

＜特 集＞

第6次酸性雨全国調査報告書2019（令和元）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

池田有里，岩崎綾，菊地優也，桐原仁志，濱村研吾，久恒邦裕，牧原秀明  
村田智穂，山口高志，山田大介，家合浩明，久保智子，高石豊

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4年目である2019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（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ンプ法を導入しました。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，当部会の取組は，日本における酸性雨調査を面的および項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ます。

最後になりましたが，行財政状況の大変厳しい中，当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。東京オリンピック・パラリンピック競技大会が1年遅れで開催され，多くの感動と勇気を与えてくれました。一方で，世界的に猛威を振るう新型コロナウイルス感染の収束が見えない状況ですが，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3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 大塚 正毅

（千葉市環境保健研究所長）

### 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SO<sub>2</sub>およびNO<sub>x</sub>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。調査の目的が果たされたことから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<sub>2.5</sub>）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NO<sub>3</sub><sup>-</sup>およびNH<sub>4</sub><sup>+</sup>、乾性の粒子状NO<sub>3</sub><sup>-</sup>およびNH<sub>4</sub><sup>+</sup>、ガス状のHNO<sub>3</sub>（測定されている場合はHONOも含む）、NO<sub>2</sub>、NOおよびNH<sub>3</sub>を対象に窒素沈着量を評価することを目標としている。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

調査対象	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			
	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	1991年度：158地点		1995年度：52地点		1999年度：47地点	1999年度：25地点	2003年度：61地点	2003年度：32地点	2003年度：59地点	
地点数	1992年度：140地点 1993年度：140地点		1996年度：58地点 1997年度：53地点		2000年度：48地点 2001年度：52地点	2000年度：27地点 2001年度：29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	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	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	
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および粒子状成分調査、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	
調査期間	通年調査		夏および冬の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 <a href="http://db.cger.nies.go.jp/dataset/acidrain/ja/01/index.html">http://db.cger.nies.go.jp/dataset/acidrain/ja/01/index.html</a>		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 <a href="http://db.cger.nies.go.jp/dataset/acidrain/ja/02/index.html">http://db.cger.nies.go.jp/dataset/acidrain/ja/02/index.html</a>		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 <a href="http://db.cger.nies.go.jp/dataset/acidrain/ja/03/index.html">http://db.cger.nies.go.jp/dataset/acidrain/ja/03/index.html</a>		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 <a href="http://db.cger.nies.go.jp/dataset/acidrain/ja/04/index.html">http://db.cger.nies.go.jp/dataset/acidrain/ja/04/index.html</a>			
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))			
<b>第5次酸性雨全国調査</b>										
調査対象	湿性沈着		乾性沈着		湿性沈着		乾性沈着			
調査	2009年度：72地点		2009年度：32地点		2009年度：42地点	2016年度：64地点	2016年度：30地点	2016年度：22地点		
地点数	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		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		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	2017年度：63地点 2018年度：60地点 2019年度：59地点	2017年度：28地点 2018年度：29地点 2019年度：27地点	2017年度：20地点 2018年度：17地点 2019年度：15地点		
調査手法	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および粒子状成分調査、原則1-2週間単位の試料採取		パッシブサンプラー（O式）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週間単位の試料採取	フィルターパ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、インパクト装置による粗大粒子と微小粒子（PM <sub>2.5</sub> ）とを分けた採取を推奨	パッシブサンプラー（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 <a href="http://db.cger.nies.go.jp/dataset/acidrain/ja/05/index.html">http://db.cger.nies.go.jp/dataset/acidrain/ja/05/index.html</a>				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))					

(ii)PM<sub>2.5</sub>成分データを得ることにより、PM<sub>2.5</sub>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。

なお、第1~5次調査結果(2015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>)に掲載されており、今後も掲載予定である。

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 <sup>2</sup> y <sup>-1</sup> )			地域区分 (注1)	緯度 (度)	経度 (度)	湿度 (注2)	乾性 <sup>(注2)</sup> 注3)			標高 (m)	海岸からの距離 (km)	サンブロー設置位置 地上高(m)			土地利用						
				SO <sub>2</sub>	NO <sub>x</sub>	NH <sub>3</sub>					FP	O式	自動NO <sub>x</sub>			湿性	FP	O式							
																				FP	O式	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	45.1196	141.2100	☆	☆	○	☆	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	1.15	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	青森東道道	青森県環境保健センター	0.74	2.19	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	岩手県環境保健センター	0.77	3.24	1.30	NJ	39.6781	141.1328	○	○			125	70		12		準工業地域 市街地					
		宮城県	涌谷	宮城県環境保健センター	1.07	3.64	2.28	NJ	38.5537	141.1720	○				165	19	3			未指定(草、笹)					
		秋田県	秋田千秋	秋田県健康環境センター	3.40	1.17	0.48	NJ	39.4311	140.0735	○				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	0.04	0.34	0.33	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 <sup>(注4)</sup>	福島県環境創造センター	0.64	3.60	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	11.50	0.78	EJ	36.9633	140.8927	○	○	○	○	3	2.5	5				2	住居地域(市街地)				
	新潟県	新潟曾和	新潟県保健環境科学研究所	1.41	6.04	1.00	JS	37.8453	138.9443	○	○			2	3.1	3	2				市街地調整区域				
		長岡	新潟県保健環境科学研究所	0.66	2.83	0.59	JS	37.4462	138.8681	○	○			27	19	6	7				住居地域				
	関東・甲信・静	栃木県	宇都宮 <sup>(注5)</sup>	栃木県保健環境センター	1.63	6.12	2.53	EJ	36.6003	139.9402	○				140	65	10					住宅地			
小山			栃木県保健環境センター	1.55	7.42	2.71	EJ	36.3138	139.8263	○				35	63	6					住宅地				
加須 <sup>(注6)</sup>			埼玉県環境科学国際センター	1.06	10.36	2.83	EJ	36.0850	139.5592	○				13	55	11					農業地域				
埼玉県		さいたま	さいたま市健康科学センター	3.70	28.65	4.67	EJ	35.8621	139.6455	○				15	35	16					商業地域				
		前橋	群馬県衛生環境研究所	1.89	7.58	6.83	EJ	36.4044	139.0961	○	○		○	103	110	20	20				市街地調整区域				
千葉県		市原	千葉県環境研究センター	9.71	36.61	2.79	EJ	35.5259	140.0682	○	○	▲		3	1.2	5	10	10				工業地域			
		銚子	千葉県環境研究センター	8.61	6.89	3.67	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	0.85	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	1.72	15.47	2.54	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	0.64	0.84	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	0.60	0.60	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	7.35	31.11	3.69	EJ	35.6856	140.0322	○				14	3.1	3						住居地域			
		宮野木	千葉県環境保健研究所	8.33	29.28	3.36	EJ	35.6535	140.0979	○				21	4.1	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	10.46	2.61	EJ	35.3476	139.3514	○				9	3.7	22						準工業地域			
	川崎 <sup>(注7)</sup>	川崎市環境総合研究所	11.95	55.76	3.48	EJ	35.5411	139.7540	○				4	3.2	20						準工業地域				
長野県	長野	長野県環境保全研究所	0.87	2.64	0.57	CJ	36.6354	138.1786	○			○	363	52.5	15	3					第一種住居				
	富山県	射水 <sup>(注8)</sup>	富山県環境科学センター	5.03	11.55	1.43	JS	36.7006	137.0997	○	○	▲	○	22	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	1.49	3.78	0.97	JS	36.5270	136.7058	○	○			120	14	14	14					第2種住居専用地域			
	福井県	福井	福井県衛生環境研究センター	1.31	4.50	0.68	JS	36.0741	136.2615	○	○			12	18	9	9					市街地調整区域			
	岐阜県	伊自良湖	岐阜県保健環境研究所	1.12	3.14	1.25	CJ	35.5725	136.6938	☆	☆		☆	140	58	4	4					林地			
		豊橋	愛知県環境調査センター東三河支所	1.42	6.49	3.81	CJ	34.7423	137.3840	○	○	▲		20	6	8	8						住居地域		
	愛知県	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	8.83	35.50	3.82	CJ	35.0990	136.9156	○	○			0	3	19	19						準工業地域		
		滋賀県	大津柳が崎	琵琶湖環境科学研究所	1.46	10.52	1.29	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	6.64	18.72	1.13	CJ	34.6487	135.1318	○	○			15	0.9	29	17						準工業地域		
	和歌山県	和歌山 <sup>(注9)</sup>	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	若桜	鳥取県衛生環境研究所	0.01	0.29	0.28	JS	35.3526	134.4881	○	○			800	28.4	3						3	未指定	
湯梨浜			鳥取県衛生環境研究所	0.10	0.72	0.77	JS	35.4934	133.8852	○	○	○	○	2	1.3	11	11						11	未指定	
島根県		松江	島根県保健環境科学研究所	0.26	1.38	0.50	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	1.89	7.35	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	1.17	7.33	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	
九州・沖縄		福岡県	太宰府	福岡県保健環境研究所	2.44	12.89	1.92	WJ	33.5116	130.4995	○	○		○	30	15	18	5							市街地調整区域
			曲淵 <sup>(注10)</sup>	福岡市保健環境研究所	1.52	9.07	1.44	WJ	33.4974	130.3072	○				193	9.2	1								市街地調整区域
			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	3.87	1.46	WJ	33.2735	130.2727	○				4	11	9								第1種住居地域(市街地)	
		諫早	長崎県環境保健研究所	3.81	5.35	1.25	WJ	32.8591	130.0383	○				22	3.7	12									住居地域(市街地)
	長崎県	長崎	長崎県環境保健研究所	0.57	2.86	0.61	WJ	32.7621	129.8629	◇				4	1.3	8								商業地域	
		佐世保	長崎県環境保健研究所	4.82	8.15	1.34	WJ	33.1786	129.7152	◆				6	1.3	38								商業地域	
	熊本県	宇土	熊本県保健環境科学研究所	1.19	5.04	1.36	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	
	大分県	画図町 <sup>(注11)</sup>	熊本県環境総合センター	0.95	4.88	2.72	WJ	32.7642	130.7346	○		▲		5	12	15								15	市街地調整区域
大分		大分県衛生環境研究センター	11.58	17.02	1.16	WJ	33.1582	131.6136	○	○			90	11	14	5								住宅地	
宮崎県	宮崎	宮崎県衛生環境研究所	0.31	1.84	1.02	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	1.00	3.55	1.31	WJ	31.5846	130.5644	○	○			1	0.1	5	21							準工業地	
沖縄県	うるま <sup>(注12)</sup>	沖縄県衛生環境研究所	10.14	9.25	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	0.32	SW	26.8670	128.2483	☆	☆	▲	☆	60	0.2	2	5	5								

## 2. 調査内容

### 2.1 調査概要

2019年度の調査参加機関は表2.1.1に示す44機関であり、湿性沈着調査地点は59地点、乾性沈着調査地点は32地点（FP法：27地点、パッシブ法：15地点、自動測定機：16地点）であった。調査地点は一部には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。

2019年度の調査期間は原則として2019年4月1日～2020年3月30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。2019～2020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。

表2.1.2 調査期間の季節・月区分

季節	月	2019年度	週
春	4	4月1日～4月26日	4
	5	4月26日～5月27日	4
夏	6	5月27日～6月24日	4
	7	6月24日～8月5日	6
	8	8月5日～9月2日	4
秋	9	9月2日～9月30日	4
	10	9月30日～10月28日	4
	11	10月28日～11月25日	4
冬	12	11月25日～1月6日	6
	1	1月6日～2月3日	4
	2	2月3日～3月2日	4
春	3	3月2日～3月30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	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	神田 泰宏	2019-2020	
理事委員	福井県衛生環境研究センター	徳山 郁弘	2019	
	〃	谷口 和之	2020	
支部委員	福島県環境創造センター	菊地 優也	2019-2020	D
	川崎市環境総合研究所	山田 大介	2019-2020	D
	愛知県環境調査センター（東三河支所）	牧原 秀明	2019-2020	D
	鳥取県衛生環境研究所	尾川 成彰	2019	D
	〃	村田 智穂	2020	D
	鹿児島県環境保健センター	大小田 修司	2019	D
	〃	桐原 仁志	2020	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	2019-2020	2章、6章
	新潟県保健環境科学研究所	家合 浩明	2019-2020	総括、5.3章
	名古屋市環境科学調査センター	久恒 邦裕	2019-2020	4章
	鳥根県保健環境科学研究所	飯島 宏	2019	5.3章
	〃	池田 有里	2020	5.3章
	福岡県保健環境研究所	濱村 研吾	2019-2020	5.1-5.2章
	沖縄県衛生環境研究所	岩崎 綾	2019-2020	1-3, 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	2019-2020	
	京都大学	村野 健太郎	2019-2020	
	公立大学法人 北九州市立大学	藍川 昌秀	2019-2020	
	京都大学フィールド科学教育研究センター	徳地 直子	2019-2020	
	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	2019-2020	
	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	2019-2020	
	大気環境学会中国・四国支部	大原 真由美	2019-2020	
	環境省	上尾 一之	2019	
	〃	馬島 貴教	2020	
	〃	〃	〃	〃
事務局	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	高石 豊	2019-2020	
	〃	久保 智子	2019-2020	
	〃	重村 悦子	2019	

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。

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）<sup>1)</sup>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 $\text{HNO}_3$ などを、3段目で $\text{SO}_2$ と $\text{HCl}$ を、4段目で $\text{NH}_3$ を捕集する従来の4段ろ紙法<sup>2,3)</sup>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 $\text{HONO}$ 測定を加えた構成（F2で採取された妨害分の一部の $\text{NO}_2$ 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 $2\text{L min}^{-1}$ 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いる。詳細な手順などはこれまでの報告<sup>2)</sup>およびEANETの技術資料<sup>4)</sup>などを参照されたい。

#### 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

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
FP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)	$\text{K}_2\text{CO}_3$ 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
FP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)	$\text{K}_2\text{CO}_3$ 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	$\text{NO}_2$	トリエタノールアミン(TEA)含浸ろ紙
	$\text{NO}_x$	(TEA+PTIO)含浸ろ紙
	$\text{NH}_3$	クエン酸含浸ろ紙
	$\text{O}_3$	( $\text{NaNO}_2+\text{K}_2\text{CO}_3$ )含浸ろ紙

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。

$\text{SO}_2$ は $\text{NO}_x$ 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、 $\text{K}_2\text{CO}_3$ により改良された低濃度用ろ紙による $\text{SO}_2$ の測定結果と従来法との換算式が報告され<sup>5)</sup>、 $\text{K}_2\text{CO}_3$ 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<sup>6)</sup>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 自動測定機のデータ

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）<sup>7)</sup>による2010年度ベースのSO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>排出量およびNH<sub>3</sub>発生源の情報を用いて、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。

### － 引用文献 －

- 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](http://www.env.go.jp/air/acidrain/man/wet_deposi/index.html)（2020.9.29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：インファレンシャ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
- 4) Acid Deposition Monitoring Network in East Asia：Technical Manual for Air Concentration Monitoring in East Asia，<https://www.eanet.asia/resources/publications/>（2020.9.29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SO<sub>2</sub>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，NO<sub>2</sub>，SO<sub>2</sub>，O<sub>3</sub>およびNH<sub>3</sub>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](https://www.city.yokohama.lg.jp/kurashi/machizukuri-kankyo/kankyohozen/kansoku/science/shiryo/sonotahoukokusyo/201008.files/0004_20200821.pdf)（2020.9.29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－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

2019年の概況を表3.1.1に示す。また、黄砂観測日数は2018年度が5日に対し、2019年度は8日で、4月に3日、5月に1日、10月および11月にそれぞれ2日観測された<sup>2)</sup>。

表3.1.1 気象概況<sup>1)</sup>

春	日照時間は北・東・西日本でかなり多く、降水量は北・西日本で少なかった 北・東・西日本では期間を通して高気圧に覆われる日が多く、日照時間はかなり多くなった。北・東・西日本日本海側と北日本太平洋側では、1946年の統計開始以来、春の日照時間として最も多くなった（西日本日本海側は1位タイ）。降水量は北日本日本海側でかなり少なく、北日本太平洋側と西日本で少なくなった。 気温は北・西日本と沖縄・奄美でかなり高く東日本で高かった 全国的に高気圧に覆われて晴れて強い日射の影響を受けたことや、暖かい空気が流れ込みやすかったため、平均気温は北・西日本と沖縄・奄美でかなり高く、東日本で高くなった。 沖縄・奄美では降水量が多かった 沖縄・奄美は期間を通して前線や湿った空気の影響を受けやすく降水量は多くなった。
夏	東日本太平洋側と西日本は降水量が多く、日照時間は少なかった 梅雨前線の北上が平年より遅かったため、梅雨明けは平年より遅れた地方が多くなった。8月後半は低気圧や前線の影響を受けやすくなった。西日本を中心にたびたび大雨となり、西日本太平洋側の降水量はかなり多く、東日本太平洋側と西日本日本海側の降水量は多くなった。東日本太平洋側と西日本の日照時間は少なくなった。 北・東日本と沖縄・奄美は気温が高かった 暖かい空気に覆われる時期が多かった北日本および沖縄・奄美と、7月末から8月前半にかけて太平洋高気圧に覆われて晴れて厳しい暑さが続いた東日本では、気温は高くなった。 沖縄・奄美は降水量がかなり多く、日照時間はかなり少なかった 梅雨前線や台風および湿った空気の影響を受けやすかったため、沖縄・奄美の降水量はかなり多く、日照時間はかなり少なくなった。
秋	全国的に気温が高く、東・西日本ではかなり高かった 暖かい高気圧に覆われやすかったため全国的に気温が高く、特に南から暖かい空気が流れ込みやすかった東・西日本ではかなり高くなり、1946年の統計開始以来、秋の気温として最も高くなった。 北・東・西日本で日照時間が多かった 大陸から進んできた高気圧に覆われやすかったため、北・東・西日本の日照時間は多く、特に北・西日本太平洋側ではかなり多くなった。 北・東日本太平洋側と沖縄・奄美の降水量は多かった 北・東日本太平洋側では台風第15号、第19号、本州南岸を進む低気圧等の影響で降水量が多くなった。沖縄・奄美では複数の台風が接近・通過し降水量が多くなった。
冬	東・西日本で記録的な暖冬となった 冬型の気圧配置が続かず、全国的に寒気の流入が弱かったため高温となる時期が多く、東日本以西の気温はかなり高くなった。特に、東・西日本では最も高い記録を更新した（統計開始は1946/47年冬）。降雪量は全国的にかなり少なく、北・東日本日本海側で記録的な少雪となった 冬型の気圧配置が続かず寒気の影響を受けにくかったため、全国的に降雪量はかなり少なく、北・東日本日本海側では最も少ない記録を更新した（統計開始は1961/62年冬）。 日照時間は東日本太平洋側でかなり少なく、降水量は西日本日本海側でかなり多かった 低気圧や前線の影響を受けやすかったため、東日本太平洋側で日照時間がかかなり少なく、西日本日本海側で降水量がかかなり多くなった。

### 3.2 SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub>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<sub>2</sub>およびNO<sub>x</sub>排出量は、中国およびインド、極東ロシアが多い<sup>3)</sup>。図3.2.1に中国のSO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub>排出量のトレンド<sup>4,5)</sup>を示した。NO<sub>x</sub>排出量は2011年からNational Bureau of Statistics 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。図3.2.1と図3.2.2に示した中国、韓国および日本のエネルギー消費のトレンド<sup>6)</sup>は2010年頃まで類似傾向にあった。中国のSO<sub>2</sub>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<sup>7)</sup>があり、図3.2.1より、その排出量は2006年から2017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<sub>x</sub>排出量については、2011年以降減少傾向にある。

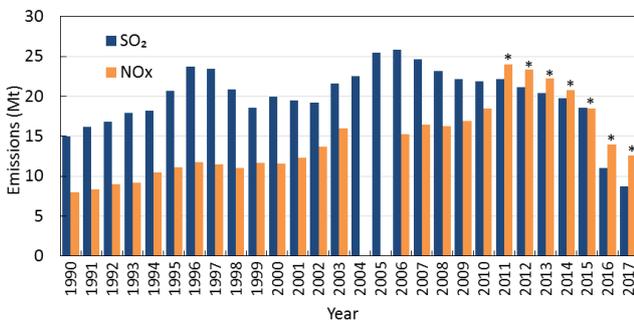


図3.2.1 中国におけるSO<sub>2</sub>およびNO<sub>x</sub>排出量<sup>4)</sup>  
(\*2011年以降はNO<sub>x</sub>に自動車起源が加算)

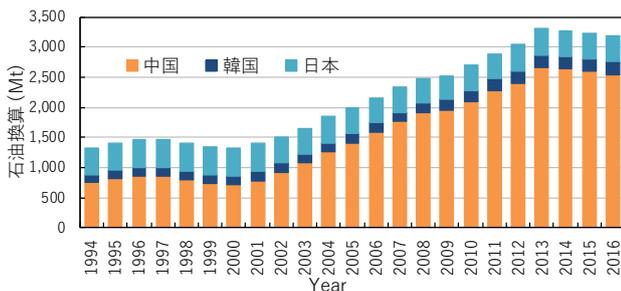


図3.2.2 中国、韓国および日本のエネルギー消費のトレンド

国内における人為発生源由来のSO<sub>2</sub>およびNO<sub>x</sub>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<sup>8)</sup>。またNH<sub>3</sub>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SO<sub>2</sub>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<sup>9)</sup>。

#### － 引用文献 －

- 1) 気象庁報道発表資料, <http://www.jma.go.jp/jma/press/tenko.html> (2020.9.29アクセス)
- 2) 気象庁:黄砂, [http://www.data.jma.go.jp/gmd/env/kosahp/kosa\\_table\\_1.html](http://www.data.jma.go.jp/gmd/env/kosahp/kosa_table_1.html) (2020.9.29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) National Bureau of Statistics of China, <http://english.mee.gov.cn/Resources/Reports/> (2020.9.29アクセス)
- 5) Tian H., Hao J., Nie Y.: Recent trends of NO<sub>x</sub> 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/> (2020.9.29アクセス)
- 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) 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
- 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、2019年度のとりまとめについて報告する。

2019年度の湿性沈着調査に対し、44機関59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<sup>1)</sup>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。

2019年度は、月間データでは708個中25データ(3.5%)が除外され、年間データでは59地点中2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<sub>1</sub>) および電気伝導率バランス (R<sub>2</sub>) 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)」<sup>2)</sup>に従って、イオンバランス(以下、R<sub>1</sub>)および電気伝導率バランス(以下、R<sub>2</sub>)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<sub>1</sub>およびR<sub>2</sub>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<sub>1</sub>およびR<sub>2</sub>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<sub>1</sub>による評価では、全ての項目が測定された708個のデー

表4.1.1 イオンバランス (R<sub>1</sub>) および電気伝導率バランス (R<sub>2</sub>) の許容範囲

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

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

$\Lambda_{\text{cal}}$ : 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

$\Lambda_{\text{obs}}$ : 降水試料の電気伝導率測定値

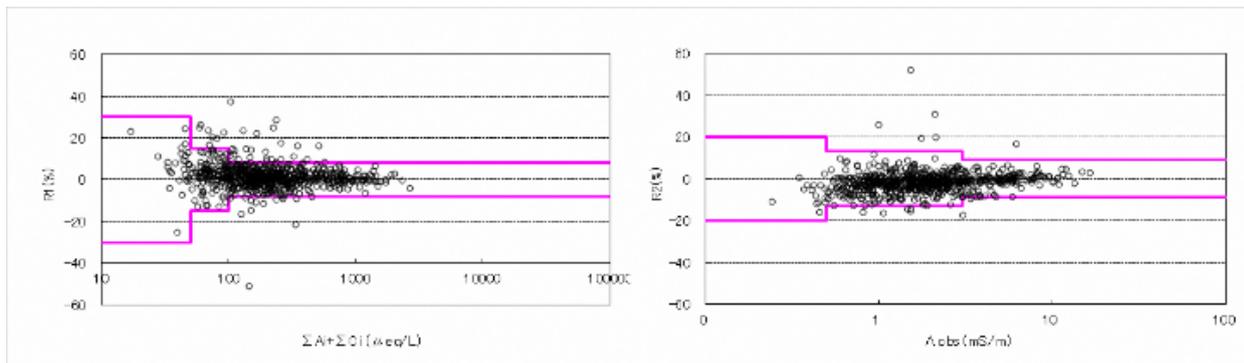


図4.1.1 イオンバランス (R<sub>1</sub>) と総イオン濃度 (ΣAi + ΣCi) および電気伝導率バランス (R<sub>2</sub>) と実測値との比較

タ中、 $R_1$ が許容範囲内にあったデータは663個（適合率93.6%）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695個（適合率98.2%）であった。 $R_1$ および $R_2$ の分布を図4.1.1に示す。2009～2019年度における $R_1$ および $R_2$ の適合率は、 $R_1$ ：92～97%、 $R_2$ ：94～99%の範囲にあり高いレベルで保たれている<sup>1,3,12</sup>。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、2019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。このうち全環研の全国酸性雨調査に参加している機関（以下、全環研報告機関）は32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<sup>13</sup>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が付いた機関は無かった。また、低濃度試料では、DQOを満たすデータが92.2%、フラグEまたはフラグXが付いたデータは、それぞれ7.0%および0.8%であった。フラグ付与率は高濃度試料、低濃度試料ともに2018年度<sup>12</sup>と同程度であった。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2018年度<sup>12</sup>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 <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>
高濃度試料	フラグE	0	0	0	0	1	0	4	2	0	0
	フラグX	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	相対標準偏差	1.2%	2.4%	2.5%	3.8%	2.6%	2.8%	7.6%	3.5%	5.2%	4.1%
		(n=37)	(n=37)	(n=37)	(n=37)	(n=37)	(n=37)	(n=37)	(n=37)	(n=37)	(n=37)
低濃度試料	フラグE	0	1	1	1	5	6	6	2	2	2
	フラグX	0	0	0	0	0	0	0	1	1	1
	相対標準偏差	1.9%	3.1%	3.6%	4.9%	6.7%	10.0%	10.0%	7.2%	7.6%	7.1%
		(n=37)	(n=37)	(n=37)	(n=37)	(n=37)	(n=37)	(n=37)	(n=37)	(n=37)	(n=37)

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 <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>
定量下限値がDQOsを満たしていない機関数	0	0	0	1	1	1	2	1
上記機関のうち、高濃度試料のフラグが付いた機関数	0	0	0	0	1	0	0	0
上記機関のうち、低濃度試料のフラグが付いた機関数	0	0	0	1	1	0	0	0
検出下限値に係るDQOs(μmol L <sup>-1</sup> )	0.3	0.5	0.5	0.3	0.3	0.2	0.3	0.8

DQOs：精度管理目標値

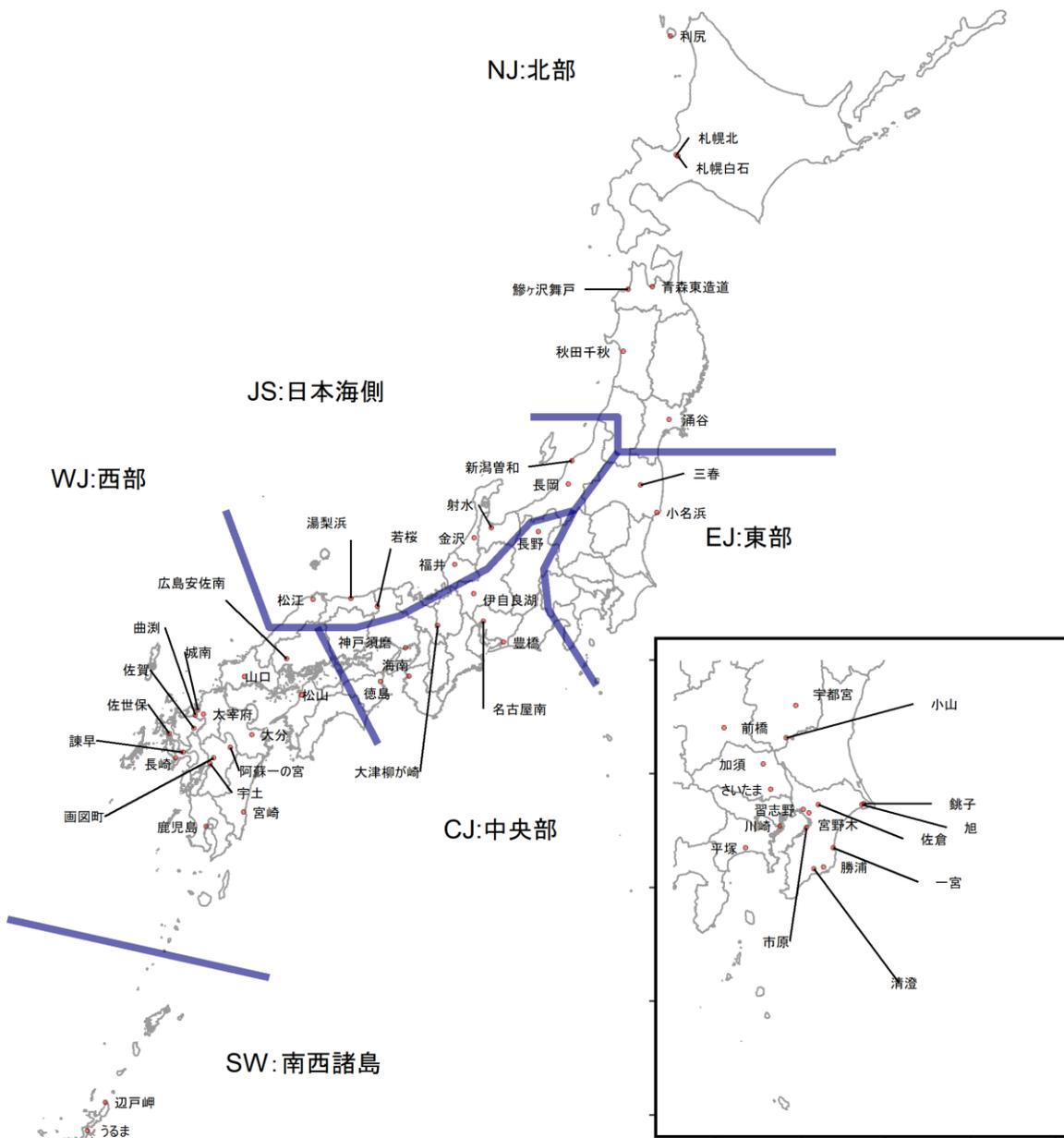


図4.2.1 地域区分

一方、国設局管理機関（15機関）の2019年度分析精度管理調査<sup>13)</sup>では、高濃度試料でDQ0を満たすデータは98.7%、フラグEが付いたデータは0.7%であり、フラグXが付いたデータも0.7%であった。また、低濃度試料では、DQ0を満たすデータは95.3%、フラグEまたはフラグXが付いたデータはそれぞれ2.7%および2.0%であった。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。2019年度の相対標準偏差は、高濃度試料は陰イオン：2.5～3.8%、陽イオン：2.8～7.6%、低濃度試料は陰イオン：3.6～6.7%、陽イオン：7.1～10.0%であり、2018年度<sup>12)</sup>と同様にK<sup>+</sup>、Ca<sup>2+</sup>およびMg<sup>2+</sup>のバラツキが大きかった。国設局管理機関における2019年度分析精度管理調査<sup>13)</sup>の相対標準偏差は、高濃度試料では陰イオン：1.8～2.6%、陽イオン：2.3～6.1%、低濃度試料では陰イオン：2.1～5.8%、陽イオン：3.4～9.4%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：1.2%、低濃度試料：1.9%）が、H<sup>+</sup>濃度に換算すると大きなバラツキが予想される。R<sub>1</sub>およびR<sub>2</sub>の計算過程ではH<sup>+</sup>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<sup>+</sup>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<sup>+</sup>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DQO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DQOを満たしていない機関数は、Mg<sup>2+</sup>で2機関と最も多く、Na<sup>+</sup>、K<sup>+</sup>、Ca<sup>2+</sup>およびNH<sub>4</sub><sup>+</sup>でそれぞれ1機関であった。定量下限値がDQO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DQOを満たしていない機関があった全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>DQOであるということではなかったが、定量下限値>DQOの機関はフラグが付与されることが多かった。

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R<sub>1</sub>およびR<sub>2</sub>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試料濃度の上限値（暫定）を提案した<sup>4)</sup>。

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、捕集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、2019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<sup>1)</sup>を参照頂きたい。

### 4.2.2 pH、ECおよびイオン成分濃度の年加重平均値

2019年度の年間データが有効となった地点（57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<sup>+</sup>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。

うるまにおいて、Ca<sup>2+</sup>およびnss-Ca<sup>2+</sup>が高濃度となった。これは、周辺のセメント工場の影響が考えられる。

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 区分 <sup>1)</sup>	排出量(t km <sup>-2</sup> y <sup>-1</sup> )			降水量 (mm)	pH	EC (mS m <sup>-1</sup> )	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	nss-Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	H <sup>+</sup>
		SO <sub>2</sub>	NO <sub>x</sub>	NH <sub>3</sub>														
利尻	NJ	0.81	0.44	0.02	728	4.86	2.95	17.0	9.5	13.7	140.8	16.5	124.7	3.6	5.2	2.4	14.6	13.8
札幌北	NJ	2.76	14.57	1.15	911	4.81	2.51	16.2	11.1	14.9	96.7	18.8	84.0	3.0	5.4	3.5	10.2	15.5
札幌白石	NJ	2.72	14.72	1.27	866	4.89	2.36	16.8	11.7	15.1	99.9	19.6	83.5	2.6	5.5	3.7	9.6	12.8
青森東道	NJ	0.74	2.19	0.42	970	4.83	4.15	23.6	12.1	19.1	228.4	21.0	190.6	4.9	8.7	4.5	22.0	14.9
釜ヶ沢舞戸	NJ	0.12	0.61	0.44	1174	4.85	4.98	26.1	11.2	19.0	290.5	18.5	245.0	6.1	10.1	4.6	28.3	14.7
涌谷	NJ	1.07	3.64	2.28	1437	5.03	0.89	6.2	5.2	8.0	18.4	10.4	15.7	0.6	7.4	1.0	1.7	9.3
秋田千秋	NJ	3.40	4.17	0.48	1589	4.84	2.95	17.8	9.6	14.9	159.2	21.0	134.9	5.5	6.2	3.2	15.9	14.5
三春	EJ	0.64	3.60	1.29	(1017.0)	(5.1)	(0.8)	(7.0)	(6.2)	(13.3)	(15.5)	(12.9)	(13.9)	(1.0)	(4.4)	(4.0)	(2.3)	(8.2)
小名浜	EJ	9.47	11.50	0.78	1578	4.98	1.59	8.2	5.5	7.1	58.3	6.9	45.1	1.3	2.1	1.1	5.9	10.5
新潟曾和	JS	1.41	6.04	1.00	1651	4.96	3.54	19.8	10.2	16.9	187.6	16.9	159.5	4.1	7.8	4.2	18.5	10.9
長岡	JS	0.66	2.83	0.59	2499	4.97	3.35	19.7	10.6	17.0	173.5	18.3	150.5	3.5	7.1	3.8	17.7	10.7
宇都宮	EJ	1.63	6.12	2.53	1945	5.33	0.94	9.3	8.6	16.4	13.1	22.1	11.2	0.7	2.7	2.5	1.5	4.7
小山	EJ	1.63	6.12	2.53	1330	5.41	0.87	8.8	8.1	15.3	13.3	24.2	11.1	0.9	3.4	3.1	1.8	3.9
加須	EJ	1.06	10.36	2.83	1474	5.02	1.04	9.5	8.6	20.3	18.6	21.7	14.4	0.9	3.4	3.1	2.1	9.6
さいたま	EJ	3.70	28.65	4.67	1763	5.05	1.19	9.5	7.9	16.4	29.7	19.0	26.2	0.8	3.1	2.5	3.1	8.9
前橋	EJ	1.89	7.58	6.83	1517	5.20	0.91	7.8	7.4	18.0	8.8	30.4	6.8	0.4	2.4	2.3	1.0	6.3
市原	EJ	9.71	36.61	2.79	1565	5.45	3.12	23.9	15.0	9.4	185.7	15.9	147.1	5.1	10.9	7.6	16.3	3.5
銚子	EJ	8.61	6.89	3.67	2022	5.87	2.99	14.4	4.6	5.6	192.0	16.9	160.5	4.9	5.8	2.2	16.0	1.4
一宮	EJ	0.11	1.12	0.85	1852	5.45	1.74	9.4	4.2	4.2	106.0	7.4	85.5	2.7	2.9	1.0	8.5	3.6
旭	EJ	8.59	6.93	3.87	2379	6.33	3.78	20.3	9.0	10.4	211.7	46.1	187.4	5.6	5.1	1.4	16.9	0.5
佐倉	EJ	1.72	15.47	2.54	1985	5.17	1.26	10.6	8.5	11.7	42.2	11.4	35.2	2.2	4.6	3.8	4.5	6.8
清澄	EJ	0.08	0.64	0.84	2409	5.74	2.20	12.9	7.1	8.8	118.4	12.8	95.2	10.6	5.9	3.8	10.4	1.9
勝浦	EJ	0.09	0.60	0.60	2520	5.44	2.03	10.0	3.9	3.7	127.5	5.2	101.4	3.6	3.5	1.2	10.3	3.6
習志野	EJ	7.35	31.11	3.69	1600	5.21	1.19	9.8	7.9	11.1	40.7	13.1	32.0	2.6	3.5	2.7	3.6	6.2
宮野木	EJ	8.33	29.28	3.36	1133	5.43	1.31	8.7	6.4	7.2	47.6	7.0	38.0	3.8	5.5	4.6	4.9	3.7
平塚	EJ	0.52	10.46	2.61	1597	5.18	3.56	17.9	6.5	13.7	222.0	29.8	187.7	5.1	7.1	2.9	20.1	6.5
川崎	EJ	11.95	55.76	3.48	1541	5.53	2.60	15.4	7.5	9.8	149.7	16.8	130.1	5.5	7.6	4.7	14.0	3.0
長野	CJ	0.87	2.64	0.57	534	5.17	0.70	7.3	7.0	11.0	6.1	15.4	4.6	0.7	2.7	2.6	0.9	6.8
JS	5.03	11.55	1.43	2359	4.83	2.58	16.1	10.4	16.6	110.4	18.7	93.5	3.0	4.7	2.6	11.0	14.8	
金沢	JS	1.49	3.78	0.97	2461	4.75	3.15	17.8	10.3	16.8	131.3	17.7	123.9	3.4	5.4	2.7	14.1	17.7
福井	JS	1.31	4.50	0.68	2068	4.73	3.01	19.6	12.9	19.8	139.6	18.0	110.1	3.0	5.7	3.2	13.3	18.5
伊自良湖	CJ	1.12	3.14	1.25	2715	4.78	1.15	9.5	8.8	12.4	13.5	11.8	11.2	0.6	1.8	1.6	1.4	16.4
豊橋	CJ	1.42	6.49	3.81	2026	5.23	1.07	8.5	6.7	11.4	35.4	10.9	28.5	0.8	3.1	2.4	4.5	5.9
名古屋南	CJ	8.83	35.50	3.82	1726	5.21	0.93	8.8	7.9	12.0	17.3	13.8	13.6	1.1	2.9	2.6	1.8	6.1
大津柳が崎	CJ	1.46	10.52	1.29	(1659.0)	(4.7)	(1.4)	(10.9)	(10.0)	(3.4)	(16.9)	(14.3)	(14.6)	(1.2)	(2.8)	(2.5)	(1.9)	(19.9)
神戸須磨	CJ	6.64	18.72	1.13	1154	4.71	1.70	13.1	10.9	14.8	44.4	11.9	37.1	1.2	3.1	2.3	4.4	19.6
和歌山	CJ	8.97	13.33	0.87	1839	4.92	1.21	12.1	10.4	10.1	33.9	8.9	27.6	0.9	3.7	3.1	3.5	12.1
若桜	JS	0.01	0.29	0.28	2015	4.62	2.12	15.9	11.8	16.5	69.9	15.6	66.4	2.0	4.1	2.6	7.0	24.3
湯梨浜	JS	0.10	0.72	0.77	1509	4.60	4.22	24.5	13.7	25.1	208.3	23.5	178.5	4.8	7.6	3.6	21.1	24.8
松江	JS	0.26	1.38	0.50	1710	4.70	3.01	18.9	12.4	19.7	124.8	16.2	106.2	3.0	5.0	2.6	12.6	20.0
広島安佐南	WJ	1.89	7.35	0.99	1783	4.57	1.75	16.1	15.1	15.4	20.1	12.7	16.1	0.9	2.3	2.0	2.2	26.8
山口	WJ	1.17	7.33	0.57	2051	4.82	1.37	14.5	13.2	13.2	23.6	12.2	22.6	3.2	3.4	2.9	2.9	15.2
徳島	CJ	1.10	4.60	1.46	1599	4.88	1.84	11.9	7.8	10.8	79.3	10.9	66.8	2.1	3.8	2.3	8.1	13.2
松山	WJ	5.86	9.87	0.89	1219	4.51	1.82	17.4	16.5	15.5	17.8	17.0	14.1	0.9	4.2	3.9	2.5	31.2
太宰府	WJ	2.44	12.89	1.92	1938	4.74	1.86	15.1	12.8	11.4	46.0	13.3	37.3	1.4	3.5	2.6	4.4	18.2
曲淵	WJ	1.52	9.07	1.44	2701	4.81	1.92	12.8	9.2	10.4	69.5	10.3	58.2	1.9	2.6	1.3	6.7	15.6
城南	WJ	1.65	10.79	1.61	1825	4.71	2.02	14.6	11.4	12.6	64.2	13.1	52.2	1.5	3.1	1.9	6.2	19.6
佐賀	WJ	1.20	3.87	1.46	2301	4.65	1.50	14.7	13.4	11.4	23.7	17.3	21.1	0.9	3.1	2.6	2.5	22.6
諫早	WJ	3.81	5.35	1.25	753	4.45	2.43	22.0	19.0	14.1	61.5	18.4	49.8	1.7	3.5	2.3	6.2	35.5
長崎	WJ	0.57	2.86	0.61	1828	4.77	1.74	13.6	10.9	11.3	50.6	12.7	43.8	1.5	3.6	2.6	6.0	16.8
佐志保	WJ	4.82	8.15	1.34	(339.0)	(4.5)	(2.8)	(22.9)	(19.6)	(17.3)	(69.0)	(8.5)	(53.8)	(1.6)	(4.5)	(3.3)	(5.8)	(30.6)
宇土	WJ	1.19	5.04	1.36	2296	4.68	1.31	10.3	9.5	9.0	17.1	10.4	12.4	0.8	1.7	1.4	1.7	20.8
阿蘇一の宮	WJ	0.15	0.63	1.21	2236	4.10	4.48	24.8	24.1	9.1	89.2	15.9	10.7	1.7	11.7	11.4	4.5	79.3
画図町	WJ	0.95	4.88	2.72	2116	4.68	1.34	11.2	10.7	10.5	14.9	14.2	9.3	0.8	2.4	2.2	1.6	20.0
大分	WJ	11.58	17.02	1.16	2089	4.64	1.65	13.6	12.5	10.1	25.0	8.6	18.1	0.5	1.9	1.5	2.3	23.0
宮崎	WJ	0.31	1.84	1.02	2837	4.67	1.89	13.9	10.2	9.8	71.7	11.7	61.1	1.1	3.3	1.9	6.9	13.6
鹿児島	WJ	1.00	3.55	1.31	2106	4.40	3.18	23.8	20.7	9.1	84.8	13.5	51.7	1.8	9.4	8.3	6.0	39.4
うるま	SW	10.14	9.25	1.28	2201	5.47	2.94	16.6	7.8	8.0	179.0	14.3	144.3	4.7	17.1	13.9	21.3	3.4
辺戸岬	SW	0.00	0.03	0.32	2508	5.03	2.76	12.5	4.0	6.1	164.4	4.2	140.0	3.2	4.1	1.0	18.9	9.2
最低値					534	4.1	0.7	6.2	3.9	3.7	6.1	4.2	4.6	0.4	1.4	1.0	0.9	0.5
最高値					2837	6.33	4.98	26.1	24.1	25.1	290.5	46.1	245.0	10.6	17.1	13.9	28.3	79.3
加重平均値※					1795	4.83	2.19	14.6	10.1	12.3	89.4	15.4	73.4	2.6	4.8	3.2	8.6	14.6

<sup>1)</sup>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)

### 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、2019年度の季節変動（中央値）を地域区分別に図4.2.3に示す。

濃度の季節変動において特徴的なことの一つは、ほとんどの地域において秋季に濃度が低下した。また、冬季に多くの物質の濃度が高くなる傾向も確認された。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<sup>1)</sup>が、2006年度にはその傾向が西部でも確認され<sup>3)</sup>、2007～2018年度も引き続き同様の傾向がみられた<sup>4-12)</sup>。

### 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、2010～2019年度の10年間のうち7年以上参加している地点と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が、WJでは近年、H<sup>+</sup>やnss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>でやや上昇する傾向が見られており、今後の推移を注視する必要がある。

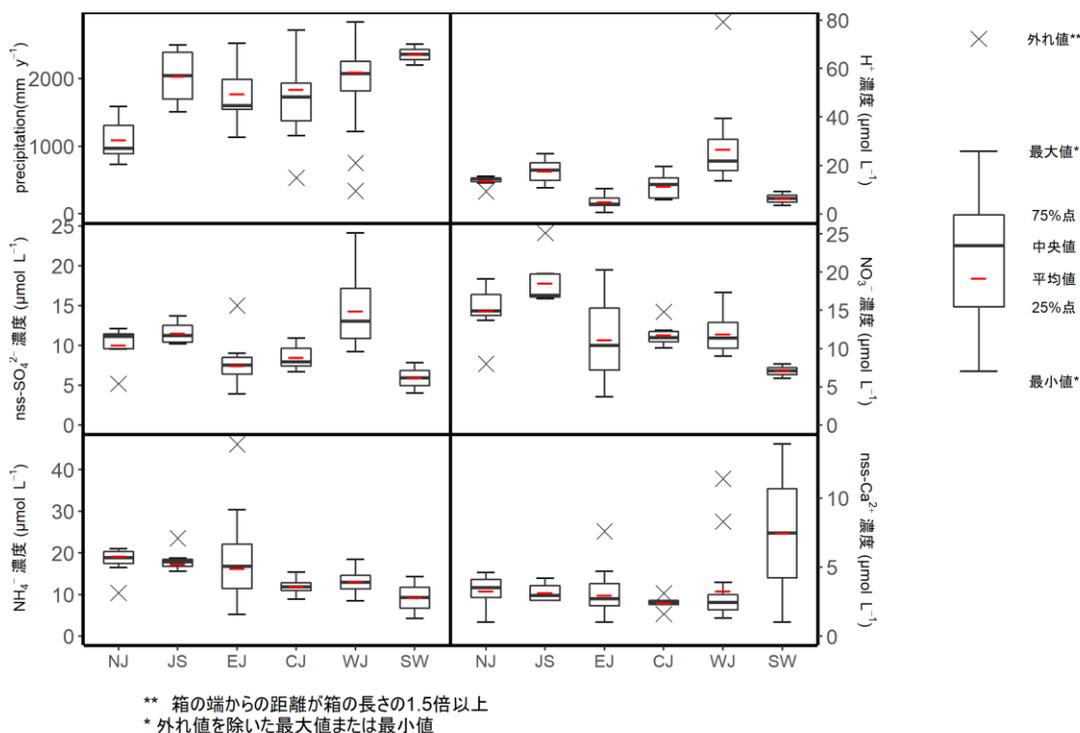


図4.2.2 主要イオン成分の年加重平均濃度の分布

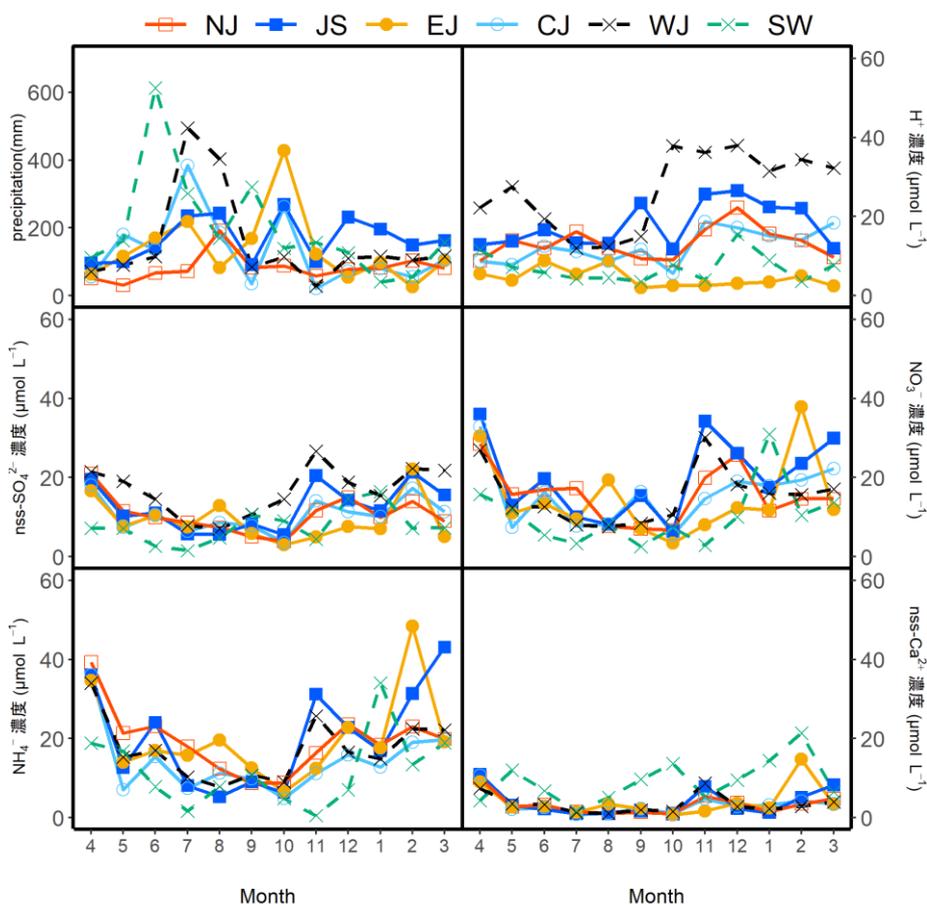


図4.2.3 主要イオン成分濃度の地域別季節変動（中央値）

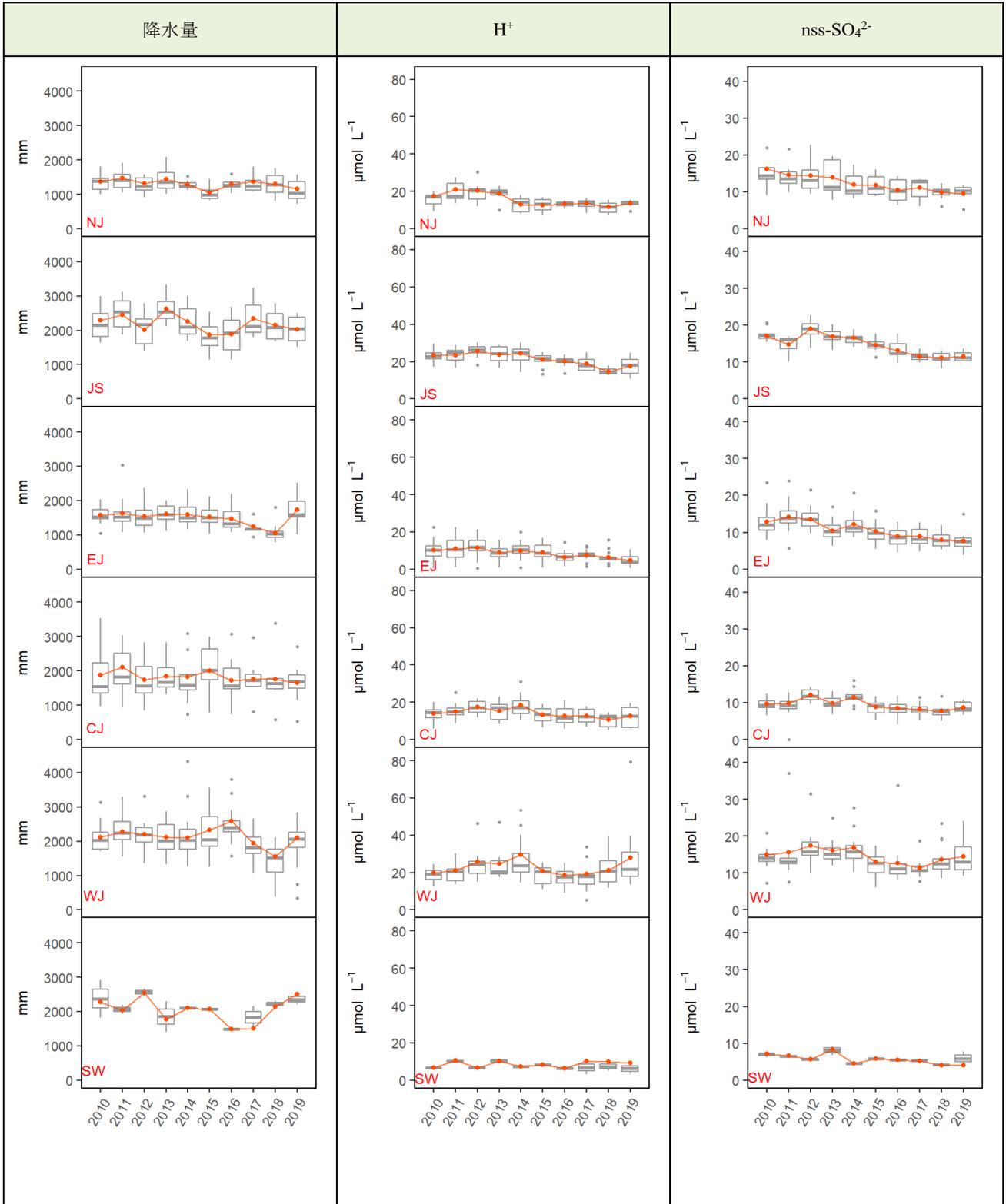


図4.2.4 イオン成分濃度の地域別経年変動（降水量，H<sup>+</sup>，nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>）

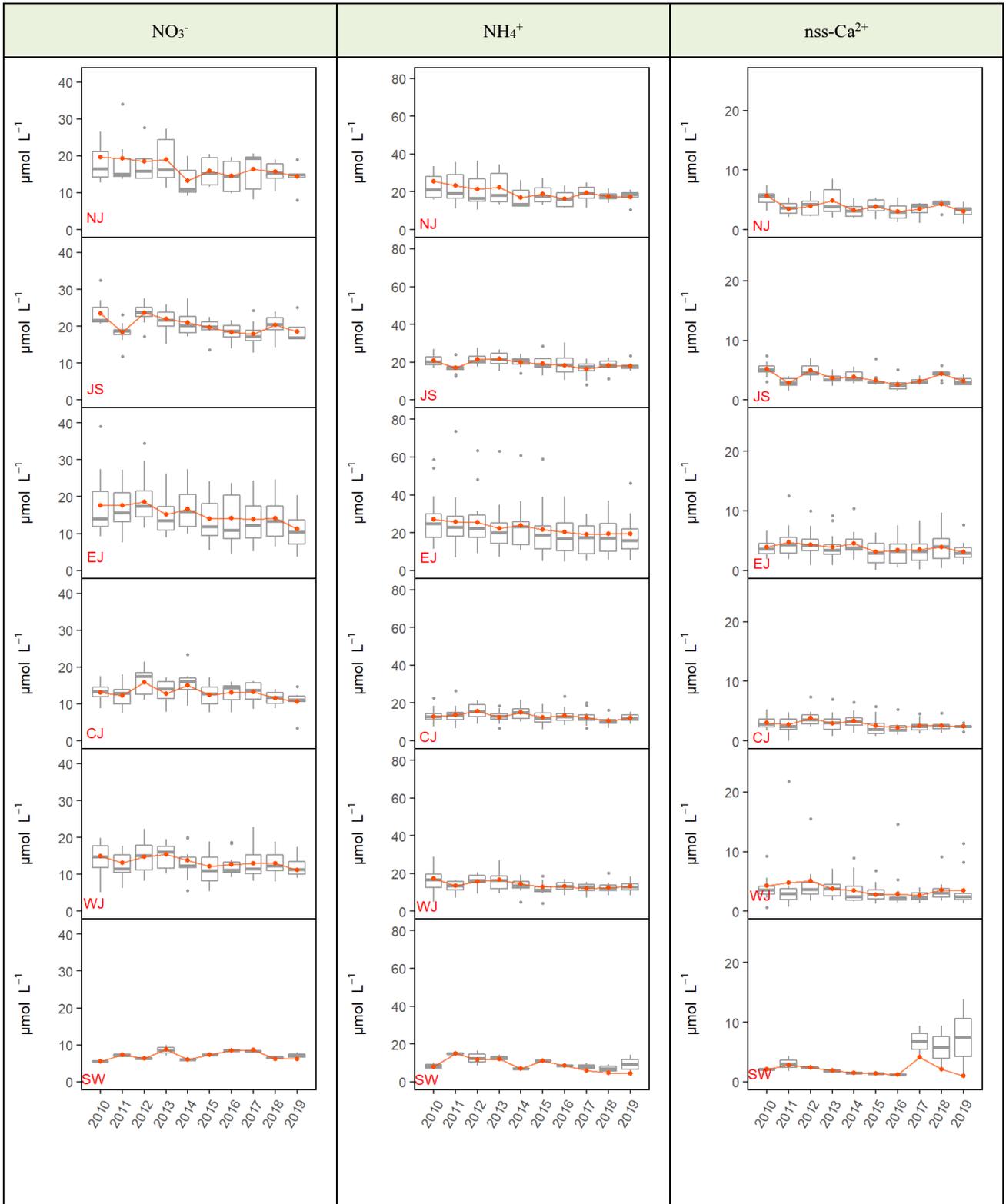


図4.2.4 イオン成分濃度の地域別経年変動 ( $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{nss-Ca}^{2+}$ )

### 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

2019年度の年間データが有効となった56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	(地点名)
			最大値	(地点名)
降水量	(mm y <sup>-1</sup> )	1783	534	(長野)
			2837	(宮崎)
nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	(mmol m <sup>-2</sup> y <sup>-1</sup> )	16.7	3.7	(長野)
			53.9	(阿蘇一の宮)
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	(〃)	20.7	5.9	(長野)
			42.4	(長岡)
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	(〃)	24.9	7.9	(宮野木)
			109.7	(旭)
nss-Ca <sup>2+</sup>	(〃)	4.5	1.4	(長野)
			30.6	(うるま)
H <sup>+</sup>	(〃)	18.0	1.1	(旭)
			177.4	(阿蘇一の宮)

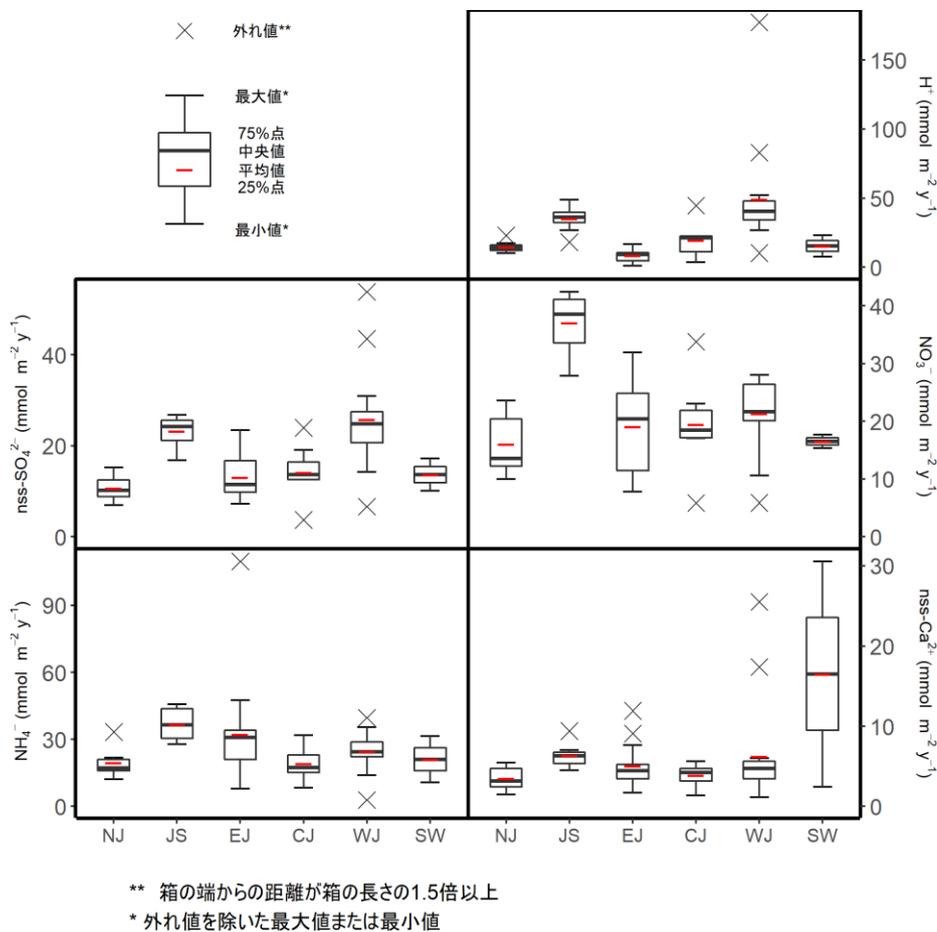


図4.3.1 主要イオン成分年間沈着量および降水量の分布

#### 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。

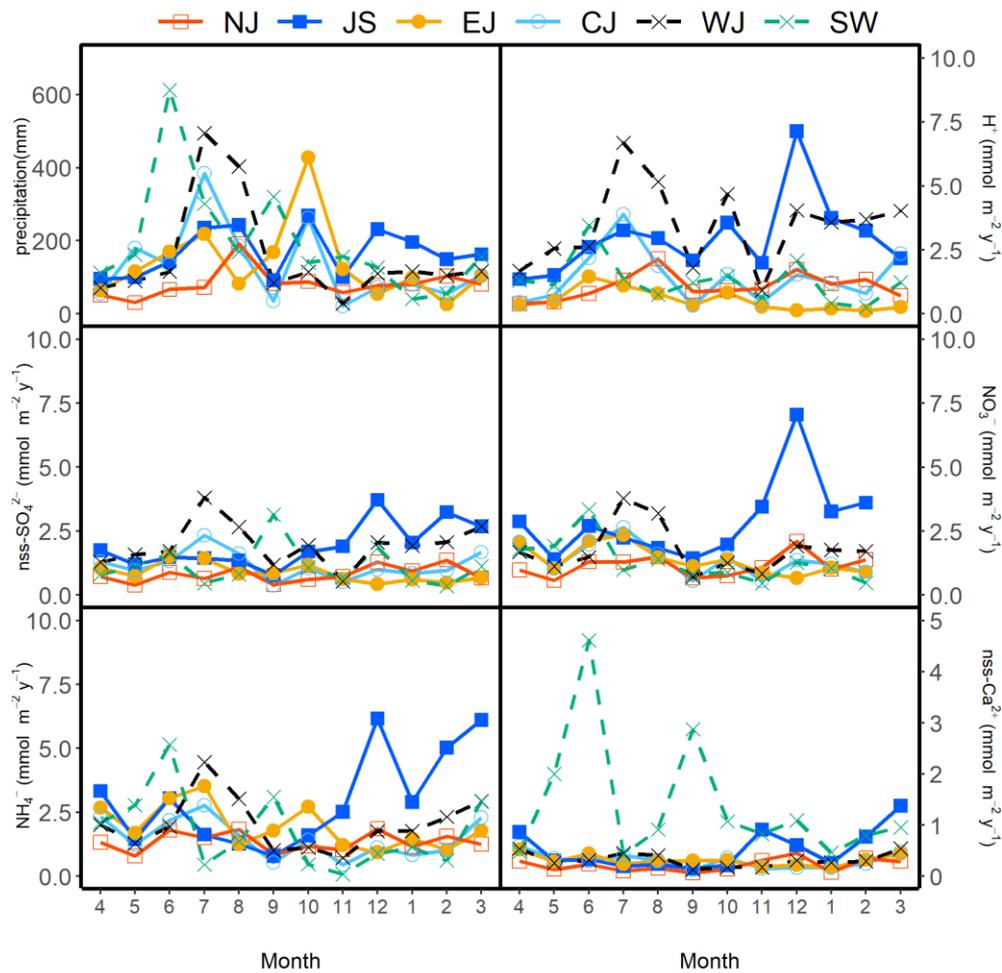


図4.3.2 イオン成分沈着量の地域別季節変動

一 引用文献一

- 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](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21年度），全国環境研会誌，**36**，106-146，2011
- 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22年度），全国環境研会誌，**37**，110-158，2012
- 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23年度），全国環境研会誌，**38**，84-126，2013
- 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24年度），全国環境研会誌，**39**，100-146，2014
- 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25年度），全国環境研会誌，**40**，98-142，2015
- 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26年度），全国環境研会誌，**41**，3，2-37，2016
- 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27年度），全国環境研会誌，**42**，3，83-126，2017
- 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（平成28年度），全国環境研会誌，**43**，3，79-119，2018
- 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2017（平成29年度），全国環境研会誌，**44**，3，74-115，2019
- 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2018（平成30年度），全国環境研会誌，**45**，3，85-121，2020
- 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：年度酸性雨測定分析機関間比較調査結果報告書（大気系），2019

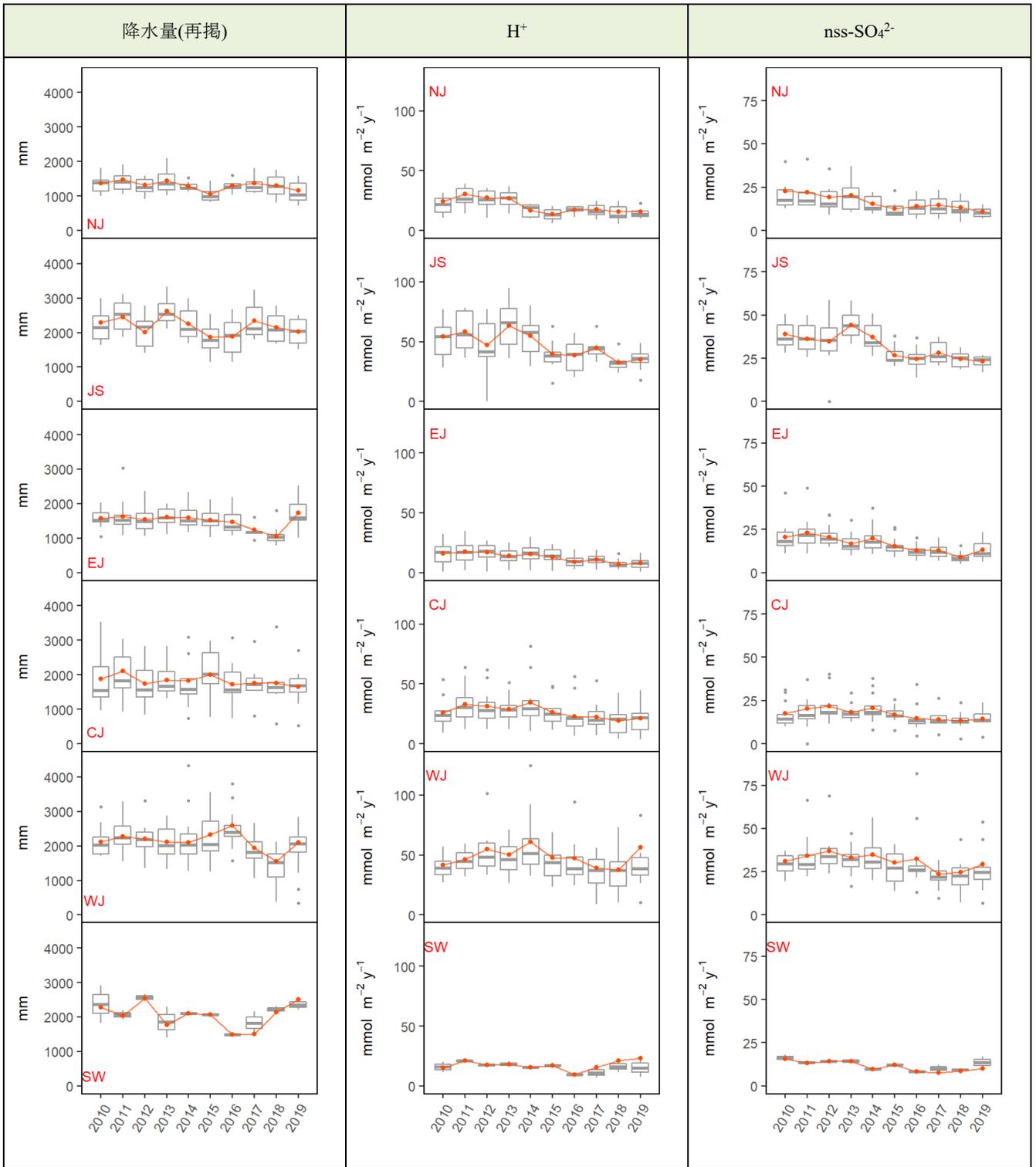


図4.3.3 イオン成分沈着量の地域別経年変動（降水量，H<sup>+</sup>，nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>）

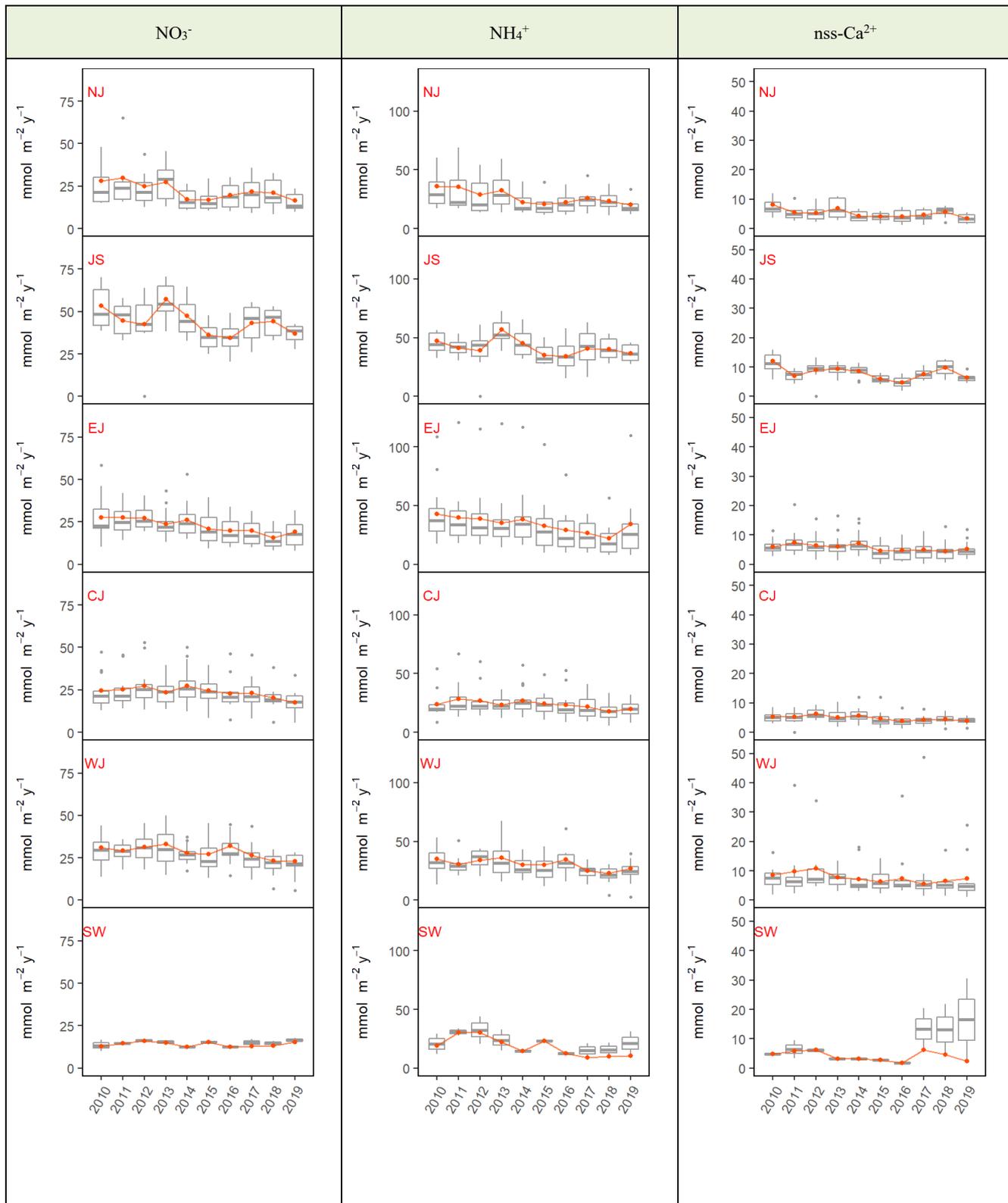


図4.3.3 イオン成分沈着量の地域別経年変動 ( $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{nss-Ca}^{2+}$ )

## 5. 乾性沈着（フィルターパック法）

2019年度のフィルターパック法（以下、FP法）による調査地点および地域区分を図5.1.1に示す。調査は27地点で実施した。地域区分は湿性沈着と同じ北部[NJ]，日本海側[JS]，東部[EJ]，中央部[CJ]，西部[WJ]および南西諸島[SW]の6地域とした。

なお、調査結果には国設局および他の学術機関との共同研究データが含まれているが、データ確定を部会基準（5.1に後述）で行ったため、特に国設局については環境省が公表したデータ<sup>1)</sup>と異なる場合がある。

また、成分名に付してある(g)はガス状成分を、(p)は粒子状成分を表す。

## 5.1 データ確定

### 5.1.1 完全度および流量変動による判定

FP法の有効データ数を表5.1.1に示す。データ確定においては、完全度（測定期間の適合度を含む）を指標として、月データで60%以上、年データで80%以上の場合を有効データとし、それ以外を参考値として解析対象から除外した。ただし、月データの完全度が60%未満でも、年データが80%以上であれば、年平均値は解析対象とした。また、サンプリングや測定に不具合があると考えられた場合は参考値または欠測とした。

また、これまでの調査結果から、FP法は吸引流量の変動が大きいと異常値になりやすいことがわかっている<sup>2)</sup>。

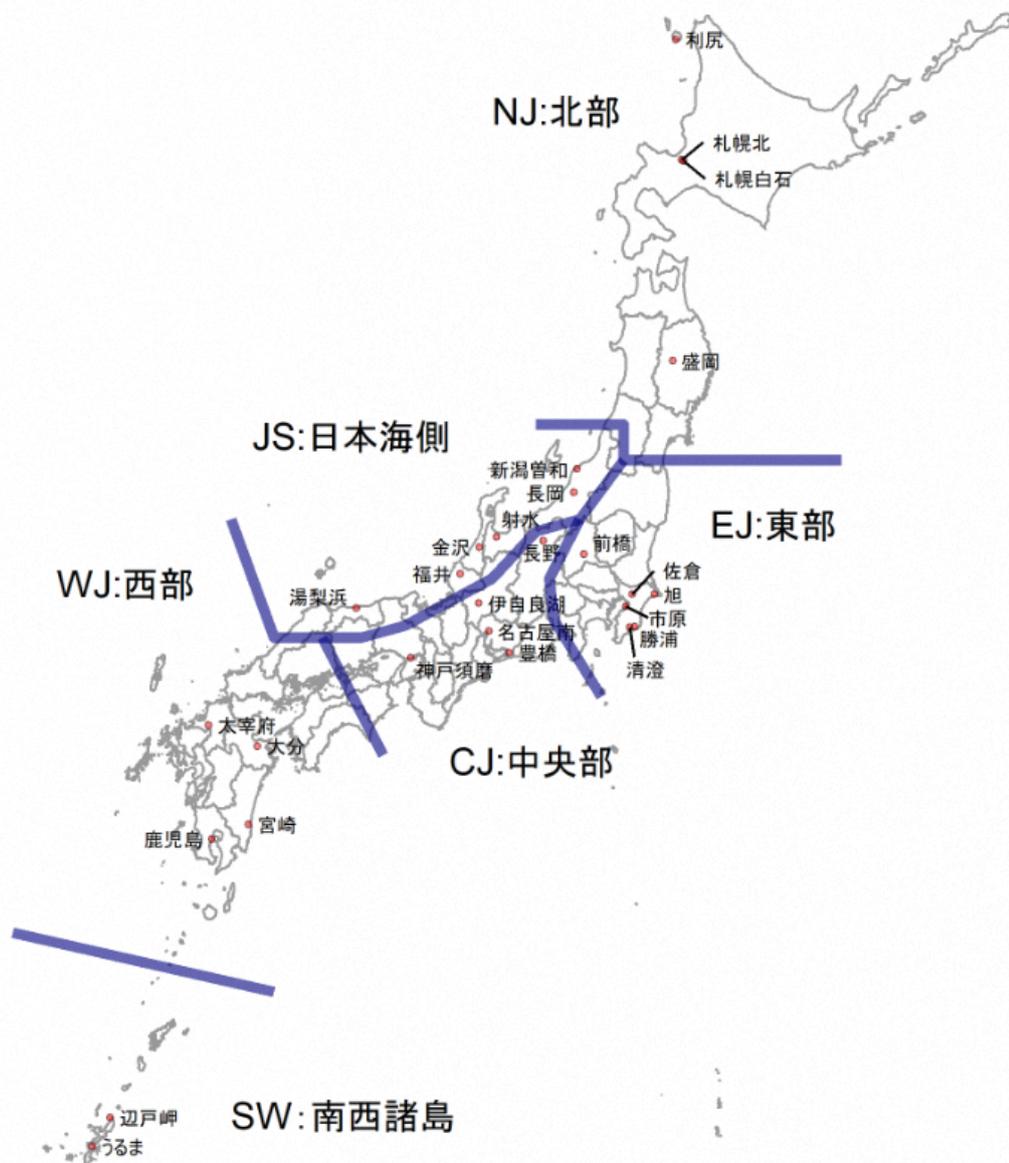


図5.1.1 FP法の調査地点（地域区分は表2.1.1のとおり）

表5.1.1 フィルターパック法による調査結果の有効データ数(2019年度)

成分	地点数	月平均濃度							年平均濃度						
		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	有効データ 割合(%)	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	有効データ 割合(%)
HNO <sub>3</sub> (g)	27	5	319	14	0	305	40	96	0	27	1	0	26	1	96
SO <sub>2</sub> (g)	27	5	319	14	0	305	6	96	0	27	1	0	26	0	96
HCl(g)	27	5	319	14	0	305	1	96	0	27	1	0	26	0	96
NH <sub>3</sub> (g)	27	5	319	16	0	303	0	95	0	27	1	0	26	0	96
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> (p)	27	5	319	14	0	305	0	96	0	27	1	0	26	0	96
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> (p)	27	5	319	14	0	305	0	96	0	27	1	0	26	0	96
Cl <sup>-</sup> (p)	27	5	319	14	0	305	1	96	0	27	1	0	26	0	96
Na <sup>+</sup> (p)	27	5	319	14	0	305	0	96	0	27	1	0	26	0	96
K <sup>+</sup> (p)	27	5	319	14	0	305	1	96	0	27	1	0	26	0	96
Ca <sup>2+</sup> (p)	27	5	319	14	0	305	0	96	0	27	1	0	26	0	96
Mg <sup>2+</sup> (p)	27	5	319	14	0	305	0	96	0	27	1	0	26	0	96
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> (p)	27	5	319	14	0	305	0	96	0	27	1	0	26	0	96

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%以上の場合、さらにインパクト付きでは積算流量から計算した平均流量が吸引流量の許容範囲（例：流量2.0L min<sup>-1</sup>の許容範囲は1.5~3.0L min<sup>-1</sup>）を外れた場合）は年間を通して参考値としている。2019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、EANET<sup>3)</sup>の基準値（粒子：0.01μg m<sup>-3</sup>、ガス：0.1ppb）を用いた。吸引流量は1L min<sup>-1</sup>を基準とし、XL min<sup>-1</sup>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

SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p)およびCa<sup>2+</sup>(p)については、試料中のNa<sup>+</sup>(p)濃度と海水中でのモル濃度比を用いて、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で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<sup>4)</sup>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（HNO<sub>3</sub>(g)+NO<sub>3</sub><sup>-</sup>(p)）、全アンモニア（NH<sub>3</sub>(g)+NH<sub>4</sub><sup>+</sup>(p)）、全塩化物（HCl(g)+Cl<sup>-</sup>(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

#### 5.2.1.1 ガス状成分

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。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。エラーバーは最小値と最大値を表し、箱の端からの距離が箱の長さの1.5倍以上の値は外れ値として×で示されている。

各成分の傾向は次のとおりである。

全国中央値を前年度と比較すると、SO<sub>2</sub>(g)は20%、HCl(g)は11%、HNO<sub>3</sub>(g)とNH<sub>3</sub>(g)は6%それぞれ減少した。

#### SO<sub>2</sub>(g)

WJで高く、JSで低い傾向は例年とほぼ同じで、鹿児島は桜島を起源とする火山ガスの影響により高濃度であったと考えられる。また、市原は重油ボイラーが多く存在する工業地帯の影響により高濃度であったと考えられる。

#### HNO<sub>3</sub>(g)

CJおよびWJで高く、NJおよびSWで低い傾向は例年とほぼ同じである。

#### HCl(g)

例年はSWおよびEJが高いが、今年度は昨年度に引き続きWJおよびCJでも高かった。鹿児島は桜島を起源とする火山ガスの影響により高濃度であったと考えられる。NJで低い傾向は例年どおり。

#### NH<sub>3</sub>(g)

EJやSWで高い傾向は例年どおりで、旭、前橋およびうるま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ある。

表5.2.1 ガス状成分の年平均濃度（2019年度，地点別）

No.	都道府県市	地点名	SO <sub>2</sub> (g)	HNO <sub>3</sub> (g)	HCl(g)	NH <sub>3</sub> (g)
			(nmol m <sup>-3</sup> )			
1	北海道	利尻*	4.8	3.2	15.1	16.3
2	北海道	札幌北*	39.6	7.2	12.2	58.1
3	札幌市	札幌白石*	29.8	4.7	9.4	72.5
4	岩手県	盛岡*	11.1	7.8	13.7	89.9
5	新潟県	新潟曾和	9.6	7.7	18.8	73.9
6	新潟県	長岡	10.2	9.4	13.4	80.2
7	群馬県	前橋	10.3	21.9	21.7	537.6
8	千葉県	旭	13.9	5.4	20.0	2883.3
9	千葉県	勝浦	17.3	5.3	29.8	73.2
10	千葉県	清澄	17.7	5.2	26.3	60.9
11	千葉県	市原	103.4	12.9	36.5	171.9
12	千葉県	佐倉	26.3	11.5	26.8	99.8
13	長野県	長野	9.5	11.4	12.9	76.6
14	富山県	射水*	9.4	9.2	13.2	82.0
15	石川県	金沢	10.2	7.2	15.2	35.8
16	福井県	福井	16.2	12.2	25.2	68.2
17	岐阜県	伊自良湖	7.2	8.0	10.2	50.5
18	愛知県	豊橋*	22.2	14.6	21.2	133.3
19	名古屋市中	名古屋南	37.1	25.0	40.1	130.5
20	兵庫県	神戸須磨*	61.2	26.4	37.0	73.1
21	鳥取県	湯梨浜*	(9.3)	(4.3)	(11.9)	(88.0)
22	福岡県	太宰府*	38.5	20.4	21.1	137.2
23	大分県	大分*	61.9	15.2	15.7	62.3
24	宮崎県	宮崎	53.7	13.1	37.7	112.3
25	鹿児島県	鹿児島*	110.0	11.5	41.3	94.6
26	沖縄県	うるま*	21.0	4.6	22.5	280.4
27	沖縄県	辺戸岬*	14.6	3.5	28.9	43.6
全国最低値			4.8	3.2	9.4	16.3
全国最高値			110.0	26.4	41.3	2883.3
全国中央値			17.5	9.3	21.2	78.4
全国平均値			29.5	10.9	22.5	215.3

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) 定量下限値未満及び参考値は最低値，最高値，中央値，平均値から除外した。

注) \*はインパクタ付きフィルターパック法によりPM<sub>2.5</sub>と粗大粒子を分けて採取した地点を示す。

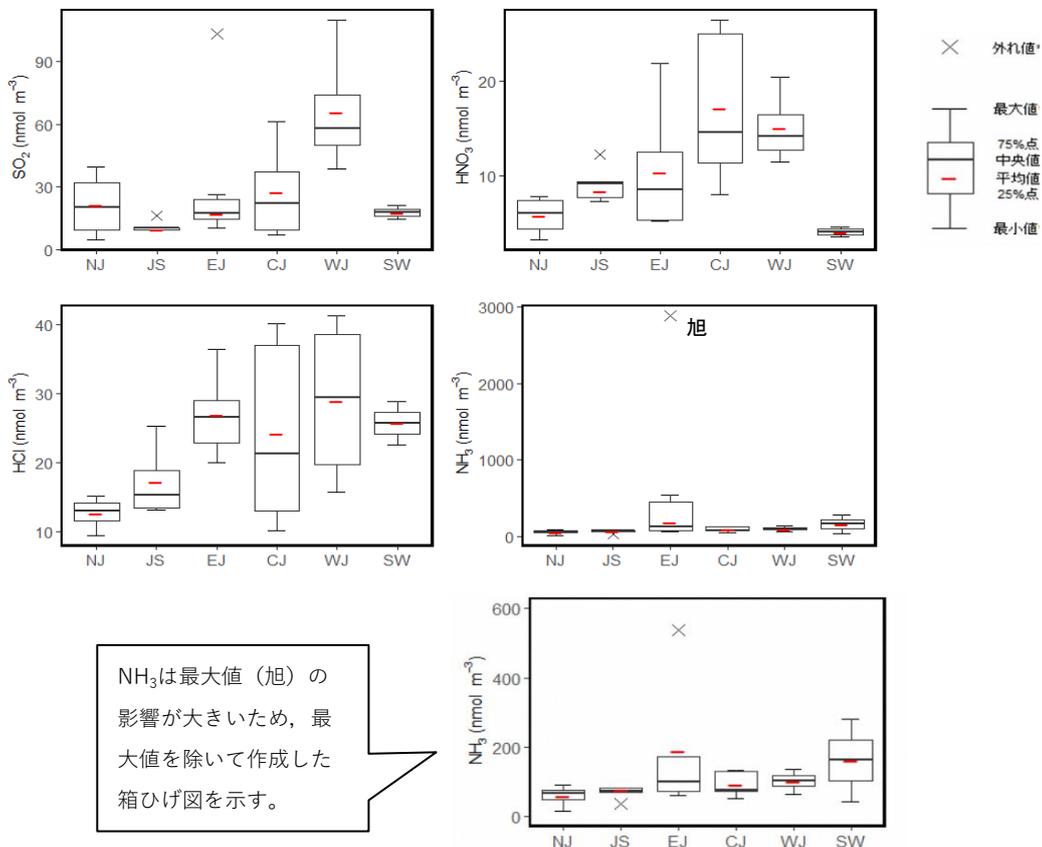


図5.2.1 ガス状成分の年平均濃度の分布（2019年度，地域区分別）

5.2.1.2 粒子状成分

粒子状成分について、地点別年平均濃度を表5.2.2に、地域区別の年平均濃度の箱ひげ図を図5.2.2に示す。

各成分の傾向は次のとおりである。

全国中央値を前年度と比較すると、調査地点は異なるがCl<sup>-</sup>(p)は5%、Mg<sup>2+</sup>(p)は1%増加し、それ以外の成分は減少した。特に減少率が大きかった成分は、nss-Ca<sup>2+</sup>(p)の-26%およびNO<sub>3</sub><sup>-</sup>(p)の-22%であった。

nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p)

WJで高く、NJで低い傾向は例年どおり。nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p)濃度の西高東低の分布は、Aikawa et al. (2010)<sup>5)</sup>が指摘しているように、アジア大陸の汚染大気の移流の影響を反映していると考えられる。

NO<sub>3</sub><sup>-</sup>(p)

EJやWJで高く、NJで低い傾向は例年どおり。昨年度に引き続き、CJやSWでも高かった。

Cl<sup>-</sup>(p), Na<sup>+</sup>(p), Mg<sup>2+</sup>(p)

SWで高い傾向は例年どおり。海塩の影響が大きいと考えられる。

NH<sub>4</sub><sup>+</sup>(p)

WJで高い傾向は例年どおり。NJとSWでは2018年度ま

で低い傾向にあったが、前年度比がNJで68%、SWで16%増となった。

5.2.1.3 ガス状および粒子状成分濃度の総計

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、地域区別の年平均濃度の箱ひげ図を図5.2.3に示す。

各成分の傾向は次のとおりである。

全国中央値を前年度と比較すると、HCl(g)+Cl<sup>-</sup>(p)は25%増加した。

SO<sub>2</sub>(g)+nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p)

WJで高い傾向は例年どおり。

HNO<sub>3</sub>(g)+NO<sub>3</sub><sup>-</sup>(p)

WJ, EJおよびCJで高く、NJ, JSおよびSWで低い傾向は例年とほぼ同じ。

HCl(g)+Cl<sup>-</sup>(p)

SWで高い傾向は例年どおり。

NH<sub>3</sub>(g)+NH<sub>4</sub><sup>+</sup>(p)

EJの旭や前橋、SWのうるま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みられた。

表5.2.2 粒子状成分の年平均濃度（2019年度，地点別）

No.	都道府県市	地点名	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> (p)	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> (p)	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> (p)	Cl <sup>-</sup> (p)	Na <sup>+</sup> (p)	K <sup>+</sup> (p)	Ca <sup>2+</sup> (p)	nss-Ca <sup>2+</sup> (p)	Mg <sup>2+</sup> (p)	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> (p)
			(nmol m <sup>-3</sup> )									
1	北海道	利尻*	21.4	17.1	9.2	65.0	70.1	3.1	2.9	1.3	8.1	23.5
2	北海道	札幌北*	23.9	21.8	18.1	31.2	34.4	3.1	4.9	4.2	3.9	47.9
3	北海道	札幌白石*	23.7	21.6	19.0	31.3	34.3	2.2	5.1	4.3	3.8	47.8
4	岩手県	盛岡*	21.4	20.0	15.0	19.5	23.5	2.7	2.7	2.2	2.5	39.6
5	新潟県	新潟曾和	24.8	21.5	15.9	42.6	53.7	2.7	4.6	3.4	6.3	30.3
6	新潟県	長岡	23.1	21.0	14.8	25.8	35.1	2.3	4.1	3.3	4.3	33.7
7	群馬県	前橋	25.6	24.1	39.2	11.9	23.8	3.2	11.4	10.8	4.0	55.7
8	千葉県	旭	31.6	26.3	32.9	75.4	86.4	3.6	8.1	6.2	8.7	50.9
9	千葉県	勝浦	28.5	24.1	20.8	46.4	73.3	3.3	6.4	4.8	8.4	21.3
10	千葉県	清澄	25.8	22.2	19.5	33.0	59.1	2.7	5.6	4.3	6.9	20.0
11	千葉県	市原	36.3	33.0	38.1	32.9	53.9	3.1	13.3	12.1	6.8	49.0
12	千葉県	佐倉	31.4	28.9	26.5	16.7	40.4	2.5	6.9	6.0	4.7	37.3
13	長野県	長野	19.3	18.6	10.3	2.4	11.2	1.9	2.1	1.8	1.2	28.1
14	富山県	射水*	25.0	23.2	13.8	19.7	29.9	3.2	3.6	2.9	3.5	42.5
15	石川県	金沢	26.4	24.0	15.0	25.5	39.8	2.7	4.5	3.6	4.9	36.5
16	福井県	福井	28.5	25.6	17.8	32.0	46.3	6.3	6.7	5.7	7.0	27.1
17	岐阜県	伊自良湖	26.6	25.8	7.4	2.2	13.7	2.4	3.3	3.0	1.9	34.6
18	愛知県	豊橋*	28.2	25.8	25.5	24.7	40.0	3.3	7.2	6.3	6.6	50.2
19	名古屋市	名古屋南	30.9	28.7	33.7	22.0	36.7	3.8	8.5	7.7	4.6	48.9
20	兵庫県	神戸須磨*	35.8	32.8	38.6	32.2	49.2	2.2	5.5	4.4	6.0	64.3
21	鳥取県	湯梨浜*	(23.6)	(19.8)	(21.2)	(54.8)	(61.9)	(3.1)	(3.9)	(2.5)	(7.1)	(40.7)
22	福岡県	太宰府*	40.7	38.4	35.8	23.1	36.8	2.7	6.8	6.0	4.2	84.2
23	大分県	大分*	42.0	40.5	21.6	12.7	25.7	3.0	5.6	5.0	3.7	71.8
24	宮崎県	宮崎	41.2	37.9	31.6	38.0	54.4	2.5	5.9	4.6	6.8	76.1
25	鹿児島県	鹿児島*	40.6	37.9	25.8	35.5	44.5	4.5	7.1	6.1	5.7	76.6
26	沖縄県	うるま*	37.8	31.2	25.0	117.6	108.6	3.2	16.6	14.2	19.1	47.0
27	沖縄県	辺戸岬*	37.6	28.6	21.2	157.7	148.0	3.8	7.3	4.0	23.2	33.2
		全国最低値	19.3	17.1	7.4	2.2	11.2	1.9	2.1	1.3	1.2	20.0
		全国最高値	42.0	40.5	39.2	157.7	148.0	6.3	16.6	14.2	23.2	84.2
		全国中央値	28.3	25.7	21.0	31.3	40.2	3.1	5.7	4.5	5.3	44.7
		全国平均値	29.9	26.9	22.8	37.6	49.0	3.1	6.4	5.3	6.4	45.3

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。

注) \*はインパクタ付きフィルターパック法によりPM<sub>2.5</sub>と粗大粒子を分けて採取した地点を示す。

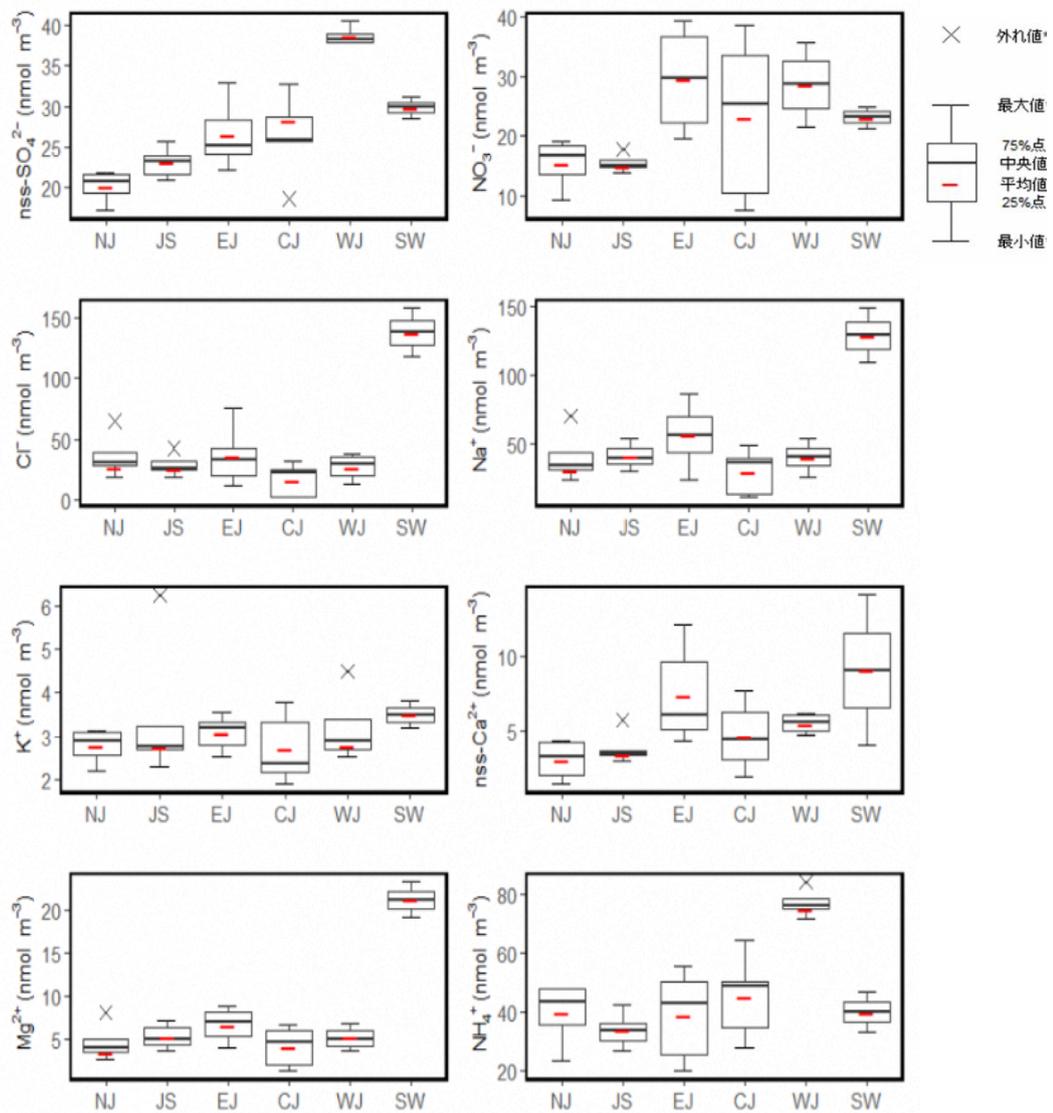


図5.2.2 粒子状成分の年平均濃度の分布（2019年度，地域区別）

表5.2.3 ガス状および粒子状成分の総計の年平均濃度（2019年度，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
			SO <sub>2</sub> (g)+ms-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> (p)	HNO <sub>3</sub> (g)+NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> (p)	HCl(g)+Cl <sup>-</sup> (p)	NH <sub>3</sub> (g)+NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> (p)
(nmol m <sup>-3</sup> )						
1	北海道	利尻*	21.9	12.5	80.1	39.8
2	北海道	札幌北*	61.4	25.4	43.4	106.0
3	札幌市	札幌白石*	51.4	23.7	40.7	120.3
4	岩手県	盛岡*	31.0	22.9	33.2	129.4
5	新潟県	新潟曾和	31.1	23.7	61.4	104.2
6	新潟県	長岡	31.2	24.2	39.2	113.9
7	群馬県	前橋	34.5	61.1	33.6	593.3
8	千葉県	旭	40.2	38.3	95.4	2934.2
9	千葉県	勝浦	41.4	26.0	76.2	94.5
10	千葉県	清澄	39.9	24.7	59.3	80.9
11	千葉県	市原	136.4	50.9	69.4	220.9
12	千葉県	佐倉	55.2	38.0	43.5	137.1
13	長野県	長野	28.1	21.7	15.3	104.6
14	富山県	射水*	32.6	22.9	32.8	124.5
15	石川県	金沢	34.2	22.3	40.7	72.3
16	福井県	福井	41.9	30.0	57.2	95.4
17	岐阜県	伊自良湖	33.0	15.4	12.3	85.1
18	愛知県	豊橋*	48.0	40.1	45.9	183.6
19	名古屋市	名古屋南	65.8	58.7	62.1	179.4
20	兵庫県	神戸須磨*	94.0	65.0	69.2	137.4
21	鳥取県	湯梨浜*	(29.1)	(25.4)	(66.7)	(128.7)
22	福岡県	太宰府*	76.9	56.2	44.2	221.5
23	大分県	大分*	102.4	36.7	28.4	134.2
24	宮崎県	宮崎	91.5	44.7	75.7	188.4
25	鹿児島県	鹿児島*	147.9	37.2	76.8	171.2
26	沖縄県	うるま*	52.2	29.5	140.2	327.4
27	沖縄県	辺戸岬*	43.2	24.7	186.6	76.9
全国最低値			21.9	12.5	12.3	39.8
全国最高値			147.9	65.0	186.6	2934.2
全国中央値			42.5	27.8	51.5	127.0
全国平均値			56.4	33.7	60.1	260.6

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。

注) \* はインパクター付きフィルターバック法によりPM<sub>2.5</sub>と粗大粒子を分けて採取した地点を示す。

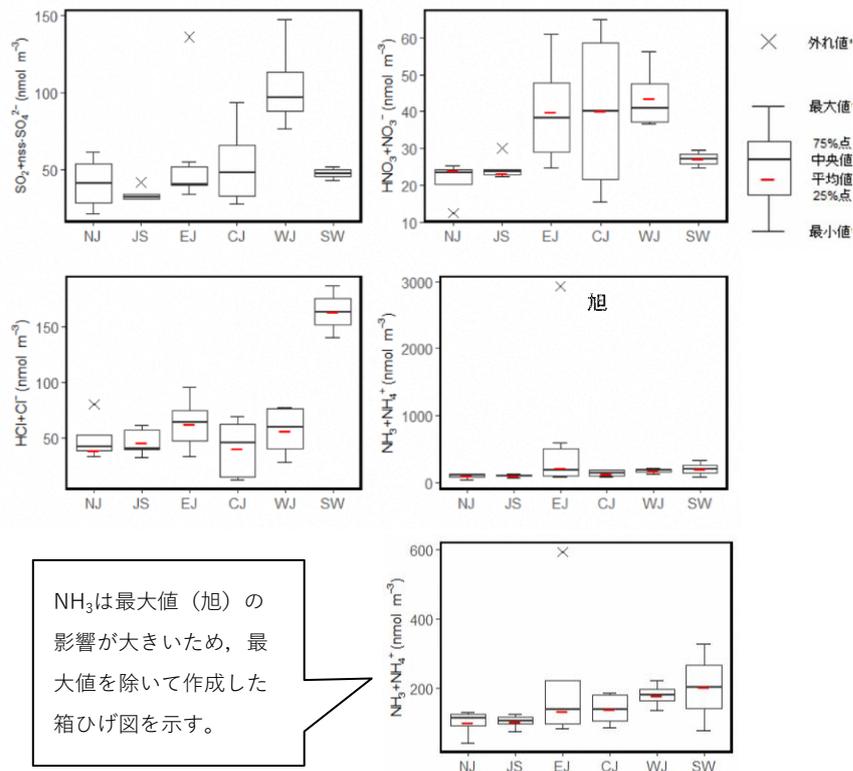


図5.2.3 ガス状および粒子状成分の総計の年平均濃度の分布（2019年度，地域区分別）

### 5.2.2 経月変化および地域特性

ここでは、地域区分の特徴を捉えるため、地域区別の成分ごとの外れ値を除いた平均値をもとに、経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<sup>6)</sup>に従い、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

地域区別のガス状成分濃度の経月変化を図5.2.4に示す。

##### SO<sub>2</sub>(g)

例年、WJを除き冬季から春季に高くなる傾向があったが、EJやCJで8月に高くなった。NJでは、暖房等の使用に伴う地域汚染の影響も考えられる。WJでは通年で最も高く、アジア大陸起源のSO<sub>2</sub>(g)の影響を強く受けている可能性がある。

また、活発な噴火活動が継続する桜島や阿蘇山、霧島山<sup>7)</sup>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。

##### HNO<sub>3</sub>(g)

春季から夏季にかけて特にCJおよびWJで高く、秋季から冬季にかけて低くなる傾向があった。春季から夏季に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HNO<sub>3</sub>(g)への酸化が促進されることや、揮発性粒子であるNH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>の解離が進むことなどが考えられる。

##### HCl(g)

SWを除いて冬季に低くなる傾向がみられた。HCl(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。

##### NH<sub>3</sub>(g)

夏季に高く冬季に低くなる傾向があった。NH<sub>3</sub>(g)濃度の季節変化は、気温が上昇するとNH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>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。

NH<sub>3</sub>(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。SWでは周辺の畜産業の影響を強く受けていると考えられるうまで極めて高い濃度を示した。EJでは外れ値となった旭以外に、前橋において高かった。

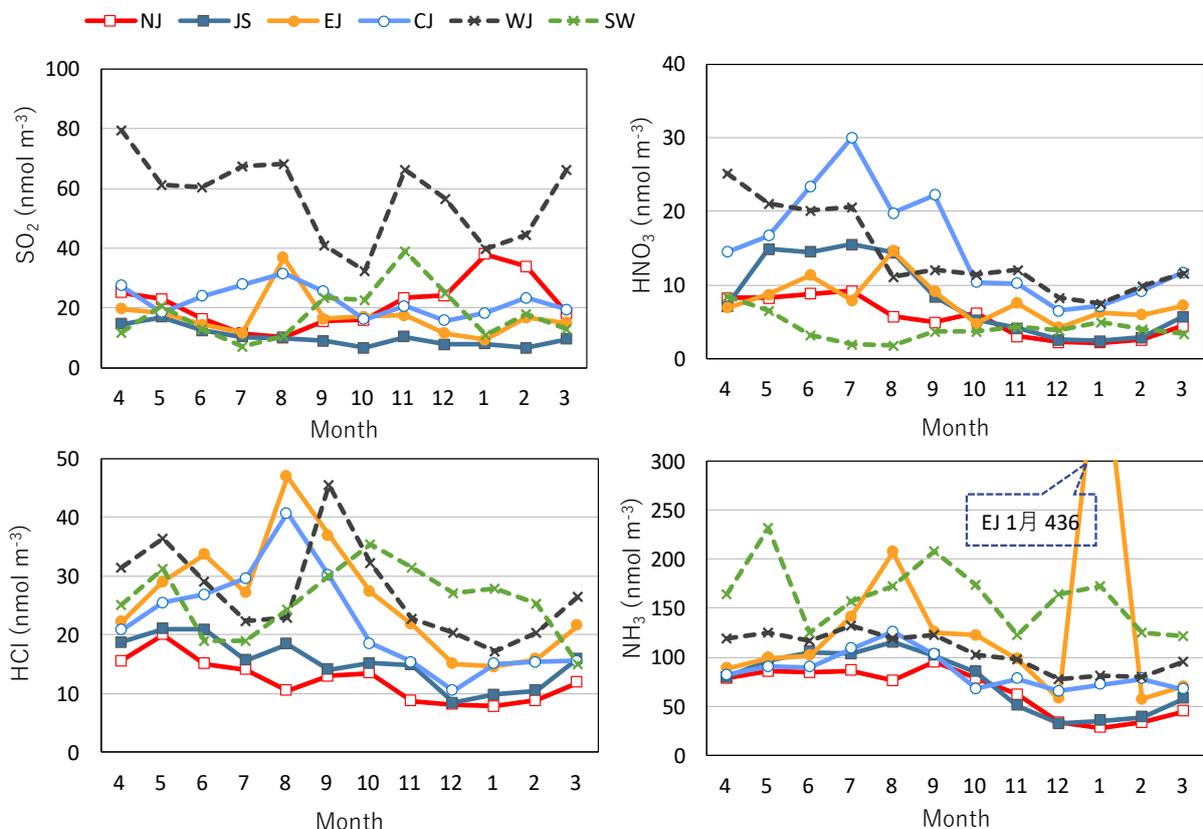


図5.2.4 ガス状成分の年経月変化（2019年度，地域区別別）

### 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、年平均組成比を図5.2.6に示す。

#### イオンバランス

いずれ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成分ではイオンバランスはおおむねとれていた。

#### 総当量濃度

SWで最も高かった。SWではNa<sup>+</sup>とCl<sup>-</sup>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。SWを除く地域では、陰イオンはSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、陽イオンはNH<sub>4</sub><sup>+</sup>またはNa<sup>+</sup>の占める割合が高かった。EJでは、他の地域と比べてNO<sub>3</sub><sup>-</sup>の割合が高かった。

粒子状成分濃度の経月変化を図5.2.7に示す。

#### nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> (p)

春季から夏季にかけて高い傾向があり、濃度はWJで高く、NJで低かった。

#### NO<sub>3</sub><sup>-</sup> (p)

夏季に低くなる傾向があった。夏季の低濃度は、NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>などの揮発性の粒子がガス化した影響が考えられる。

#### NH<sub>4</sub><sup>+</sup> (p)

経月変化はnss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> (p)濃度とよく似ていて、WJでは高い傾向がみられた。

#### nss-Ca<sup>2+</sup> (p)

春季に高い傾向があった。

2019年4月および10月末（月区分は11月）に気象庁によって東海地方から四国地方にかけて黄砂が観測されており<sup>8)</sup>、黄砂の飛来の影響を受けてnss-Ca<sup>2+</sup> (p)濃度は高くなったと考えられる。

Ca<sup>2+</sup> (p)濃度が最も高いうままでは、近傍のセメント工場の影響を受けている可能性が高いことから、nss-Ca<sup>2+</sup> (p)の高濃度は、黄砂以外に地域的発生源の影響も大きいと考えられる。

#### Cl<sup>-</sup> (p), Na<sup>+</sup> (p), Mg<sup>2+</sup> (p)

濃度変動は明瞭でなく、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。

#### K<sup>+</sup> (p)

SWを除いて春季と秋季にやや高い傾向があった。海塩粒子やバイオマス燃焼の影響があったと考えられる。

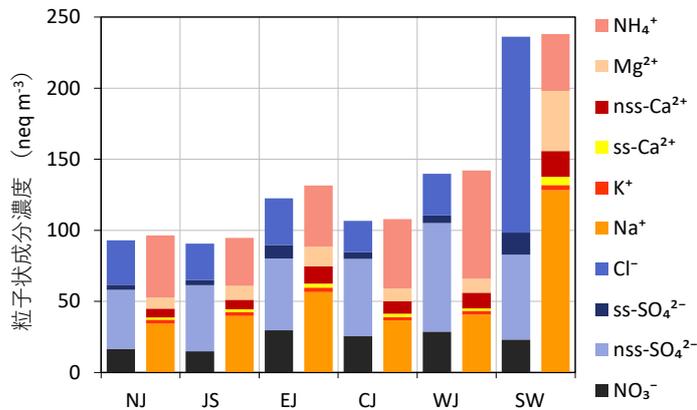


図5.2.5 粒子状成分の年平均当量濃度（2019年度，地域区分別）

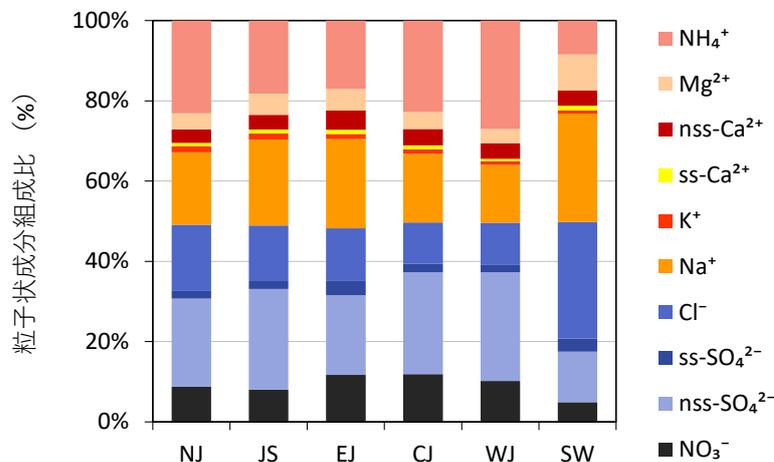


図5.2.6 粒子状成分の年平均組成比（2019年度，地域区分別）

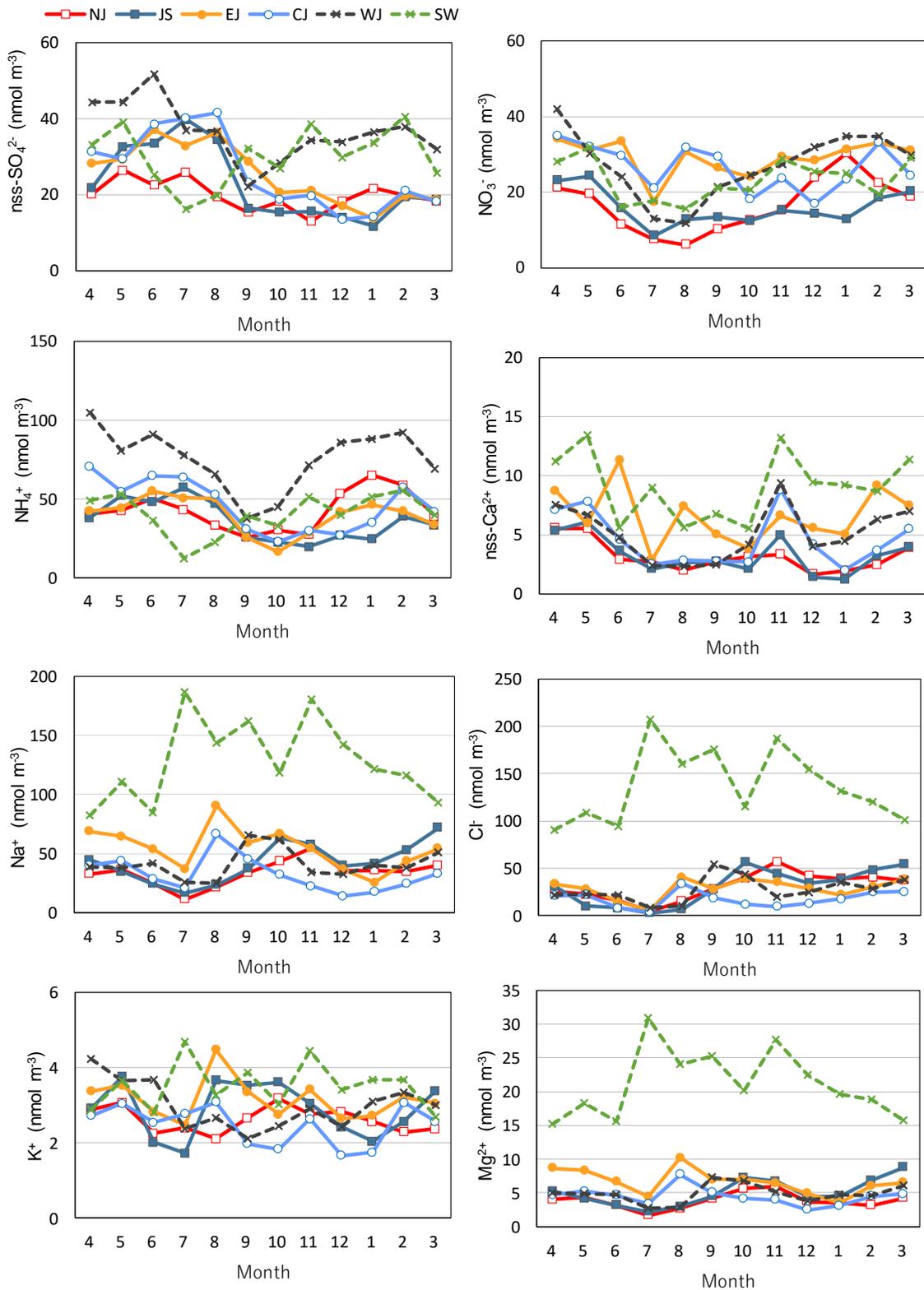


図5.2.7 粒子状成分濃度の経月変化（2019年度，地域区別）

### 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5.2.8に示す。

#### $\text{SO}_2(\text{g}) + \text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$

NJ, WJおよびSWでは冬季から春季にかけて、また、JS, EJおよびCJでは春季から夏季にかけて高い傾向があった。

#### $\text{HNO}_3(\text{g}) + \text{NO}_3^-(\text{p})$

冬季から春季に高くなる傾向があった。

#### $\text{HCl}(\text{g}) + \text{Cl}^-(\text{p})$

経月変化は明確でなかった。SWでは1年を通して75  $\text{nmol m}^{-3}$ 以上と高濃度であった。

#### $\text{NH}_3(\text{g}) + \text{NH}_4^+(\text{p})$

春季から夏季に高い傾向があった。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SWで高く、NJで低かった。

### 5.2.2.4 微小粒子 ( $\text{PM}_{2.5}$ ) 成分

インパクタを装着した5段ろ紙法では、ドーナツ型ろ紙に捕集された粒子は粗大粒子として、後段のF0ろ紙に捕集された粒子は $\text{PM}_{2.5}$ としてそれぞれの粒径に分けて測定することができる。ここでは、粗大粒子と $\text{PM}_{2.5}$ とを粒径別に捕集した13地点（利尻、札幌北、札幌白石、盛岡、射水、豊橋、神戸須磨、湯梨浜、太宰府、大分、鹿児島、うるまおよび辺戸岬）の結果について述べる（湯梨浜については年間完全度が判断基準未満のため月平均値のみ解析対象とした）。

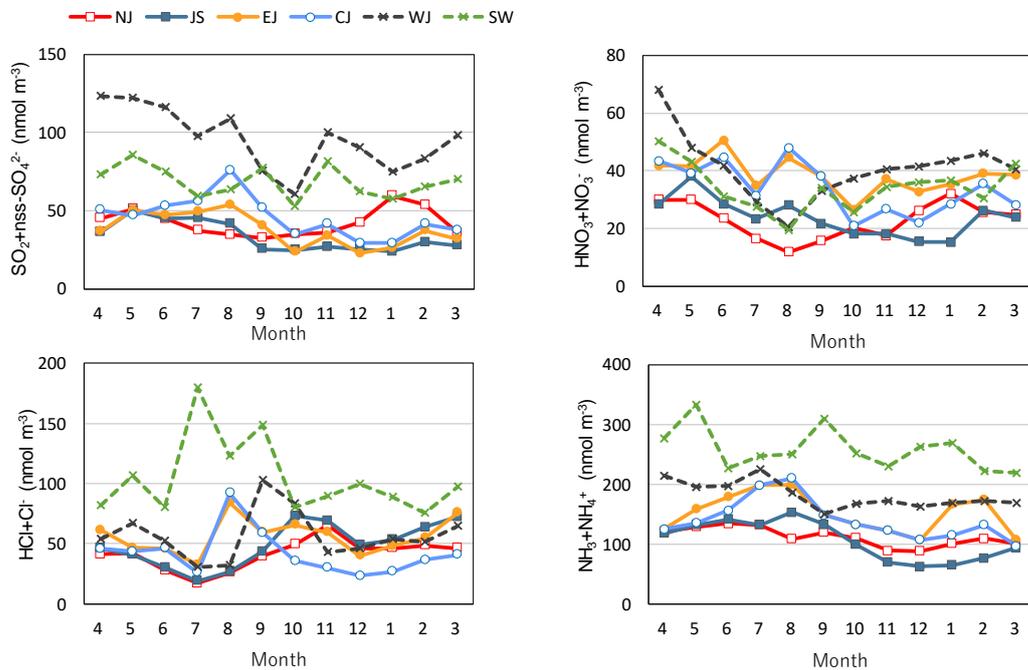


図5.2.8 ガス状および粒子状成分濃度の総計の経月変化（地域区別別）

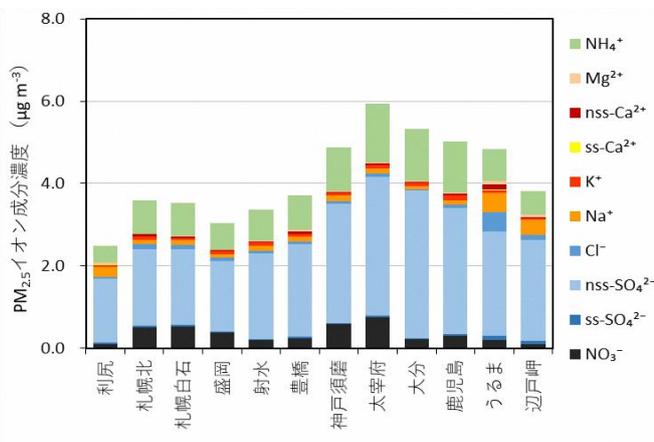


図5.2.9  $\text{PM}_{2.5}$ イオン成分の年平均濃度（2019年度，地点別）

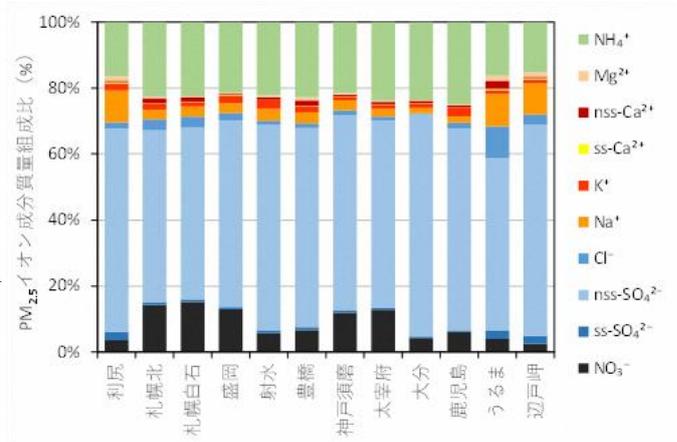


図5.2.10  $\text{PM}_{2.5}$ イオン成分の年平均組成比（2019年度，地点別）

PM<sub>2.5</sub>イオン成分の地点別年平均濃度を図5.2.9に、各地点の組成比を図5.2.10に示す。

#### 年平均濃度

濃度範囲は2.5～5.9μg m<sup>-3</sup>（平均値4.1μg m<sup>-3</sup>）で、最高値は太宰府、次いで大分で、最低値は利尻であった。

#### 組成比

いずれの地点もnss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の割合が最も高く、PM<sub>2.5</sub>イオン濃度のうちおよそ50～65%を占めていた。nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>に次いで多いのはいずれの地点もNH<sub>4</sub><sup>+</sup>（15～25%）であった。

札幌白石、札幌北、盛岡、神戸須磨および太宰府は他の地点と比べてNO<sub>3</sub><sup>-</sup>の割合が多い傾向があった。

PM<sub>2.5</sub>成分濃度の経月変化を図5.2.11に示す。

#### nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> (p)

春季から夏季にかけて高い傾向があった。

#### NO<sub>3</sub><sup>-</sup> (p)

ほとんどの地点で冬季に高い傾向があった。

#### NH<sub>4</sub><sup>+</sup> (p)

春季から夏季にかけて高く、さらに冬季にも高くなる傾向があった。

#### nss-Ca<sup>2+</sup> (p)

春季に高い傾向があった。うるまでは近傍のセメント工場の影響を受けている可能性が高い。

#### Cl<sup>-</sup> (p)

冬季に札幌北、札幌白石および盛岡で高かった。

#### Na<sup>+</sup> (p), Mg<sup>+</sup> (p)

濃度変動は明瞭でなく、1年を通してうるまや辺戸岬で高かった。これらの調査地点は海に近いので、海塩粒子の影響が考えられる。

#### K<sup>+</sup> (p)

春季にやや高い傾向があった。

次に、全粒子状物質に占めるPM<sub>2.5</sub>の割合の経月変化について図5.2.12に示す。

#### NO<sub>3</sub><sup>-</sup> (p)

夏季に低く、冬季に高い傾向があった。NO<sub>3</sub><sup>-</sup> (p)は夏季には粗大粒子に、冬季にはPM<sub>2.5</sub>に多く存在するといえる。

#### K<sup>+</sup> (p)

夏季に低い傾向があり、辺戸岬および利尻で顕著であった。辺戸岬を除き夏季以外のPM<sub>2.5</sub>の割合はおおむね50%以上であることから、夏季は特定の発生源の影響を受けている可能性がある。

#### SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> (p), NH<sub>4</sub><sup>+</sup> (p)

1年を通してPM<sub>2.5</sub>の割合が高かった。

#### Na<sup>+</sup> (p), Cl<sup>-</sup> (p), Ca<sup>2+</sup> (p), Mg<sup>2+</sup> (p)

1年を通してPM<sub>2.5</sub>の割合が低かった。

粒径別の季節変化については、乾性沈着量の見積もりや発生源を推定する際に有用な情報となるため、今後も調査を継続しデータを蓄積していく必要がある。

### － 引用文献 －

- 1) 環境省：令和元年度酸性雨調査結果について、<http://www.env.go.jp/air/acidrain/monitoring/r01/index.html>（2021.2.26アクセス）
- 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パック法に関する技術資料，[http://www.eanet.cc/jpn/docea\\_f.html](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
- 5) M. Aikawa, T. Ohara, T. Hiraki, O. Oishi, A. Tsuji, M. Yamagami, K. Murano, H. Mukai: Significant geographic gradients in particulate sulfate over Japan determined from multiple-site measurements and a chemical transport model: Impacts of transboundary pollution from the Asian continent, Atmos. Environ., **44**, 381-391, 2010
- 6) 気象庁：予報用語，[http://www.jma.go.jp/jma/kishou/known/yougo\\_hp/mokuji.html](http://www.jma.go.jp/jma/kishou/known/yougo_hp/mokuji.html)（2021.2.26アクセス）
- 7) 気象庁：月間火山概況・火山活動解説資料，[http://www.data.jma.go.jp/svd/vois/data/tokyo/STOCK/monthly\\_v-act\\_doc/monthly\\_vact.php](http://www.data.jma.go.jp/svd/vois/data/tokyo/STOCK/monthly_v-act_doc/monthly_vact.php)（2021.2.26アクセス）
- 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](http://www.data.jma.go.jp/gmd/env/kosahp/kosa_data_index.html)（2021.2.26アクセス）

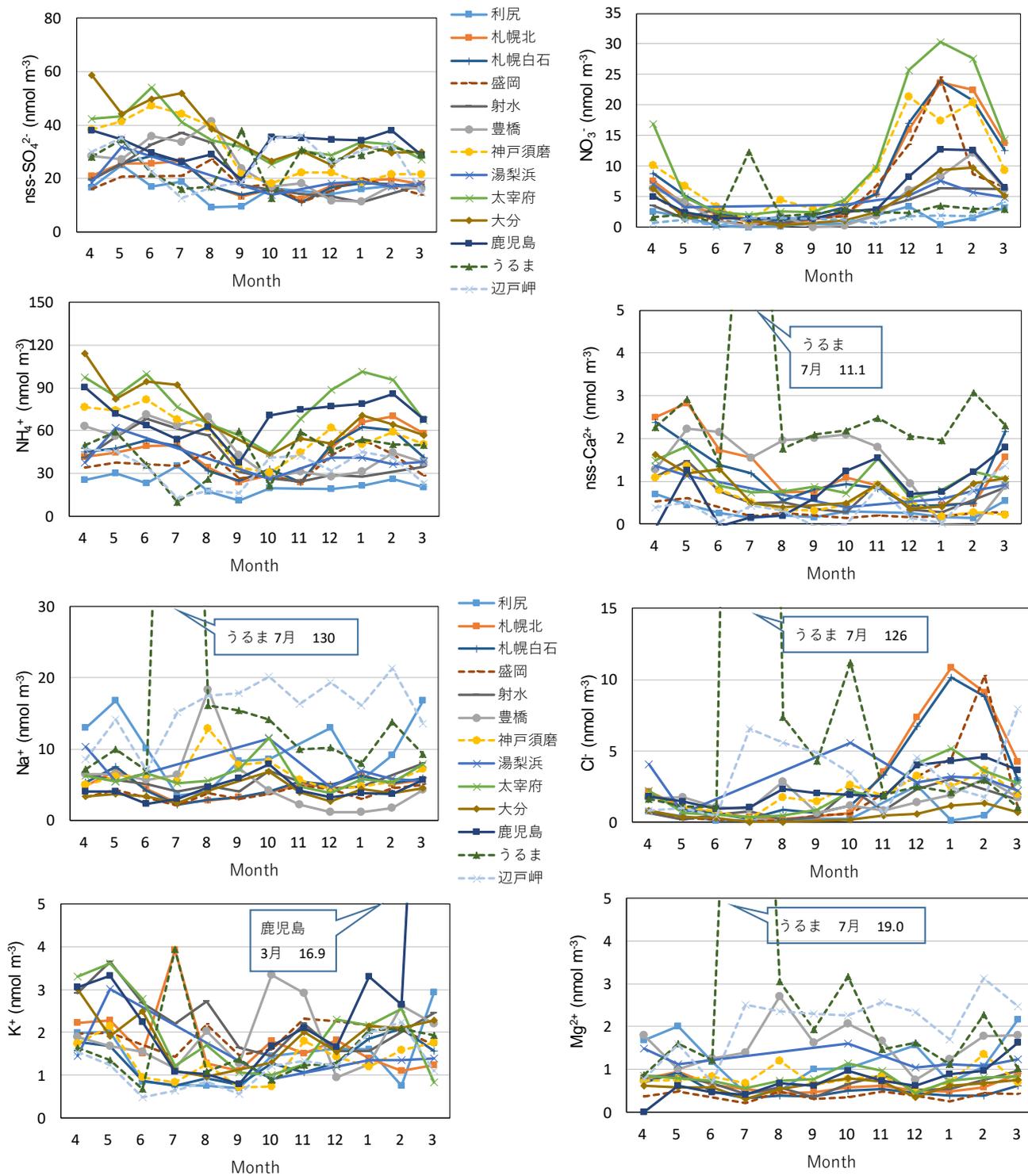


図5.2.11 PM<sub>2.5</sub>成分濃度の経月変化（2019年度，地点別）

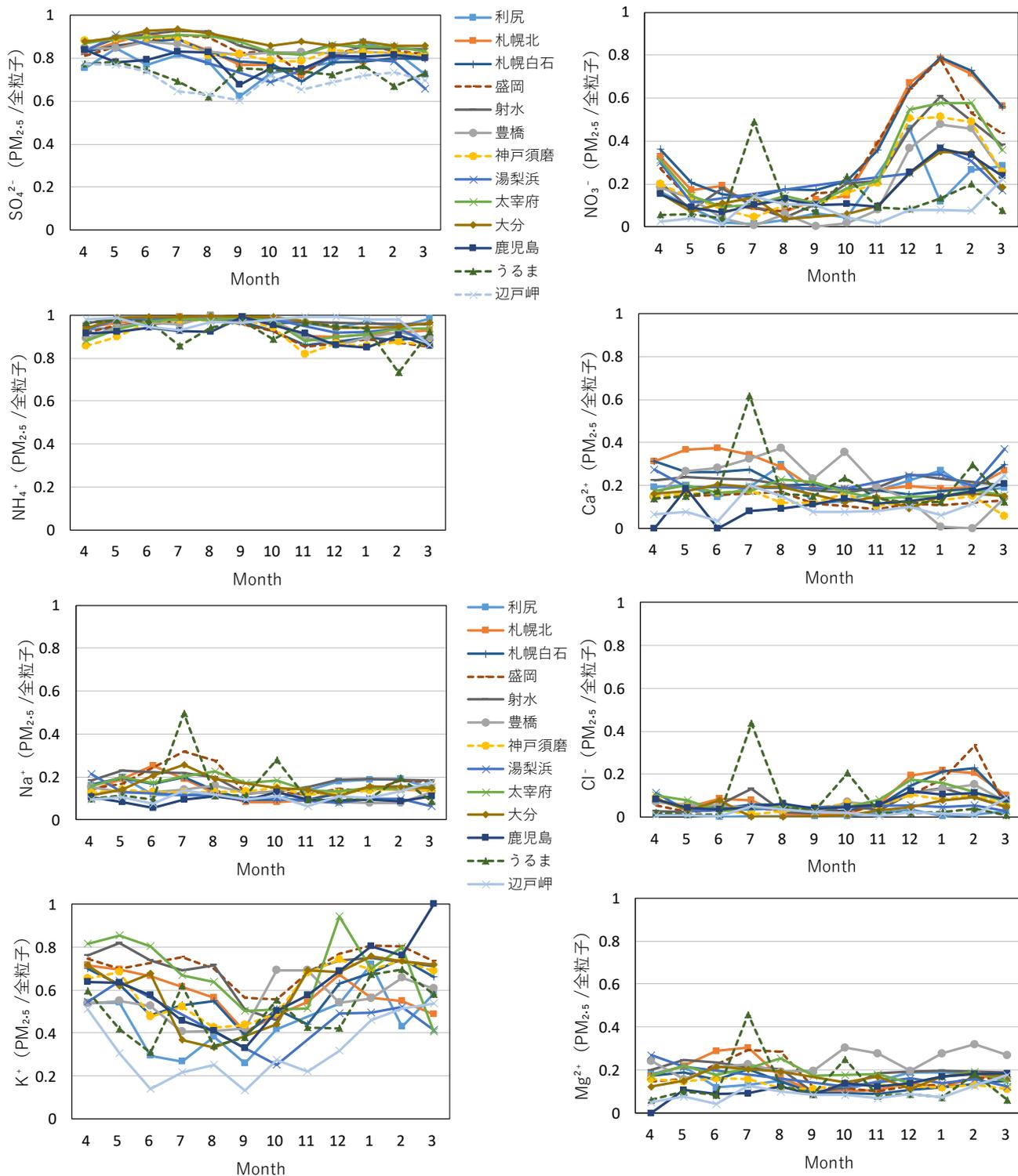


図5.2.12 全粒子状物質に占めるPM<sub>2.5</sub>の割合の経月変化（2019年度，地点別）

### 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<sup>1)</sup>。

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<sup>2)</sup>。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<sup>3)</sup>、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設定せずに計算した。

#### 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27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 $\text{NO}_2$ 、 $\text{NO}$ 測定を実施した15地点については、 $\text{NO}_2$ 、 $\text{NO}$ の沈着量も同様に推計した。

$V_d$ 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<sup>4)</sup>、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 ( $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{NH}_4^+$ 、以後(p)をつけて表示) およびガス状物質 ( $\text{SO}_2$ 、 $\text{HNO}_3$ 、 $\text{NH}_3$ 、以後(g)をつけて表示、 $\text{NO}$ 、 $\text{NO}_2$ ) の

$V_d$ をそれぞれ算出した。

このようにして算出した各調査地点における成分ごとの土地利用状況別 $V_d$ （沈着速度、 $\text{cm s}^{-1}$ ）を集計して年平均値を求め、参考として表5.3.1に示した。

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、大気濃度との積により求めた。環境省の長期モニタリング報告書（平成15～19年度）<sup>5)</sup>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。市街地は $V_d$ 推計のためのパラメーターが十分に検証されていないなど不確実な部分が多いが、調査地点の多くが市街地にあることから、土地利用分類を上記のように設定した。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、測定局周辺半径20kmを対象とした。土地利用割合は、国土地理院のデータ<sup>6)</sup>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、さらに検討していく必要がある。

大気濃度は、FP法で測定した $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ 、 $\text{NO}_3^-(\text{p})$ 、 $\text{NH}_4^+(\text{p})$ 、 $\text{SO}_2(\text{g})$ 、 $\text{HNO}_3(\text{g})$ 、 $\text{NH}_3(\text{g})$ 、自動測定機またはパッシブ法で測定した $\text{NO}_2$ 、 $\text{NO}$ 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法ではガス状物質と粒子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 $\text{HNO}_3(\text{g})$ と $\text{NO}_3^-(\text{p})$ 、 $\text{NH}_3(\text{g})$ と $\text{NH}_4^+(\text{p})$ 濃度を用いて乾性沈着量を算出している。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。

表5.3.1 土地利用状況別の平均沈着速度（2019年度）

	(単位: $\text{cm s}^{-1}$ )							
	$\text{SO}_4^{2-}(\text{p})$	$\text{NO}_3^-(\text{p})$	$\text{NH}_4^+(\text{p})$	$\text{SO}_2(\text{g})$	$\text{HNO}_3(\text{g})$	$\text{NH}_3(\text{g})$	$\text{NO}_2(\text{g})$	$\text{NO}(\text{g})$
市街地	0.16	0.16	0.16	0.18	4.8	0.048	0.031	5.2E-09
森林地域	0.61	0.88	0.67	1.4	4.3	0.57	0.11	0.0026
農地	0.14	0.14	0.14	0.69	1.4	0.41	0.15	0.0022
草地	0.17	0.17	0.17	0.75	1.8	0.38	0.10	0.0023
積雪	0.11	0.11	0.11	0.45	0.45	0.49	0.0015	0.00031
水面	0.089	0.089	0.089	0.31	0.3	0.33	0.0012	0.00024

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

### 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のとおりで、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SO<sub>2</sub>(g)が0.5（伊自良湖）～29.0（鹿児島）（平均値7.8）mmol m<sup>-2</sup>y<sup>-1</sup>、HNO<sub>3</sub>(g)が1.6（伊自良湖）～33.0（神戸須磨）（平均値11.4）mmol m<sup>-2</sup>y<sup>-1</sup>、NH<sub>3</sub>(g)が2.4（伊自良湖）～470.0（旭）（平均値32.9）mmol m<sup>-2</sup>y<sup>-1</sup>だった。

粒子状物質の乾性沈着量はnss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p)が0.5（伊自良湖）～11.0（宮崎）（平均値3.2）mmol m<sup>-2</sup>y<sup>-1</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>(p)が0.2（伊自良湖）～11.0（宮崎）（平均値3.6）mmol m<sup>-2</sup>y<sup>-1</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>(p)が0.7（伊自良湖）～23.0（宮崎）（平均値5.7）mmol m<sup>-2</sup>y<sup>-1</sup>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（SO<sub>2</sub>(g)+nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p)）が0.9（伊自良湖）～39.7（宮崎）（平均値11.0）mmol m<sup>-2</sup>y<sup>-1</sup>、NO<sub>x</sub>（=NO<sub>2</sub>+NO）

NO）を含まない酸化態窒素成分（HNO<sub>3</sub>(g)+NO<sub>3</sub><sup>-</sup>(p)）が1.8（伊自良湖）～38.0（宮崎）（平均値15.0）mmol m<sup>-2</sup>y<sup>-1</sup>、還元態窒素成分（NH<sub>3</sub>(g)+NH<sub>4</sub><sup>+</sup>(p)）が3.1（伊自良湖）～473.7（旭）（平均値38.5）mmol m<sup>-2</sup>y<sup>-1</sup>だった。

NO<sub>x</sub>測定地点のNO<sub>2</sub>乾性沈着量は0.4（利尻）～16.0（神戸須磨）（平均値6.0）mmol m<sup>-2</sup>y<sup>-1</sup>、NO乾性沈着量は0.003（辺戸岬）～0.042（射水）（平均値0.020）mmol m<sup>-2</sup>y<sup>-1</sup>だった。酸化態窒素成分にNO<sub>x</sub>を加えた窒素酸化物成分は2.4（伊自良湖）～53.0（神戸須磨）（平均値20.9）mmol m<sup>-2</sup>y<sup>-1</sup>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法での大気濃度の年平均値が全て有効となった25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に示した。ここで、総沈着量は非海塩由来硫黄成分（SO<sub>2</sub>(g), nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p), nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(wet)）、酸化性窒素成分（HNO<sub>3</sub>(g), NO<sub>3</sub><sup>-</sup>

表5.3.2 年間乾性沈着量（2019年度地点別）

No.	都道府県市	地点名	SO <sub>2</sub> (g)	HNO <sub>3</sub> (g)	NH <sub>3</sub> (g)	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> (p)	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> (p)	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> (p)	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> (p)	NO <sub>2</sub> (g)	NO(g)	PS
			mmol m <sup>-2</sup>									
1	北海道	利尻	1.4	3.4	3.3	2.6	3.3	2.0	3.8	0.4	0.032	PS
2	北海道	札幌北	5.9	6.5	5.0	1.3	1.5	1.3	4.1	6.5	0.023	
3	札幌市	札幌白石	4.3	4.0	6.3	1.2	1.4	1.3	2.8	—	—	
4	岩手県	盛岡	3.0	7.9	17.0	2.1	2.3	2.1	4.5	—	—	
5	新潟県	新潟曾和	1.6	5.8	7.3	1.2	1.4	1.0	1.7	6.8	0.016	
6	新潟県	長岡	2.8	8.7	11.0	2.2	2.4	2.0	3.9	3.4	0.008	
7	群馬県	前橋	1.6	16.0	46.0	1.6	1.7	3.1	3.8	7.9	0.008	
8	千葉県	旭	5.2	6.5	470.0	2.2	2.6	3.4	4.4	—	—	
9	千葉県	勝浦	8.4	6.2	15.0	3.8	4.5	4.9	4.0	—	—	
10	千葉県	清澄	7.5	5.5	13.0	3.5	4.1	4.4	3.8	—	—	
11	千葉県	市原	16.0	12.0	12.0	2.0	2.2	2.6	3.0	—	—	
12	千葉県	佐倉	4.7	10.0	8.4	2.1	2.3	2.2	2.7	—	—	
13	長野県	長野	2.0	9.9	10.0	1.6	1.7	1.1	2.6	4.8	0.025	
14	富山県	射水	2.0	6.7	11.0	1.5	1.6	1.1	2.8	6.9	0.042	
15	石川県	金沢	2.0	6.5	3.5	1.9	2.1	1.6	3.1	—	—	
16	福井県	福井	3.9	9.0	9.0	1.8	2.0	1.7	2.1	6.1	0.025	
17	岐阜県	伊自良湖	0.5	1.6	2.4	0.5	0.5	0.2	0.7	(0.6)	(0.0)	
18	愛知県	豊橋	5.0	18.0	15.0	3.0	3.3	3.8	6.2	11.0	0.032	
19	名古屋市	名古屋南	3.9	27.0	6.8	1.5	1.6	1.8	2.6	—	—	
20	兵庫県	神戸須磨	11.0	33.0	5.0	3.0	3.3	4.2	6.0	16.0	0.029	
21	鳥取県	湯梨浜	(4.1)	(5.7)	(19.0)	(4.1)	(4.8)	(6.2)	(9.1)	4.2	0.019	
22	福岡県	太宰府	6.8	18.0	12.0	3.3	3.5	3.7	7.5	11.0	0.025	
23	大分県	大分	15.0	13.0	8.5	3.4	3.5	2.4	6.5	—	—	
24	宮崎県	宮崎	29.0	27.0	26.0	11.0	12.0	11.0	23.0	—	—	
25	鹿児島県	鹿児島	26.0	10.0	11.0	2.8	3.0	2.5	6.2	—	—	
26	沖縄県	うるま	9.5	10.0	32.0	6.4	7.9	7.1	10.0	3.1	0.009	PS
27	沖縄県	辺戸岬	9.3	6.3	8.5	8.6	11.0	9.4	11.0	0.9	0.003	
		最低値	0.5	1.6	2.4	0.5	0.5	0.2	0.7	0.4	0.003	
		最高値	29.0	33.0	470.0	11.0	12.0	11.0	23.0	16.0	0.042	
		中央値	5.2	7.9	11.0	2.6	3.0	2.6	4.1	6.1	0.023	
		平均値	7.8	11.4	32.9	3.2	3.7	3.6	5.7	6.0	0.020	

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。

また、右欄外のPSはパッシブ法で測定したNO<sub>2</sub>、NOを示す。

(p),  $\text{NO}_3^-$ (wet))および還元態窒素成分 ( $\text{NH}_3$ (g),  $\text{NH}_4^+$ (p),  $\text{NH}_4^+$ (wet)) に分類して考察した。

また、 $\text{NO}_2$ ,  $\text{NO}$ 測定を実施した地点の $\text{NO}_x$ の乾性沈着量は、酸化態窒素成分と合わせて示した。

総沈着量の年間値は、非海塩由来硫酸成分が7.4(長野)~72.6(鹿児島) (平均値29.6)  $\text{mmol m}^{-2}\text{y}^{-1}$ , 酸化態窒素成分が15.6(利尻)~65.7(宮崎) (平均値38.1)  $\text{mmol m}^{-2}\text{y}^{-1}$ , 還元態窒素成分が19.1(利尻)~583.5(旭) (平均値66.6)  $\text{mmol m}^{-2}\text{y}^{-1}$ だった。 $\text{NO}_x$ の乾性沈着量を含めた酸化態窒素成分は、15.8(利尻)~70.1(神戸須磨) (平均値43.0)  $\text{mmol m}^{-2}\text{y}^{-1}$ 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、非海塩由来硫酸成分が4%(伊自良湖)~64%(辺戸岬) (平均値34%),  $\text{NO}_x$ を除く酸化態窒素成分が5%(伊自良湖)~68%(神戸須磨) (平均値39%), 還元態窒素成分が9%(伊自良湖)~81%(旭) (平均値41%) だった。

対象とした25地点を6つの地域区分(北部(NJ, 3地点), 日本海側(JS, 5), 東部(EJ, 6), 中央部(CJ, 5), 西部(WJ, 4), 南西諸島(SW, 2)) に分類して集計した

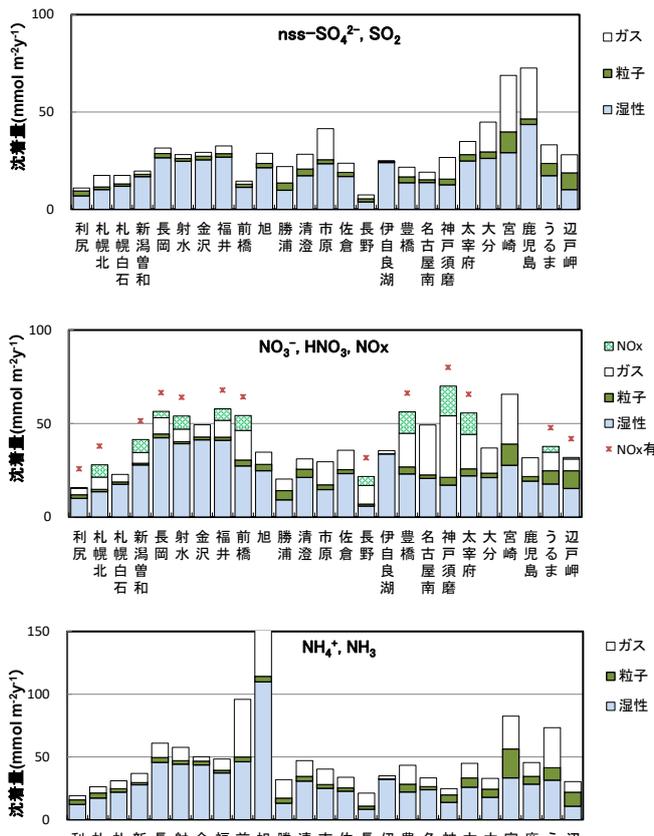


図5.3.1 調査地点の年沈着量 (2019年度)

注)湿性沈着およびフィルターパ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。

年間総沈着量の中央値を図5.3.2に示した。 $\text{NO}_x$ の乾性沈着量については酸化態窒素成分に合わせて示した。

総沈着量は、非海塩由来硫酸成分はWJで、酸化態窒素成分、還元態窒素成分はJSで多かった。

中央値から算出した総沈着量に対して乾性沈着量が占める割合は、非海塩由来硫酸成分、還元態窒素成分はSWで大きく、JSはすべての成分で小さかった。

### 5.3.5 乾性沈着量の経年変化

FP法による大気濃度測定の調査を継続して実施している地点のうち、札幌北、新潟曾和、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5.3.3)。なお、加須については2019年度から調査を終了している。

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、新潟曾和では少ない傾向がみられた。経年変化をみると、 $\text{nss-SO}_4^{2-}$ (p)と $\text{NH}_4^+$ (p)は、2014年以降は横ばい、またはやや減少の傾向がみられた。

$\text{NO}_3^-$ (p)については豊橋、神戸須磨、太宰府、辺戸岬で増加傾向を示していたが、2014年以降は $\text{nss-SO}_4^{2-}$ (p)等と

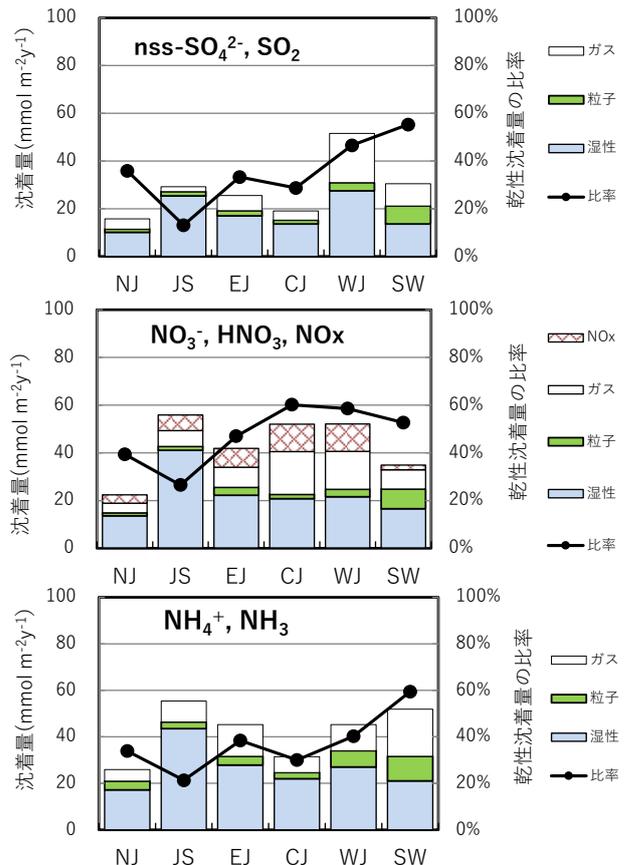


図5.3.2 各地域区別の年沈着量 (2019年度中央値)

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

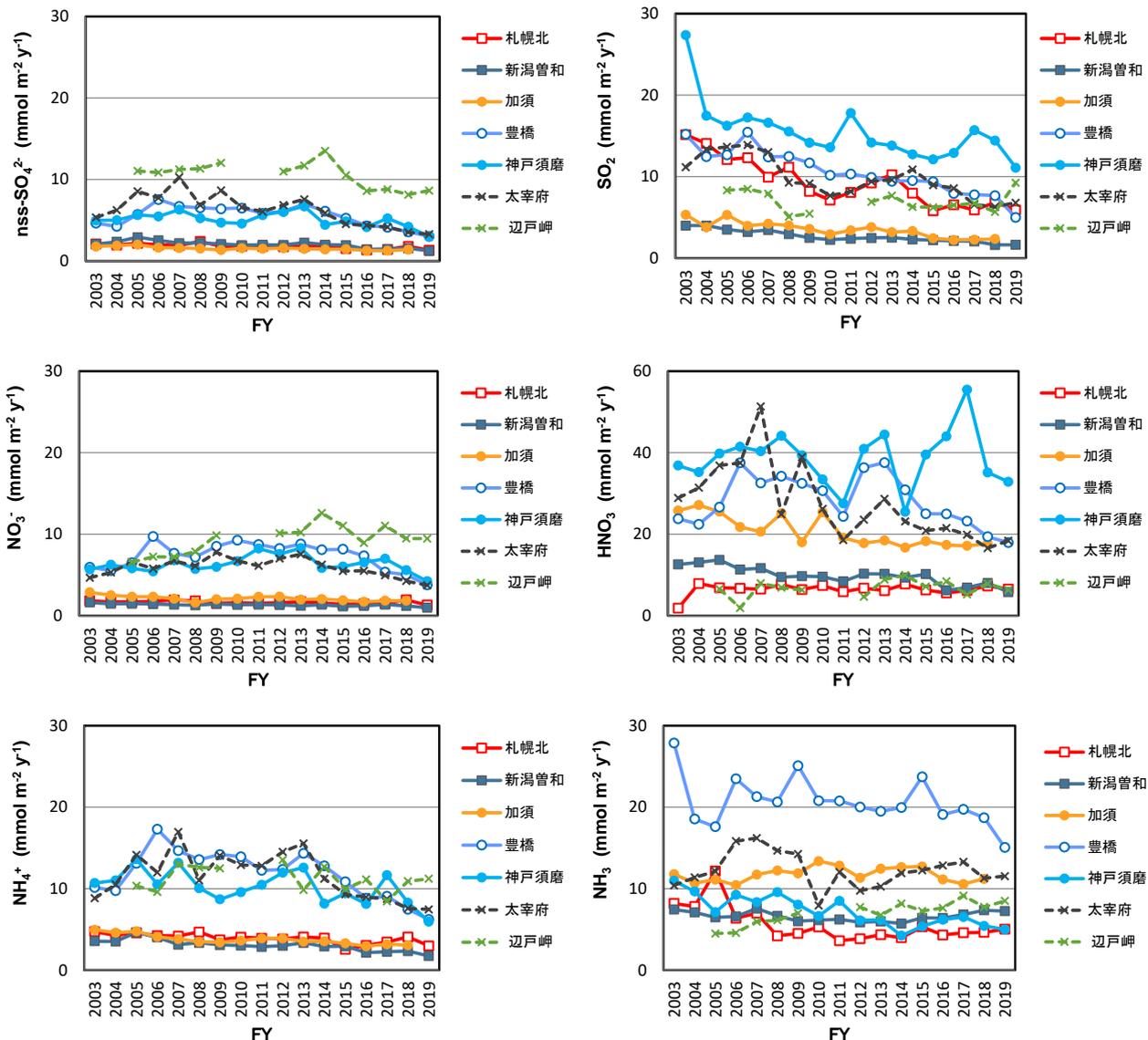


図5.3.3 継続調査地点における乾性沈着量の経年変化  
(2003～2019年度)

同様に横ばいまたは減少の傾向がみられた。

ガス状成分の乾性沈着量は、地点によりかなり差が大きい。SO<sub>2</sub>(g)は神戸須磨、豊橋、札幌北、太宰府、辺戸岬で多く、経年的には減少傾向がみられたが、辺戸岬だけ2019年度は増加した。HNO<sub>3</sub>(g)は神戸須磨、豊橋、太宰府が多く、年ごとの変動が大きいがほぼ横ばいの傾向がみられた。NH<sub>3</sub>(g)は豊橋が最も高いが、近年は減少傾向が顕著になっている。その他の地点は全体的にほぼ横ばいの傾向が見られた。

－ 引用文献 －

1) Network Center for EANET: Technical Manual on Dry Deposition Flux Estimation in East Asia, Asia Center for Air Pollution Research, Niigata, 2010.

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, 2003  
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](http://www.ies.hro.or.jp/seisakuka/acid_rain/kanseichinchaku/kanseichinchaku.htm)  
4) 気象庁ホームページ: 過去の気象ダウンロード  
<http://www.jma.go.jp/jma/menu/menureport.html>  
5) 環境省: 長期モニタリング報告書(平成15～19年度), 2009  
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>

## 6. 乾性沈着（パッシブサンプラー）

### 調査目的

パッシブ法（以下、PS法）ではフィルターパック法（以下、FP法）で測定できないNO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>、O<sub>3</sub>と、FP法と共通で測定できるNH<sub>3</sub>濃度の測定を行っている。

パッシブサンプラーは1か月など比較的長期間の平均濃度の測定になるが、小さく電源を要しないため設置場所が自由に選べることと、安価であることから多地点での測定に有用な測定方法である。

このため、PS法により常時監視局の少ない郊外や山岳部でO<sub>3</sub>濃度測定を行い、都市部よりも高い傾向が明らかになるなどの成果が得られている<sup>1)</sup>。

NH<sub>3</sub>について、FP法ではNH<sub>3</sub>(g)とアンモニウム塩粒子(NH<sub>4</sub><sup>+</sup>(p))を分離して測定している。しかし気温が高いと捕集されたNH<sub>4</sub><sup>+</sup>(p)の一部がNH<sub>3</sub>(g)に変換される。このためNH<sub>3</sub>(g)測定濃度が大気中濃度よりも高くなる場合が指摘されている<sup>2)</sup>。一方パッシブサンプラーは原理的にはNH<sub>3</sub>(g)を捕捉するため、FP法の結果に対する検証材料としても使用できる。

測定値について、いずれの項目も定量下限値としてEANETにおける定量下限値（0.1ppb）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5次調査と同様とした。

### 6.1 測定方法

調査は通年で行い、試料捕集周期は1か月（4週間または6週間）とした。

### 地点情報

各地点の位置と年平均濃度を図6.1.1に、項目ごとの地点数および欠測数を表6.1.1に示す。

欠測の理由は月期間適合度が60%未満、年期間適合度が80%未満もしくはサンプラーの紛失や測定上の問題などである。

2019年度の地点数はNH<sub>3</sub>、NO<sub>x</sub>、O<sub>3</sub>がそれぞれ15、8、7地点だった。各地点により測定項目は異なりNO<sub>x</sub>、O<sub>3</sub>の測定地点の多くは北海道・東北地域に位置し、NH<sub>3</sub>は北海道から沖縄まで分布している（図6.1.1）。NH<sub>3</sub>は各地点周辺の畜舎などの発生源の影響を強く受けていると思われる。

表6.1.1 パッシブ法による調査地点数と有効データ数

項目	地点数	月有効データ数	月欠測数	月有効割合	年有効データ数	年欠測数	年有効割合
NH <sub>3</sub>	15	178	2	98.9%	15	0	100%
NO	8	95	1	99.0%	8	0	100%
NO <sub>2</sub>	8	95	1	99.0%	8	0	100%
NO <sub>x</sub>	8	95	1	99.0%	8	0	100%
O <sub>3</sub>	7	83	1	98.8%	7	0	100%

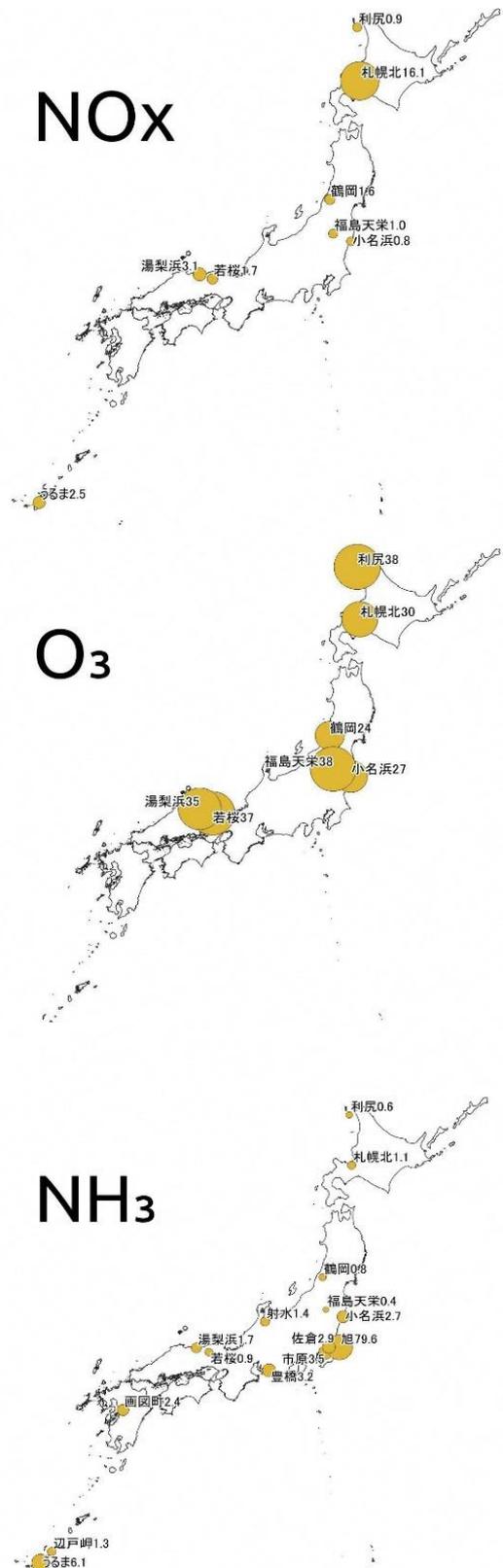


図6.1.1 各測定項目の地点と年平均濃度（ppb）

## 6.2 測定結果

測定結果の図表は以下のとおりである。おおむね例年どおりの結果となった。

図6.2.1：各地点の月平均NO<sub>x</sub>濃度（上：全地点，下：札幌北以外）

図6.2.2：各地点の月平均O<sub>3</sub>濃度

図6.2.3：各地点の月平均NH<sub>3</sub>濃度（旭を除く）

表6.1.1：パッシブ法による調査地点数と有効データ数

表6.1.2：全地点の年平均濃度

### NO<sub>x</sub>

年平均濃度では札幌北の16.1ppbが最も高かった。これは都市部に位置し全体的に濃度が高いことに加え、特に冬季に高いためである。冬季は暖房などの排出量増加と逆転層の形成など気象要因によると考えられる。年平均濃度の最低地点は小名浜の0.8ppbだった。札幌北以外の地点は5ppb未満と低く、うるまと小名浜は札幌北同様に冬季に高いが湯梨浜や若桜は逆に冬季に低いなど地点によって傾向は異なる。

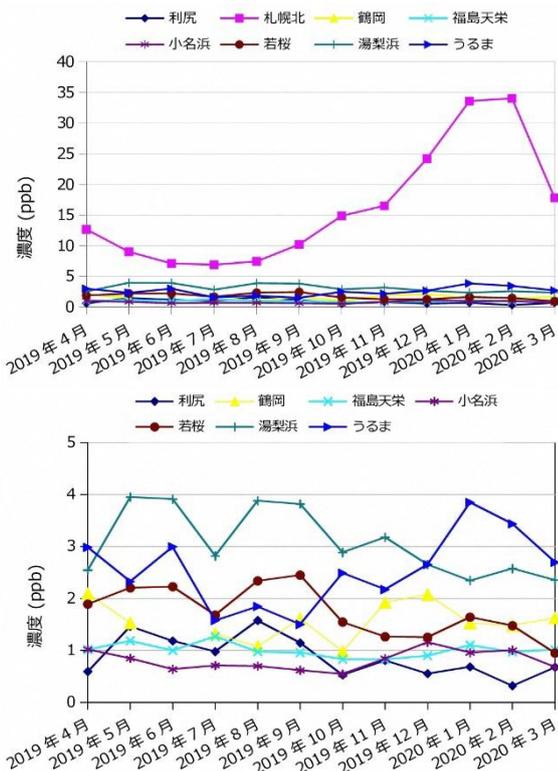


図6.2.1 各地点の月平均NO<sub>x</sub>濃度（上：全地点，下：札幌北以外）

### O<sub>3</sub>

年平均濃度では利尻の38.3ppbが最も高い。利尻は日本海の離島に位置し、標高は低いことから越境汚染の影響が一因と考えられる。一方、最も低いのは鶴岡の24.2ppbだった。鶴岡は測定地点が森林地帯に位置し、樹木表面でのオゾンの消失により濃度が低いと考えられる。

月平均濃度では例年どおり冬～春（2～5月）に40～60

ppbと高く、6～7月に減少し30ppb未満となったあと、9～10月に増加する傾向だった。

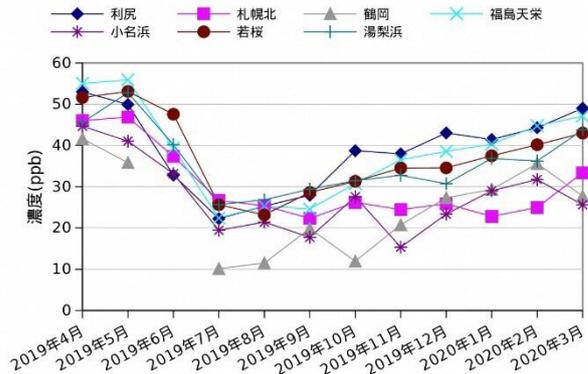


図6.2.2 各地点の月平均O<sub>3</sub>濃度

### NH<sub>3</sub>

年平均濃度では旭の79.6ppbが最も高く、次に高いのはうるまの6.1ppbだった。高濃度の地点は近傍の養鶏や酪農業等の影響を強く受けていると考えられる。年平均濃度が最も低いのは福島天栄の0.4ppbだった。低濃度の地点では射水、小名浜、利尻、福島天栄は夏季に高く冬季に低い傾向にある一方で、画図町やうるま、市原は冬季に高い。これは近傍の発生源からの影響が季節風や位置関係により変化するためと思われる。

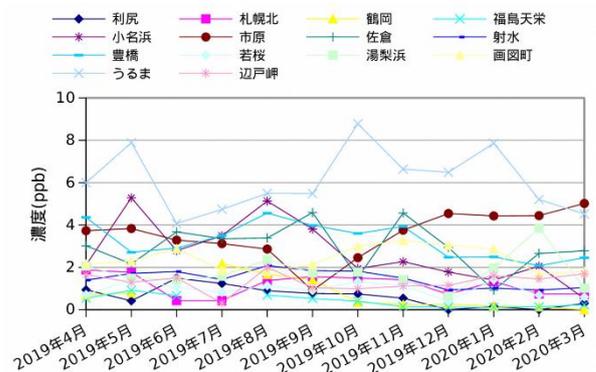
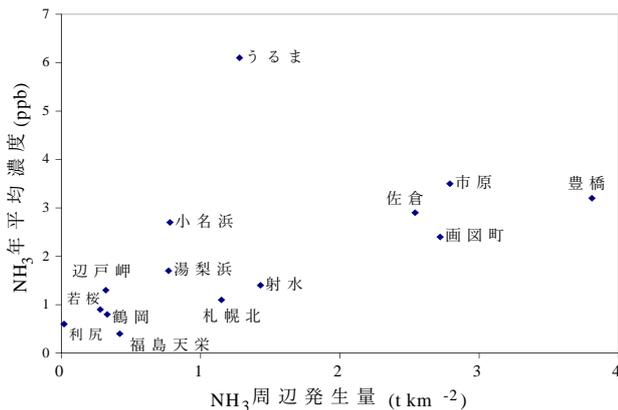


図6.2.3 各地点の月平均NH<sub>3</sub>濃度（旭を除く）

### NH<sub>3</sub>の周辺発生量と年平均濃度の関係

旭は他地点よりきわめて濃度が大きいため除外した。測定地点から半径20km円内の周辺発生量<sup>3)</sup>と年平均濃度の関係は、うるまを除くと従来どおり高低がよく一致する。近傍の発生源の影響が少なければ、大気中NH<sub>3</sub>年平均濃度は半径20km円内の発生源でおおむね決定されると考えられる。



	利尻	札幌北	鶴岡	福島天栄	小名浜	市原	佐倉
年平均濃度 (ppb)	0.6	1.1	0.8	0.4	2.7	3.5	2.9
NH <sub>3</sub> 周辺発生量 (tkm <sup>-2</sup> year <sup>-1</sup> )	0.02	1.15	0.33	0.42	0.78	2.79	2.54

	射水	豊橋	若桜	湯梨浜	画図町	うるま	辺戸岬
年平均濃度 (ppb)	1.4	3.2	0.9	1.7	2.4	6.1	1.3
NH <sub>3</sub> 周辺発生量 (tkm <sup>-2</sup> year <sup>-1</sup> )	1.43	3.81	0.28	0.77	2.72	1.28	0.32

図6.2.4 NH<sub>3</sub>周辺発生量と年平均濃度の関係

一 引用文献一

- 1) 北村洋子, 大泉毅, 野口泉, 家合浩明: 全国酸性雨調査(65): 乾性沈着(0式パッシブサンプリングによるオゾン濃度の動向), 第50回大気環境学会年会講演要旨集, 596, 2009.
- 2) 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回大気環境学会年会講演要旨集, 244-245, 2007.
- 3) 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-EAGrid2000-Japanの年次更新. 大気環境学会誌. 49, 117-125, 2014.

表6.1.2 地点別年平均濃度 (ppb)

地点	NO <sub>2</sub>	NO	NO <sub>x</sub>	O <sub>3</sub>	NH <sub>3</sub>
利尻	0.4	0.5	0.9	38.3	0.6
札幌北	10.8	5.3	16.1	29.9	1.1
鶴岡	0.7	0.9	1.6	24.2	0.8
福島天栄	0.7	0.3	1.0	37.8	0.4
小名浜	0.8	0.1	0.8	27.0	2.7
市原					3.5
旭					79.6
佐倉					2.9
射水					1.4
豊橋					3.2
若桜	0.7	1.0	1.7	37.0	0.9
湯梨浜	1.6	1.5	3.1	35.5	1.7
画図町					2.4
うるま	2.3	0.2	2.5		6.1
辺戸岬					1.3

## 7. まとめ

2019年度酸性雨全国調査の結果概要は以下のとおりである。

### 7.1 湿性沈着

地点ごとの年加重平均濃度について、H<sup>+</sup>およびnss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>は西部で高く、地点ごとのばらつきも大きかった。次いで日本海側が高く、いずれも例年同様であった。NO<sub>3</sub><sup>-</sup>は日本海側で高かったが、東部では地点ごとのばらつきが大きかった。NH<sub>4</sub><sup>+</sup>は北部で高く東高西低の傾向を示し、東部ではばらつきが大きかった。季節別では、例年同様に夏季に濃度が低下した。

沈着量をみると、日本海側や西部において、降水量の多さと高濃度の影響で高い値が観測された。

### 7.2 FP法によるガスおよびエアロゾル濃度

全国27地点で調査を実施した。中央値を前年度と比較すると、ガスはSO<sub>2</sub>(g)が20%、HCl(g)が11%、HNO<sub>3</sub>(g)とNH<sub>3</sub>(g)が6%それぞれ減少した。粒子状成分はCl<sup>-</sup>(p)が5%、Mg<sup>2+</sup>が1%増加したが、それ以外の成分は減少した。粒子状成分の年平均組成比については、南西諸島を除く地域では、陰イオンはSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、陽イオンはNH<sub>4</sub><sup>+</sup>またはNa<sup>+</sup>の占める割合が高かった。東部では、他の地域と比べてNO<sub>3</sub><sup>-</sup>の割合が高かった。

13地点においてインパクタを使用して粗大粒子と微小粒子（PM<sub>2.5</sub>）を分けて採取した結果、PM<sub>2.5</sub>中イオン成分濃度の年平均値の範囲は2.5~5.9μg m<sup>-3</sup>であり、いずれの地点もnss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の割合が最も高く、PM<sub>2.5</sub>イオン濃度のうち50~65%を占め、濃度は春季から夏季にかけて高くなる傾向であった。nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>に次いで多いのはいずれの地点もNH<sub>4</sub><sup>+</sup>（15~25%）であり、濃度は春季から夏季にかけて高く、さらに冬季にも高くなる傾向であった。

### 7.3 乾性沈着量

FP法など乾性沈着の測定データから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併せた乾性沈着量の全国平均値は、非海塩由来硫黄成分が11.0mmol m<sup>-2</sup>y<sup>-1</sup>で西部が多く、NO<sub>x</sub>を含まない酸化態窒素成分が15.0mmol m<sup>-2</sup>y<sup>-1</sup>、還元態窒素成分が38.5mmol m<sup>-2</sup>y<sup>-1</sup>だった。いずれの成分とも北部と日本海側は少なかった。

### 7.4 ガス成分濃度（パッシブ法）

パッシブサンプラーによりNH<sub>3</sub>（15地点）、NO<sub>x</sub>、NO<sub>2</sub>（8地点）、O<sub>3</sub>（7地点）の月平均濃度の測定を行った。年平均濃度が最も高かった地点はNO<sub>x</sub>では札幌北（16.1ppb）、O<sub>3</sub>では利尻（38.3ppb）、NH<sub>3</sub>では旭（79.6ppb）だった。濃度や季節変動などはおおむね例年どおりだった。