

<特 集>

第4次酸性雨全国調査報告書(平成19年度)(1)

全国環境研協議会

はじめに

全国環境研協議会による酸性雨全国調査は1991年からの第1次調査がその始まりです。以後数次にわたる調査を積み重ね、平成21年度から第5次調査を実施しています。

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

第2次調査(1995～1997年度)では夏季、冬季にバケツによる日単位調査や流跡線解析を行いました。この結果、①硫酸イオンを多く含んだ降水が中国や朝鮮半島を通過していたこと、②カルシウムイオンを多く含む降水は、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ました。

第3次調査(1999～2001年度)では、湿性沈着(降水時間開放型捕集装置)に加えて乾性沈着を把握するために、4段ろ紙法によるガス・エアロゾル調査(フィルターパック法)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、更に大気中のガス成分、粒子状成分濃度について全国的な空間分布とその季節変化を明らかにしました。また、この結果を基に、乾性沈着量の推定量を、国に先駆けて初めて示すことができました。

第4次調査(2003～2005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、第3次の調査内容に加えて、フィルターパック法では測定できない窒素化合物、オゾン濃度の測定などが可能なパッシブ法を導入しました。また、他の研究者と共同開発した乾性沈着速度を算出するプログラムを用いて、乾性沈着量の評価を開始しました。

第4次調査は当初2003～2005年度の予定でしたが、中国における二酸化硫黄や窒素化合物の排出量が急増する傾向が見られることから、2008年度まで3年間の調査を延長・追加しました。2009年度からは本部会の名称を「酸性雨広域大気汚染調

査研究部会」と改め、東アジアからの影響も含めた広域大気汚染の解明も目的とした調査を始めています。

こういった本部会の取組みは、国による酸性雨調査を面的に補完するだけでなく、その機動力を生かして、フィルターパック法やパッシブ法を国に先駆けて取り入れ、その結果を国の調査にフィードバックするといった相互関係を築きつつあります。

このような成果を生み出してきた地方研究機関の役割・貢献は極めて大きく、今後も本調査の一層の発展・深化が望まれます。

今回は、第4次調査の5年目、2007年度の調査結果を報告します。

なお、東アジア地域の経済発展に伴う酸性物質排出量の増大という背景から、湿性沈着や乾性沈着の調査結果の解析の中で、広域大気汚染についても考察を行いました。

今後も引き続きデータ収集と解析を行って、東アジア地域からの影響について検討を加え、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。

最後になりますが、行財政状況の大変厳しい中、本調査研究部会の活動にご参加いただきました全環研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、本調査に対し側面から多大のご協力・ご支援をいただきました環境省、(独)国立環境研究所及び(財)日本環境衛生センター／酸性雨研究センターその他の皆様にお世話になりました。皆様には、この場をお借りしまして、深くお礼を申し上げます。

今後とも当部会の活動に皆様のご支援・ご協力を引き続き賜りますようお願い申し上げます。

平成21年7月

全国環境研協議会
酸性雨広域大気汚染調査研究部
部会長 古谷 伸比固
(名古屋市環境科学研究所長)

1. 調査目的

全国環境研協議会(以下、全環研)は、表 1.1.1 に示すように平成3年度(1991年度)から全国調査を行ってきた。その結果、全国の湿性および乾性沈着について、地域特性、季節変化、火山・大陸の発生源の影響、乾性沈着速度評価などの多くの知見を得てきた。また、第1-3次調査データは国立環境研究所、地球環境研究センターにおける地球環境データベース¹⁾にてデータ公開されており、第4次調査結果についても同様の予定である。

本調査の目的は、日本全域における酸性沈着による汚染実態を把握することであり、第4次では①国際標準の方法である降水時間開放型捕集装置(ウエットオンリーサンプラー)による湿性沈着の把握、②自動測定機、国際的モニタリングネットワークでも用いられているフィルターパック法およびパッシブ法による乾性沈着成分(ガス/エアロゾル)濃度の把握、③インファレンシャル法による乾性沈着速度算出および乾性沈着量評価、以上の3つが主なテーマである。また、これまでは3カ年の調査の後、1年間の準備期間を経て次の調査を行ってきたが、第4次では急速に増大し始めた中国のSO₂およびNO_x排出量の影響などが懸念されたことから、追加調査として3カ年、計

6年間の調査を行うこととなった。

2. 調査内容

2.1 調査概要

平成19年度の調査参加機関は表 2.1.1 に示す50機関であり、湿性沈着調査地点は61地点、乾性沈着調査地点は48地点(フィルターパック法:28地点、パッシブ法:34地点)である。なお、一部には、他の学術機関との共同研究^{2,3)}、国設局との共用データも含まれている。なお、環境省のデータとは月区切りなどデータの算出法が異なるため、数値が一致しない場合がある。

平成19年度の調査期間は原則として平成19年3月26日~平成20年3月31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・酸性雨調査研究部会が主導して行われた。平成19~20年度の部会組織および報告書作成における担当を表 2.1.3 に示す。

2.2 調査方法

2.2.1 湿性沈着

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

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	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	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
調査手法	ろ過式採取法(バルク採取)による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	降水時間開放型捕集装置(ウエットオンリー採取)による1週間単位の試料採取	フィルターパック法による1週間単位の試料採取	降水時間開放型捕集装置(ウエットオンリー採取)による1週間単位の試料採取	フィルターパック法によるガス及び粒子状成分調査、1週間単位の試料採取	パッシブサンプラー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	夏季及び冬季の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(http://www.cger.nies.go.jp/acid/acid0.html)に掲載	国立環境研究所地球環境研究センターホームページ(http://www.cger.nies.go.jp/acid2/acid2-0.html)に掲載	国立環境研究所地球環境研究センターホームページ(http://www.cger.nies.go.jp/acid3/acid3-index.html)に掲載		国立環境研究所地球環境研究センターホームページに掲載予定		
報告書の公表	全国公害研会誌 VOL.19, NO.2, (平成4年度酸性雨全国調査結果報告書) 全国公害研会誌 VOL.20, NO.2, (酸性雨全国調査結果報告書(平成3年度~平成5年度))	全国公害研会誌 VOL.21, NO.4, (第2次酸性雨全国調査報告書(平成7年度)) 全国公害研会誌 VOL.22, NO.4, (第2次酸性雨全国調査報告書(平成8年度)) 全国公害研会誌 VOL.23, NO.4, (第2次酸性雨全国調査報告書(平成9年度))	全国環境研会誌 VOL.26, NO.2, (第3次酸性雨全国調査報告書(平成11年度)) 全国環境研会誌 VOL.27, NO.2, (第3次酸性雨全国調査報告書(平成12年度)) 全国環境研会誌 VOL.28, NO.3, (第3次酸性雨全国調査報告書(平成11~13年度))	全国環境研会誌 VOL.30, NO.2, (第4次酸性雨全国調査報告書(平成15年度)) 全国環境研会誌 VOL.31, NO.3, 4, (第4次酸性雨全国調査報告書(平成16年度)) 全国環境研会誌 VOL.32, NO.3, 4, (第4次酸性雨全国調査報告書(平成17年度)) 全国環境研会誌 VOL.33, NO.3(第4次酸性雨全国調査報告書(平成18年度))			

表 2.1.1 調査地点の属性及び調査内容

支部	都道府県名	地点名	調査機関名	SO ₂ 排出量 ^{注1)}	NO _x 排出量 ^{注1)}	NH ₃ 排出量 ^{注1)}	地域区分 ^{注2)}	緯度	経度	湿度 ^{注3)}	乾性 ^{注4)}				標高(m)	海岸からの距離(km)	フッ素設置位置 ^{注5)}	土地利用など
											FP	0式	N式	自動				
北海道		利尻	北海道環境科学研究センター	5	18	3	NJ	45.12	141.21	☆	☆	○	☆	41	0.8	地上3m	未指定(草、笹)	
		天塩FRS	北海道環境科学研究センター	47	54	17	NJ	45.06	142.10		◆			70	30.0	地上1m	未指定(森林)	
		母子里	北海道環境科学研究センター	11	55	26	NJ	44.36	142.27	□	□	□	□	287	40.0	地上8m	未指定(森林)	
		札幌北	北海道環境科学研究センター	368	956	156	NJ	43.08	141.33	☆	○	○	☆	12	13.0	地上8m	住居地域(市街地)	
		北海道共和	北海道環境科学研究センター	18	33	21	NJ	43.03	140.54					20	0.9	地上1m	未指定(農地)	
		札幌白石	札幌市衛生研究所	374	987	185	NJ	43.06	141.38	○	○	○		14	17.0	地上14m	近接商業地域、市街地	
		札幌南	札幌市衛生研究所	299	807	141	NJ	42.94	141.34	○	○	○		160	26.0	地上1.5m	市街地調整区域、森林地域	
		青森県	青森県道	青森県環境保健センター	108	235	52	NJ	40.83	140.79	○	▲			3	0.7	地上20m	住居地域(市街地)
		岩手県	磐前沢賀戸	青森県環境保健センター	24	58	62	NJ	40.78	140.24	○	▲			30	0.4	地上13m	都市計画未指定
		岩手県	盛岡	岩手県環境保健研究センター	106	249	270	NJ	39.68	141.14	○				131	70.0	地上12m	都工業地域 市街地
宮城県		八幡平	岩手県環境保健研究センター	33	115	196	NJ	39.82	140.94	○				830	89.0	地上5m	森林地域	
		寛平	宮城県環境保健センター	56	312	320	NJ	38.55	141.17	○				165	18.0	地上1.5m	草地	
		宮城大和	宮城県環境保健センター	24	116	70	NJ	38.46	140.68	○				533	31.5	地上3m	森林地域	
		社鹿	宮城県環境保健センター	99	134	13	NJ	38.39	141.52	○				54	0.2	地上1.5m	草地	
		仙台幸町	宮城県環境保健センター	651	1236	142	NJ	38.28	140.91	○				32	9.5	地上1.5m	市街地	
		丸森	宮城県環境保健センター	335	362	115	NJ	38.86	140.82	○				50	9.6	地上5m (0式:1.5m)	草地	
		秋田県	秋田八橋	秋田県健康センター	346	401	57	NJ	39.72	140.09	○				11	2.0	地上(前庭)	工業専用地域
		山形県	尾花沢	山形県環境科学研究センター	16	72	88	NJ	38.53	140.54	☆				366	60.0	地上6.8m	田園(森林地域)
		福島県	福島天栄	福島県環境センター	13	88	58	EJ	37.25	140.04	○				941	84.0	地上10m	田園
		福島県	郡山朝日	福島県環境センター	130	391	154	EJ	37.41	140.36	○				242	60.0	地上10m	都市
新潟県		郡山堀口	郡山市公害対策センター	111	267	96	EJ	37.41	140.23	○				392	70.0	地上10m	田園	
		小名浜	いわき市公害対策センター	904	721	93	EJ	36.96	140.89	○				3	2.5	地上約1.5m	第1種住居地域	
		新潟曾根	新潟県環境科学研究センター	898	899	137	JS	37.85	138.94	○				2	3.1	地上2.5m (FP:3.5m)	市街地調整区域	
		長岡	新潟県環境科学研究センター	192	288	87	JS	37.45	138.87	○				27	19.0	地上5m	住居地域	
		新潟大	新潟市衛生試験所	741	1232	219	JS	37.94	139.08	○				10	1.2	地上4m	住居地域	
		新潟坂井	新潟市衛生試験所	898	899	137	JS	37.88	138.99	○				0	1.5	地上3m	住居地域	
		新潟小	新潟市衛生試験所	898	899	137	JS	37.88	138.99	○				0	1.7	地上15m	住居地域	
		新潟中	新潟市衛生試験所	898	899	137	JS	37.88	138.99	○				0	1.7	地上15m	住居地域	
		新潟小	新潟市衛生試験所	898	899	137	JS	37.88	138.99	○				0	1.7	地上15m	住居地域	
		新潟小	新潟市衛生試験所	898	899	137	JS	37.88	138.99	○				0	1.7	地上15m	住居地域	
栃木県		日光中室	栃木県環境センター	24	104	79	EJ	36.74	139.48	○				1300	95.0	地上高11m	住宅地	
		宇都宮 ^{注6)}	栃木県環境センター	252	880	287	EJ	36.80	139.94	○				140	65.0	地上高10m	住宅地	
		小山	栃木県環境センター	462	898	362	EJ	36.31	139.83	○				35	63.0	地上高6m	住宅地	
		宇都宮	栃木県環境センター	462	898	362	EJ	36.31	139.83	○				35	63.0	地上高6m	住宅地	
		宇都宮	栃木県環境センター	462	898	362	EJ	36.31	139.83	○				35	63.0	地上高6m	住宅地	
		宇都宮	栃木県環境センター	462	898	362	EJ	36.31	139.83	○				35	63.0	地上高6m	住宅地	
		宇都宮	栃木県環境センター	462	898	362	EJ	36.31	139.83	○				35	63.0	地上高6m	住宅地	
		宇都宮	栃木県環境センター	462	898	362	EJ	36.31	139.83	○				35	63.0	地上高6m	住宅地	
		宇都宮	栃木県環境センター	462	898	362	EJ	36.31	139.83	○				35	63.0	地上高6m	住宅地	
		宇都宮	栃木県環境センター	462	898	362	EJ	36.31	139.83	○				35	63.0	地上高6m	住宅地	
群馬県		碓氷	群馬県環境センター	434	1817	402	EJ	36.09	139.56	○				13	55.0	地上11m	農用地	
		碓氷	群馬県環境センター	434	1817	402	EJ	36.09	139.56	○				13	55.0	地上11m	農用地	
		碓氷	群馬県環境センター	434	1817	402	EJ	36.09	139.56	○				13	55.0	地上11m	農用地	
		碓氷	群馬県環境センター	434	1817	402	EJ	36.09	139.56	○				13	55.0	地上11m	農用地	
		碓氷	群馬県環境センター	434	1817	402	EJ	36.09	139.56	○				13	55.0	地上11m	農用地	
		碓氷	群馬県環境センター	434	1817	402	EJ	36.09	139.56	○				13	55.0	地上11m	農用地	
		碓氷	群馬県環境センター	434	1817	402	EJ	36.09	139.56	○				13	55.0	地上11m	農用地	
		碓氷	群馬県環境センター	434	1817	402	EJ	36.09	139.56	○				13	55.0	地上11m	農用地	
		碓氷	群馬県環境センター	434	1817	402	EJ	36.09	139.56	○				13	55.0	地上11m	農用地	
		碓氷	群馬県環境センター	434	1817	402	EJ	36.09	139.56	○				13	55.0	地上11m	農用地	
茨城県		土浦	茨城県霞ヶ浦環境科学センター	184	538	329	EJ	36.08	140.27	○				18	31.0	地上	草地	
		土浦	茨城県霞ヶ浦環境科学センター	184	538	329	EJ	36.08	140.27	○				18	31.0	地上	草地	
		土浦	茨城県霞ヶ浦環境科学センター	184	538	329	EJ	36.08	140.27	○				18	31.0	地上	草地	
		土浦	茨城県霞ヶ浦環境科学センター	184	538	329	EJ	36.08	140.27	○				18	31.0	地上	草地	
		土浦	茨城県霞ヶ浦環境科学センター	184	538	329	EJ	36.08	140.27	○				18	31.0	地上	草地	
		土浦	茨城県霞ヶ浦環境科学センター	184	538	329	EJ	36.08	140.27	○				18	31.0	地上	草地	
		土浦	茨城県霞ヶ浦環境科学センター	184	538	329	EJ	36.08	140.27	○				18	31.0	地上	草地	
		土浦	茨城県霞ヶ浦環境科学センター	184	538	329	EJ	36.08	140.27	○				18	31.0	地上	草地	
		土浦	茨城県霞ヶ浦環境科学センター	184	538	329	EJ	36.08	140.27	○				18	31.0	地上	草地	
		土浦	茨城県霞ヶ浦環境科学センター	184	538	329	EJ	36.08	140.27	○				18	31.0	地上	草地	
千葉県		土気	千葉県環境保健研究所	793	1623	421	EJ	35.53	140.26	○				72	12.8	測定局舎屋上, 3m	住居系	
		土気	千葉県環境保健研究所	793	1623	421	EJ	35.53	140.26	○				72	12.8	測定局舎屋上, 3m	住居系	
		土気	千葉県環境保健研究所	793	1623	421	EJ	35.53	140.26	○				72	12.8	測定局舎屋上, 3m	住居系	
		土気	千葉県環境保健研究所	793	1623	421	EJ	35.53	140.26	○				72	12.8	測定局舎屋上, 3m	住居系	
		土気	千葉県環境保健研究所	793	1623	421	EJ	35.53	140.26	○				72	12.8	測定局舎屋上, 3m	住居系	
		土気	千葉県環境保健研究所	793	1623	421	EJ	35.53	140.26	○				72	12.8	測定局舎屋上, 3m	住居系	
		土気	千葉県環境保健研究所	793	1623	421	EJ	35.53	140.26	○				72	12.8	測定局舎屋上, 3m	住居系	
		土気	千葉県環境保健研究所	793	1623	421	EJ	35.53	140.26	○				72	12.8	測定局舎屋上, 3m	住居系	
		土気	千葉県環境保健研究所	793	1623	421	EJ	35.53	140.26	○				72	12.8	測定局舎屋上, 3m	住居系	
		土気	千葉県環境保健研究所	793	1623	421	EJ	35.53	140.26	○				72	12.8	測定局舎屋上, 3m	住居系	
神奈川県		日中	神奈川県環境センター	24	104	79	EJ	36.74	139.48	○				1300	95.0	地上高11m	住宅地	
		日中	神奈川県環境センター	24	104	79	EJ	36.74	139.48	○				1300	95.0	地上高11m	住宅地	
		日中	神奈川県環境センター	24	104	79	EJ	36.74	139.48	○				1300	95.0	地上高11m	住宅地	
		日中	神奈川県環境センター	24	104	79	EJ	36.74	139.48	○				1300	95.0	地上高11m	住宅地	
		日中	神奈川県環境センター	24	104	79	EJ	36.74	139.48	○				1300	95.0	地上高11m	住宅地	
		日中	神奈川県環境センター	24	104	79	EJ	36.74	139.48	○				1300	95.0	地上高11m	住宅地	
		日中	神奈川県環境センター	24	104	79	EJ	36.74	139.48	○				1300	95.0	地上高11m	住宅地	
		日中	神奈川県環境センター	24	104	79	EJ	36.74	139.48	○				1300	95.0	地上高11m	住宅地	
		日中	神奈川県環境センター	24	104	79	EJ	36.74	139.48	○				1300	95.0	地上高11m	住宅地	
		日中	神奈川県環境センター	24	104	79	EJ	36.74	139.48	○				1300	95.0	地上高11m	住宅地	
長野県		日中	神奈川県環境センター	24	104	79	EJ	36.74	139.48	○				1300	95.0	地上高11m	住宅地	
		日中	神奈川県環境センター	24	104	79	EJ	36.74	139.48	○								

バルク捕集となることも可としている。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、精度管理に用いている。

降水量は、貯水量を捕集面積で割って算出することとしており、測定項目および分析方法、手順については、湿性沈着モニタリング手引き書一第

2版—4(以下「手引き書」)に従い、イオンバランス(R₁)および電気伝導率バランス(R₂)により、基準範囲を超える場合は、再分析を行うなどの精度管理を行っている。また、分析精度の確保に関しては、環境省のモニタリングネットワーク(以下、JADS)の測定局を対象に行われている分析機関間比較調査に本調査参加機関も多数参加し、全環研としても解析を行うことにより、分析データの信頼性を確保しているところである。

2.2.2 乾性沈着

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

2.2.2.1 フィルターパック法

フィルターパック法(以下FP法)は、1段目で粒子状物質を、2段目でHNO₃などを、3段目でSO₂, HClを、4段目でNH₃を捕集する4段ろ紙法^{5,6)}を全環研として採用した。

調査地点は、可能な限り湿性沈着調査地点と同一地点を選定することとなっており、通年調査

表 2.1.2 調査期間の季節・月区分

季節	月	平成19年度			週
		開始日	～	終了日	
春	4	3月26日	～	5月1日	5
	5	5月1日	～	5月28日	4
夏	6	5月28日	～	7月2日	5
	7	7月2日	～	7月30日	4
	8	7月30日	～	9月3日	5
秋	9	9月3日	～	10月1日	4
	10	10月1日	～	10月29日	4
	11	10月29日	～	12月3日	5
冬	12	12月3日	～	1月7日	5
	1	1月7日	～	2月4日	4
	2	2月4日	～	3月3日	4
春	3	3月3日	～	3月31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	高知県環境研究センター	久武 正義	H19	
	〃	小田 孝	H20	
理事委員	広島市衛生研究所	吉岡 嘉暁	H19-20	
	新潟県保健環境科学研究所	大泉 毅	H19-20	D
支部委員	埼玉県環境科学国際センター	松本 利恵	H19-20	D
	兵庫県立健康環境科学研究所	藍川 昌秀	H19-20	D
	広島市衛生研究所	山本 修	H19	D
	広島市健康福祉局衛生研究所	中村 和央	H20	D
	福岡県保健環境研究所	大石 興弘	H19	D
	宮崎県衛生環境研究所	中村 雅和	H20	D
	北海道環境科学研究所	野口 泉	H19-20	1-3章
委員	宮城県保健環境センター	北村 洋子	H19-20	6.2章
	埼玉県環境科学国際センター	松本 利恵	H19-20	5.3章
	京都府保健環境研究所	辻 昭博	H19-20	5.1, 5.2章
	兵庫県立健康環境科学研究所	藍川 昌秀	H19-20	6.1章
	山口県環境保健センター	中川 史代	H19-20	4.1章
	福岡県保健環境研究所	藤川 和浩	H19-20	5.1, 5.2章
	沖縄県衛生環境研究所	友寄 喜貴	H19-20	4章
有識者	明星大学理工学部	松田 和秀	H19-20	
	(独)国立環境研究所	村野健太郎	H19	
	〃	向井 人史	H19-20	
	法政大学生命科学部	村野健太郎	H20	
	環境省	橋本 俊一	H19-20	
事務局	(財)日本環境衛生センター	家合 浩明	H19-20	
	高知県環境研究センター	山村 貞雄	H19-20	
	〃	武市 佳子	H19-20	
	〃	池澤 正幸	H19	
	〃	十川 紘一	H20	

注) 「報告書担当部分」におけるDはデータ収集, Sは精度管理, 数字は報告書の章を表す。

表 2.2.1 測定項目

項 目	捕集ろ紙名	
F	粒子状成分	テフロン(PTFE)
	SO ₂ , HCl	K ₂ CO ₃ +ポリアミド
P	HNO ₃	ポリアミド
	NH ₃	リン酸+ポリアミド
N 式	O ₃ , SO ₂ , HCl	NaNO ₂ +K ₂ CO ₃
	NO ₂	TEA
	NO _x	TEA-PTIO
	HNO ₃	ポリアミド
	NH ₃	リン酸
O 式	SO ₂ , NO ₂	K ₂ CO ₃ +TEA
	NO _x	K ₂ CO ₃ +TEA+PTIO
	NH ₃	クエン酸
	O ₃	NaNO ₂

で、採取単位は1週間～2週間である。なお、解析に用いるデータは月単位である。試料採取は、第3次調査⁵⁾と同様に表 2.2.1 に示した4種のろ紙を装着し、毎分1-5Lの吸引速度で連続採取を行い、積算流量計、あるいは平均流量から採気量を求めている。

なお、全環研のFP法に関するマニュアルは東アジア酸性雨モニタリングネットワーク(以下、EANET)でも英訳されて用いられており、詳細な手順などはこれまでの報告⁵⁾およびEANETの技術資料⁷⁾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ための試薬が含浸されたろ紙、あるいは目的のガス成分と反応を起こすための試薬が含浸されたろ紙を用い、捕集量あるいは試薬成分変化量を測定し、濃度を求める方法である。パッシブ法においては、そのまま試薬含浸ろ紙を晒す方が捕集量は多くなるが、粒子状物質の沈着や風の強さなどの影響を除外するため、目的ガス成分がろ紙にたどり着くまでの抵抗を設ける必要がある。本調査では抵抗方法として、テフロンフィルターで覆う方法(テフロン膜抵抗)であるN式パッシブ法(以下、N式法)と細孔を開けたサンプラーのカバーによる(拡散長抵抗)方法であるO式パッシブ法(以下、O式法)を用いている。

平成19年度のN式法およびO式法の調査地点は、それぞれ11地点、23地点である。

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

N式法は、東海・近畿・北陸支部(2004)⁸⁾およびNishikawa et al. (2006)⁹⁾が報告している方法で、対象項目が多く、安価で抵抗値も小さく、ガス成分の捕集量も多いため、低濃度でもブランク値の影響は小さく分析の定量下限値の影響も少ないなどの利点があり、予算の少ない地方公共団体の環境研究所でもより多くの調査結果が得られる方法である。一方、検量線作成にあたっては、自動測定機やFP法による濃度との比較検討が必要であり、東海近畿北陸を中心に検討され、関東および中四国などでも適応可能地点が多いことが確認されてきたところである。なお、詳細な手順などはこれまでの報告⁵⁾などを参照されたい。

O式法は、THE OGAWA SAMPLERとして欧米でもモニタリングに用いられている方法であり、測定方法としてはFP法と同様に世界的にも良く知られている。本方法は、拡散長抵抗方法が用いられ、濃度と捕集量の関係が理論的に証明されており、他の方法と比較することなく濃度の算出が可能である。また捕集効率が100%に近く、分子拡散係数が得られれば、他の成分でも測定が可能である。しかし、抵抗が大きく、成分捕集量がN式に比べて少ないため、ブランク値および分析の定量下限値の影響を受けやすい。特にSO₂に関しては、現在の日本の状況では発生源のある都市部などの地域以外では精度の高い測定結果を得るのは困難である。しかし、現在ろ紙の改良が進められており、また、従来法との換算式も公表される予定である。なお、現段階での詳細な手順などはこれまでの報告⁴⁾およびマニュアル¹⁰⁾などを参照されたい。

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ている。本データはN式法の検量線作成のため、あるいはFP法、N式法およびO式法による測定結果の

精度確認のために用いた。また、一部は乾性沈着量の評価にも用いている。本データには高濃度地域に対応するための常時監視データも含まれており、一部はFP法より精度が低い場合もある。

平成19年度の自動測定機の調査地点は、19地点である。

2.2.3 調査地点の属性および調査内容

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

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

本調査では、計量計画研究所(2000)¹¹⁾による1998年ベースのSO₂、NO_xおよびNH₃排出量の情報を用いて調査地点を区分し、必要に応じて区別、排出量別の解析を実施した。それぞれの排出量は2次メッシュ(約10km四方)で得られており、調査地点周辺(半径20km相当:対象範囲を、地点を含むメッシュを中心に、その上下左右およびその周囲の総計13個のメッシュの値を用いた)の排出量を基に、排出量区分を「L(large), M(middle), S(small)」の3つに分類した。L, M, Sの区分基準は、表2.2.2のとおりである。なお、現

段階では1kmメッシュによるEAGrid2000(2000年ベース)¹²⁾が最も新しいデータであるが、ここではこれまでの報告書と合わせた。

—参考文献—

- 1) 国立環境研究所地球環境研究センター:地球環境データベース(http://db.cger.nies.go.jp/ja/database_B2.html)
- 2) 母子里のデータは、北大北方生物圏フィールド科学センターとの共同研究による。
- 3) 天塩FRSのデータは、国立環境研地球環境研究センター、北大北方生物圏フィールド科学センターおよび北大工学研究科との共同研究による。
- 4) 環境省環境保全対策課:湿性沈着モニタリング手引き書(第2版), 2001
- 5) 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), 28, 2-196, 2003
- 6) 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
- 7) Acid Deposition Monitoring Network in East Asia:東アジアにおけるフィルターバック法に関する技術資料, http://www.eanet.cc/jpn/docea_f.html
- 8) 全環研東海・近畿・北陸支部:パッシブ簡易測定法の実用化検討—全環研東海・近畿・北陸支部共同調査研究一, 全国環境研究会誌, 29(1)25-35, 2004
- 9) Y. Nishikawa, M. Yamagami, T. Mizoguchi and K. Murano: Field Measurement of Acidic Gases in the Atmosphere with a PTFE Membrane Resistance-Type Passive Sampler, 12th International Joint Seminar on Regional Deposition processes in the Atmosphere, 13-15 November 2006 Beijing, China, Proceedings, 90-100, 2006
- 10) 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(訂正版), <http://www.city.yokohama.jp/me/kankyuu/mamoru/kenkyu/pub/>
- 11) 計量計画研究所:平成11年度環境省委託業務報告書 大気汚染物質排出量グリッドデータ整備業務報告書, 2000.
- 12) A. Kannari, Y. Tonooka, T. Baba, K. Murano:Development of multiple-species 1km×1km resolution hourly basis emissions inventory for Japan, *Atmos. Environ.*, 41, 3428-3439, 2007.

表 2.2.2 排出量区分基準に対応する排出量の範囲

排出量区分	半径20km 範囲の平均排出量 (t ha ⁻¹ y ⁻¹)		
	SO ₂	NO _x	NH ₃
S	< 80	< 187	< 45
M	80~422	187~983	45~236
L	422<	983<	236<

- 注1) 排出量データは、「財団法人 計量計画研究所:平成11年度環境庁委託調査 大気汚染物質排出量グリッドデータ整備業務報告書. 2000」より引用した。
- 注2) NO_xはNO₂換算である。
- 注3) Sは全国平均排出量の4/25を中央値とする範囲とした。
- 注4) MはSの上限値を下限值とし全国平均排出量を中央値とする範囲とした。
- 注5) 全国平均排出量は、全国総排出量/国土面積として求めた。
- 注6) LはMの上限値を超えた場合とした。
- 注7) 排出量は2次メッシュであり、1つのメッシュを10km×10kmとした。
- 注8) 対象範囲は地点を含む2次メッシュ、その上下左右およびその周囲の13個の2次メッシュの値から算出した。

3. 気象概況および大気汚染物質排出量の状況

降水量が多い場合、湿性沈着成分濃度は低下するが、沈着量は増加する。また気温および日射は乾性沈着成分の生成や存在形態に影響すると考えられる。一方、硫黄酸化物(SO₂)、窒素酸化物(NO_x)およびアンモニア(NH₃)排出量の状況も成分濃度や沈着量に反映されると考えられる。これらのことから、ここでは気象概況および大気汚染物質排出量の状況を示す。

3.1 平成19年度の気象概況

平成19年度は、年平均気温は全国で高く、西日

本, 沖縄・奄美ではかなり高かった。特に8月は各地で記録的な高温となり9月の残暑も厳しかった。年降水量は全国的に少なく, 西日本を中心に渇水となった。台風の発生数, 接近数, 上陸数は平年程度であったが, 梅雨入り, 梅雨明けともに

遅れた。冬は日本海側と北日本で少雪であった¹⁾。

平成19年度の各月における降水量, 気温および日射(日照時間)の概況を表3.1.1に示す。

3.2 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

表 3.1.1 気象概況¹⁾

平均気温	
4月	北日本, 東日本と南西諸島で低かった。
5月	東日本, 西日本で高かった。
6月	北日本, 東日本, 西日本で気温が高かった。
7月	北日本から西日本で低く, 南西諸島で高かった。
8月	全国的に高く, 東日本, 西日本で顕著に高かった。
9月	全国でかなり高く, 東・西日本で記録的な高温となった。
10月	全国的に高く, 西日本と南西諸島でかなり高かった。
11月	前半は高温, 後半は低温と気温の変動が大きかった。
12月	東・西日本と南西諸島で高かった。
1月	西日本と南西諸島で高く, 北日本で低かった。
2月	東日本, 西日本と南西諸島で低かった。
3月	北・東日本で顕著に高かった。
降水量	
4月	ほぼ全国的に少なかった。
5月	西日本や南西諸島で降水量が少なく, 北日本太平洋側で多かった。
6月	東日本太平洋側, 北日本, 西日本で降水量が少なかった。
7月	東日本太平洋側, 西日本で多く, 北日本日本海側で少なかった。
8月	北・東・西日本太平洋側で少なく, 東・西日本日本海側, 南西諸島で多かった。
9月	北日本と南西諸島で多く, 東日本日本海側と西日本で少なかった。
10月	北・東日本の日本海側, 西日本太平洋側と沖縄・奄美で少なかった。
11月	北日本太平洋側と南西諸島で平年並だったほかは, 全国的に少なかった。
12月	東・西日本と北日本太平洋側の多く, 北・東日本日本海側の少なかった。
1月	西日本で多く, 北日本, 東日本日本海側で少なかった。
2月	北・東日本日本海側で少なかった。
3月	東日本日本海側と北日本で少なかった。
日照時間	
4月	北日本太平洋側と南西諸島では少なかったが, そのほかの地域では平年並だった。
5月	東日本, 西日本, 南西諸島では多く, 北日本では少なかった。
6月	東日本太平洋側と北日本で多かった。
7月	東日本, 西日本で少なかった。
8月	北日本太平洋側, 東・西日本で多く, 南西諸島で少なかった。
9月	東日本日本海側と西日本で多く, 北海道と南西諸島で少なかった。
10月	北日本, 西日本日本海側で多く, 東日本太平洋側では少なかった。
11月	西日本で多く, 南西諸島で少なかった。
12月	東・西日本と北日本太平洋側で少なかった。
1月	北海道太平洋側で多く, それ以外の北日本, 太平洋側, および南西諸島で少なかった。
2月	南西諸島でかなり少なく, 太平洋側で多かった。
3月	全国的に多かった。

排出量は、**図 3.2.1** に示すように中国および極東ロシアが多い²⁾。また**図 3.2.2** に示す中国の SO₂、NO_x 排出量のトレンド^{3,4)}は、**図 3.2.3** に示す中国、韓国および日本のエネルギー消費のトレンド⁵⁾とも合致しており、日本と韓国の排出量に比べ、中国の排出量の変動は大きく、90年代半ばから2000年頃まではやや停滞したが、その後再び排出量が増加する傾向にあるものと考えられる。また SO₂ の発生源としては火山の寄与も大きい⁶⁾が、2000年に噴火した三宅島雄山の活動も低下し、桜島も爆発回数、降灰量などからその活動は

低い状態が続いており、近年は全国的にはその寄与は増加していないと考えられる。

国内における人為発生源由来の SO₂、NO_x および NH₃ 排出量では、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⁶⁾。また NH₃ 排出量は酪農などを含む農業部門からの排出も多い傾向がみられている。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⁷⁾。

— 参考文献 —

- 1) 気象庁報道発表資料, <http://www.jma.go.jp/jma/press/tenko.html>, 2008.
- 2) North East Asia Sub-regional Programme for Environment Cooperation (NEASPEC), NEASPEC AND THE ENVIRONMENTAL PROFILES, <http://www.neaspec.org/map.asp>, 2008.
- 3) 国家环境保护总局: <http://www.zhb.gov.cn/plan/zkgb/2007zkgb/>, 2008.
- 4) 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.
- 5) 環境省環境統計集, <http://www.env.go.jp/doc/toukei/contents/>, 2008.
- 6) 計量計画研究所: 平成11年度環境省委託業務報告書 大気汚染物質排出量グリッドデータ整備業務報告書, 2000.
- 7) 都市環境学教材編集委員会: 都市環境学, 森北出版, 2003.

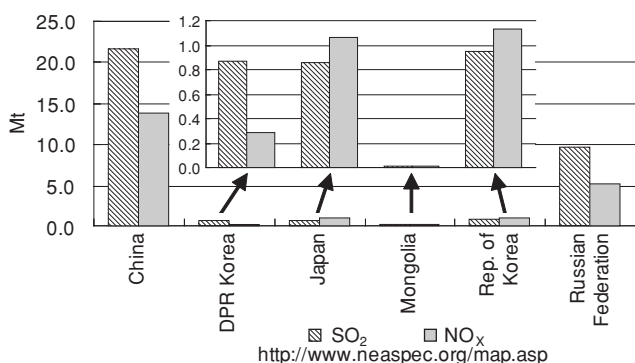


図 3.2.1 北東アジアの SO₂ および NO_x 排出量 (2000年)²⁾

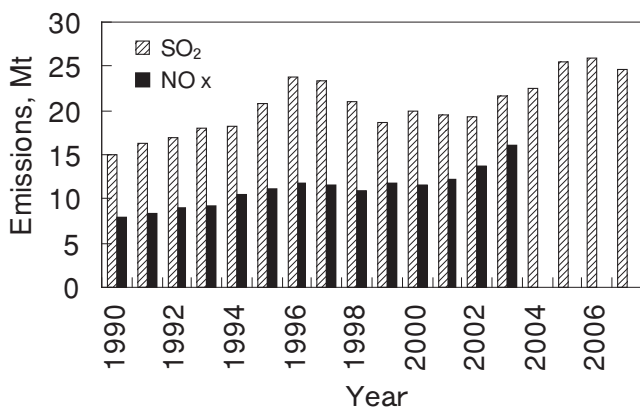


図 3.2.2 中国における SO₂ および NO_x 排出量^{3,4)}

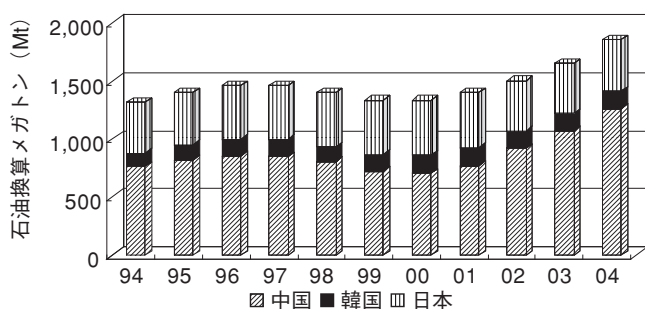


図 3.2.3 中国、韓国および日本のエネルギー消費のトレンド⁵⁾

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、平成19年度のとりまとめについて報告する。

平成19年度の湿性沈着調査に対し、47機関61地点の参加があった。ただし、4.1項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)。

また、平成19年度における湿性沈着の主要成分濃度の月別測定結果等については、**付表 1.1~1.8** に示した。

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

解析するまえに、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。

平成19年度は、月間データでは727個中8データ(1.1%)が除外された。除外データは参考値として扱った。年間データでは61地点全てが採用となった。なお、装置の故障等により、ある期間常時開放捕集となった地点については、原則としてその期間のデータを参考値扱いとした。ただし、全環研の定めた酸性雨共同調査実施要領²⁾において、「降雪地域においては、冬季間、バルク捕集となることもやむを得ない」としているため、降雪地域の冬季については常時開放捕集期間を有効とし、月間および年間データの集計に用いた。

4.1.2 イオンバランス(R₁)および電気伝導率バランス(R₂)

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)」³⁾に従って、イオンバランス(R₁)および電気伝導率バランス(R₂)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、R₁およびR₂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、R₁およびR₂を評価した。

完全度を満たした月間データにおいて、イオンバランス(R₁)による評価では、全ての項目が測定された719個のデータ中、R₁が許容範囲内にあったデータは682データ(適合率95%)であった。

同様に、電気伝導率バランス(R₂)による評価では、719個の月間データ中、R₂が許容範囲内にあったデータは704個(適合率98%)であった。

次に、分析精度管理調査について検討した。環境省が国設大気環境・酸性雨測定所(以下、国設局)を有する自治体を対象に行っている酸性雨測定分析機関間比較調査は、全環研から環境省への要望により、国設局以外の希望自治体についても分析精度管理調査(分析機関間比較調査)として実施されている。同調査は、模擬酸性雨試料(高濃度および低濃度の2種類)を各機関に配布し、その分析結果を解析することにより、分析機関に存在する問題点や測定の信頼性の評価を行っている。環境省の協力のもと、平成19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を除き32機関がこの調査に参加した。このうち全環研に湿性沈着の結果を報告している機関は27機関だった。

分析精度管理調査の結果から測定成分毎にフラグ数と相対標準偏差を求めたものを表 4.1.2 に示す。pHについては、H⁺濃度に換算した場合の相対標準偏差を併記した。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

表 4.1.1 R₁ および R₂ の許容範囲

$\Sigma C_i + \Sigma A_i$ ($\mu\text{eq L}^{-1}$)	$R_1(\%) = \{(\Sigma C_i - \Sigma A_i) / (\Sigma C_i + \Sigma A_i)\} \times 100$	A_{obs} (mS m^{-1})	$R_2(\%) = \{(A_{\text{cal}} - A_{\text{obs}}) / (A_{\text{cal}} + A_{\text{obs}})\} \times 100$
<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($\mu\text{eq L}^{-1}$)

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

A_{obs} : 降水試料の電気伝導率測定値

理目標値(DQOs: Data Quality Objectives, 分析の正確さ: ±15%)を用い、DQOsの2倍まで(±15%~±30%)の測定値にはフラグEを、DQOs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、分析精度管理調査結果報告書⁴⁾の方法に従い、平均値から標準偏差の3倍以上外れている測定値を除外した。

高濃度試料ではDQOsを満たすデータが96.9%、フラグEが付いたデータが3.1%であり、フラグXが付いたデータはなかった。低濃度試料では、DQOsを満たすデータが92.2%、フラグEが付いたデータが7.5%であり、フラグXが付いたデータは0.3%であった。フラグはカチオン(特に低濃度試料)において、多く付与された。

一方、国設局を管理している分析機関が平成15年から18年度に行った精度管理調査⁴⁾では、高濃度試料ではDQOsを満たすデータが98.3~99.2%、フラグEが付いたデータが1.7~0.8%であり、フラグXが付いたデータは0~0.4%だった。低濃度試料では、DQOsを満たすデータが90.0~95.2%、フラグEが付いたデータが4.4~8.8%であり、フラグXが付いたデータは0.4~1.3%であった。

以上の結果から、全環研における分析機関と国設局を管理している分析機関のフラグの付与率はほぼ同等であり、分析精度は高いレベルで担保されていると考えられる。

次に、分析機関間でバラツキの大きな成分を確認するため、各成分の測定結果の相対標準偏差を比較した。高濃度試料についてはH⁺を除いて

8%以下、低濃度試料ではH⁺を除いて11%以下であった。国設局を管理している分析機関が平成15年から18年度に行った分析精度管理調査では、高濃度試料の相対標準偏差が7%以下、低濃度試料は12%以下で推移しており、国設局を管理している分析機関と同様に精度よく測定が行われていた。

表4.1.2に示すように、各機関の測定結果のバラツキが大きい成分は、高濃度、低濃度試料ともにカチオンであり、また、カチオンにフラグの付与数が圧倒的に多かった。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ではフラグ付与率が小さく、バラツキも少ないが、H⁺濃度に換算すると、測定対象成分のうち、最も大きなバラツキを示している。R₁およびR₂の計算過程ではH⁺濃度として効いてくること、実際の降水試料の評価ではH⁺沈着量としての評価も重要であることなどから、pHについては、H⁺濃度として測定機関間のバラツキがより小さくなるよう努力していく必要性が考えられる。

次に、各機関において測定した実際の降水試料(以下、実降水試料)のR₁およびR₂と分析精度管理調査の関連について検討した。

図4.1.1に分析精度管理調査の模擬酸性雨試料と実降水試料の測定結果のR₁(イオンバランス)についての関係を示す。X軸に各機関における模擬酸性雨試料のR₁平均値(高濃度および低濃度試料の平均値)、Y軸に各機関における実降水試料のR₁の年加重平均値を示した。Y軸方向の誤差は月データのR₁における最高値および最低値の

表 4.1.2 平成19年度分析精度管理調査の測定結果におけるフラグ数と相対標準偏差

	pH	H ⁺	EC	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	NH ₄ ⁺	
高濃度試料	E フラグ	0	-	0	1	0	0	1	3	3	2	0
	X フラグ	0	-	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	相対標準偏差 ²⁾	1.3% (n=32)	14.3% (n=32)	2.7% (n=32)	3.8% (n=31)	3.2% (n=32)	2.5% (n=31)	4.2% (n=31)	7.7% (n=32)	5.8% (n=31)	6.7% (n=31)	5.1% (n=32)
低濃度試料	E フラグ	0	-	1	1	0	0	2	4	7	6	3
	X フラグ	0	-	0	0	0	0	0	0	0	0	1
	相対標準偏差 ²⁾	1.3% (n=32)	15.3% (n=32)	3.1% (n=31)	6.1% (n=32)	4.2% (n=32)	3.5% (n=32)	5.2% (n=31)	7.4% (n=31)	10.9% (n=32)	8.8% (n=31)	9.7% (n=32)

注1) pHより換算した。

注2) 相対標準偏差を求める際、平均値から標準偏差の3倍以上外れている測定値は棄却。

範囲を示す。なお、 R_1 が例外的に外れている機関が1機関あり(図中*)、この機関については機関特有の問題が大きいと考えられる。以下の検討では、多くの機関に一般的にみられる問題点を検討するため、上記1機関は除外し、26機関について比較を行った。

模擬酸性雨試料は人為的に調製した試料であり、 R_1 の真値は0に近いと考えられる。しかしながら、図4.1.1において理論的に $R_1=0$ である模擬酸性雨試料の R_1 と実降水試料の R_1 の間に正の相関が認められ、模擬酸性雨試料の R_1 を大きく報告している機関ほど、実降水試料でも R_1 を大きく評価する傾向が伺えた。

なお、模擬酸性雨試料の高濃度試料と低濃度試料のうち特に低濃度試料の R_1 が実降水試料の R_1 と相関が高かった。実降水試料のイオン成分濃度の加重平均値は Na^+ と Cl^- を除き模擬酸性雨試料の低濃度試料の設定値に近く、分析精度管理調査において低濃度試料の測定結果は、各機関の実降水試料の測定結果をよく反映していると考えられる。

一方、 R_2 については分析精度管理調査と実降水試料の測定結果との相関は認められなかった。

今回、分析精度管理調査と実降水試料の測定結果を検討したことで、分析精度管理調査が日常の実降水試料測定の精度確保に有益であることが確認できた。さらなる分析精度向上のためには、日

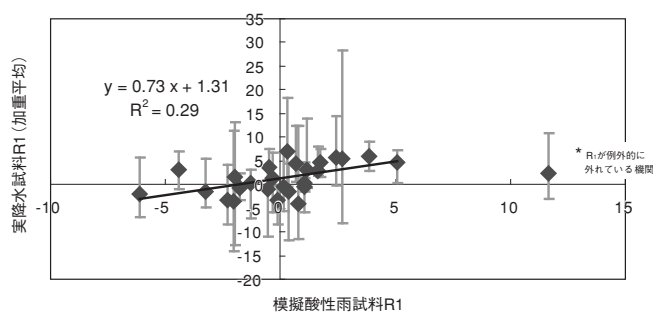


図 4.1.1 模擬酸性雨および実降水試料における R_1 の比較

常の実降水試料測定における 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。

4.1.3 フィールドブランク

フィールドブランク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、昨年度の報告書にて、フィールドブランク(以下、FB)についての全国一律の推奨値(暫定)を提案した⁵⁾。

平成19年度調査において、FB試験は、36地点(全61地点の59%)にて計427回実施された。表4.1.3に昨年度設定したFB推奨値と、それを超過したデータ数を示した。超過したデータ数は NO_3^- で9回(2.1%)、 SO_4^{2-} で6回(1.4%)であり、その他イオンおよび電気伝導率(EC)では1%未満であった。

今回の結果から、ロート部などの洗浄操作はほぼ適正に実施されていることが示された。しかしながら、ごく稀に高濃度のFB試料がみられることがあり、そのような場合、洗浄操作の徹底、チューブの交換などを実施し、流路からの汚染の低減化を検討する必要があると考えられる。これらの確認のため、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 pH, EC およびイオン成分濃度

ここでは、平成19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項で示したとおり、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。

表 4.1.3 フィールドブランク推奨値および超過データ数

	SO_4^{2-}	NO_3^-	Cl^-	NH_4^+	Na^+	K^+	Ca^{2+}	Mg^{2+}	EC
推奨値 (単位: $\mu\text{mol L}^{-1}$ (イオン成分), mS m^{-1} (EC))	5	3	12	10	15	3	5	3	0.5
超過データ数	6	9	3	3	1	1	0	2	2
割合	(1.4%)	(2.1%)	(0.7%)	(0.7%)	(0.2%)	(0.2%)	(0.0%)	(0.5%)	(0.5%)

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。また、調査地点の周辺におけるSO₂、NO_x およびNH₃排出量を基に、排出量区分として、L、M、Sの3つに分類した(2.2.3項参照)。なお、地域区分および排出量区分の設定方法等については、既報¹⁾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

湿性沈着調査における降水量および湿性イオン成分濃度等について、平成19年度の年加重平均濃度等を**表 4.2.1**に示す。また、降水量および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」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。

平成19年度の年間降水量は、784(利尻)~3,241mm(大里)の範囲にあり、単純平均は1,602mmであった。地域別では、南西諸島で多く、北部で少ない傾向を示した。

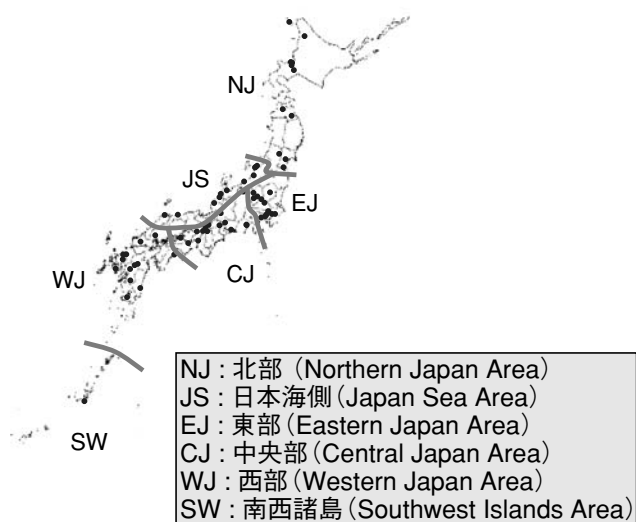


図 4.2.1 地域区分

年間平均 pH は、4.31(金沢)~5.21(大里)の範囲で、加重平均は4.62であった。H⁺濃度としては、加重平均は24.2μmol L⁻¹であり、日本海側で高く、南西諸島で低い傾向がみられた。なお、金沢で観測された年間平均 pH4.31という値は、第4次調査(平成15~19年度)の5年間を通しての最低値であった。地点毎に年間データをみると、平成19年度に第4次調査中における最低 pH を示した地点は、第4次調査5年間のうち4年間以上で有効データを得られた45地点中、17地点(38%)にのぼり、日本海側および西部において多く観測された。

年間平均電気伝導率は、1.19(日光中宮)~7.55 mS m⁻¹ (鯉ヶ沢舞戸)の範囲で、加重平均は2.68 mS m⁻¹であった。

海塩粒子からの寄与を表すと考えられる成分の代表として、年間平均 Na⁺濃度では、8.5(大阪)~386.3μmol L⁻¹ (鯉ヶ沢舞戸)の範囲で、加重平均は68.7μmol L⁻¹であった。

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

降水の酸性化の原因となる酸性成分については、次のとおりであった。

年間平均 nss-SO₄²⁻濃度は、6.7(辺戸岬)~29.3μmol L⁻¹(高松)の範囲で、加重平均は19.6 μmol L⁻¹であった。地域別では、日本海側で高く、南西諸島で低い傾向を示した。

年間平均 NO₃⁻濃度は、6.1(大里)~36.8μmol L⁻¹(高松)の範囲で、加重平均は21.4μmol L⁻¹であった。地域別では、日本海側および東部で高濃度を示す地点が多く、南西諸島で低い傾向を示した。

地点毎に年間データをみると、平成19年度に第4次調査中における nss-SO₄²⁻および NO₃⁻の最高濃度を示した地点は、第4次調査5年間のうち4年間以上で有効データを得られた45地点中、nss-SO₄²⁻において17地点(38%)、NO₃⁻において27地点(60%)にのぼり、日本海側および西部において多く観測された。

降水中の塩基性成分については、次のとおりであった。

年間平均 NH₄⁺濃度は、7.3(辺戸岬)~43.0

表 4.2.1 湿性イオン成分等の地点別加重平均濃度(平成19年度)

地点名	地域	排出量区分 ²⁾			降水量 (mm)	pH	EC (mS m ⁻¹)	SO ₄ ²⁻ nss-SO ₄ ²⁻ NO ₃ ⁻ Cl ⁻ NH ₄ ⁺ Na ⁺ K ⁺ Ca ²⁺ nss-Ca ²⁺ Mg ²⁺ H ⁺ (μmol L ⁻¹)										
		SO ₂	NO _x	NH ₃				SO ₄ ²⁻	nss-SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	NH ₄ ⁺	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	nss-Ca ²⁺	Mg ²⁺	H ⁺
利尻	NJ	S	S	S	784	4.59	4.22	30.0	19.3	16.0	196.3	25.3	176.6	4.7	6.6	2.6	21.1	25.7
母子里	NJ	S	S	S	1011	4.67	3.12	21.7	14.7	19.1	129.1	22.5	115.8	3.4	6.1	3.5	13.5	21.4
札幌北	NJ	M	M	M	891	4.56	2.58	20.2	16.4	17.8	72.7	24.5	62.6	2.2	5.1	3.7	7.4	27.3
札幌白石	NJ	M	L	M	880	4.74	2.13	20.7	18.4	18.4	53.9	23.3	38.2	2.0	6.8	5.9	5.7	18.2
札幌南	NJ	M	M	M	1069	4.57	2.22	17.4	15.5	15.6	47.6	13.4	31.7	1.8	4.6	3.8	4.5	26.7
青森東造道	NJ	M	M	M	1000	4.73	5.01	34.4	21.7	25.8	244.8	29.0	210.0	5.9	12.3	7.6	22.7	18.6
鱒ヶ沢舞戸	NJ	S	S	M	990	4.51	7.55	52.6	29.2	33.6	437.7	37.8	386.3	9.4	16.0	7.4	40.0	30.6
丸森	NJ	M	M	M	1777	4.92	1.44	14.6	13.1	13.4	28.4	18.8	24.9	1.1	3.0	2.5	3.9	12.2
秋田八橋	NJ	M	M	M	1433	4.77	4.26	33.8	24.7	24.7	193.8	28.4	150.9	5.5	11.9	8.5	19.1	17.0
尾花沢	NJ	S	S	M	1644	4.73	2.07	15.0	11.8	12.3	62.7	14.6	53.6	1.6	3.0	1.8	6.1	18.5
郡山朝日	NJ	S	S	M	1357	4.78	1.61	19.7	18.9	24.9	18.4	35.0	14.0	1.2	5.3	5.0	2.3	16.5
小名浜	EJ	L	M	M	1491	4.52	2.55	21.9	18.0	17.4	71.4	27.6	64.7	5.3	4.0	2.7	6.0	30.4
土浦	EJ	M	M	L	1051	4.84	1.92	22.0	19.9	23.9	38.7	39.6	33.7	1.6	9.4	8.6	5.0	14.5
宇都宮 ³⁾	EJ	M	M	L	1345	4.65	2.30	28.6	26.7	35.4	21.0	40.4	30.1	1.5	7.9	7.2	3.5	22.5
小山	EJ	L	M	L	1160	4.77	2.07	26.6	25.0	36.1	19.6	42.8	26.6	1.9	9.0	8.4	3.5	17.1
日光中宮	EJ	S	S	M	2252	4.88	1.79	14.7	13.9	13.7	8.8	11.9	13.1	2.8	3.7	3.4	2.2	13.3
騎西	EJ	L	L	L	1145	4.64	2.11	20.8	19.8	35.3	20.1	43.0	15.0	1.0	9.9	9.5	3.1	22.9
土気	EJ	L	L	L	1251	4.94	1.66	19.8	17.9	20.2	52.0	38.3	31.4	14.6	6.9	6.2	5.4	11.4
川崎	EJ	L	L	L	1433	4.75	2.65	28.6	24.3	24.4	73.6	22.8	71.2	2.0	11.7	10.1	8.2	18.0
磯子	EJ	L	L	L	1660	4.68	2.66	26.8	22.7	21.3	74.3	27.3	67.0	2.7	7.8	6.3	8.1	20.7
平塚	EJ	M	L	L	1366	4.65	2.38	22.5	18.9	27.2	62.6	28.2	51.4	2.3	8.3	7.0	6.5	21.8
新潟大山	JS	L	L	M	1698	4.55	4.21	34.3	26.2	26.4	155.9	34.8	133.6	4.7	9.7	6.7	16.3	28.2
新潟小新	JS	L	M	M	1792	4.53	3.92	30.1	22.8	25.1	140.2	25.1	121.1	4.1	8.0	5.3	14.8	29.5
新潟曾和	JS	L	M	M	1804	4.45	3.77	30.6	24.1	25.4	123.6	24.8	107.5	3.5	7.6	5.2	12.9	35.1
長岡	JS	M	M	M	2748	4.54	4.33	34.5	25.7	27.1	167.8	26.6	145.8	4.7	9.6	6.4	17.5	29.2
射水	JS	L	L	M	1949	4.48	3.70	25.8	20.4	27.5	101.3	28.0	89.4	3.1	8.5	6.5	10.4	33.2
金沢	JS	M	M	M	2365	4.37	4.23	31.4	24.3	27.7	131.1	25.3	118.3	3.8	9.0	6.4	13.7	49.3
福井	JS	M	M	M	2061	4.44	4.77	37.8	29.1	33.0	155.9	36.8	143.6	5.2	11.7	8.5	17.3	36.7
長野	CJ	M	M	M	851	4.65	1.75	16.9	16.4	22.8	15.1	24.7	9.2	1.5	6.3	6.1	1.7	22.3
伊自良湖	CJ	M	M	M	2145	4.54	1.93	17.8	16.9	22.5	17.8	19.7	14.9	1.0	3.8	3.4	2.1	28.7
静岡北安東	CJ	M	M	M	2061	4.63	1.78	16.5	15.3	19.9	24.6	15.9	19.3	1.0	5.0	4.6	2.7	23.5
静岡小黒	CJ	M	M	M	2105	4.61	1.72	16.5	14.7	18.7	34.4	16.0	30.3	2.0	3.8	3.1	5.0	24.7
名古屋緑	CJ	L	L	L	1369	4.76	1.50	16.6	16.0	19.7	11.9	23.0	10.5	1.7	3.7	3.4	1.7	17.5
豊橋	CJ	M	M	L	1457	4.85	1.44	14.7	13.4	15.6	24.7	17.6	21.5	0.9	5.8	5.4	3.2	14.2
大津柳が崎	CJ	L	L	M	1641	4.54	2.03	21.3	20.4	25.9	16.3	29.7	14.6	1.8	5.6	5.3	2.1	29.0
京都木津	CJ	M	L	L	1170	4.57	1.87	17.9	17.3	25.1	11.2	20.7	8.9	1.4	6.0	5.8	1.5	27.1
京都弥栄	JS	S	S	S	2088	4.56	3.79	29.2	21.4	23.0	142.9	19.0	127.3	5.1	7.6	4.8	15.2	27.2
大阪	CJ	L	L	L	856	4.73	1.64	19.2	18.7	22.2	13.7	27.8	8.5	0.6	6.1	5.9	2.3	18.4
神戸須磨	CJ	L	L	M	1029	4.55	2.39	23.7	21.6	27.6	35.3	22.1	35.4	3.0	12.0	11.2	4.1	28.4
奈良	CJ	M	L	L	1168	4.62	1.94	13.4	12.9	23.6	10.9	20.8	8.6	1.0	5.9	5.8	7.5	24.0
海南	CJ	S	S	S	1131	4.61	1.73	16.1	15.0	15.4	16.1	13.8	13.1	0.8	3.2	2.9	1.9	24.1
鳥取	JS	M	M	M	1732	4.57	4.46	38.8	28.4	32.4	184.8	41.5	171.7	6.0	10.3	6.4	16.8	27.1
若桜	JS	S	S	M	1909	4.67	2.16	23.6	20.7	19.3	50.6	24.3	47.4	2.6	4.4	3.4	4.9	21.5
湯梨浜	JS	L	L	M	1725	4.52	4.54	39.1	28.5	32.6	190.1	39.6	175.1	6.1	11.0	7.1	17.2	29.9
松江	JS	M	M	M	1892	4.59	3.49	30.7	24.5	28.4	115.8	25.5	102.4	3.7	11.7	9.4	12.9	25.9
広島安佐南	WJ	M	M	M	1322	4.44	2.43	23.5	22.1	25.6	22.8	23.6	22.8	1.7	7.4	6.9	3.0	36.2
山口	WJ	M	M	M	1550	4.58	2.29	26.0	23.6	23.1	32.5	22.4	39.7	2.4	9.3	8.4	4.5	26.3
高松	CJ	L	L	M	897	4.78	2.36	30.8	29.3	36.8	20.9	34.4	23.8	1.8	13.6	13.1	4.1	16.4
香北	WJ	S	S	S	2165	4.64	1.56	15.7	14.6	11.1	21.8	13.0	18.6	0.9	2.9	2.5	2.4	22.7
徳島	CJ	M	M	L	1066	4.61	2.36	20.9	17.8	21.1	61.6	23.3	51.3	1.7	5.1	3.9	4.5	24.4
太宰府	WJ	M	L	L	1570	4.77	1.99	23.2	21.2	22.3	33.8	25.8	32.1	2.5	9.9	9.1	4.3	16.9
福岡	WJ	M	M	L	2115	4.59	2.65	26.6	23.3	22.5	55.5	26.1	53.4	2.2	10.3	9.1	6.5	25.6
佐賀	WJ	M	M	L	1501	4.55	2.36	25.9	24.3	20.6	32.8	23.5	27.8	2.5	9.3	8.7	3.9	28.0
式見	WJ	M	M	M	1415	4.57	2.59	26.6	23.6	21.0	64.6	23.2	49.2	4.2	9.0	7.9	8.4	26.9
阿蘇	WJ	S	S	L	2739	4.39	1.93	23.9	23.1	14.9	18.6	24.6	13.7	1.4	5.4	5.1	2.0	40.7
熊本	WJ	M	M	L	1240	4.69	1.48	18.3	17.7	13.5	13.1	19.2	10.0	0.8	2.6	2.4	1.6	20.3
人吉	WJ	S	S	M	1922	4.48	1.70	21.7	20.8	15.4	18.8	23.1	14.9	1.1	5.5	5.2	2.1	32.9
宮崎	WJ	S	M	L	2561	4.76	1.93	16.8	14.0	16.8	54.2	16.8	45.6	1.7	4.2	3.2	5.6	17.2
鹿児島	WJ	L	L	M	2181	4.58	2.53	20.3	16.6	11.2	79.9	16.4	60.3	1.5	5.2	3.8	7.5	26.1
大里	SW	M	M	M	3241	5.21	2.52	14.0	6.8	6.7	133.2	16.9	117.8	3.7	4.9	2.3	13.7	6.2
辺戸岬	SW	S	S	S	2523	4.97	2.98	15.9	6.7	6.7	171.4	7.3	153.1	3.8	5.1	7.7	17.5	10.8
最低値					784	4.31	1.19	13.4	6.7	6.1	8.8	7.3	8.5	0.6	2.6	1.7	1.5	6.2
最高値					3241	5.21	7.55	52.6	29.3	36.8	437.7	43.0	386.3	14.6	16.0	13.1	40.0	49.3
加重平均値 ⁴⁾					1602	4.62	2.68	23.7	19.6	21.4	78.1	24.3	68.7	2.9	7.1	5.5	8.2	24.2

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)

²⁾排出量区分 (地点周辺におけるSO₂及びNO_xおよびNH₃の排出量に基づく区分)

³⁾旧名称は「河内」

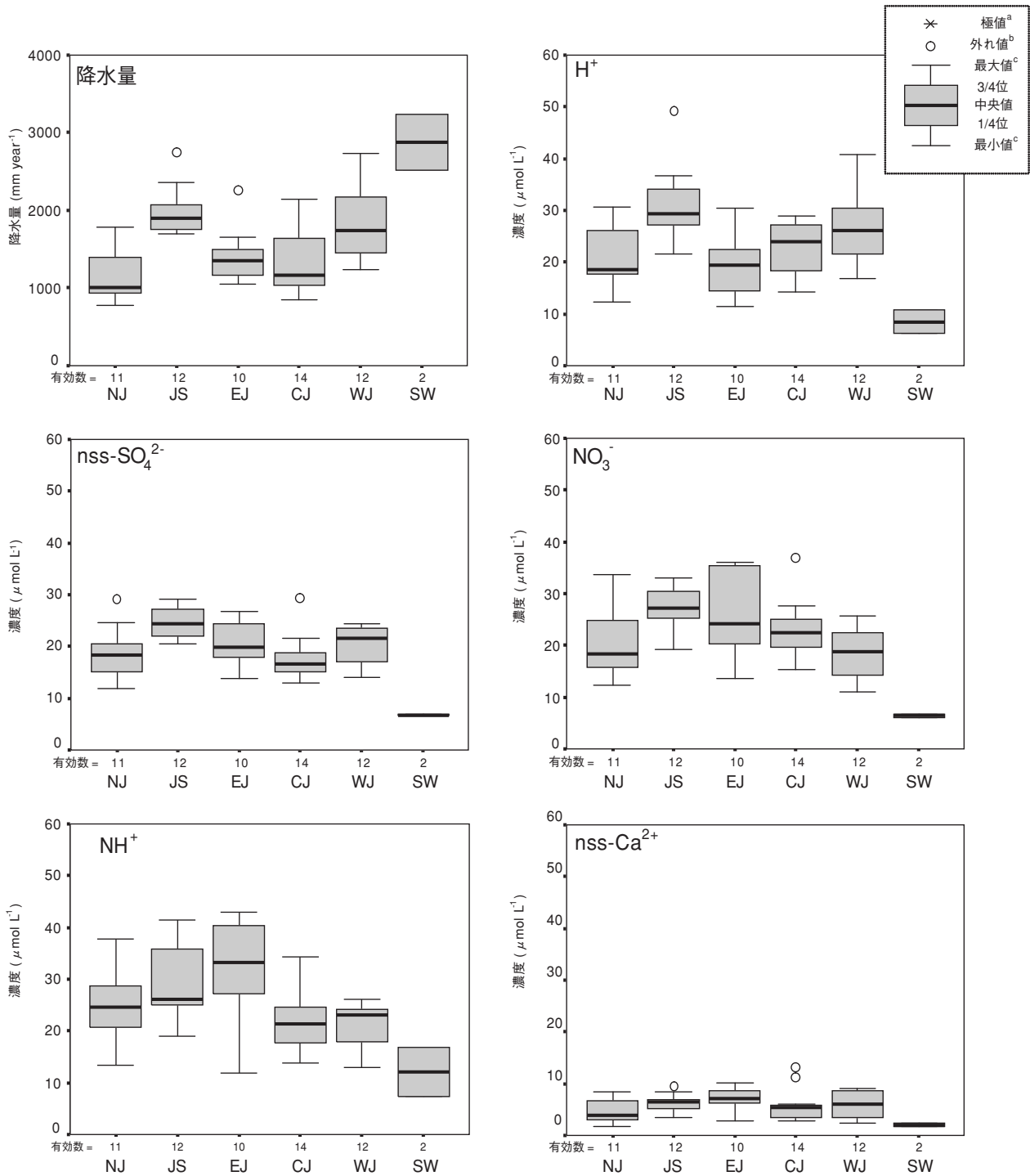
⁴⁾降水量は、単純平均値 最大値: 白抜き 最小値: 斜体

μmol L⁻¹(騎西)の範囲で、加重平均は24.3μmol L⁻¹であった。地域別では、東部で高く、南西諸島で低い傾向を示した。

年間平均 nss-Ca²⁺濃度は、1.7(辺戸岬)~13.1 μmol L⁻¹(高松)の範囲で、加重平均は5.5μmol L⁻¹であった。他の成分に比較して、地域間の差

が小さい傾向にあった。

地点毎に年間データをみると、平成19年度に第4次調査中におけるNH₄⁺およびnss-Ca²⁺の最高濃度を示した地点は、第4次調査5年間のうち4年間以上で有効データを得られた45地点中、NH₄⁺において22地点(49%)、nss-Ca²⁺において



- a: 箱の端からの距離が箱の長さの3倍以上値
- b: 箱の端からの距離が箱の長さの1.5倍から3倍までの値
- c: 極値および外れ値を除いた最大値または最小値

図 4.2.2 降水量および主要イオン成分の年加重平均濃度の分布(平成19年度)

20地点(44%)にのぼり、日本海側および西部において多く観測された。

4.2.3 pHおよびイオン成分濃度の季節変動

湿性沈着による汚染実態を把握するのに重要と考えられる項目について、平成19年度の季節変動

を地域区分別に図 4.2.3 に示す。地域区分別の月間代表値としては、地域区分内での中央値を採用した。なお、中央値を採用した理由は、データ数が比較的少ないため、平均値を採用すると1つの外れ値に引きずられて、代表性が乏しくなると考

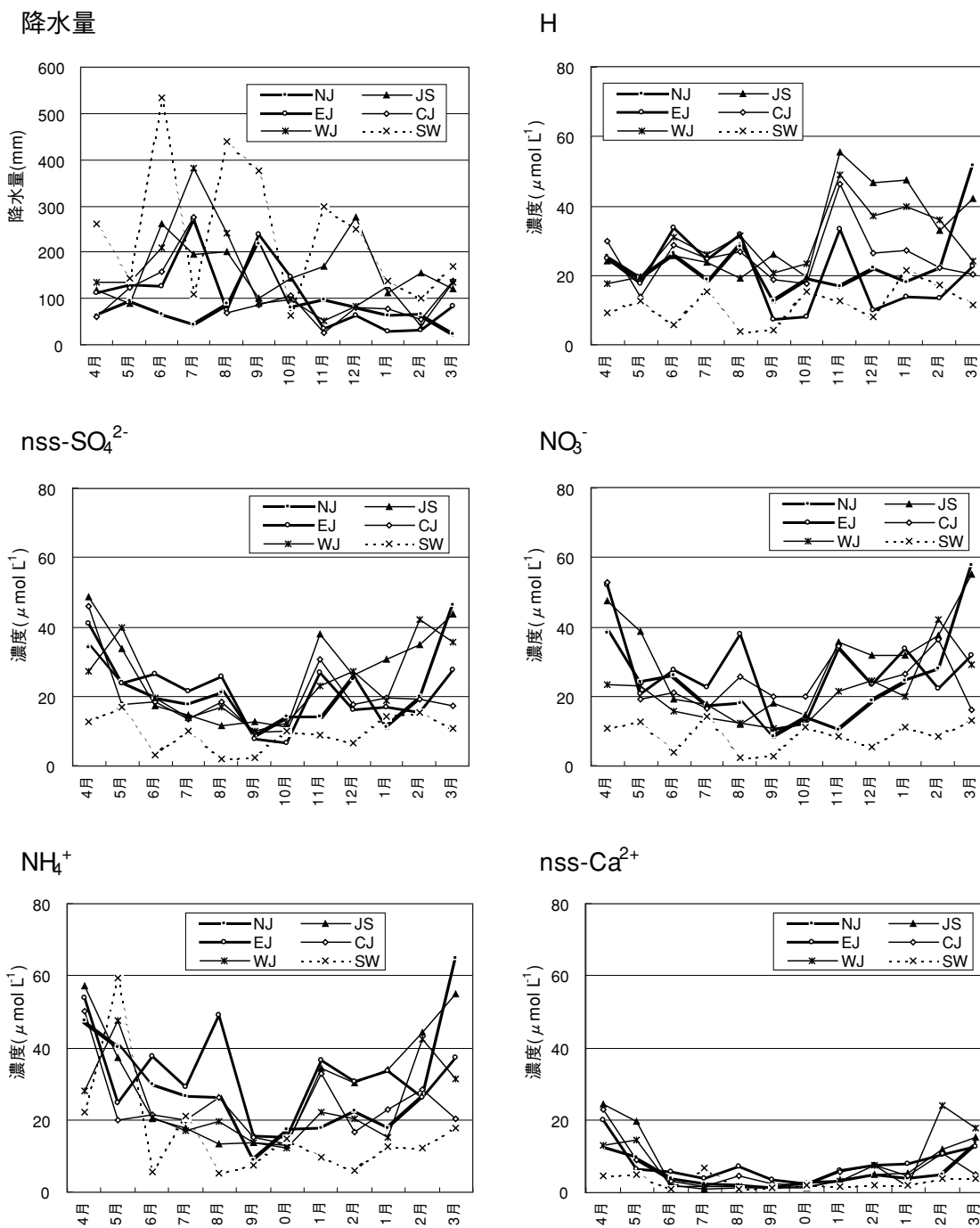


図 4.2.3 イオン成分濃度の地域別季節変動(平成19年度)

えられたためである。

降水量は、西部において、夏季に多く、冬季に少ない傾向が顕著であった。東部では、8月を除き、夏多冬少の傾向を示した。日本海側では、6月と12月にピークを持つ双山型の変動を示した。北部では、9月を除き、年間を通して降水量が比較的少ない傾向にあった。南西諸島では、他地域と比較して最大降水量を示した月が7ヶ月あり、7月

を除き、特に夏季の降水量が多い傾向を示した。

H⁺濃度は、日本海側および西部で、冬季に高くなる傾向が顕著であった。東部では、11月を除き、夏高冬低の傾向を示した。

nss-SO₄²⁻濃度は、日本海側および西部で、冬季に高くなる傾向がみられた。東部では、夏季に他地域より高い傾向を示した。南西諸島では、年間を通し、他地域より低い傾向を示した。

NO₃⁻濃度は、nss-SO₄²⁻濃度の地域別変動パターンと比較的類似していたが、東部では、夏季に他地域より高く、11月および1月も日本海側と同程度であり、年間を通して比較的高い濃度レベルで推移していた。

NH₄⁺濃度は、東部で、夏季において他地域に比較して高い傾向を示した。その他の地域における季節変動は、nss-SO₄²⁻およびNO₃⁻と比較的類似した傾向を示していた。

nss-Ca²⁺濃度は、ほとんどの地域で春季に高い傾向がみられたが、他のイオン成分に比較して、年間を通し、低い値で推移していた。

濃度の季節変動において特徴的なことは、日本海側および西部では、冬季に、nss-SO₄²⁻濃度が高い傾向がみられ、H⁺も冬季に高い傾向を示したことである。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、平成17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^{1,6,7)}が、平成18年度にはその傾向が西部でも確認され⁵⁾、平成19年度も同様の傾向が続いていた。越境大気汚染を示唆すると考えられる現象について、今後も観測し続けていくことが重要であると考えられる。

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有効データ(完全度を満たした測定値)を用いて、地点間や地域間の比較を行った。

4.3.1 年間沈着量

平成19年度の年間データが有効となった地点(61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、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(図4.3.1)。なお、年間沈着量は、年平均濃度に年間降水量を掛け合わせるにより算出した。

nss-SO₄²⁻沈着量は日本海側および西部で多く、NO₃⁻沈着量は日本海側で多い傾向を示した。両成分の沈着量とも、北部および南西諸島で少ない傾向を示した。

NH₄⁺沈着量は、日本海側で多い傾向を示した。nss-Ca²⁺沈着量は、他の非海塩成分に比較して、沈着量が1/4程度と少なく、地域別の差も小さ

表 4.3.1 降水量と主要イオン成分の年間沈着量
(平成19年度)

		(単位)		H19年度	
降水量	(mm y ⁻¹)	1,501	784 (利尻)		
			3,241 (大里)		
nss-SO ₄ ²⁻	(mmol m ⁻² y ⁻¹)	30.9	13.9 (長野)		
			70.5 (長岡)		
NO ₃ ⁻	(%)	33.3	12.5 (利尻)		
			74.5 (長岡)		
NH ₄ ⁺	(%)	37.5	14.4 (札幌南)		
			75.9 (福井)		
nss-Ca ²⁺	(%)	8.6	2.0 (利尻)		
			19.2 (福岡)		
H ⁺	(%)	30.3	14.2 (土気)		
			116.5 (金沢)		

※数値は、中央値 最小値(地点名) 最大値(地点名) を示す。

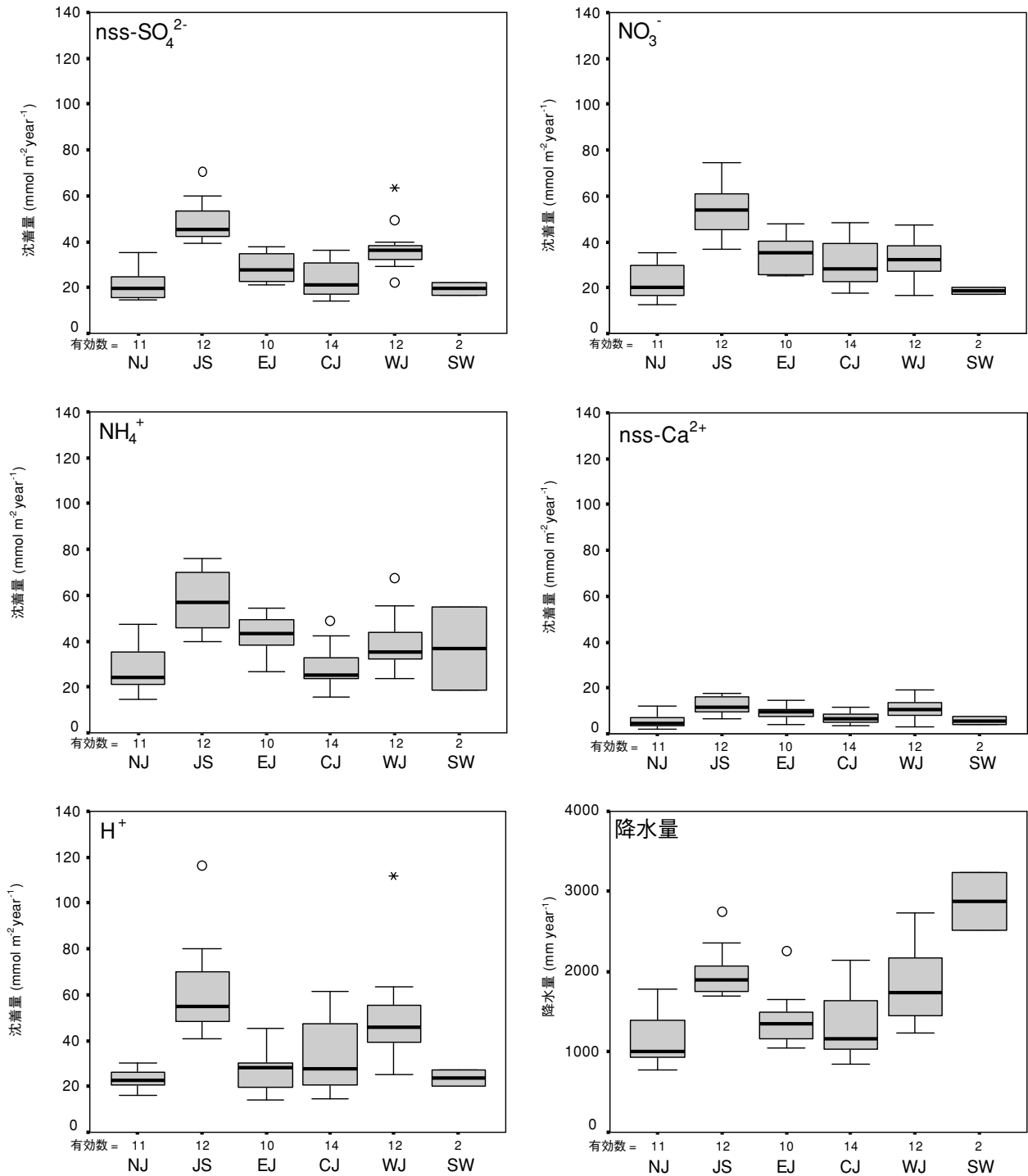
かった。

H⁺沈着量は、日本海側および西部で多く、北部および南西諸島で少ない傾向を示した。

地点・成分毎に年間データをみると、平成19年度に第4次調査中における最大沈着量を示した地点は、第4次調査5年間のうち4年間以上で有効データを得られた45地点中、nss-SO₄²⁻：9地点(20%)、NO₃⁻：15地点(33%)、NH₄⁺：11地点(24%)、nss-Ca²⁺：15地点(33%)およびH⁺：5地点(11%)であった。なお、平成19年度に最大降水量を示した地点は1地点(2%)であり、降水量は多くないにもかかわらず、沈着量が多い地点が、日本海側および西部において多く観測された。

なお、平成18年度も含めると、平成18～19年度の2年間のうちどちらかに最大沈着量を示す地点は、45地点中、nss-SO₄²⁻：24地点(53%)、NO₃⁻：32地点(71%)、NH₄⁺：27地点(60%)、nss-Ca²⁺：28地点(62%)およびH⁺：17地点(38%)であった。日本海側および西部において多く観測されており、近年、大気汚染物質の越境汚染が増加していることが示唆された。

次に、NH₄⁺の土壌や湖沼への影響を考慮した沈着量について検討した。NH₄⁺は降水中では中和成分として働くが、土壌に負荷された後は土壌酸性化を、閉鎖系水域に負荷されると富栄養化をもたらす。潜在水素イオン(H_{eff}=H⁺+2NH₄⁺)



- a: 箱の端からの距離が箱の長さの3倍以上の値
- b: 箱の端からの距離が箱の長さの1.5倍から3倍までの値
- c: 極値および外れ値を除いた最大値または最小値

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(平成19年度)

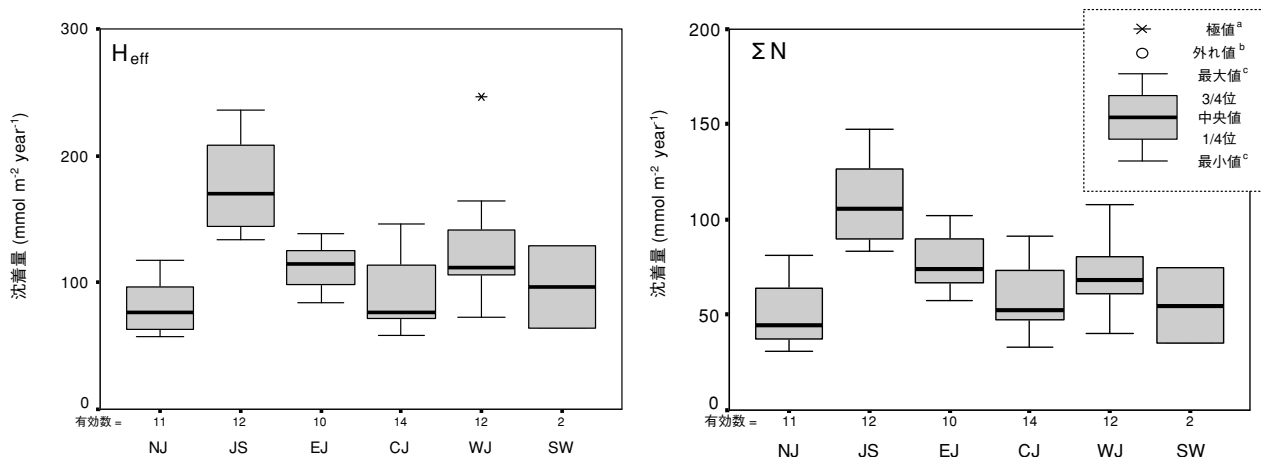
は土壌の酸性化の、全無機態窒素(ΣN=NO₃⁻+NH₄⁺)は湖沼の富栄養化の指標として用いられている⁸⁾。H_{eff} および ΣN の年間沈着量について、地域区分別に箱ひげ図を示した(図 4.3.2)。

H_{eff} および ΣN 沈着量ともに、日本海側で多く、

次いで、東部および西部で多い傾向にあった。

4.3.2 沈着量の季節変動

地域別の降水量(再掲)および主要イオン成分沈着量の季節変動を図 4.3.3 に示す。4.2.3項と同様に、月間代表値としては中央値を採用した。



- a: 箱の端からの距離が箱の長さの3倍以上の値
 b: 箱の端からの距離が箱の長さの1.5倍から3倍までの値
 c: 極値および外れ値を除いた最大値または最小値

図 4.3.2 H_{eff} および ΣN の年間沈着量の分布(平成19年度)

H⁺沈着量は、日本海側では、冬季に多い傾向が顕著であった。一方、西部では、夏季に多い傾向がみられた。H⁺濃度では、前述したとおり、日本海側および西部とも、冬季に高い傾向にあったが、沈着量では相違がみられ、降水量の季節変動を反映した傾向を示していた。

nss-SO₄²⁻、NO₃⁻およびNH₄⁺の沈着量は、比較的類似した季節変動パターンを示した。日本海側では冬季に多い傾向が顕著であった。一方、東部、中央部および西部では、春～夏季に多い傾向がみられた。北部および南西諸島では、年間を通して、沈着量が比較的少ない傾向を示した。

nss-Ca²⁺沈着量は、nss-SO₄²⁻、NO₃⁻およびNH₄⁺の沈着量に比較して少なかった。

—参考文献—

- 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(3)，78-152，2007
- 2) 全国環境研協議会酸性雨調査研究部会：第4次酸性雨全国調査実施要領，2003
- 3) 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
- 4) 酸性雨研究センター；平成18年度酸性雨測定分析精度管理調査結果報告書(国設酸性雨測定局)，2007
- 5) 全国環境研協議会：第4次酸性雨全国調査報告書(平成18年度)，全国環境研会誌，33(3)，126-196，2008
- 6) 全国環境研協議会：第4次酸性雨全国調査報告書(平成15年度)，全国環境研会誌，30(2)，58-135，2005
- 7) 全国環境研協議会：第4次酸性雨全国調査報告書(平成16年度)，全国環境研会誌，31(3)，118-186，2006
- 8) 酸性雨対策検討会：酸性雨対策調査総合取りまとめ報告書，2004

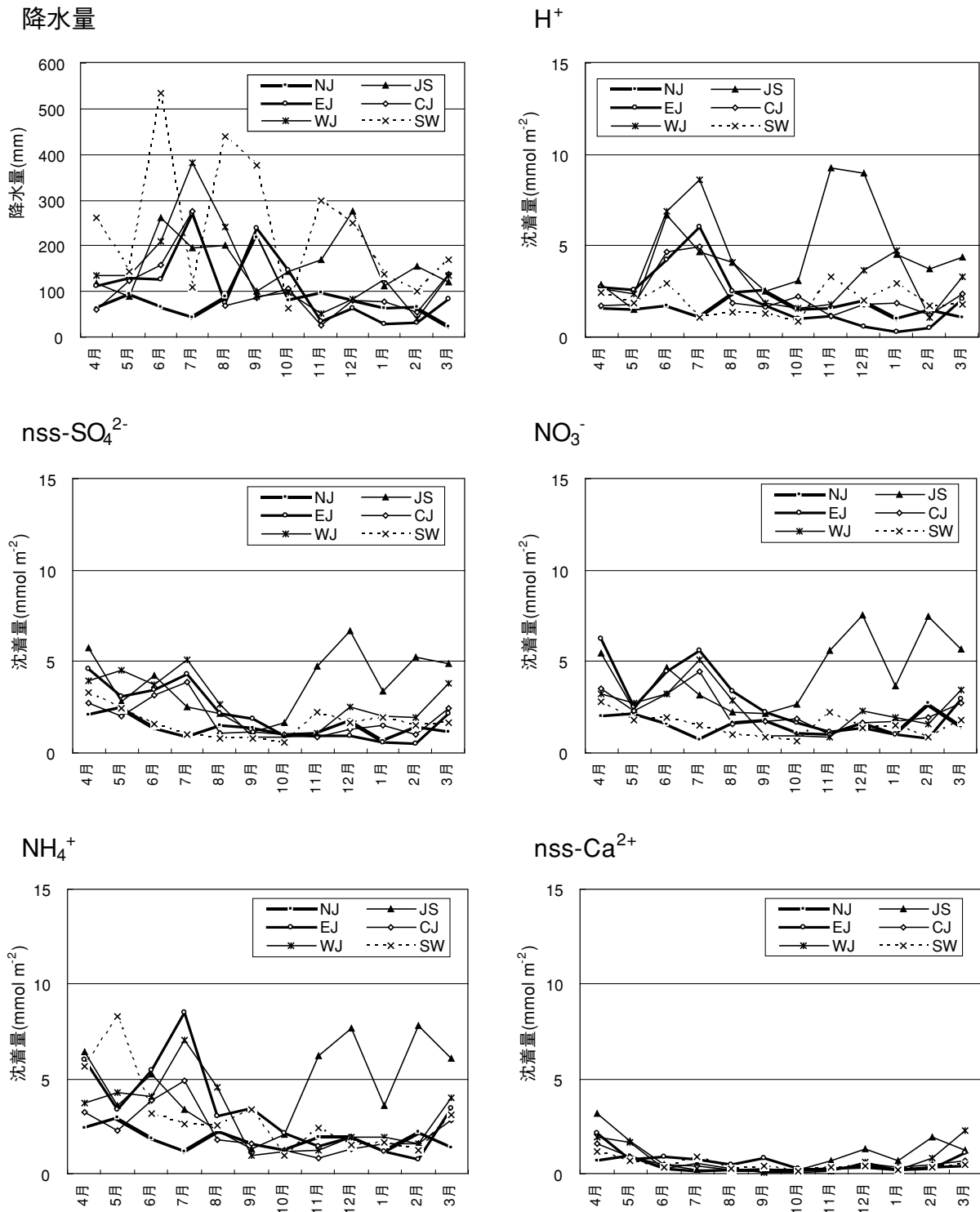


図 4.3.3 イオン成分沈着量の地域別季節変動(平成19年度)

5. 乾性沈着 (FP 法)

平成19年度のフィルターパック法(以下、FP法)による乾性沈着調査は全国28地点で実施され、その調査地点を図 5.1.1 に示す。年および月平均濃度等を付表 2.1~2.15 に示す。調査結果には、表 2.1.1 に示すように国設局および他の研究機関との共同研究のデータが一部含まれている。ただし、データ確定を 5.1.1 に示すように部会基準で行ったため、国設局データについては環境省公表データと異なることがある。また調査結果の解析

は、図 5.1.1 に示すように全国を6地域に分割した区分：北部、日本海側、東部、中央部、西部、南西諸島で行った。

5.1 データ確定

5.1.1 完全度

FP法の有効データを表 5.1.1 に示す。データ確定では、完全度(測定期間の適合度を含む)を指標として、月データでは60%以上、年データでは80%以上を満たす場合に有効データとした。ただし月データの完全度が60%未満でも、年データが

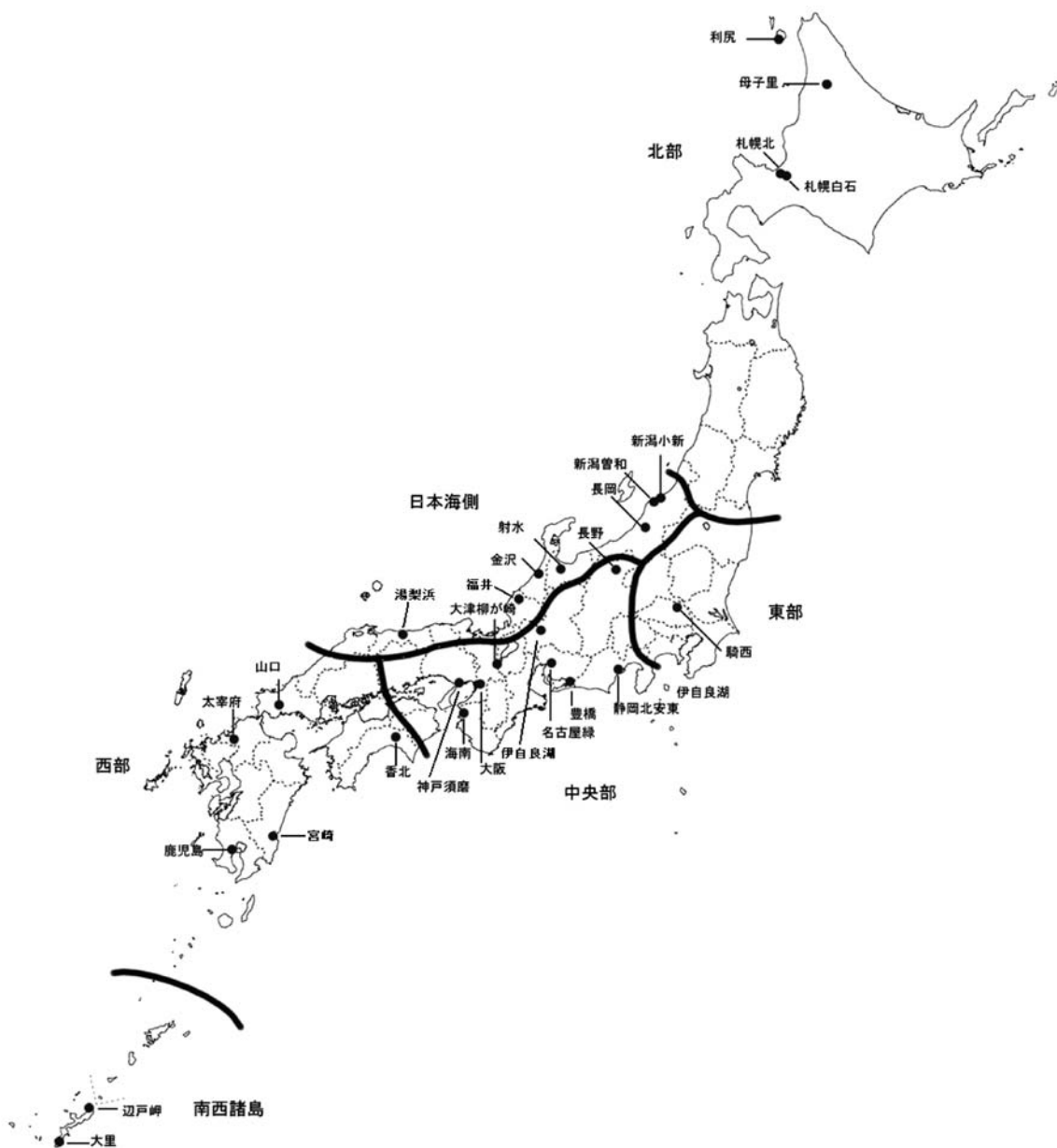


図 5.1.1 FP法の調査地点図

地域区分(北部、日本海側、東部、中央部、西部、南西諸島)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

成分	月平均濃度								年平均濃度					
	地点数	欠測数	データ数	完全度 60%未満	適合数	定量下限 値未満	有効データ 割合(%)	地点数	データ数	完全度 80%未満	適合数	定量下限 値未満	有効データ 割合(%)	
HNO ₃	28	32	304	18	286	29	94	28	28	6	22	0	79	
SO ₂	28	32	304	18	286	1	94	28	28	6	22	0	79	
HCl	28	32	304	18	286	4	94	28	28	6	22	0	79	
NH ₃	28	32	304	18	286	0	94	28	28	6	22	0	79	
SO ₄ ²⁻	28	32	304	18	286	0	94	28	28	6	22	0	79	
NO ₃ ⁻	28	32	304	18	286	0	94	28	28	6	22	0	79	
Cl ⁻	28	32	304	18	286	5	94	28	28	6	22	0	79	
Na ⁺	28	32	304	18	286	0	94	28	28	6	22	0	79	
K ⁺	28	32	304	18	286	1	94	28	28	6	22	0	79	
Ca ²⁺	28	32	304	18	286	2	94	28	28	6	22	0	79	
Mg ²⁺	28	32	304	18	286	8	94	28	28	6	22	0	79	
NH ₄ ⁺	28	32	304	18	286	0	94	28	28	6	22	0	79	

80%を満たせば、年平均値は解析対象とした。

5.1.2 定量下限値の設定

前年度と同様に、EANETの基準値(粒子状：0.01μg m⁻³、ガス：0.1ppb)を用いて¹⁾、吸引流量1 L min⁻¹を基準にし、X L min⁻¹の場合は1/X倍の定量下限値とした。その判定は、月および年平均濃度に対して行い、定量下限値以下をゼロとした。この基準によると、HNO₃(g)は清浄地域で定量下限値以下が多く(304データ中29データ)見られた。

5.1.3 非海塩成分の算出

非海塩由来成分の算出方法として、SO₄²⁻(p)およびCa²⁺(p)濃度について、Na⁺(p)濃度を基準に海塩組成比から非海塩由来分濃度を以下の式により算出した。

$$nssSO_4^{2-}(p) = SO_4^{2-}(p) - 0.060 \times Na^+(p)$$

$$nssCa^{2+}(p) = Ca^{2+}(p) - 0.022 \times Na^+(p)$$

5.1.4 ガス・粒子間反応の測定結果への影響

大気中では、ガスと粒子の間で様々な物理的・化学的解離平衡反応が生じる²⁾。そこで、前年度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、個々に評価するのではなく、大気成分濃度としては、全硝酸(HNO₃(g)+NO₃⁻(p))および全アンモニア(NH₃(g)+NH₄⁺(p))として総計で評価した。

表 5.2.1 ガス状成分の年平均濃度(地点別)

No.	都道府県市	地点名	SO ₂ (g)	HNO ₃ (g)	HCl(g)	NH ₃ (g)
			(nmol m ⁻³)			
1	北海道	利尻	8.9	2.8	17.6	16.0
2	北海道	母子里	14.5	2.8	5.2	37.2
3	北海道	札幌北	76.4	7.5	13.9	87.4
4	札幌市	札幌白石	66.0	17.6	38.6	81.3
5	新潟市	新潟小新	(37.9)	(10.0)	(23.3)	(85.1)
6	新潟県	新潟曾和	22.5	14.4	26.1	93.6
7	新潟県	長岡	22.3	16.5	17.4	129.6
8	埼玉県	騎西	44.2	40.5	34.2	210.5
9	静岡県	静岡北安東	50.8	35.9	24.3	92.9
10	長野県	長野	23.7	19.4	16.0	85.2
11	富山県	射水	14.1	11.2	15.3	54.9
12	石川県	金沢	33.5	10.9	18.9	32.4
13	福井県	福井	(68.1)	(19.8)	(33.1)	(78.1)
14	鳥取県	湯梨浜	(27.1)	(15.9)	(43.2)	(158.6)
15	岐阜県	伊自良湖	16.1	13.9	10.2	50.4
16	愛知県	豊橋	56.2	23.7	42.4	206.2
17	名古屋市	名古屋緑	(51.6)	(8.7)	(19.2)	(148.5)
18	滋賀県	大津柳が崎	(33.9)	(22.6)	(23.4)	(110.9)
19	大阪府	大阪	74.3	31.3	32.8	179.4
20	和歌山県	海南	68.6	24.8	28.0	100.9
21	兵庫県	神戸須磨	91.5	28.2	21.8	120.0
22	山口県	山口	37.5	21.0	21.0	71.7
23	高知県	香北	17.2	10.1	12.9	121.1
24	福岡県	太宰府	92.0	44.5	38.3	233.1
25	宮崎県	宮崎	(43.9)	(16.9)	(28.3)	(111.4)
26	鹿児島県	鹿児島	118.0	13.8	28.4	161.6
27	沖縄県	大里	24.6	5.9	30.2	409.8
28	沖縄県	辺戸岬	18.5	5.4	42.1	46.0
		全国最低値	8.9	2.8	5.2	16.0
		全国最高値	118.0	44.5	42.4	409.8
		全国中央値	35.5	15.4	23.0	93.2
		全国平均値	45.1	18.3	24.3	119.1

注) 全国最低値は網掛け、全国最高値は白抜きで示した。ここで、ゼロは最低値から除外した。

注) 参考値は()で示した。

表 5.2.2 粒子状成分の年平均濃度(地点別)

No.	都道府県市	地点名	年平均濃度 (nmol m ⁻³)									
			SO ₄ ²⁻ (p)	nss-SO ₄ ²⁻ (p)	NO ₃ ⁻ (p)	Cl ⁻ (p)	Na ⁺ (p)	K ⁺ (p)	Ca ²⁺ (p)	nss-Ca ²⁺ (p)	Mg ²⁺ (p)	NH ₄ ⁺ (p)
1	北海道	利尻	25.7	21.0	11.0	64.1	77.4	3.4	3.6	1.9	9.0	23.1
2	北海道	母子里	21.1	20.0	8.5	13.0	18.3	2.4	2.1	1.8	2.2	36.2
3	北海道	札幌北	33.8	31.7	27.3	31.2	36.1	4.0	7.1	6.4	4.1	68.5
4	札幌市	札幌白石	27.8	27.2	7.7	4.6	9.8	2.1	1.0	0.8	1.6	46.4
5	新潟市	新潟小新	(44.4)	(39.0)	(29.3)	(80.3)	(89.6)	(5.4)	(8.9)	(7.0)	(10.7)	(61.2)
6	新潟県	新潟曾和	40.7	37.7	23.0	32.4	50.2	4.5	6.4	5.4	6.1	54.4
7	新潟県	長岡	42.3	40.6	25.4	15.9	29.1	3.9	7.5	6.8	3.9	67.9
8	埼玉県	騎西	40.6	39.4	52.2	19.5	20.6	4.1	9.7	9.2	3.5	98.0
9	静岡県	静岡北安東	50.1	48.3	29.4	10.3	30.5	4.9	6.2	5.5	3.3	73.8
10	長野県	長野	37.3	36.7	20.2	3.4	9.8	3.6	5.2	5.0	2.0	71.9
11	富山県	射水	29.2	28.3	12.1	6.1	16.1	2.4	5.5	5.2	2.1	47.4
12	石川県	金沢	44.0	42.1	17.2	12.7	31.5	2.7	6.5	5.9	4.4	57.3
13	福井県	福井	(59.5)	(55.6)	(35.4)	(46.2)	(65.0)	(7.7)	(10.9)	(9.5)	(8.0)	(125.7)
14	鳥取県	湯梨浜	(80.5)	(76.4)	(23.6)	(31.6)	(68.3)	(6.7)	(8.5)	(7.1)	(6.3)	(109.9)
15	岐阜県	伊自良湖	49.0	48.2	8.3	11.1	12.5	3.8	4.3	4.0	2.0	72.8
16	愛知県	豊橋	53.3	50.6	47.8	18.7	44.5	4.9	12.0	11.0	5.3	108.6
17	名古屋市	名古屋緑	(36.0)	(35.0)	(46.2)	(17.6)	(15.9)	(3.3)	(6.0)	(5.7)	(1.6)	(87.6)
18	滋賀県	大津柳が崎	(45.9)	(44.7)	(24.8)	(4.4)	(19.8)	(3.3)	(6.5)	(6.1)	(2.9)	(77.2)
19	大阪府	大阪	56.7	54.7	51.7	22.6	32.2	4.3	10.9	10.2	4.2	121.5
20	和歌山県	海南	59.8	57.8	33.3	10.9	34.1	4.4	8.4	7.7	4.5	99.2
21	兵庫県	神戸須磨	57.5	54.7	48.5	21.8	46.3	8.4	11.3	10.3	2.8	110.5
22	山口県	山口	73.1	71.5	26.4	10.1	27.1	5.7	7.1	6.5	4.6	138.2
23	高知県	香北	47.5	46.8	8.6	1.4	12.1	3.6	4.0	3.8	2.1	80.6
24	福岡県	太宰府	92.3	89.4	49.2	19.0	47.3	6.2	21.7	20.7	7.9	143.4
25	宮崎県	宮崎	(25.0)	(23.1)	(22.1)	(20.9)	(31.5)	(2.6)	(2.5)	(1.9)	(3.6)	(63.9)
26	鹿児島県	鹿児島	51.1	48.3	42.1	40.0	46.4	4.2	9.6	8.6	6.8	103.4
27	沖縄県	大里	53.7	46.6	23.4	91.3	117.0	6.2	12.2	9.7	14.4	63.1
28	沖縄県	辺戸岬	64.9	53.2	24.7	153.9	193.8	8.1	11.1	7.0	23.4	55.7
		全国最低値	21.1	20.0	7.7	1.1	9.8	2.1	1.0	0.8	1.6	23.1
		全国最高値	92.3	89.4	52.2	153.9	193.8	8.4	21.7	20.7	23.4	143.4
		全国中央値	48.3	46.7	25.1	17.3	31.8	4.2	7.1	6.4	4.1	72.3
		全国平均値	47.8	45.2	27.2	27.5	42.8	4.4	7.9	7.0	5.5	79.2

注) 全国最低値は網掛け、全国最高値は白抜きで示した。ここで、ゼロは最低値から除外した。
注) 参考値は()で示した。

5.2 大気中のガス・粒子状成分濃度

5.2.1 年平均濃度の地域特性

全国の地点別年平均濃度について、ガス状成分を表 5.2.1、粒子状成分を表 5.2.2、ガスと粒子の総計を表 5.2.3 に示す。地点別の最低値および最高値等から、その地域特性を述べる。

SO₂(g)の年平均濃度の範囲は、8.9~118.0 nmol m⁻³(平均値45.1nmol m⁻³)であり、最高値は鹿児島、次いで太宰府、最低値は利尻であった。SO₂(g)濃度は火山に近い地域や都市部で高い傾向が見られた。

粒子状成分である nss-SO₄²⁻(p)の年平均濃度の範囲は、20.0~89.4nmol m⁻³(平均値45.2nmol m⁻³)であり、最高値は太宰府、次いで山口、最低値は母子里であった。このように nss-SO₄²⁻(p)濃度は西部で高く、北部で低く、西日本で高い傾向が見られた。ここ数年全体として、SO₂(g)濃度は減少傾向であるのに対し、nss-SO₄²⁻(p)濃度は増加傾向にある。

全硝酸(HNO₃(g)+NO₃⁻(p))の年平均濃度の範囲は、11.3~93.7nmol m⁻³(平均値45.5nmol m⁻³)であり、最高値は太宰府、次いで騎西、最

低値は母子里であった。全硝酸濃度は、東部・中央部等の都市部で高い値であり、ここ数年、全体としては横ばい状態である。

全アンモニア(NH₃(g)+NH₄⁺(p))の年平均濃度の範囲は、39.2~472.9nmol m⁻³(平均値198.3 nmol m⁻³)であり、最高値は大里、次いで太宰府、最低値は利尻であった。大里は、周辺の畜産業の影響が考えられ、他の地点は都市部で高くなっており、都市大気汚染を反映したものと考えられる。全アンモニア濃度は、ここ数年、わずかに上昇傾向である。

nss-Ca²⁺(p)の年平均濃度の範囲は、0.8~20.7nmol m⁻³(平均値7.0nmol m⁻³)であり、最高値は太宰府、次いで豊橋、最低値は札幌白石であった。ここ3年間の nss-Ca²⁺(p)濃度は、西日本で黄砂が多く観測され、上昇傾向にあることから、大陸から飛来する黄砂の影響と考えられる。

以上のように、nss-SO₄²⁻(p)と nss-Ca²⁺(p)は西日本で高く、移流の影響が大きいと考えられ、全硝酸および全アンモニアは地域由来の都市大気汚染で、全アンモニアについては一部畜産業

表 5.2.3 ガスおよび粒子の総計による年平均濃度(地点別)

No.	都道府県市	地点名	全硫黄	全硝酸	全塩化物	全アンモニア
			SO ₂ (g)+nss-SO ₄ ²⁻ (p)	HNO ₃ (g)+NO ₃ ⁻ (p)	HCl(g)+Cl ⁻ (p)	NH ₃ (g)+NH ₄ ⁺ (p)
(nmol m ⁻³)						
1	北海道	利尻	29.9	13.8	81.7	39.2
2	北海道	母子里	34.5	11.3	18.2	73.5
3	北海道	札幌北	108.1	34.8	45.1	155.9
4	札幌市	札幌白石	93.2	25.3	43.2	127.7
5	新潟市	新潟小新	(76.8)	(39.3)	(103.5)	(146.4)
6	新潟県	新潟曾和	60.2	37.4	58.6	147.9
7	新潟県	長岡	62.9	41.9	33.3	197.5
8	埼玉県	騎西	83.6	92.7	53.7	308.5
9	静岡県	静岡北安東	99.1	65.3	34.6	166.6
10	長野県	長野	60.5	39.6	19.4	157.1
11	富山県	射水	42.3	23.3	21.4	102.2
12	石川県	金沢	75.6	28.1	31.6	89.6
13	福井県	福井	(123.8)	(55.1)	(79.3)	(203.8)
14	鳥取県	湯梨浜	(103.4)	(39.5)	(74.8)	(268.5)
15	岐阜県	伊自良湖	64.3	22.2	11.3	123.2
16	愛知県	豊橋	106.9	71.5	61.0	314.9
17	名古屋市	名古屋緑	(86.7)	(54.8)	(36.8)	(236.1)
18	滋賀県	大津柳が崎	(78.6)	(47.5)	(27.8)	(188.1)
19	大阪府	大阪	129.1	83.0	55.4	300.9
20	和歌山県	海南	126.4	58.0	38.9	200.1
21	兵庫県	神戸須磨	146.2	76.6	43.6	230.5
22	山口県	山口	109.0	47.3	31.1	209.9
23	高知県	香北	64.0	18.8	14.4	201.7
24	福岡県	太宰府	181.4	93.7	57.3	376.5
25	宮崎県	宮崎	(67.0)	(38.9)	(49.2)	(175.4)
26	鹿児島県	鹿児島	166.3	55.9	68.4	265.0
27	沖縄県	大里	71.2	29.3	121.6	472.9
28	沖縄県	辺戸岬	71.7	30.2	196.0	101.7
		全国最低値	29.9	11.3	11.3	39.2
		全国最高値	181.4	93.7	196.0	472.9
		全国中央値	79.6	38.5	43.4	182.1
		全国平均値	90.3	45.5	51.8	198.3

注) 全国最低値は網掛け、全国最高値は白抜きで示した。ここで、ゼロは最低値から除外した。
注) 参考値は()で示した。

の影響と考えられた。

5.2.2 経月変化および地域特性

地点別月平均濃度(付表 2.1~2.15)について、全国を6地域に分割した地域区分(北部, 日本海側, 東部, 中央部, 西部, 南西諸島)の平均濃度を算出し, その経月変化から, 包括的な地域特性を述べる。

SO₂(g)濃度の地域別の経月変化を図 5.2.1 に示す。SO₂(g)濃度は春季と冬季に高い傾向が見られる。冬季は暖房等の使用に伴う地域汚染を反映していると考えられる。これに対し, 春季は, 西部・中央部で高い濃度が見られている。これは, 光化学オキシダント(以下, Ox)の高濃度が5月に観測されており, 常時監視局のデータでは, SO₂とOxが同じように上昇しているケースも見られていることから, 移流の影響と考えられ

る^{3,4)}。

nss-SO₄²⁻(p)濃度の地域別の経月変化を図 5.2.2 に, 地域間の相関係数を表 5.2.4(右上)に示す。西部の7月は突出した高濃度が見られるが, 全体的に春季が最も高く, 秋季および北西風が強い冬季は低い値であり, 南西諸島以外の地域はほぼ同様の季節変化を示した。一方, 南西諸島は冬季に高くなっており, 他の地域との相関は低く, 地域特性の違いが見られた。西部・中央部・東部・日本海側間には高い相関が見られ, 移流により地域間規模の広域汚染の影響があることを示唆している。

全硝酸(HNO₃(g)+NO₃⁻(p))濃度の地域別の経月変化を図 5.2.3 に, 地域間の相関係数を表 5.2.4(左下)に示す。東部は全体的に濃度が高く, 特に春季から夏季に高かった。その他の地域では, 春

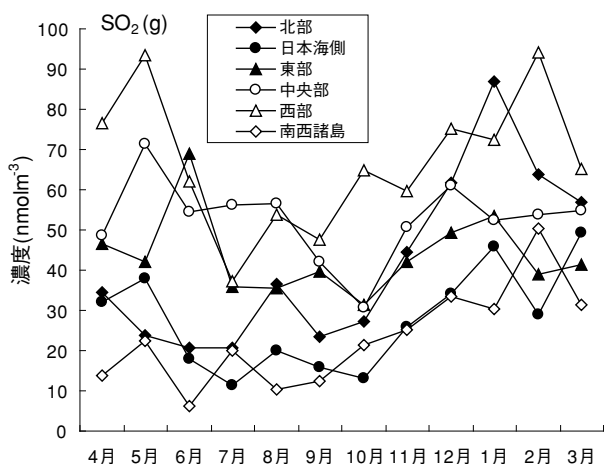


図 5.2.1 SO₂(g) 濃度の経月変化

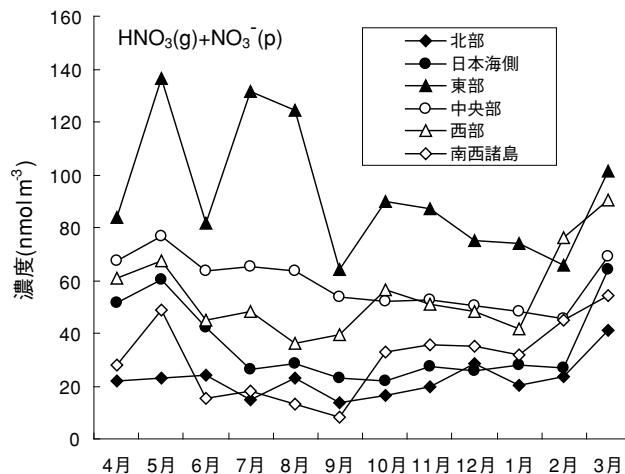


図 5.2.3 HNO₃(g)+NO₃⁻(p) 濃度の経月変化

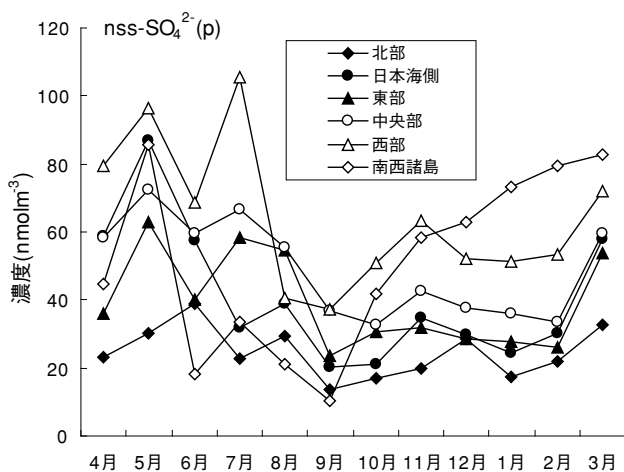


図 5.2.2 nss-SO₄²⁻(p) 濃度の経月変化

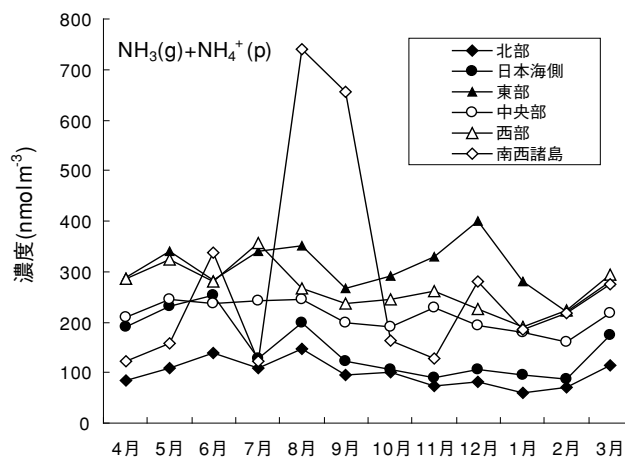


図 5.2.4 NH₃(g)+NH₄⁺(p) 濃度の経月変化

表 5.2.4 地域間の相関係数(nss-SO₄²⁻(p), HNO₃(g)+NO₃⁻(p)) (nss-SO₄²⁻(p)) (n=12)

	北部	日本海側	東部	中央部	西部	南西諸島
北部		0.69	0.56	0.63	0.32	0.08
日本海側	0.65		0.67	0.81	0.62	0.32
東部	0.05	0.37		0.90	0.67	0.10
中央部	0.28	0.80	0.76		0.79	-0.01
西部	0.65	0.65	0.07	0.27		0.26
南西諸島	0.62	0.52	0.07	0.09	0.85	

HNO₃(g)+NO₃⁻(p) (n=12)

表 5.2.5 地域間の相関係数(NH₃(g)+NH₄⁻(p), nss-Ca²⁺(p)) (nss-Ca²⁺(p)) (n=12)

	北部	日本海側	東部	中央部	西部	南西諸島
北部		0.75	0.24	0.73	0.54	0.51
日本海側	0.68		0.12	0.67	0.55	0.21
東部	0.50	0.64		0.51	0.28	0.03
中央部	0.65	0.97	0.62		0.79	0.14
西部	0.65	0.86	0.59	0.83		-0.21
南西諸島	0.50	0.61	0.52	0.52	0.87	

(nss-Ca²⁺(p)) (n=12)

季にやや濃度が高くなっているが濃度変化は小さかった。地域間の相関については、西部と南西諸島、日本海側と中央部で高い相関を示した。東部・中央部については、NO_x濃度も高く、自動車排ガス等都市汚染の影響が大きいことが考えられる。

全アンモニア(NH₃(g)+NH₄⁺(p))濃度の地域

別の経月変化を図 5.2.4 に、地域間の相関係数を表 5.2.5(右上)に示す。南西諸島を除く各地域ともに変動は小さく、濃度は北部で低く、南西諸島では、8、9月に高濃度のピークが見られた。5.1.4で述べたようにガス・粒子間解離平衡反応により一般的にNH₃(g)は夏季に高く、NH₄⁺(p)は冬季に高くなるが、大里はNH₃(g)が極めて高

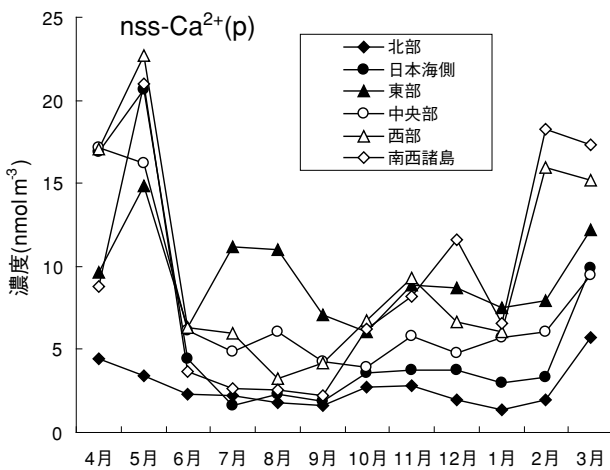


図 5.2.5 nss-Ca²⁺(p)濃度の経月変化

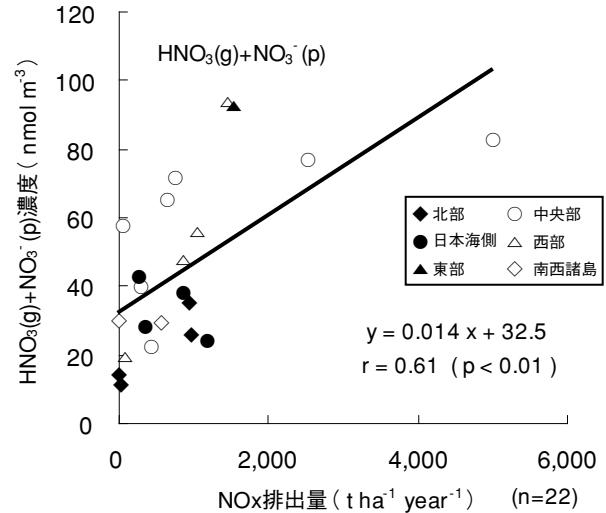


図 5.2.7 NO_x排出量推計量とHNO₃(g) + NO₃⁻(p)濃度の関係

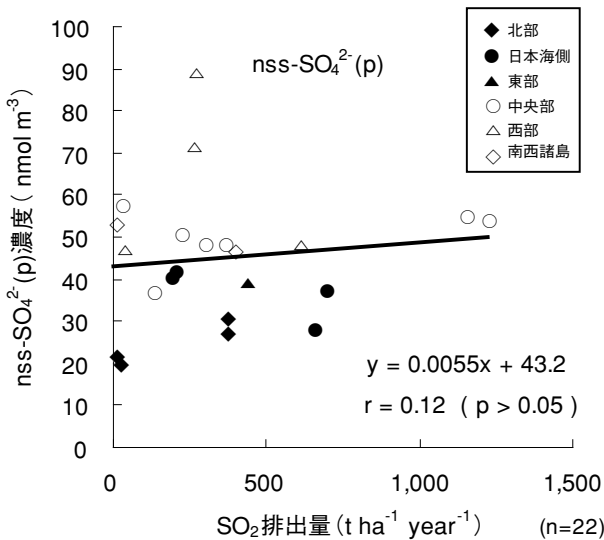


図 5.2.6 SO₂排出量推計値とnss-SO₄²⁻(p)濃度の関係

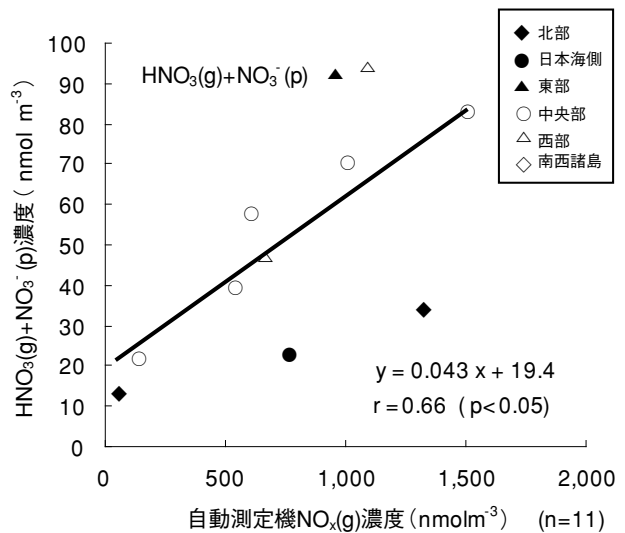


図 5.2.8 NO_x(g)濃度とHNO₃(g) + NO₃⁻(p)濃度の関係

く、周辺の畜産業の影響を受けたためと考えられる。濃度は南西諸島に次いで東部で高く、北部で低い傾向が見られるが、地域間の相関はあまり見られず、地域区分を超えない規模の局地汚染の影響が大きいと考えられる。

nss-Ca²⁺(p)濃度の地域別の経月変化を図 5.2.5 に、地域間の相関係数を表 5.2.5(左下)に示す。北部では季節変化が小さいが、その他の地域では3～5月の春季に濃度が高く、西部・南西諸島では2月も高い濃度であった。気象庁の統計情報によれば、国内気象官署76地点で黄砂が観測された日数は、平成19年度では、4月に11日、5月に14日、平成20年3月に8日観測された⁵⁾。この結果から、春季は、北部を除く日本全体にかなり大規模な黄砂が大陸から飛来しており、2月は西

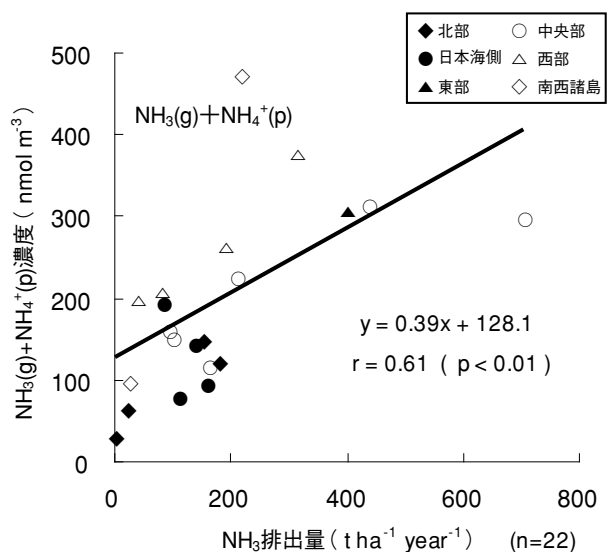


図 5.2.9 NH₃ 排出量推計値と NH₃(g) + NH₄⁺(p)濃度の関係

部および南西諸島を中心とした小規模の黄砂が飛来したと考えられる。また、北部を除いたそれぞれの隣接地域では相関が高くなっており、このことから黄砂の影響が広域的であることを示している。

以上のように、 $\text{SO}_2(\text{g})$ 、 $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ は、春季に西日本を中心に広域的に濃度が高く、移流の影響が見られている。これに対し、全硝酸と全アンモニアも、春季、夏季に濃度が高くなる傾向を示すが、地域区分を超えない地域汚染であり、特に東部では特異的な変化を示した。

5.2.3 排出量推計値と2次生成粒子濃度の関係

$\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ 濃度と排出量インベントリマップから計算された SO_2 排出量推計値の関係($n=22$)を図5.2.6に、全硝酸($\text{HNO}_3(\text{g})+\text{NO}_3^-(\text{p})$)濃度と NO_x 排出量推計値との関係($n=22$)を図5.2.7に示す。 SO_2 排出量推計値と $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ 濃度との間には、前年度と同様に $r=0.12$ ($p>0.05$)と相関が見られず、 $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ は地域の発生源よりも移流の影響を受けていることが示唆された。これに対し、 NO_x 排出量推計値と全硝酸濃度との間には、前年度と同様に $r=0.61$ ($P<0.01$)と相関が見られ、また常時監視局の自動測定機による $\text{NO}_x(\text{g})$ 濃度と全硝酸濃度との間($n=11$)には、図5.2.8に示すように、 $r=0.66$ ($P<0.05$)と高い相関が見られた。このことから全硝酸濃度は自動車排ガス等の地域的人為汚染の影響が大きいことが示唆された。

次に全アンモニア濃度と NH_3 排出量推計値との関係($n=22$)を図5.2.9に示す。 NH_3 排出量推計値と全アンモニア濃度との間には、前年度と同様

に相関 $r=0.61$ ($p<0.01$)が見られ、全アンモニア濃度は周辺の地域汚染の寄与が大きいことが示唆された。

5.2.4 全硝酸($\text{HNO}_3(\text{g})+\text{NO}_3^-(\text{p})$)濃度と $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ 濃度の関係

地域別の $\text{HNO}_3(\text{g})+\text{NO}_3^-(\text{p})$ と $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ の年平均濃度およびその当量濃度比を図5.2.10に示す。 $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ 濃度は前述したように、北部で低く、西部で高く、西日本で高い濃度分布を示している。これについて藍川ら⁶⁾は、経度と $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ 濃度の関係および SO_2 排出量と $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ 濃度との関係から長距離移流による東アジアスケールの広域汚染を示唆している。これに対し、全硝酸濃度は東部・中央部で高く、全硝酸/ $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ 当量濃度比は、北部・日本海側・西部等で0.4程度であるのに対し、東部1.2、中央部0.6となり、 nss-SO_4^{2-} との挙動の違いが見られている。図5.2.8に示したように、 NO_x と全硝酸は有意な相関を示しており、全硝酸は nss

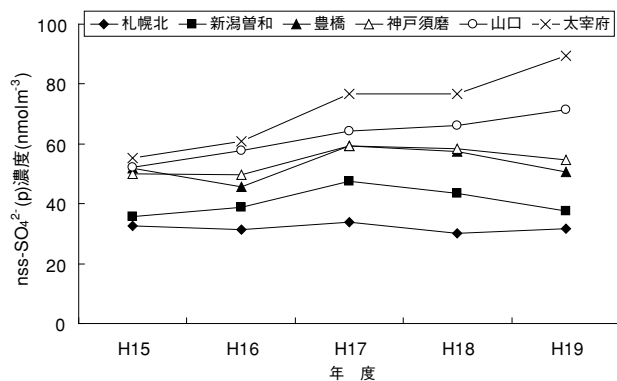


図 5.2.11 nss-SO₄²⁻(p)濃度の経年変化

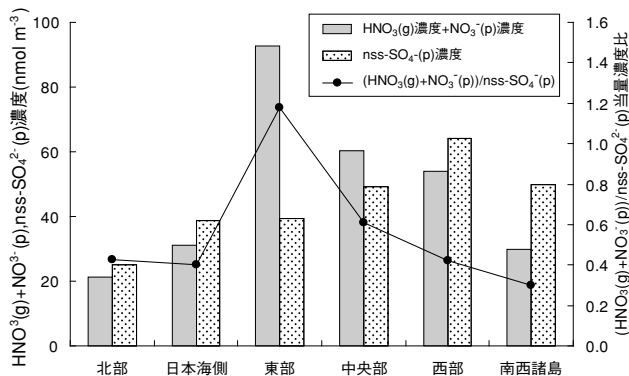


図 5.2.10 $\text{HNO}_3(\text{g})+\text{NO}_3^-(\text{p})$ 濃度と $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ 濃度の関係

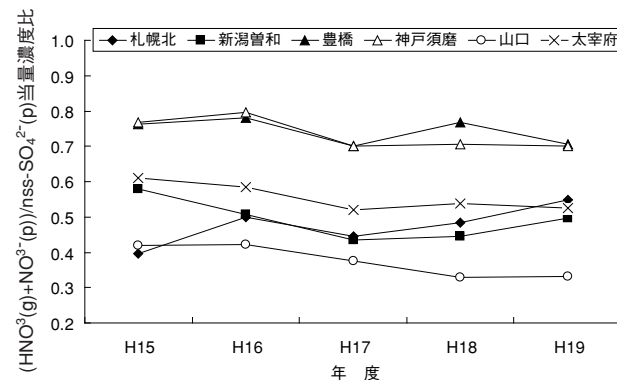


図 5.2.12 $\text{HNO}_3(\text{g})+\text{NO}_3^-(\text{p})/\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ 濃度の経年変化

—SO₄²⁻(p)とは異なり、地域汚染の影響を反映していることが考えられる。

5.2.5 nss-SO₄²⁻(p)濃度の経年変化

各地域区分の過去5年間の継続地点について、nss-SO₄²⁻(p)濃度の経年変化を図5.2.11に、HNO₃(g)+NO₃⁻(p)とnss-SO₄²⁻(p)の当量濃度比の経年変化を図5.2.12に示す。nss-SO₄²⁻(p)濃度は、北部の札幌北ではほとんど変化がないのに対し、その他の地点は、平成17年度に高くなっている。さらに西部の山口・太宰府では、それ以降も上昇傾向を示し、大陸の排出量の増大が推測されていることから、これを反映していることが考えられる。また、当量濃度比は、全硝酸濃度の経年変化が小さいことから、nss-SO₄²⁻(p)濃度とは逆に低下傾向を示している。ただ北部の札幌北および新潟曾和でやや上昇傾向にある。

5.2.6 nss-SO₄²⁻(p)濃度とOx濃度の関係

平成19年度は5月に西日本を中心とした広域的なOxの高濃度現象が見られた。そこで、各地域の代表となる継続の6地点について、nss-SO₄²⁻(p)濃度と常時監視局の自動測定機によるOx濃度の5月の月平均値および年平均値を図5.2.13に示す。5月のOx濃度は各地点ともに年平均値より高い値であり、またnss-SO₄²⁻(p)濃度は、西日本の各地点で年平均値より高く、特に山口・太宰府の西部で高い値であった。岩本ら⁴⁾は、福岡県における春季の広域的Oxの高濃度時には、Ox濃度とnss-SO₄²⁻濃度は同様に高くなるケースが見られ、いずれも大陸からの影響が大きいとしている。太宰府・山口等の西日本においては、

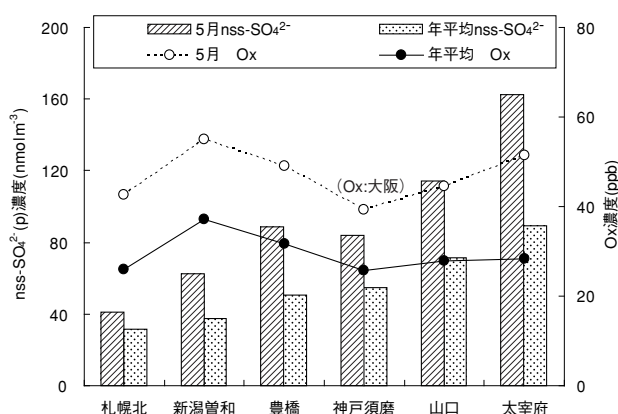


図5.2.13 5月の地域別のnss-SO₄²⁻(p)濃度とOx濃度

Oxの高濃度に対応して硫酸塩濃度も高くなっており、広い範囲では移流の影響が考えられる。これに対し、日本海側の新潟曾和では、硫酸塩濃度も低く、またOxの地域生成に関係するNO_x、全硝酸濃度も高くないが、Ox濃度は西日本と同程度の高い濃度を示している。このことは、大陸からの移流に関して、日本海側北部と西日本とでは、Oxとnss-SO₄²⁻の発生源、移流経路等の挙動に違いがあることが考えられ、これについては今後の課題である。

—参考文献—

- 1) Network Center for EANET : Technical Document for Filter Pack Method in East Asia, 2003.
- 2) 全国環境研協議会 酸性雨調査研究部：第4次酸性雨全国調査報告書(平成18年度)．全国環境研会誌, 33(3), 21-29, (2008)．
- 3) 大原利真ら：2007年5月8, 9日に発生した広域的な光化学オゾン汚染—オーバービュー—, 大気環境学会誌, 43(4), 198-208, (2008)．
- 4) 岩本真二ら：福岡県における光化学オキシダントの高濃度要因の分類, 大気環境学会誌, 43(3), 173-179, (2008)．
- 5) 気象庁ホームページ(URL:http://www.data.kishou.go.jp/obs-env/kosahp/kosa_data_index.html)
- 6) M. Aikawa, et al.: Significant longitudinal / latitudinal gradient in the particulate sulfate over Japan based on the multi-sites measurements and chemical transport model: Impacts of transboundary pollution from Asian Continent, submitted.

5.3 乾性沈着量の推計

5.3.1 乾性沈着推計ファイル

FP法の測定結果から、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。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。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(=10m)における沈着速度

C：沈着物の大気中濃度

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などから推定する。

本報告で用いたモデルは松田¹⁾のモデルをベースに、高橋ら²⁾および環境省の酸性雨対策調査総合取りまとめ報告書³⁾に示された Wesely (1989)⁴⁾, Erisman et al. (1994)⁵⁾, Walcek et al. (1986)⁶⁾のモデルおよびパラメータなどを一部用いたものである。野口ら(2006)は、本方法による乾性沈着推計モデルを、広く用いられている表計算ソフト(MS Excel)のファイルとして開発した^{7,8)}。本調査の沈着速度の算出には、この乾性沈着推計ファイル Ver.3-4を用いた⁸⁾。このファイルは、北海道環境科学研究センターのHPで公開されており、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。

第3次酸性雨全国調査報告書(2003)⁹⁾および第4次酸性雨全国調査(2005,2006,2007,2008)^{10,11,12,13)}では、同ファイルの Ver.3-2および Ver.3-3を用いて二酸化硫黄、硝酸ガスなどの乾性沈着量を試算してきた。しかし、この乾性沈着推計モデルの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.3-4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、この乾性沈着推計ファイルは、二酸化硫黄とアンモニアの濡れ面への取り込みについての精度が低い可能性があり、雨の多い地点や湿度の高い地点ではより精度が低くなると考えられている。粒子状物質に関しては、微小粒径を対象にしており、粗大粒子としても存在する硝酸塩の評価では精度が落ちる可能性が高い。さらに、草地におけるモデルをベースとしているため、森林の沈着速度を過小推計している可能性が高かったため、森林の場合の風速が0となる場合の高さ補正の要素(樹高の70%)を取り入れた¹⁴⁾。平成18年度報告では沈着量の評価を地域発生量の評価に合わせて半径25 kmを対象に行っており、この点でも精度が低くなる要素が含まれていた。そのため平成19年度調査では、半径1 kmを対象に行った。

なお、FP法では粒子とガスの完全な分別捕集は難しいため、大気濃度ではガスと粒子を合わせた硝酸成分(5.2章では全硝酸と記述)およびアンモニウム成分(5.2章では全アンモニアとしてと記述)の評価を行ったが、乾性沈着では沈着速度が異なるため、FP法で得られた硝酸ガスと粒子状

硝酸イオン、アンモニウムガスと粒子状アンモニウムイオン濃度を用いて算出している。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。

5.3.2 乾性沈着量の評価方法

FP法で大気濃度の測定を実施した地点について、乾性沈着量の評価を実施した。

乾性沈着推計ファイルに入力する気象データは、調査実施機関が指定する各調査地点に近い気象官署^{15,16)}、アメダス^{16,17)}、大気汚染常時監視測定局の1時間毎の測定値(風速、気温、湿度、日射量、雲量)を用いた。季節は、季節区分には温度指数と360時間前から120時間前の平均気温による季節区分指標(NDVI 予測指標)^{18,19)}を用い、積雪の有無は積雪深10cm以上を積雪ありとした。測定点高さは10m、風速測定点は、気象官署等の風速測定高さを入力し計算を行った。

V_d は表面の状況により異なるため、各表面カテゴリ(市街地、森林地域、農地、草地、積雪、水面)毎に、粒子状物質(SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+)および SO_2 , HNO_3 , NH_3 , NO , NO_2 の V_d をそれぞれ1時間毎に算出し、採取基準日による月平均値を求めた。濃度測定地点周辺の各表面カテゴリの土地利用割合は国土地理院のデータから半径1 kmにかかるメッシュ値を抽出して求めた。土地利用の分類は、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。

月ごとに各表面カテゴリの月平均 V_d とそれに対応する土地利用の割合、および大気濃度の積を求め、その総和を調査地点の月間乾性沈着量とした。季節を冬(積雪有り)とした月については、農地、草地の V_d の代わりに、積雪の V_d を用いた。大気濃度はFP法で測定した粒子状物質($nss-SO_4^{2-}$, NO_3^- , NH_4^+)およびガス(SO_2 , HNO_3 , NH_3)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沈着量を算出した。

5.3.3 乾性沈着量と湿性沈着量の比較

乾性沈着量の推計結果を付表3.1~付表3.6に示す。

FP法で大気濃度の測定を実施した地点のうち、

湿性沈着，大気濃度の年平均濃度の算出が完全度等により適用除外とならなかった調査地点について，湿性沈着量(Wet)と乾性沈着量(Dry)を年間

値で比較した。硫酸成分は，非海塩由来について求めた。

乾性沈着量(ガス+粒子)は，硫酸成分が1.6(母子里)–11(太宰府)(平均値5.8)mmol m⁻² year⁻¹，硝酸成分が1.1(母子里)–81(太宰府)(平均値24)mmol m⁻² year⁻¹，アンモニウム成分が3.1(札幌白石)–83(大里)(平均値12)mmol m⁻² year⁻¹だった。

硫酸成分について乾性沈着量が沈着量に占める割合(Dry/(Dry+Wet)×100(%))は，4.3%(長岡)–36%(札幌北)(平均値19%)であった。同様に，硝酸成分の乾性沈着量が沈着量に占める割合は，5.2%(母子里)–75%(豊橋)(平均値38%)，アンモニウム成分の乾性沈着量が沈着量に占める割合は，8.0%(長岡)–60%(大里)(平均値23%)となった。

地点によって違いがあるが，硫酸成分については全地点で湿性沈着量が乾性沈着量よりも多く，母子里，新潟曾和，長岡，射水，伊自良湖，香北では乾性沈着の占める割合が10%未満だった。硝酸成分については，利尻，母子里，伊自良湖では乾性沈着の占める割合は10%以下であったが，札幌白石，長野，豊橋，大阪，海南，神戸須磨，太宰府では50%を超えていた。アンモニウム成分については，長岡，金沢では乾性沈着の占める割合は10%以下であったが，大里では50%を超えていた。

地域区分ごとの平均沈着量を図5.3.1に，硝酸成分とアンモニウム成分を合計した全窒素沈着量を図5.3.2に示した。各地域区分の地点数は，NJ 4，JS 4，EJ 1，CJ 7，WJ 4，SW 2である。硫酸成分はJS，WJで，硝酸成分はJS，CJ，WJで，アンモニウム成分はJS，EJ，SWで，全窒素成分はJS，EJで沈着量が多かった。

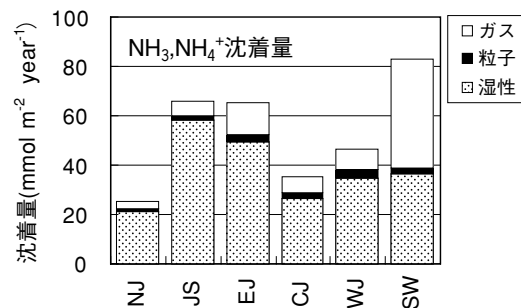
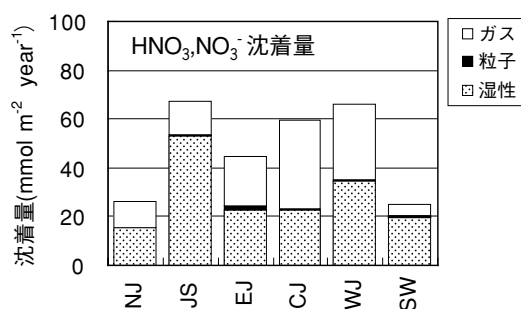
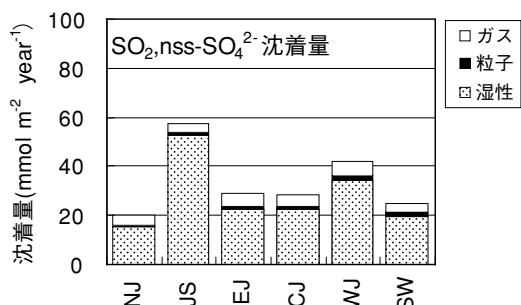


図 5.3.1 地域区分ごとの総沈着量

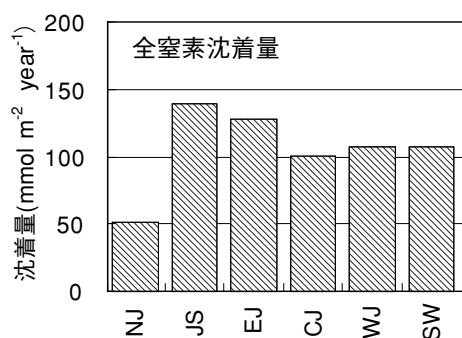


図 5.3.2 地域区分ごとの全窒素沈着量

5.3.4 排出量と乾性沈着量の関係

乾性沈着量と，排出量インベントリーマップデータから計算された排出量との関係を検討した。各地点の排出量と乾性沈着量の関係を図5.3.3に示す。

NO_x 排出量と硝酸成分の乾性沈着量には，有意な関係(p<0.05)が認められたが，SO₂排出量と硫酸成分の乾性沈着量，NH₃排出量とアンモニウム成分の乾性沈着量は，有意な関係が認められ

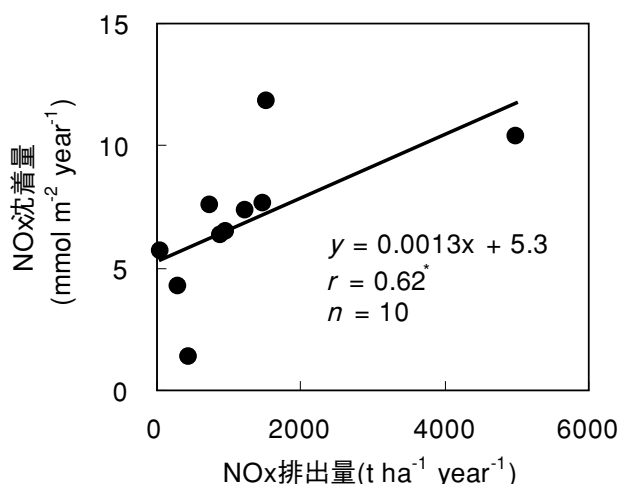
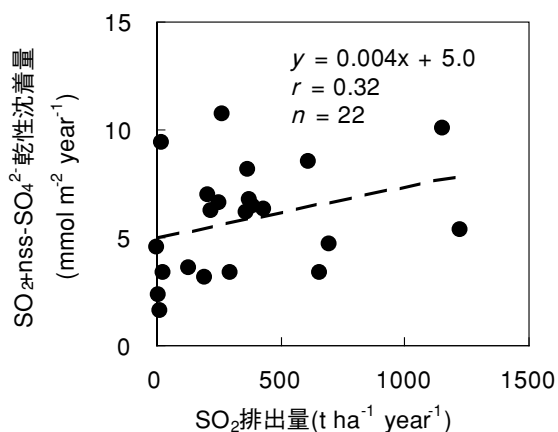


図 5.3.4 NOx 排出量と NOx 乾性沈着量の関係

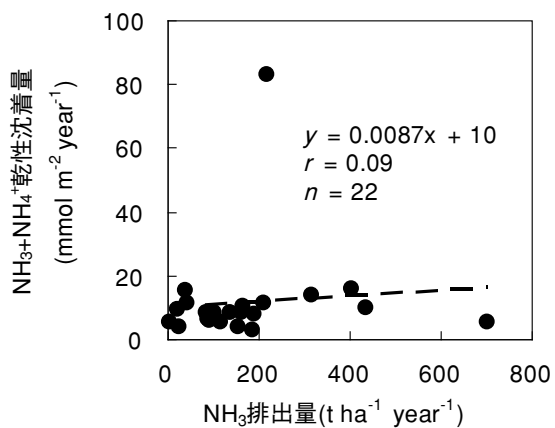
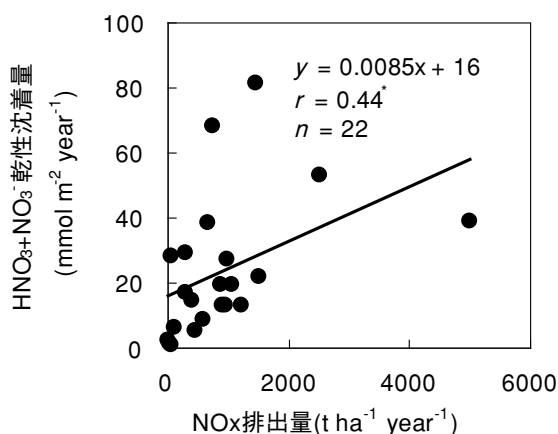


図 5.3.3 排出量と乾性沈着量の関係

なかった($p > 0.05$)。

5.3.5 NOx(NO, NO₂)の乾性沈着量

大気中の NO, NO₂濃度を自動測定機により測定している札幌北, 騎西, 長野, 射水, 伊自良, 豊橋, 大阪, 海南, 山口, 太宰府について, NO および NO₂の乾性沈着量を推計した。NO の乾性沈着量は0.001(大阪)–0.12(射水) (平均値0.030) mmol m⁻²year⁻¹と少なかった。NO₂の乾性沈着量は1.3(伊自良)–12(騎西) (平均値6.9)

mmol m⁻²year⁻¹だった。NOx(NO+NO₂)の乾性沈着量が全乾性沈着量に占める割合は、8.6%(太宰府)–36%(射水) (平均値22%)、総沈着量に占める割合は2.5%(伊自良)–18%(札幌北) (平均値9.8%)であった。

NOx 排出量と NOx 沈着量の関係を図 5.3.4 に示す。NOx 排出量と NOx 乾性沈着量には、有意な関係($p < 0.05$)が認められた。

—参考文献—

- 1) 松田和秀：酸性物質の乾性沈着量推計のための沈着速度抵抗モデルの開発, 日本環境衛生センター所報, **29**, 41–45, 2001
- 2) 高橋章, 佐藤一男, 若松孝志, 藤田慎一, 吉川邦夫：インフェレンシャル法による森林への硫黄化合物の乾性沈着量の推定—SO₂の乾性沈着に及ぼす葉面のぬれの影響—, 大気環境学会誌, **37**, 192–205, 2002
- 3) 酸性雨対策検討会：酸性雨対策調査総合取りまとめ報告書, 2004
- 4) Wesely, M. L. : Parameterization of surface resistances to gaseous dry deposition In regional-scale numerical model. *Atmospheric Environment*, **23**, 1293–1304, 1989
- 5) Erisman, J. W., Baldocchi, D.: Modeling dry deposition of SO₂. *Tellus*, **46B**, 159–171, 1994
- 6) Walcek, C. J., Brost, R. A., Chang, J. S., Wesely, M. L.: SO₂, sulfate and HNO₃ deposition velocities computed using regional land use and meteorological data. *Atmospheric Environment*, **20**, 949–964, 1986
- 7) 野口泉, 松田和秀：乾性沈着量推計ファイルの開発と沈着速度の分布図作成. 第21回全国環境研交流シンポジウム要旨集, 82–87, 2006
- 8) 全国環境研協議会：乾性沈着推計ファイル(Ver.3-2), URL:http://www.hokkaido-ies.go.jp/seisakuka/acid_rain/kanseichinchaku/kanseichinchaku.htm, 2007.
- 9) 全国環境研協議会 酸性雨研究部会：第3次全国調査報告書. 全国環境研会誌, **28**, 126–196, 2003

- 10) 全国環境研協議会 酸性雨研究部会：第4次酸性雨全国調査結果報告書(平成15年度)．全国環境研会誌，**30**，58-135，2005
- 11) 全国環境研協議会 酸性雨研究部会：第4次酸性雨全国調査結果報告書(平成16年度)．全国環境研会誌，**31**，118-186，2006
- 12) 全国環境研協議会 酸性雨研究部会：第4次酸性雨全国調査結果報告書(平成17年度)．全国環境研会誌，**32**，78-152，2007
- 13) 全国環境研協議会 酸性雨研究部会：第4次酸性雨全国調査結果報告書(平成18年度)．全国環境研会誌，**33**，126-196，2008
- 14) 松田和秀：大気中硫黄および窒素化合物の乾性沈着推計-沈着速度推計法の更新-，大気環境学会誌，**43**，332-339，2008.
- 15) (財)気象業務支援センター：地上気象観測時日別編集データ2003年-2007年(CD-ROM)
- 16) 気象庁，気象庁月報 2008年1月-2008年3月，(CD-ROM)．
- 17) (財)気象業務支援センター：アメダス年報2003年-2006年(CD-ROM)
- 18) 野口泉：乾性沈着速度評価モデル(インファレンシャル法)における植物活性評価方法について，第14回大気環境学会 北海道東北支部学術集会講演要旨集，22-23，2007.
- 19) 野口泉，布和敖斯尔，高田雅之，濱原和広，高橋英明，玉田克巳：気温による森林地域のNDVI推計モデルの開発，北海道環境科学研究センター所報，**32**，43-56，2006.

書 評

「黄 砂」

岩坂泰信，西川雅高，山田 丸，
洪 天祥 編



ここに紹介する「黄砂」は，国内外の第一線の黄砂研究者がそれぞれの専門とするところを教科書用に執筆して出来たものであり，黄砂学として1冊にまとめたような本である。昨今，黄砂現象への関心は著しく高まっているにもかかわらず，研究・調査現場や教育現場では「最近の知見を取り入れた適当な黄砂本が見当たらない」という声を聞く。それに真っ向から答えるような内容であり，本書の出版は誠に時宜を得たものである。

本書は次の7章から構成されている。

- 第1章 序論(日本，中国，韓国の史書中の黄砂情報を紹介)
- 第2章 黄砂の発生源(中国およびモンゴル乾燥地域の紹介)
- 第3章 黄砂の発生・輸送・予報(黄砂の舞い上がり機構や年々変動，予報の仕組みを紹介)
- 第4章 黄砂の観測法(化学分析法から物理観測法，プラットフォーム利用法など広範囲に紹介)
- 第5章 東アジアにおける代表的な観測事例(中国，モンゴル，韓国，日本の研究事例を紹介)
- 第6章 タクラマカン砂漠を舞台にした日本の黄砂観測(発生源での今日的研究事例を紹介)
- 第7章 黄砂の生物地球化学的循環：長距離輸

送と変質(輸送過程現象・健康影響などを紹介)

以上のように，黄砂研究・調査にかかわる最新の観測技術が分かり易く解説されているほか環境化学的な挙動についても網羅されている。それらに加えて，黄砂現象の歴史的な記載事例とその時代の社会背景，日本以外の中国，韓国，モンゴルでの黄砂現象や研究状況などにも記述が及んでおり，黄砂現象への関心が時間的にも空間的にも大きな広がりをもつものであることなどをうかがい知ることができ。しかし，記述はあくまで平易になされており，すでにこの方面の研究を行っている研究者ばかりでなく幅広い関係者にとっても本書は役立つことが多々あると思われる。

とりわけ国や自治体の研究所で大気環境科学の研究・調査に携わっている研究者・技術者の基礎文献書として，また大学学部の後期から大学院修士レベルでの教科書や中学校や高等学校の理科系教員の授業参考書としてうってつけの書と言える。

解説：友部正志・茨城県霞ヶ浦環境科学センター 大気・化学物質研究室

B5版/342頁/定価9500円(税別，本体価格)/古今書院