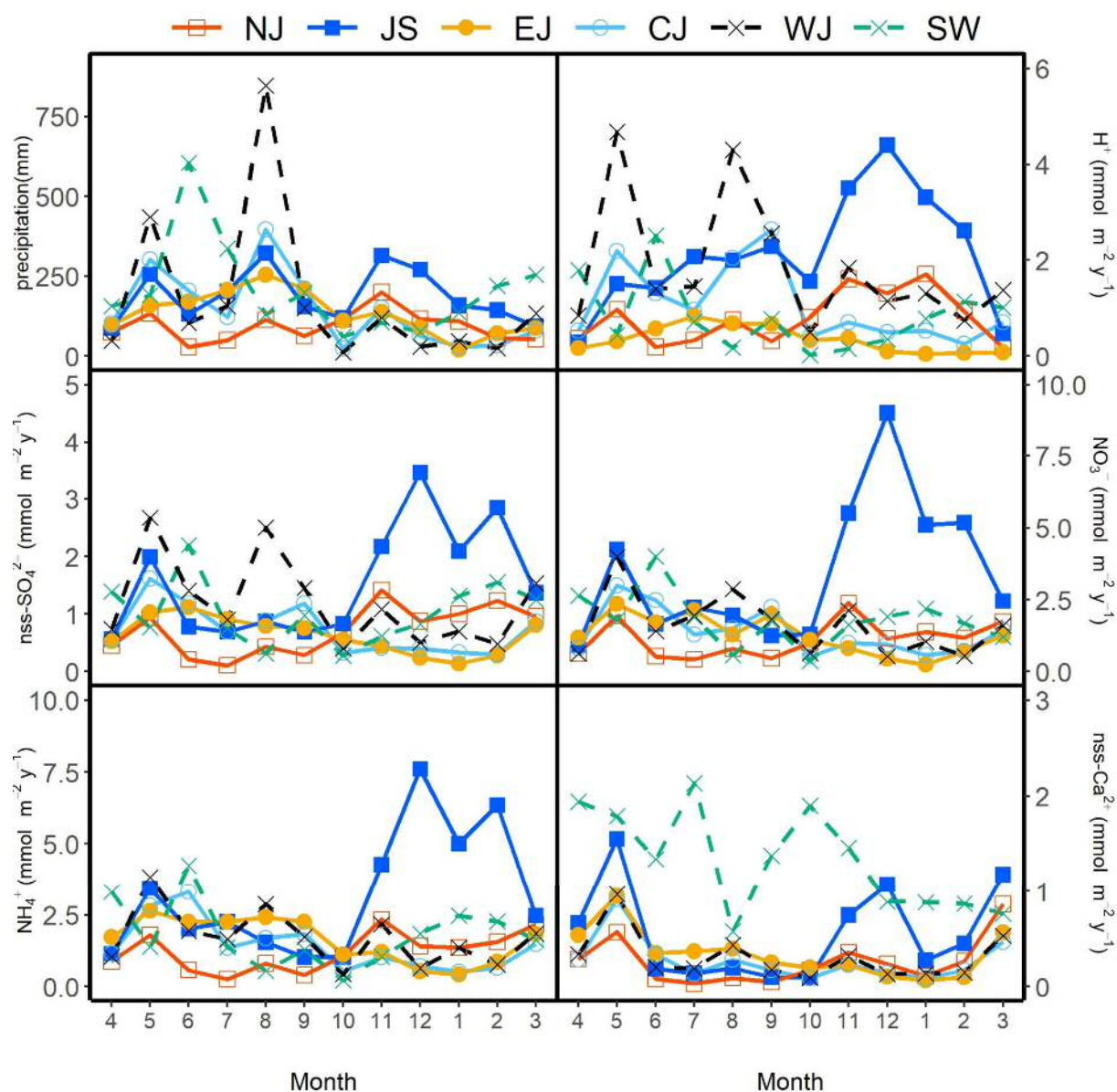


図4.3.2 イオン成分沈着量の地域別季節変動

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。

4.3.3 沈着量の経年変動

地域別の降水量（再掲）および主要イオン成分沈着量の経年変動については図4.3.3に示した。箱ひげ図および平均の折れ線グラフについては、図4.2.4と同様の地点の選定方法を用いた。

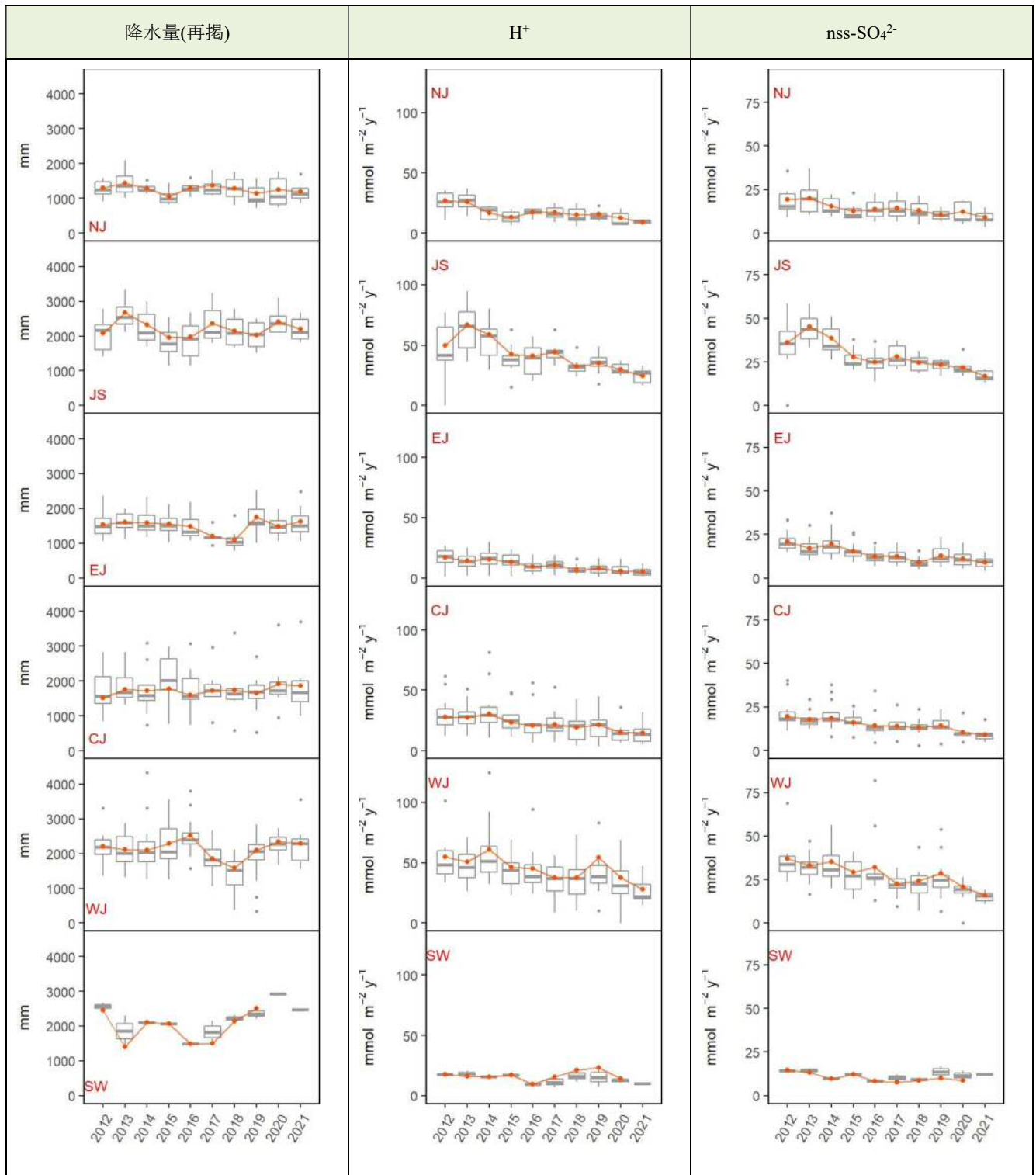


図 4.3.3 イオン成分沈着量の地域別経年変動（降水量，H⁺，nss-SO₄²⁻）

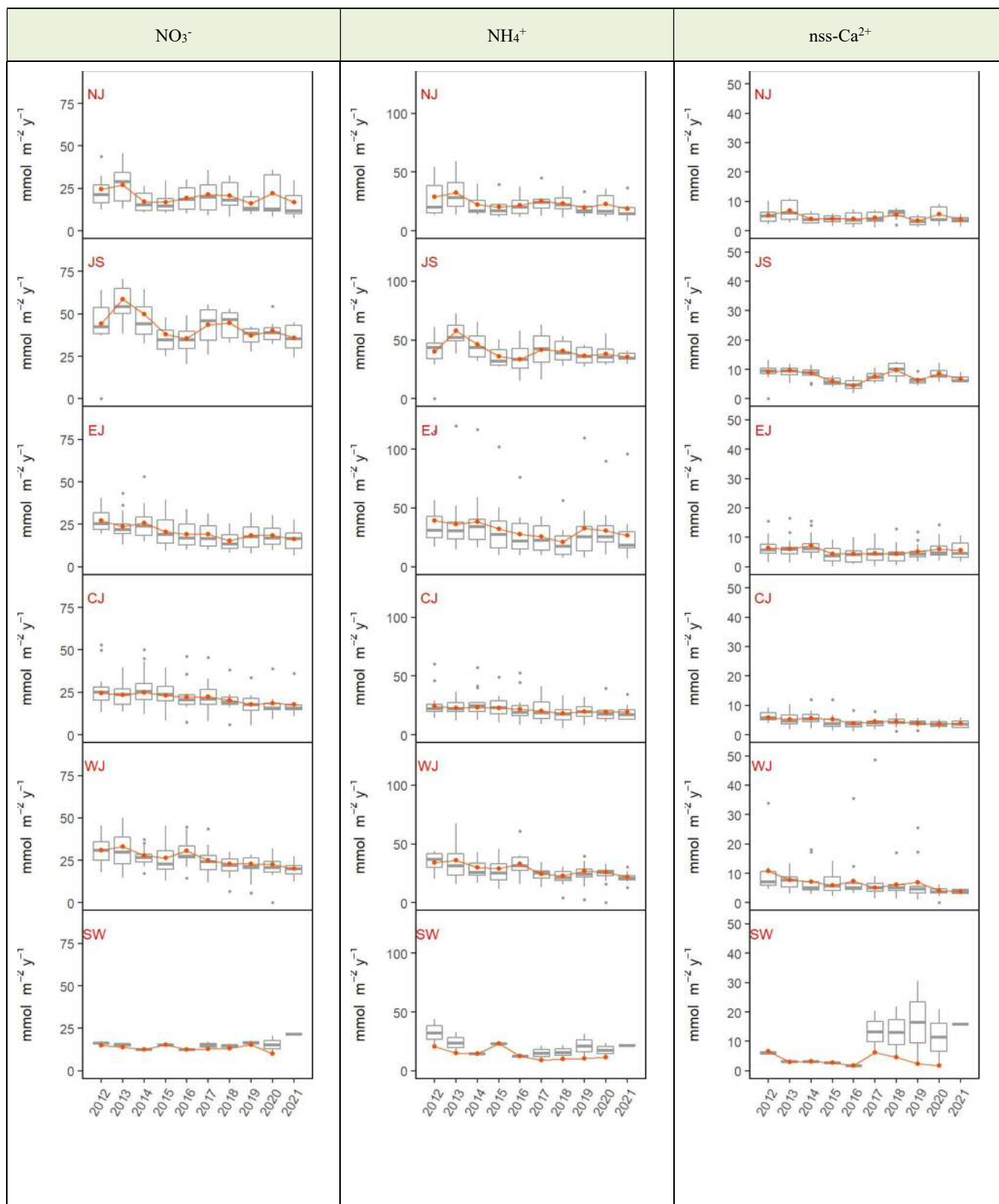


図 4.3.3 イオン成分沈着量の地域別経年変動 (NO₃⁻, NH₄⁺, nss-Ca²⁺)

－ 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_deposition/index.html
- 3) 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
- 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24年度），全国環境研会誌，**39**，100-146，2014
- 5) 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
- 6) 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
- 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5次酸性雨全国調査報告書（平成27年度），全国環境研会誌，**42**，3，83-126，2017
- 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6次酸性雨全国調査報告書（平成28年度），全国環境研会誌，**43**，3，79-119，2018
- 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6次酸性雨全国調査報告書2017（平成29年度），全国環境研会誌，**44**，3，74-115，2019
- 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6次酸性雨全国調査報告書2018（平成30年度），全国環境研会誌，**45**，3，85-121，2020
- 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6次酸性雨全国調査報告書2019（令和元年度），全国環境研会誌，**46**，3，75-114，2021
- 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6次酸性雨全国調査報告書2020（令和2年度），全国環境研会誌，**47**，3，97-138，2022
- 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：令和3年度酸性雨測定分析機関間比較調査結果（大気系），2022