

第5次酸性雨全国調査報告書(平成21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

友寄 喜貴, 堀江 洋佑, 西山 亨, 中村 雅和, 辻 昭博
 木戸 瑞佳, 松本 利恵, 山口 高志, 北村 洋子, 横山 新紀

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2009年度からの第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んだ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)に加えて乾性沈着を把握するために、4段ろ紙法(フィルターパック法)によるガス・エアロゾル調査を実施しました。この結果、都市部における酸性雨の状況、硫黄酸化物や窒素酸化物の地域特性、さらに大気中のガス成分、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、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酸化物、オゾン濃度などの測定が可能なパッシブ法を導入しました。また、乾性沈着速度を算出するプログラムを共同開発し、乾性沈着量の評価を実施しました。なお、第4次調査は当初2003～2005年度の予定でしたが、中国における硫黄酸化物や窒素酸化物の排出量が急増する傾向が見られるため、2008年度まで3年間調査を延長しました。

このような経過から、2009年度に本部会の名称を「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を含めた広域大気汚染の解明も目的とした第5次調査を始めました。

今回は、第5次調査の1年目、2009年度の調査結果を報告します。この成果が、各地域でのデータ解析評価におきまして、お役に立てれば幸いです。また、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、調査結果の解析では広域大気汚染についても検討を行っており、今後も継続したデータ収集および解析により、東アジア酸性雨モニタリングネットワークの充実に貢献したいと考えています。

このように、本部会の取組みは、日本における酸性雨調査を面的及び項目的に補完しており、環境省および(独)国立環境研究所と連携して全国的な情報・知見の集積を行う上で、地方研究機関の役割・貢献が極めて大きいことを示していると思われます。

最後になりましたが、行財政状況の大変厳しい中、本部会の活動にご参加いただきました全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、本調査に対し多大なご協力・ご支援をいただきました環境省、(独)国立環境研究所、(財)日本環境衛生センター／アジア大気汚染研究センター、並びに、その他の多くの皆様に、この場をお借りしまして、深くお礼を申し上げます。今後も引き続き、当部会の活動に皆様のご支援・ご協力を賜りますようお願い申し上げます。

平成23年7月

全国環境研協議会
 酸性雨広域大気汚染調査研究部会
 部会長 広瀬 健二
 (川崎市公害研究所長)

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。第1次から第3次調査までは3カ年の調査の後、1年間の準備期間を経て次の調査を行ってきたが、2003~2005年度の予定で開始した第4次調査では急速に増大し始めた中国のSO₂およびNO_x排出量の影響などが懸念されたことから、追加調査として3カ年、2008年度まで計6年間の調査を実施した。なお、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にてデータ公開されており(http://db.cger.nies.go.jp/ja/database_B2.html)、第4次調査結果についても同様の予定である。

2009年度からは、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含めた、第5次調査を実施している。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、①国際標準の方法である降水時開放型捕集装置(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インフレンシャル法による乾性沈着速度算出および乾性沈着量評価、以上の3つが主なテーマである。第5次調査の特徴としては、①第4次調査から準備年をおかずに継続して実施していること、②パッシブ法をO式に統一することにより、広域の解析・とりまとめを目指すこと、③アンモニア・アンモニウムの成分ごとの評価をめざすことなどがあげられる。

2. 調査内容

2.1 調査概要

平成21年度の調査参加機関は表 2.1.1 に示す53機関であり、湿性沈着調査地点は72地点、乾性沈着調査地点は57地点(フィルターパック法:32地点、パッシブ法:42地点)である。なお、一部には、他の学術機関との共同研究^{1,2)}、国設局との共用データも含まれている。なお、環境省のデータとは降水量の算出方法(気象データを用いる場合と貯水量を用いる場合)などデータの算出法が一部異なるため、数値が一致しない場合があることに注意が必要である。

平成21年度の調査期間は原則として平成21年3月30日~平成22年3月29日であり、季節および月

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

	第1次酸性雨全国調査	第2次酸性雨全国調査	第3次酸性雨全国調査		第4次酸性雨全国調査			第5次酸性雨全国調査	
調査対象	降水成分	降水成分	湿性沈着	乾性沈着	湿性沈着	乾性沈着	湿性沈着	乾性沈着	
調査地点数	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:34地点 2005年度:62地点 2006年度:57地点 2007年度:61地点 2008年度:60地点	2003年度:32地点 2004年度:34地点 2005年度:35地点 2006年度:28地点 2007年度:28地点 2008年度:29地点	2003年度:59地点 2004年度:61地点 2005年度:59地点 2006年度:39地点 2007年度:34地点 2008年度:37地点	2009年度:72地点	2009年度:32地点 2009年度:42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(ウエットオンリー採取)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(ウエットオンリー採取)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	降水時開放型捕集装置(ウエットオンリー採取)による原則1週間単位の試料採取	フィルターパック法によるガス及び粒子状成分調査、原則1-2週間単位の試料採取
調査期間	通年調査	夏季及び冬季の2週間調査	通年調査		通年調査		通年調査		
データの公表	国立環境研究所地球環境研究センターホームページ (http://www.cger.nies.go.jp/acid/acid0.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		国立環境研究所地球環境研究センターホームページに掲載予定		
報告書の公表	全国公害研会誌 VOL.19, NO.2.(平成4年度酸性雨全国調査結果報告書) 全国公害研会誌 VOL.20, NO.2.(酸性雨全国調査結果報告書(平成3年度~平成5年度))	全国公害研会誌 VOL.21, NO.4.(第2次酸性雨全国調査報告書(平成7年度)) 全国公害研会誌 VOL.22, NO.4.(第2次酸性雨全国調査報告書(平成8年度)) 全国公害研会誌 VOL.23, NO.4.(第2次酸性雨全国調査報告書(平成9年度))	全国環境研会誌 VOL.26, NO.2.(第3次酸性雨全国調査報告書(平成11年度)) 全国環境研会誌 VOL.27, NO.2.(第3次酸性雨全国調査報告書(平成12年度)) 全国環境研会誌 VOL.28, NO.3.(第3次酸性雨全国調査報告書(平成11~13年度))		全国環境研会誌 VOL.30, NO.2.(第4次酸性雨全国調査報告書(平成15年度)) 全国環境研会誌 VOL.31, NO.3, 4.(第4次酸性雨全国調査報告書(平成16年度)) 全国環境研会誌 VOL.32, NO.3, 4.(第4次酸性雨全国調査報告書(平成17年度)) 全国環境研会誌 VOL.33, NO.3, 4.(第4次酸性雨全国調査報告書(平成18年度)) 全国環境研会誌 VOL.34, NO.3, 4.(第4次酸性雨全国調査報告書(平成19年度)) 全国環境研会誌 VOL.35, NO.3, 4.(第4次酸性雨全国調査報告書(平成20年度))				

表 2.1.1 調査地点の属性及び調査内容

支部	都道府県名	地名	調査機関名	録出濃度 ⁽¹⁾ (μg・m ⁻³)			地温分 ⁽²⁾	緯度 (度)	経度 (度)	標高 (m)	海抜からの距離 (km)	気圧 ⁽³⁾	酸性 ⁽⁴⁾			標高 (m)	海抜からの距離 (km)	シフト設置位置 ⁽⁵⁾	土地利用など		
				SO ₂	NO _x	NH ₃							FP	O ₃	自動						
北海道	北海道	稚内	北海道環境科学研究所	7.57	6.67	0.62	NJ	45.12	141.21	31	0.8	1000	○	○	○	40	0.8	地上3m	未指定(広野)		
		天塩PWS	北海道環境科学研究所	0.02	0.09	0.50	NJ	45.06	142.10	10	30.4	1	◆	○	○	26	30.4	地上1m	未指定(森林)		
		母田	北海道環境科学研究所	0.72	0.79	0.49	NJ	43.36	142.27	10	10	1	○	○	○	26	10	地上2m	未指定(森林)		
		札幌北	北海道環境科学研究所	6.16	26.61	1.02	NJ	43.08	141.83	27	0	○	○	○	○	34	13.8	地上5m	未指定(森林)		
		札幌南	北海道環境科学研究所	0.03	0.30	1.00	NJ	43.56	141.51	31	0	○	○	○	○	35	30.1	地上5m	未指定(森林)		
		札幌北	北海道環境科学研究所	0.03	0.30	0.26	NJ	42.65	140.31	31	0	○	○	○	○	35	13.0	地上5m	未指定(森林)		
		札幌白石	札幌市衛生研究所	5.33	26.81	1.19	NJ	43.06	141.38	0	1	○	○	○	○	11	17.0	地上14m	近接商業地、市街地		
		札幌南	札幌市衛生研究所	4.37	14.43	0.80	NJ	42.94	141.34	0	1	○	○	○	○	16	26.0	地上1.5m	市街化調整区域、森林地		
		札幌南	札幌市衛生研究所	4.03	21.06	0.69	NJ	43.15	141.21	0	1	○	○	○	○	5	0.7	地上1.5m	市街化調整区域		
		札幌南	札幌市衛生研究所	3.79	12.34	0.65	NJ	42.91	141.35	0	1	○	○	○	○	28	31.0	地上1.5m(2階上)	山林		
		札幌南	札幌市衛生研究所	7.28	2.59	0.44	NJ	40.82	140.79	0	1	○	○	○	○	3	0.5	地上20m	市街地(市街地)		
		札幌南	札幌市衛生研究所	0.20	1.25	0.51	NJ	40.73	140.24	0	1	○	○	○	○	13	4.4	地上1.5m	市街地(市街地)		
		青森県	青森県	盛岡	青森県環境科学研究所	2.24	5.94	1.33	NJ	39.68	141.14	14	70.0	13	○	○	○	13	70.0	地上12m	市工業地域 市街地
八幡平	青森県環境科学研究所			0.47	1.99	1.15	NJ	39.82	140.94	14	80.0	80.0	○	○	○	80.0	0.2	地上5m	森林地		
牛久保	青森県環境科学研究所			0.29	0.67	0.24	NJ	38.39	141.52	14	0	0	○	○	○	5	0.2	地上1.5m	商業地		
仙台幸町	青森県環境科学研究所			7.01	16.93	1.02	NJ	38.28	140.91	0	1	○	○	○	○	32	0.5	地上3.8m, FP1.5m	市街地		
秋田千夜	秋田県健康環境科学研究所			4.37	6.10	0.53	NJ	39.72	140.13	0	1	○	○	○	○	8	5.5	地上1.20m	商業地		
山形県	山形県			鶴岡	山形県環境科学研究所	0.72	0.77	0.38	NJ	38.56	139.86	14	23.0	23.0	○	○	○	23.0	28.0	地上1.5m	未指定(森林)
				福島天栄	福島県環境科学研究所	0.61	1.22	0.50	EJ	37.25	140.04	0	1	○	○	○	○	94	0.1	地上10m	市街地
				郡山朝日	郡山市公害対策センター	1.32	6.08	1.37	EJ	37.41	140.36	0	1	○	○	○	○	242	60.0	地上10m	都市
				郡山順心	郡山市公害対策センター	1.25	5.27	1.00	EJ	37.41	140.23	0	1	○	○	○	○	242	70.0	地上10m	市街地
				小夜流	いわき市公害対策センター	13.61	10.92	0.99	EJ	36.96	140.89	0	1	○	○	○	○	5	2.2	地上約1.5m	第1種住居地域
				新設吉布	新潟県健康環境科学研究所	2.60	9.49	1.28	IS	37.85	138.94	0	1	○	○	○	○	5	3.1	地上2.5m, FP3.5m	商業地
				長岡	新潟県健康環境科学研究所	1.35	4.94	0.62	IS	37.45	138.57	0	1	○	○	○	○	25	18.0	地上2m	市街地
				大船山	新潟県健康環境科学研究所	0.28	1.34	0.74	IS	37.44	138.74	0	1	○	○	○	○	12	4.4	地上10m	商業地
		新潟大山	新潟県衛生試験所	2.75	15.68	1.74	IS	37.94	139.08	0	1	○	○	○	○	1	1.2	地上6m	市街地		
		新潟坂戸	新潟県衛生試験所	2.62	2.50	1.64	IS	37.88	138.99	0	1	○	○	○	○	0	1.6	地上1.5m	住居地		
		新潟小野	新潟県衛生試験所	2.64	9.73	1.68	IS	37.88	138.99	0	1	○	○	○	○	0	1.7	地上3m	住居地		
		日光中野	栃木県健康環境科学研究所	0.73	0.97	0.76	EJ	36.74	139.48	0	1	150.0	95.0	○	○	1	1.0	地上高1m	住宅地		
		宇都宮PWS	栃木県健康環境科学研究所	2.88	10.93	2.79	EJ	36.60	139.94	0	1	140.0	69.0	○	○	1	1.4	地上高10m	住宅地		
埼玉県	埼玉県	小山	栃木県健康環境科学研究所	3.13	12.99	3.08	EJ	36.31	139.83	0	1	130.0	63.0	○	○	1	3.5	地上高15m	住宅地		
		加須	埼玉県環境科学研究所	2.70	18.34	0.91	EJ	36.06	139.56	0	1	130.0	29.0	○	○	1	3.5	地上11m	市街地		
		羽生	埼玉県環境科学研究所	7.46	45.10	0.91	EJ	35.86	139.63	0	1	130.0	33.0	○	○	1	3.5	地上15m	市街地		
		宮城野	埼玉県環境科学研究所	1.14	7.71	3.20	EJ	36.08	140.27	0	1	110.0	31.0	○	○	1	1.8	地上10m	市街地		
		前橋	群馬県衛生試験所	4.13	12.96	7.55	EJ	36.40	139.10	0	1	120.0	114.0	○	○	1	12.0	地上約20m	市街化調整区域		
		市川	千葉県環境科学研究所	8.63	59.68	4.64	EJ	35.72	139.93	0	1	110.0	6.1	○	○	1	6.1	地上20m	住居地		
		市原	千葉県環境科学研究所	13.96	44.28	3.14	EJ	35.53	140.07	0	1	110.0	7.2	○	○	1	7.2	地上10m	工業地		
		富津	千葉県環境科学研究所	15.34	28.30	1.42	EJ	35.22	139.87	0	1	110.0	1.2	○	○	1	1.2	地上10m	住居地		
		香取	千葉県環境科学研究所	17.08	20.01	0.90	EJ	35.89	140.55	0	1	110.0	15.3	○	○	1	15.3	地上3m	市街地		
		鎌倉	千葉県環境科学研究所	10.17	8.38	5.92	EJ	35.74	140.74	0	1	110.0	4.7	○	○	1	4.7	地上1m, O式1m	商業地		
		東金	千葉県環境科学研究所	14.26	6.94	0.30	EJ	35.95	140.37	0	1	110.0	7.9	○	○	1	7.9	地上3m	住居地		
		一宮	千葉県環境科学研究所	0.22	1.97	0.97	EJ	35.35	140.38	0	1	110.0	1.0	○	○	1	1.0	地上3m	商業地		
		船山	千葉県環境科学研究所	4.64	12.47	0.72	EJ	35.02	139.88	0	1	110.0	2.5	○	○	1	2.5	地上1.3m	商業地		
旭	千葉県環境科学研究所	7.68	8.66	4.12	EJ	35.73	140.72	0	1	110.0	4.7	○	○	1	4.7	地上1m, FP1m, O式1m	商業地				
佐倉	千葉県環境科学研究所	2.96	26.96	3.01	EJ	35.73	140.21	0	1	110.0	19.0	○	○	1	19.0	地上3m, FP3m, O式2m	住居地				
八千代	千葉県環境科学研究所	8.89	39.30	3.86	EJ	35.72	140.08	0	1	110.0	8.8	○	○	1	8.8	地上3m, O式2m	住居地				
海城	千葉県環境科学研究所	0.24	0.26	0.92	EJ	35.16	140.16	0	1	110.0	4.9	○	○	1	4.9	地上1m	未指定(森林)				
船橋	千葉県環境科学研究所	14.26	6.94	3.95	EJ	35.65	140.07	0	1	110.0	3.9	○	○	1	3.9	地上1m	住居地				
市川八幡	千葉県環境科学研究所	6.40	60.03	4.70	EJ	35.73	139.93	0	1	110.0	0.5	○	○	1	0.5	地上1.5m	住居地				
宮野大	千葉県環境科学研究所	12.33	42.86	3.97	EJ	35.65	140.10	0	1	110.0	4.1	○	○	1	4.1	地上1.5m	住居地				
神奈川県	神奈川県	平塚	神奈川県環境科学研究所	1.42	17.70	3.03	EJ	35.35	139.35	0	1	110.0	9.5	○	○	1	9.5	地上約22m	市工業地		
		川崎	川崎市公害対策センター	16.56	71.13	2.94	EJ	35.51	139.72	0	1	110.0	7.2	○	○	1	7.2	地上12.3m	住居地		
		長野	長野県健康環境科学研究所	1.35	4.76	0.61	CJ	36.61	138.18	0	1	110.0	36.5	○	○	1	36.5	地上15m(FP:3m)	第1種住居地		
		静岡小野	静岡県健康環境科学研究所	3.39	10.23	1.42	CJ	34.97	138.40	0	1	110.0	3.4	○	○	1	3.4	地上14m	住居地(市街地)		
		静岡東名	静岡県健康環境科学研究所	3.15	9.89	1.38	CJ	35.01	138.59	0	1	110.0	4.9	○	○	1	4.9	地上1.5m	住居地		
		山梨県	山梨県健康環境科学研究所	14.26	60.03	1.80	IS	35.70	137.10	0	1	110.0	8.1	○	○	1	8.1	地上約12.6m	第一種中高層住宅専用地区		
		石川島	金沢	石川県健康環境科学研究所	2.74	6.53	1.12	IS	35.53	136.71	0	1	110.0	14.0	○	○	1	14.0	地上14m	第2種住居専用地区	
		福井県	福井県健康環境科学研究所	2.41	7.77	0.80	IS	36.07	136.26	0	1	110.0	11.1	○	○	1	11.1	地上1.5m	市街化調整区域		
		岐阜県	伊自良湖	岐阜県健康環境科学研究所	2.00	5.82	1.54	CJ	35.57	136.70	0	1	110.0	60.0	○	○	1	60.0	地上4.3m	林地	
		愛知県	豊橋	愛知県健康環境科学研究所	2.36	10.81	4.18	CJ	34.74	137.38	0	1	110.0	6.0	○	○	1	6.0	地上高8m(地上2階)	住居地	
		近畿・東海・北陸	近畿・東海・北陸	名古屋緑	名古屋健康環境科学研究所	10.28	51.61	4.70	CJ	35.10	136.99	0	1	110.0	4.1	○	○	1	4.1	地上高9m, FP1.6m, O式1.3m	第1種住居専用地区
				四日市	三重県健康環境科学研究所	4.10	17.71	2.31	CJ	34.96	136.49	0	1	110.0	18.5	○	○	1	18.5	地上1.5m	市街地
				大津市	滋賀県健康環境科学研究所	3.89	17.74	0.91	CJ	35.01	135.87	0	1	110.0	8.1	○	○	1	8.1	地上約28m	住居地
京都府	京都府健康環境科学研究所			15.56	16.56	1.80	IS	35.70	137.10	0	1	110.0	8.1	○	○	1	8.1	地上約12.6m	第一種中高層住宅専用地区		
石川島	金沢			石川県健康環境科学研究所	2.74	6.53	1.12	IS	35.53	136.71	0	1	110.0	14.0	○	○	1	14.0	地上14m	第2種住居専用地区	
福井県	福井県健康環境科学研究所			2.41	7.77	0.80	IS	36.07	136.26	0	1	110.0	11.1	○	○	1	11.1	地上1.5m	市街化調整区域		
岐阜県	伊自良湖			岐阜県健康環境科学研究所	2.00																

から20~30km離れた地点または(および)地方に特有の地点で実施している。

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

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

表 2.1.2 調査期間の季節・月区分

季節	月	平成21年度	週
春	4	3月30日 ~ 4月27日	4
	5	4月27日 ~ 5月25日	4
夏	6	5月25日 ~ 7月6日	6
	7	7月6日 ~ 8月3日	4
秋	8	8月3日 ~ 8月31日	4
	9	8月31日 ~ 9月28日	4
	10	9月28日 ~ 10月26日	4
冬	11	10月26日 ~ 11月24日	4
	12	11月24日 ~ 1月4日	6
	1	1月4日 ~ 2月1日	4
春	2	2月1日 ~ 3月1日	4
	3	3月1日 ~ 3月29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	名古屋市環境科学研究所	古谷伸比固	H21	
	〃	岩間 千晃	H22	
理事委員	石川県保健環境センター	山田 正人	H21-22	
理事委員代理	〃	岡 秀雄	H21	
	〃	英 俊彦	H22	
支部委員	地方独立行政法人北海道立総合研究機構環境・地質研究本部環境科学研究センター	野口 泉	H21-22	D
	埼玉県環境科学国際センター	松本 利恵	H21-22	D, 5.3章
	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	藍川 昌秀	H21	D
	〃	平木 隆年	H22	D
	鳥取県衛生環境研究所	洞崎 和徳	H21-22	D
	宮崎県衛生環境研究所	中村 雅和	H21	D
委 員	福岡県保健環境研究所	濱村 研吾	H22	D
	地方独立行政法人北海道立総合研究機構環境・地質研究本部環境科学研究センター	山口 高志	H21-22	6章
	宮城県保健環境センター	北村 洋子	H21-22	6章
	新潟県保健環境科学研究所	江端 英和	H21-22	
	千葉県環境研究センター	横山 新紀	H21-22	6章
	富山県環境科学センター	木戸 瑞佳	H21-22	5.1-5.2章
	三重県保健環境研究所	西山 亨	H22	4章
	京都府保健環境研究所	辻 昭博	H21-22	5.1-5.2章
	財団法人ひょうご環境創造協会兵庫県環境研究センター	堀江 洋佑	H21-22	4章
	高知県環境研究センター	武市 佳子	H21-22	
	福岡県保健環境研究所	藤川 和浩	H21	
	宮崎県衛生環境研究所	中村 雅和	H22	5.1-5.2章
	沖縄県衛生環境研究所	友寄 喜貴	H21-22	1-4章
	有識者	明星大学理工学部	松田 和秀	H21-22
独立行政法人国立環境研究所		向井 人史	H21-22	
法政大学生命科学部		村野健太郎	H21-22	
独立行政法人農業環境技術研究所		林 健太郎	H21-22	
環境省		八田 哲典	H21-22	
財団法人日本環境衛生センター		家合 浩明	H21	
事務局	〃	大泉 毅	H22	
	名古屋市環境科学研究所	大場 和生	H22	
	〃	山神真紀子	H21-22	
	〃	鈴木 直喜	H21-22	
	〃	高木 恭子	H21-22	

(注)「報告書担当部分」におけるDはデータ収集、数字は報告書の章を表す。

表 2.2.1 乾性沈着の測定項目

項 目	捕集ろ紙名	
F P	粒子状成分	テフロン (PTFE)
	SO ₂	K ₂ CO ₃ +ポリアミド
	HNO ₃	ポリアミド
	NH ₃	リン酸+ポリアミド
	HCl	K ₂ CO ₃ +ポリアミド
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

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—第2版—(以下、手引き書³⁾)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。

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^{4,5)}を全環研として採用した。

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

なお、全環研のFP法に関するマニュアルは東

アジア酸性雨モニタリングネットワーク(以下、EANET)でも英訳されて用いられており、詳細な手順などはこれまでの報告⁴⁾およびEANETの技術資料⁶⁾などを参照されたい。

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る紙、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る紙を用い、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くため、目的ガス成分がろ紙にたどり着くまでの抵抗を設ける必要がある。本調査では抵抗方法として、細孔を開けたサンプラーのカバーによる(拡散長抵抗)方法であるO式パッシブ法(以下、O式法)を用いている。

平成21年度のO式法の調査地点は、それぞれ42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、採取単位は原則1カ月である。

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よく知られている。本方法は、拡散長抵抗法が用いられ、濃度と捕集量の関係が理論的に証明されており、他の方法と比較することなく濃度の算出が可能である。また捕集効率が100%に近く、分子拡散係数が得られれば、他の成分でも測定が可能である。しかし、抵抗が大きく、ブランク値および分析の定量下限値の影響を受けやすい。とくに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⁷⁾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FP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21年度の自動測定機の調査地点は、28地点である。

2.2.3 調査地点の属性および調査内容

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

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

本調査では、Kannariら(2007)⁸⁾による2000年度ベースのSO₂、NO_xおよびNH₃排出量の情報を用いて調査地点を区分し、必要に応じて区分別、排出量別の解析を実施した。それぞれの排出量は

3次メッシュ(約1km四方)で得られており、調査地点周辺(半径20km相当:対象範囲は、測定地点を中心とした半径20kmの円内に3次メッシュの中心点が存在するメッシュとした。)の排出量を基に、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。

— 参考文献 —

- 1) 母子里のデータは、北海道大学北方生物圏フィールド科学センターとの共同研究による。
- 2) 天塩FRSのデータは、国立環境研究所地球環境研究センター、北海道大学北方生物圏フィールド科学センターおよび北海道大学工学研究科との共同研究による。
- 3) 環境省環境保全対策課:湿性沈着モニタリング手引き書(第2版), 2001
- 4) 全国環境研協議会:第3次酸性雨全国調査報告書(平成11~13年度のまとめ), 全国環境研会誌, 28, 2-196, 2003
- 5) 松本光弘, 村野健太郎:インフレーション法による樹木等への乾性沈着量の評価と樹木衰退の一考察, 日本化学会誌, 1998(7), 495-505, 1998
- 6) 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
- 7) 平野耕一郎, 斉藤勝美:短期暴露用拡散型サンプラーを用いた環境大気中のNO, NO₂, SO₂, O₃およびNH₃濃度の測定方法(改訂版), 平成22年8月, <http://www.city.yokohama.lg.jp/kankyo/mamoru/kenkyu/shiryo/pub/d0001/d0001.pdf>
- 8) 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 km ⁻² y ⁻¹)		
	SO ₂	NO _x	NH ₃
S	<1.44	<2.49	<0.30
M	1.44~2.62	2.49~9.59	0.30~3.51
L	2.62<	9.59<	3.51<

- 注1) 排出量データは、「財地球環境研究総合推進費 C-1 北半球における越境大気汚染の解明に関する国際共同研究(2)次世代型ソース・リセプターマトリックスの精緻化と検証に関する研究」における発生源インベントリーの成果である「EAGrid2000」のうち日本域を対象として精緻化された「EAGrid2000-Japan」より引用した。これは日本測地系の標準3次メッシュ体系を単位として作成されている。
- 注2) 区分Sは全国平均排出量の4/25が中央値となる範囲とした。
- 注3) 区分Mは区分Sの上限値を下限値とし全国平均排出量が中央値となる範囲とした。
- 注4) 区分Lは区分Mの上限値を超えた場合とした。
- 注5) 全国平均排出量は、全国総排出量/国土面積(北方領土を除く)として求めた。
- 注6) 対象範囲は各測定地点を中心とし、設定距離を半径とする円内に3次メッシュの中心点が存在するメッシュとした。
- 注7) 排出量は範囲内の3次メッシュの排出量(t・y⁻¹)を合計し、それを3次メッシュの合計面積(km²)で除して求めた。

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21年度の気象概況

平成21年度は、平成19~20年度に引き続き、年平均気温は全国的に高かった。降水量は、春や秋に全国的に少なめであった。夏には、北日本や西日本を中心に各地で大雨となった。とくに、7月19~26日にかけては、中国地方から九州北部地方

表 3.1.1 気象概況¹⁾

平均気温	
4月	北日本から西日本にかけて高かったが、気温の変動が大きかった。沖縄・奄美では低かった。
5月	北日本と東日本でかなり高く、西日本で高かった。沖縄・奄美では低かった。
6月	北日本から西日本にかけて高かった。沖縄・奄美では平年並だった。
7月	沖縄・奄美で高く、北日本では低かった。東日本と西日本では平年並。
8月	北日本と東日本では低く、沖縄・奄美では高かった。西日本では平年並。
9月	沖縄・奄美で記録的な高温。一方、北日本では低く、東日本と西日本では平年並だった。
10月	全国的に高かった。北日本から西日本にかけては変動が大きかった。
11月	東日本と沖縄・奄美で高く、北日本と西日本は平年並。全国的に寒暖の変動が大きかった。
12月	東日本では高く、北日本、西日本、沖縄・奄美では平年並。全国的に寒暖の変動が大きかった。
1月	北日本、東日本で高く、西日本、沖縄・奄美では平年並だった。東日本以西では、前半と後半の寒暖の差が大きかった。
2月	西日本、沖縄・奄美、東日本で高かった。北日本では平年並だった。全国的に気温の変動が大きかった。下旬には全国各地で記録的な高温がみられた。
3月	東日本から沖縄・奄美にかけて高く、北日本では平年並だった。全国的に気温の変動が大きかった。
降水量	
4月	北日本太平洋側で多く、東日本日本海側と西日本では少なかった。その他では平年並だった。
5月	東日本太平洋側では多かったが、その他では少なかった。
6月	北日本太平洋側と沖縄・奄美で多く、東日本日本海側と西日本で少なかった。北日本日本海側と東日本太平洋側では平年並。
7月	北日本で記録的な多雨。東日本日本海側と西日本で多かった。「平成21年7月中国・九州北部豪雨」の発生など、各地で大雨。一方、沖縄・奄美では少なく、東日本太平洋側では平年並だった。
8月	台風第9号の影響により西日本を中心に記録的な大雨。月降水量は、北日本・西日本の日本海側、沖縄・奄美で少なく、北日本・西日本の太平洋側、東日本では平年並だった。
9月	全国的に記録的な少雨。
10月	台風の上陸・接近により太平洋側と沖縄・奄美で降水量が多かった。日本海側では平年並だった。
11月	西日本、北日本・東日本の太平洋側、沖縄・奄美で多かった。北日本・東日本の日本海側では平年並だった。
12月	中旬後半から下旬はじめにかけて日本海側で大雪。月降水量は、北日本太平洋側、東日本で多かった。北日本日本海側、西日本、沖縄・奄美では平年並。
1月	日本海側では前半一時大雪。月降水量は、北日本・東日本の日本海側で多く、東日本太平洋側、西日本、沖縄・奄美では少なかった。北日本太平洋側では平年並。
2月	東日本から沖縄・奄美にかけて多かった。北日本では平年並だった。日本海側の一部では上旬に大雪。
3月	北日本から西日本にかけては顕著な多雨。沖縄・奄美ではかなり少なかった。
日照時間	
4月	北日本から西日本にかけて多照。沖縄・奄美で少なかった。
5月	沖縄・奄美、北日本日本海側、西日本太平洋側で多く、東日本では少なかった。北日本・西日本の日本海側では平年並。
6月	東日本日本海側と西日本で多く、北日本で少なかった。東日本太平洋側と沖縄・奄美では平年並。
7月	北日本から西日本にかけて少なかった。沖縄・奄美では平年並。
8月	北日本、東日本、西日本日本海側で少なかった。沖縄・奄美では多く、西日本太平洋側では平年並だった。
9月	全国的に多かった。
10月	沖縄・奄美でかなり少なく、東日本では多かった。北日本と西日本では平年並。
11月	北日本、東日本太平洋側、西日本、沖縄・奄美で少なかった。東日本日本海側では平年並。
12月	北海道オホーツク側・日本海側で多く、東北、西日本日本海側では少なかった。その他では平年並。
1月	北日本でかなり少なく、沖縄・奄美、東日本太平洋側、西日本では多かった。東日本日本海側では平年並。
2月	北海道日本海側・オホーツク側、東北・東日本、西日本の太平洋側で少なかった。東北日本海側では多かった。北海道太平洋側、東日本・西日本の日本海側、沖縄・奄美では平年並。
3月	北日本から西日本にかけて少なかった。沖縄・奄美では多かった。

にかけ記録的な大雨となり、「平成21年7月中国・九州北部豪雨」と命名された。また、8月8～11日にかけ、台風第9号が日本の南海上を東進し、東日本から西日本にかけ記録的な大雨となった。台風の発生数、接近数は平年を下回ったが、10月8日には台風第18号が上陸し、各地で暴風や大雨となった。冬には東日本日本海側を中心に大雪となった¹⁾。また、黄砂観測日数は平成21年4および5月では少なかったが、平成22年3月では多く、とくに3月21日にはきわめて高濃度の黄砂が日本の広い範囲に飛来した²⁾。

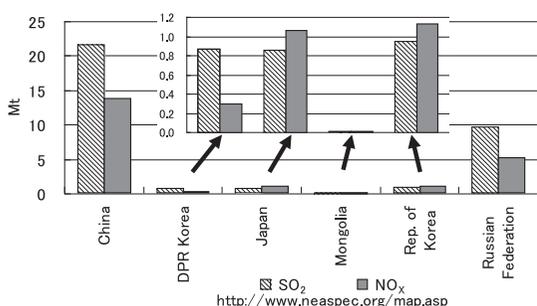


図 3.2.1 北東アジアのSO₂およびNO_x排出量(2000年)²⁾

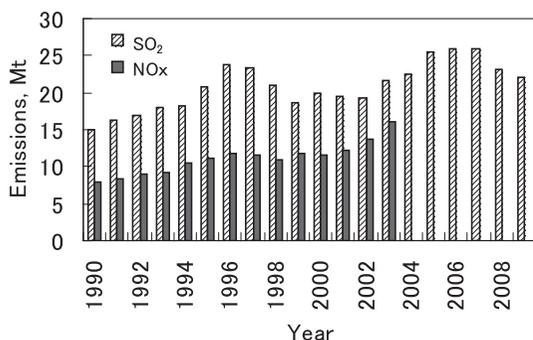


図 3.2.2 中国におけるSO₂およびNO_x排出量^{3,4)}

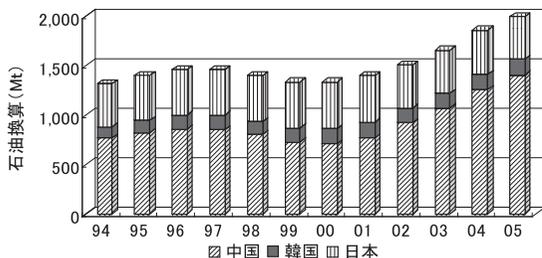


図 3.2.3 中国、韓国および日本のエネルギー消費のトレンド⁵⁾

平成21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³⁾。また図3.2.2に示す中国のSO₂, NO_x排出量のトレンド^{4,5)}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⁶⁾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し、2007年以降、SO₂排出量がまた漸減したとの報告もあるが、その排出量が多いままであり、NO_x排出量は増加傾向のままと考えられる。

SO₂の発生源としては火山の寄与も大きい。2000年に噴火した三宅島雄山の活動は低下しているものの、桜島では2009年度から爆発回数、降灰量などが増加し、その活動がやや高まった状態となっている⁷⁾。

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⁸⁾。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⁹⁾。

— 参考文献 —

- 1) 気象庁：報道発表資料，<http://www.jma.go.jp/jma/press/tenko.html>, 2010
- 2) 気象庁：[地球環境のデータバンク] 黄砂，http://www.data.kishou.go.jp/obs-env/kosahp/kosa_data_index.html, 2010
- 3) North East Asia Sub-regional Programme for Environment Cooperation (NEASPEC), NEASPEC AND THE ENVIRONMENTAL PROFILES, <http://www.neaspec.org/map.asp>, 2008
- 4) 国家环境保护总局：http://www.zhb.gov.cn/plan/zkgb/2008zkgb/, 2009. など
- 5) H. Tian, J. Hao, Y. Nie: Recent trends of NO_x Emissions from energy use in China, Proceeding of 7th International Conference on Acidic Deposition, 32, 2005
- 6) 環境省：環境統計集，<http://www.env.go.jp/doc/toukei/contents/>, 2009
- 7) 気象庁：火山，<http://www.seisvol.kishou.go.jp/tokyo/volcano.html>, 2010

- 8) 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
- 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、平成21年度のとりまとめについて報告する。

平成21年度の湿性沈着調査に対し、47機関72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)。

また、平成21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、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/ja/database_B2.html) にて公開予定である。

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、全環研酸性雨調査研究部会(以下、全環研)で指定した月区切りに基づいて、完全度(測定期間の適合度を含む)の評価を行った。定義については、既報¹⁾を参照いただきたい。

完全度をもとに、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21年度は、月間データでは855個中33データ(3.9%)、年間データでは72地点中3地点(4.2%)が除外された。除外データは参考値として扱った。なお、装置の故障等により、ある期間常時開放捕集となった地点については、原則としてその期間のデータを参考値扱いとした。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は個々の試料ごと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。また、年間での加重平均値が許容範囲外であった場合は、解析対象から

表 4.1.1 イオンバランス(R₁)および電気伝導率バランス(R₂)の許容範囲

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

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

Λ_{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

Λ_{obs} : 降水試料の電気伝導率測定値

除外した。平成21年度は72地点中6地点(8.3%)が除外された。

完全度および年間の加重平均値がR₁R₂の基準を満たした地点の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822個のデータ中、R₁が許容範囲内にあったデータは760個(適合率92%)であった。同様に、電気伝導率バランス(R₂)による評価では、R₂が許容範囲内にあったデータは773個(適合率94%)であった。R₁およびR₂の分布を図4.1.1に示す。図中の直線の内側は許容範囲内であることを示している。図には、ある機関のデータを●で示した。許容範囲外データ(R₁:62個, R₂:49個)のうち、同機関のデータは、R₁で35個(56%), R₂で35個(71%)を占めており、同機関の分析精度は、R₁,

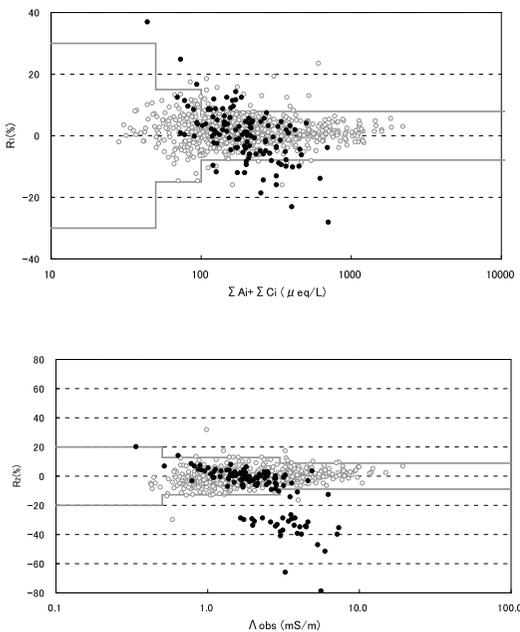


図 4.1.1 イオンバランス(R₁)と総イオン濃度(ΣAi+ΣCi)および電気伝導率バランス(R₂)と実測値との比較

R₂ともに芳しくない状況であった。同機関の測定結果を除外すると、R₁およびR₂の適合率はそれぞれ96%および98%であった。平成15~21年度におけるR₁およびR₂の適合率は、R₁:92~96%, R₂:97~98%の範囲にあり高いレベルで保たれている(1,4,5,6,7,8)。

上記の1機関を除いた702個のデータ中、R₁またはR₂が許容範囲外であったデータは37個(5.3%)であった。許容範囲外データのうち、R₁>0かつR₂<0となったデータがもっとも多く(16個(43%)), 未測定アニオンの存在が示唆された。R₁>0かつR₂>0となったデータが次に多く(13個(35%)), 測定の際にカチオンを過大評価している可能性が示唆された。

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21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)を除き34機関がこの調査に参加した。このうち全環研に湿性沈着の結果を報告している機関(以下、全環研報告機関)は32機関であった。

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。pHについては、H⁺濃度に換算した値を併記した。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)の精度管理目標値(DQOs: Data Quality Objectives, 分析の正確

表 4.1.2 平成20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

	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	NH ₄ ⁺
定量下限値がDQOsを満たしていない機関数	7	6	6	8	5	14	5	2
上記機関のうち、低濃度試料のフラグがついた機関数	0	0	0	2	2	2	1	0
上記機関のうち、高濃度試料のフラグがついた機関数	0	0	0	1	0	1	0	0
定量下限値に係るDQOs(μmol L ⁻¹)	1.0	1.5	1.5	1.0	1.0	0.6	1.0	3.0

DQOs: 精度管理目標値

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ときには、分析精度管理調査結果報告書⁹⁾の方法に従い、平均値から標準偏差の3倍以上はずれている測定値は棄却した。

高濃度試料ではDQOsを満たすデータが97.1%、フラグEまたはフラグXが付いたデータは、それぞれ2.6%および0.3%であった。また、低濃度試料では、DQOsを満たすデータが92.9%、フラグEまたはフラグXが付いたデータは、それぞれ6.8%および0.3%であった。平成20年度⁸⁾に比較して、高濃度および低濃度試料ともに、分析精度の改善がみられた。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、国設局管理機関(20機関)が平成21年度に行った精度管理調査⁹⁾では、高濃度試料ではDQOsを満たすデータが99.5%、フラグEまたはフラグXが付いたデータは、それぞれ0.5%および0.0%であった。低濃度試料では、DQOsを満たすデータが97.0%、フラグEまたはフラグXが付いたデータは、それぞれ3.0%および0.0%であった。

次に、全環研報告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7%以下、低濃度試料ではH⁺を除いて11%以下であった。国設局管理機関が平成21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5%以下、低濃度試料は7%以下で推移していた。

以上の結果から、全環研報告機関と国設局管理機関のフラグの付与率および相対標準偏差を比較すると、全環研報告機関のほうがフラグ付与率および相対標準偏差ともが高かった。年々、分析精度の向上がみられ、おおむね精度よく測定が実施されているが、さらなる改善が望まれる。

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ではフラグ付与数が0であり、バラツキも小さいが、H⁺濃度に換算すると、測定対象成分のうち、もっと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。なお、先述したとおり、R₁またはR₂の許容範囲外データのうち、R₁>0かつR₂>0となったデータが35%を占め、測定の際にカチオンを過大評価している可能性が示唆されたが、カチオンのうちでバラツキのもっとも大きい成分はH⁺であり、pHの分析精度改善は、測定精度全体の改善へつなげるものと考えられる。

続いて、イオン成分の定量下限値とフラグ付与

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

	pH	H ⁺ ¹⁾	EC	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	NH ₄ ⁺	
高濃度試料	フラグE	0	7	0	1	1	0	1	2	1	1	2
	フラグX	0	0	0	0	0	0	0	1	0	0	0
	相対標準偏差 ²⁾	1.1% (n=34)	11.5% (n=34)	3.8% (n=34)	3.5% (n=33)	2.6% (n=32)	3.9% (n=34)	2.4% (n=32)	5.4% (n=32)	6.4% (n=34)	5.5% (n=34)	5.6% (n=34)
低濃度試料	フラグE	0	11	0	1	1	1	6	4	4	5	
	フラグX	0	0	0	0	0	0	1	0	0	0	
	相対標準偏差 ²⁾	1.3% (n=34)	14.8% (n=34)	4.3% (n=34)	3.9% (n=33)	4.1% (n=33)	4.0% (n=33)	4.8% (n=32)	10.6% (n=34)	9.4% (n=34)	8.5% (n=34)	7.4% (n=34)

1) pHより換算した。

2) 相対標準偏差を求めるとき、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した。

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DQOsを満たしていない機関数と、その機関のうち分析精度管理調査でフラグが付与された機関数について表4.1.3に示す。定量下限値がDQOsを満たしていない機関数が多いイオン成分は、 Ca^{2+} (14機関(41%))、 Na^{+} (8機関(24%))、 SO_4^{2-} (7機関(21%))の順であった。DQOsを満たしていない機関のうち、分析精度管理調査の低濃度試料でフラグが付与された機関数は、 Na^{+} 、 K^{+} および Ca^{2+} で2機関、 Mg^{2+} で1機関であり、 SO_4^{2-} 、 NO_3^{-} 、 Cl^{-} および NH_4^{+} ではみられなかった。精度管理調査の低濃度試料における「測定値—設定濃度」の絶対値と、定量下限値の関係について、 Na^{+} および K^{+} の例を図4.1.2に示す。必ずしも、定量下限値>DQOsの場合にフラグが付与されるということではなく、また、フラグが付与されたからといって定量下限値>DQOsであるというこ

とではないが、定量下限値が高い(すなわち、測定値のバラツキが大きい)方が、測定値と設定濃度とのズレが大きい傾向にあった。定量下限値のDQOsを満たすように、イオンクロマトグラフ装置のカラムやサプレッサ等の管理状態を確認・改善することは、測定精度の改善策の一つになると考えられる。

さらなる分析精度向上のためには、日常の実降水試料測定においての R_1 および R_2 の管理だけにとどまらず、酸性雨測定分析精度管理調査を積極的に活用し、配布される模擬酸性雨試料などを「標準参照試料」として利用した日常的な分析精度の管理を実施していくことが望ましいと考える。

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、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⁶⁾。

平成21年度調査において、FB試験は、44地点(全72地点の61%)にて計494回実施された。表4.1.4に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 Cl^{-} および K^{+} で

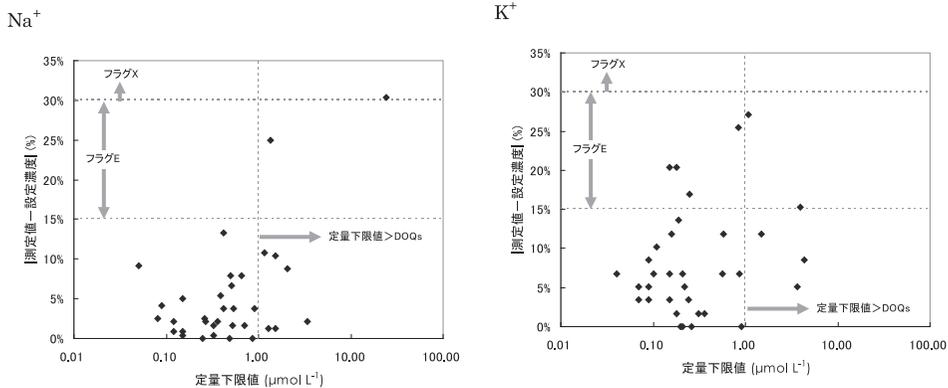


図 4.1.2 定量下限値および測定値—設定濃度の絶対値の関係(Na^{+} および K^{+} の例)

表 4.1.4 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	3	4	23	6	4	23	5	8	4
	割合 (0.6%)	(0.8%)	(4.7%)	(1.2%)	(0.8%)	(4.7%)	(1.0%)	(1.6%)	(0.8%)

n=494

23回(4.7%)と多く、 Mg^{2+} で8回(1.6%)、 NH_4^+ で6回(1.2%)、 Ca^{2+} で5回(1.0%)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。 Cl^- および K^+ で超過数が多いのは、ある機関において、pHを測定した後のFB試料をそのままイオンクロマトグラフにより分析したことが原因である。新任者等については分析操作手順の確認などが望まれる。同機関のデータを除くと、 Cl^- および K^+ の超過数は、それぞれ6回(1.2%)および0回となる。

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が、ごく稀に高濃度のFB試料がみられることがあった。高濃度が検出された際や、鳥の糞、黄砂、虫、植物片、種子などの汚染に気付いた場合においては、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。また、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し、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現場にてチェックをすることが望ましい。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21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、かつ年間の加重平均値が R_1 , R_2 の基準を満たした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

地域ごと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

分類を、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 SO_2 , NO_x および NH_3 排出量をもとに、排出量区分として、L, M, Sの3つに分類した(3.2参照)。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

平成21年度の年間データが有効となった地点(64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21年度の年間降水量は、787(利尻)~2,933mm(伊自良湖)の範囲にあり、単純平均は1,715mmであった。地域別では、日本海側、西部および南西諸島で多く、北部で少ない傾向を示した。

年間平均pHは、4.48(佐賀および阿蘇)~5.30(豊橋)の範囲で、加重平均は4.73であった。 H^+ 濃度としては、加重平均は $18.6\mu mol L^{-1}$ であり、日本海側および西部で高く、南西諸島で低い傾向

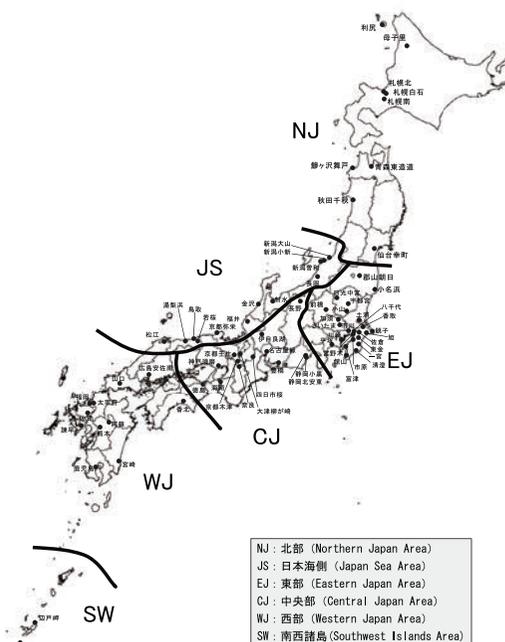


図 4.2.1 地域区分

表 4.2.1 湿性イオン成分等の地点別加重平均濃度

地点名	地域 区分 ¹⁾	排出量区分 ²⁾			降水量 (mm)	pH	EC (mS m ⁻¹)	濃度 (μmol L ⁻¹)										
		SO ₂	NO _x	NH ₃				SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	CF	NH ₄ ⁺	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	H ⁺		
利尻	NJ	M	S	S	787	4.69	4.11	24.5	13.6	15.1	201.2	15.0	179.9	6.1	6.7	2.8	20.1	20.5
母子里	NJ	S	S	M	1455	4.87	2.27	16.7	12.0	16.2	83.3	18.5	78.4	4.4	5.8	4.0	9.4	13.6
札幌北	NJ	L	L	M	945	4.87	2.58	18.8	13.1	14.3	104.0	19.5	93.4	5.3	8.4	6.3	10.7	13.6
札幌白石	NJ	L	L	M	819	4.94	2.22	19.4	15.7	15.2	85.4	17.7	60.7	4.2	9.4	8.0	9.0	11.4
札幌南	NJ	L	L	M	1154	4.78	1.99	16.3	13.5	13.0	62.2	11.5	45.9	4.0	4.7	3.7	6.2	16.7
青森東進道	NJ	M	M	S	1391	4.58	3.70	26.1	16.5	19.3	176.4	20.6	158.2	8.1	10.4	6.9	17.8	26.5
磐分沢舞戸	NJ	S	S	M	1357	4.62	5.41	38.6	23.6	19.2	296.2	19.5	268.7	7.4	12.7	6.7	29.5	24.1
仙台幸町	NJ	L	L	M	1294	4.80	1.63	13.3	11.2	14.6	40.8	14.6	34.2	1.4	3.1	2.3	3.7	15.7
秋田千秋	NJ	L	M	M	1806	4.83	4.00	35.4	24.3	22.5	192.5	23.9	183.7	4.2	11.1	7.0	20.1	14.7
郡山朝日	NJ	M	M	M	988	4.82	1.18	15.4	14.5	18.1	17.8	20.1	14.0	1.1	5.1	4.8	2.1	15.0
小名浜	EJ	L	L	M	1411	4.82	1.41	15.0	13.1	9.9	32.1	13.7	30.7	1.2	2.9	2.2	4.1	15.3
土浦	EJ	M	M	L	1424	5.05	1.17	12.9	11.9	15.7	18.2	22.4	17.7	0.7	3.6	3.3	2.3	9.0
前橋	EJ	M	L	L	976	4.81	2.02	21.1	20.5	45.9	15.8	65.2	10.9	1.3	4.9	4.7	2.4	15.6
宇都宮	EJ	M	L	L	1361	4.65	1.90	19.8	19.0	30.6	17.7	37.4	14.1	1.0	5.6	5.3	2.6	22.1
小山	EJ	M	L	L	1089	4.90	1.63	18.1	17.1	30.6	20.5	43.8	16.1	1.1	7.9	7.5	3.1	12.6
日光中宮	EJ	S	S	S	1743	4.91	0.96	9.7	9.4	10.5	8.7	7.9	6.6	1.4	3.9	3.8	1.9	12.4
加須	EJ	M	L	L	1225	4.73	1.71	17.0	16.2	29.5	17.8	32.6	13.4	1.3	6.5	6.2	2.1	18.7
さいたま	EJ	L	L	L	1300	4.64	1.92	17.1	16.0	27.2	20.2	33.5	17.0	1.0	4.6	4.3	2.3	23.1
市川	EJ	L	L	L	(1033)	(4.81)	(1.76)	(12.0)	(11.6)	(10.3)	(15.8)	(16.5)	(6.4)	(2.9)	(5.8)	(5.7)	(3.9)	(15.5)
市原	EJ	L	L	L	1374	5.00	1.80	19.9	18.6	12.3	41.9	24.8	21.5	2.9	9.5	9.0	6.7	10.0
富津	EJ	L	L	M	1765	4.84	1.59	11.7	10.6	8.8	37.4	14.5	19.2	2.5	5.9	5.5	5.1	14.4
香取	EJ	L	L	L	(1326)	(4.96)	(2.1)	(15.6)	(13.8)	(10.0)	(54.9)	(20.6)	(29.6)	(4.3)	(6.9)	(6.2)	(6.3)	(10.9)
銚子	EJ	L	M	L	1765	5.22	2.39	15.1	11.3	9.2	100.7	21.5	62.2	4.8	7.4	6.0	9.3	6.0
東金	EJ	S	M	M	1242	4.87	1.54	10.9	9.9	8.3	33.9	12.2	16.4	2.4	5.8	5.5	4.9	13.6
一宮	EJ	S	M	M	1421	4.89	2.21	12.9	9.4	6.9	93.0	12.9	56.9	3.0	6.3	5.0	8.0	13.0
館山	EJ	L	L	M	1235	4.96	1.53	10.1	8.8	6.5	42.4	12.1	22.2	3.2	6.0	5.5	5.3	11.0
旭	EJ	L	M	L	(2001)	(5.68)	(3.08)	(14.1)	(9.8)	(10.1)	(109.4)	(51.2)	(69.8)	(3.7)	(5.2)	(3.6)	(7.1)	(2.1)
佐倉	EJ	M	L	L	(1812)	(4.75)	(2.50)	(14.2)	(13.3)	(13.6)	(27.5)	(22.0)	(14.2)	(2.1)	(5.9)	(5.6)	(4.9)	(17.7)
八千代	EJ	L	L	L	(1524)	(4.81)	(2.28)	(16.8)	(15.8)	(15.4)	(34.1)	(27.7)	(18.0)	(2.1)	(7.5)	(7.1)	(5.4)	(15.5)
清澄	EJ	S	S	M	(2385)	(5.40)	(3.07)	(28.1)	(23.9)	(13.4)	(105.4)	(17.4)	(69.7)	(3.8)	(9.0)	(7.5)	(10.8)	(3.9)
宮野木	EJ	L	L	L	1701	4.76	1.42	15.5	14.0	14.0	30.2	17.0	24.2	2.7	6.1	5.5	4.8	17.2
川崎	EJ	L	L	L	1960	4.82	1.69	19.3	17.4	17.7	35.9	29.0	31.5	1.0	5.6	4.9	3.9	15.1
平塚	EJ	M	L	L	1516	4.70	1.76	15.2	13.2	18.3	39.1	19.9	33.1	1.6	4.1	3.4	3.6	19.9
新潟大山	JS	M	L	M	1842	4.81	3.94	28.7	18.5	18.5	185.4	24.8	168.3	4.2	9.9	6.2	18.9	15.4
新潟小新	JS	M	M	M	1829	4.69	4.12	26.9	16.3	18.8	193.6	17.2	175.0	4.2	8.4	4.5	19.6	20.2
新潟曾和	JS	M	M	M	1773	4.65	3.97	26.7	16.8	19.3	183.6	15.7	163.1	4.2	9.0	5.4	19.0	22.5
長岡	JS	M	M	M	2225	4.70	4.11	28.7	18.2	21.4	194.6	19.3	172.1	4.6	9.7	5.8	20.2	19.9
射水	JS	L	L	M	2612	4.70	3.03	19.0	12.8	17.3	114.6	15.1	102.2	2.7	7.5	5.2	11.1	20.1
金沢	JS	M	M	M	2552	4.58	3.54	23.2	16.6	17.7	118.7	16.2	109.1	3.3	8.7	6.3	12.2	26.6
福井	JS	M	M	M	2294	4.55	3.75	26.4	18.8	23.3	141.1	19.6	125.9	3.3	10.9	8.1	15.0	28.3
長野	CJ	M	M	M	988	4.78	1.18	10.5	10.2	12.7	10.9	11.7	5.7	0.7	5.3	5.2	1.4	16.6
伊自良湖	CJ	M	M	M	2933	4.65	1.70	15.1	14.1	19.1	20.0	17.6	16.5	0.7	3.3	2.9	2.1	22.5
静岡北安東	CJ	M	L	M	2645	4.73	1.60	11.7	9.7	13.8	42.3	8.3	33.0	1.0	4.4	3.7	3.9	18.5
静岡小黒	CJ	M	L	M	2640	4.82	1.54	13.8	11.3	14.6	44.7	9.4	41.0	1.6	4.4	3.5	5.1	15.3
名古屋緑	CJ	L	L	L	1786	4.93	1.09	10.9	10.3	13.6	15.0	16.2	13.2	1.1	2.7	2.5	1.4	12.0
豊橋	CJ	M	L	L	1880	5.30	1.36	11.1	8.5	11.6	50.3	12.9	43.2	1.1	9.9	8.9	5.3	5.1
四日市桜	CJ	M	L	M	2136	4.51	1.97	18.3	17.2	21.7	20.9	26.5	17.6	1.0	3.4	3.0	2.4	30.6
大津柳が崎	CJ	M	L	M	1485	4.78	1.34	11.2	10.8	16.7	9.1	16.0	7.7	0.9	2.6	2.5	1.0	16.6
京都壬生	CJ	M	L	M	(837)	(4.69)	(1.40)	(13.1)	(12.5)	(16.9)	(18.2)	(17.6)	(11.0)	(1.2)	(5.7)	(5.4)	(3.5)	(20.5)
京都木津	CJ	M	L	M	1192	4.75	1.22	11.4	11.1	15.3	8.7	13.5	6.4	1.2	3.5	3.4	1.5	17.9
京都叡生	JS	S	S	S	2369	4.62	4.27	27.2	16.3	20.2	208.8	14.6	179.0	4.7	7.1	3.1	20.4	24.0
神戸須磨	CJ	L	L	M	1304	4.70	1.77	17.5	16.0	17.5	26.8	17.5	24.3	1.1	6.3	5.8	2.8	19.8
奈良	CJ	M	L	M	1338	4.83	1.20	9.6	9.2	14.5	8.8	11.4	5.6	0.5	4.1	4.0	1.1	14.9
海南	CJ	L	L	M	1635	4.85	1.15	9.3	8.1	9.9	22.4	7.8	19.9	1.0	2.9	2.5	2.2	14.0
鳥取	JS	S	M	M	1691	4.71	3.96	31.7	21.1	25.8	196.0	23.2	176.1	5.9	9.6	5.7	18.5	19.7
若桜	JS	S	S	S	2150	4.74	1.96	18.9	16.0	19.9	54.9	14.9	47.6	2.3	5.9	4.8	5.9	18.1
湯梨浜	JS	S	S	M	1827	4.65	3.80	29.3	19.2	22.0	187.7	20.5	165.9	4.8	8.1	4.4	17.6	22.5
松江	JS	S	M	M	1912	4.60	3.80	27.8	19.7	26.6	151.6	23.3	133.7	3.9	8.6	5.6	16.1	25.2
広島安佐南	WJ	M	L	M	1689	4.56	1.78	18.1	17.1	19.0	19.4	17.5	17.6	1.5	4.0	3.6	2.1	27.4
山口	WJ	M	M	M	2063	4.72	1.67	16.4	14.7	16.7	25.3	13.6	27.8	1.6	4.4	3.7	3.1	18.9
香北	WJ	S	S	S	2220	4.81	1.09	10.8	10.2	6.6	15.8	6.8	11.2	0.9	1.5	1.3	1.4	15.7
徳島	CJ	M	M	M	1541	4.74	1.37	11.4	10.3	12.7	21.9	13.0	17.7	1.3	2.9	2.5	1.9	18.2
太宰府	WJ	M	L	M	2127	4.69	1.51	15.2	13.9	15.8	24.1	13.4	21.2	2.2	5.9	5.4	2.4	20.4
福岡	WJ	M	L	M	2313	4.57	2.43	18.3	15.1	17.0	60.8	17.4	53.5	1.8	3.4	2.2	6.3	26.8
佐賀	WJ	M	M	M	1546	4.48	2.11	19.9	18.5	19.9	33.9	29.3	23.9	1.6	5.1	4.6	3.3	33.1
諫早	WJ	L	M	M	1994	4.68	1.65	16.7	14.9	15.9	31.9	17.4	29.7	1.1	4.3	3.6	3.8	20.8
阿蘇	WJ	S	S	M	2391	4.48	1.79	17.9	17.2	13.1	22.3	18.9	12.9	2.5	3.9	3.6	2.1	33.4
熊本	WJ	M	M	L	1578	4.72	1.40	16.1	15.4	14.9	15.0	17.9	10.5	1.2	2.7	2.5	1.6	18.9
宮崎	WJ	S	M	L	2386	4.74	1.59	14.4	12.3	11.7	40.1	13.6	34.0	1.3	2.9	2.1	4.1	18.3
鹿児島	WJ	M	M	M	(986)	(4.60)	(2.53)	(30.4)	(28.0)	(9.9)	(56.8)	(14.8)	(39.4)	(1.5)	(15.0)	(14.1)	(5.1)	(25.1)
大里	SW	L	M	M	2171	5.02	1.78	12.0	7.8	7.4	76.9	11.9	68.3	2.0	3.4	1.9	8.0	9.6
辺戸岬	SW	S	S	S	2188	5.01	2.41	13.8	7.3	8.0	121.4	8.9	108.0	3.1	4.2	1.8	12.6	9.9
最低値					787	4.48	0.96	9.3	7.3	6.5	8.7	6.8	5.6	0.5	1.5	1.3	1.0	5.1
最高値					2933	5.30	5.41	38.6	24.3	45.9	296.2	65.2	268.7	8.1	12.7	9.0	29.5	33.4
加重平均値 ^{**}					1715	4.73	2.25	18.1	14.3	16.6	73.7	17.9	63.4	2.5	5.9	4.4	7.7	18.6

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)

^{**}降水量は、合計値

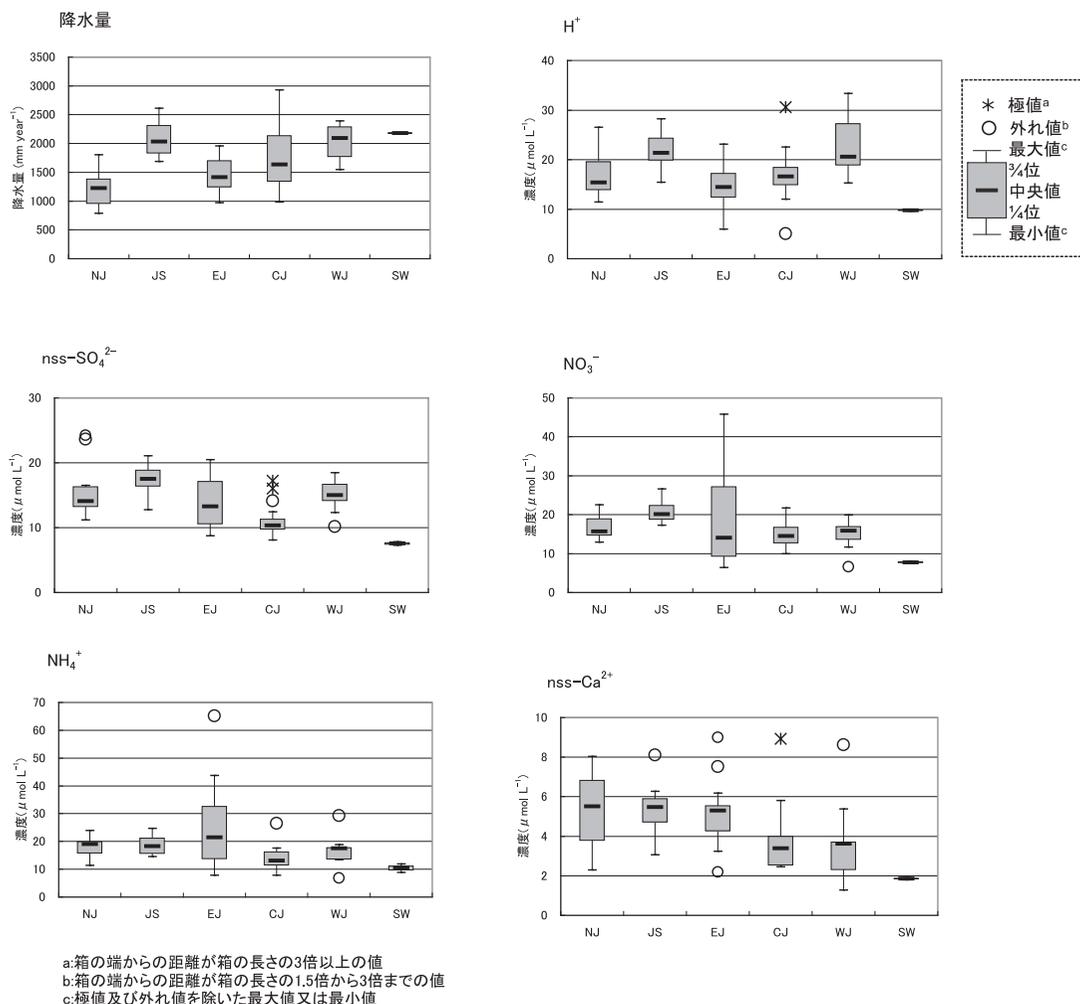


図 4.2.2 降水量および主要イオン成分の年加重平均濃度の分布

がみられた。

年間平均電気伝導率は、0.96(日光中宮)~5.41 mS m⁻¹(鯨ヶ沢舞戸)の範囲で、加重平均は2.25 mS m⁻¹であった。

海塩粒子からの寄与を示す成分として大気ではNa⁺が用いられる。年間平均Na⁺濃度では、5.6(奈良)~268.7μmol L⁻¹(鯨ヶ沢舞戸)の範囲で、加重平均は63.4μmol 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、7.3(辺戸岬)~24.3 μmol L⁻¹(秋田千秋)の範囲で、加重平均は14.3 μmol L⁻¹であった。地域別では、日本海側、西部および北部で高く、南西諸島で低い傾向を示した。

年間平均 NO₃⁻濃度は、6.5(館山)~45.9μmol L⁻¹(前橋)の範囲で、加重平均は16.6μmol L⁻¹であった。地域別では、日本海側、北部および中部で高く、南西諸島で低い傾向を示した。また、東部の内陸部に高濃度を示す地点が多くみられた。

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 NH_4^+ 濃度は、6.8(香北)~65.2 $\mu\text{mol L}^{-1}$ (前橋)の範囲で、加重平均は17.9 $\mu\text{mol L}^{-1}$ 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-Ca^{2+} 濃度は、1.3(香北)~9.0 $\mu\text{mol L}^{-1}$ (市原)の範囲で、加重平均は4.4 $\mu\text{mol L}^{-1}$ であった。地域別では、北部、日本海側および西部で高く、南西諸島で低い傾向を示した。

4.2.3 イオン成分濃度と SO_2 、 NO_x 、 NH_3 排出量との関係

国内における人為発生源由来の SO_2 、 NO_x および NH_3 排出量と降水中の nss-SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+ 濃度との相関を図 4.2.3 に示す。

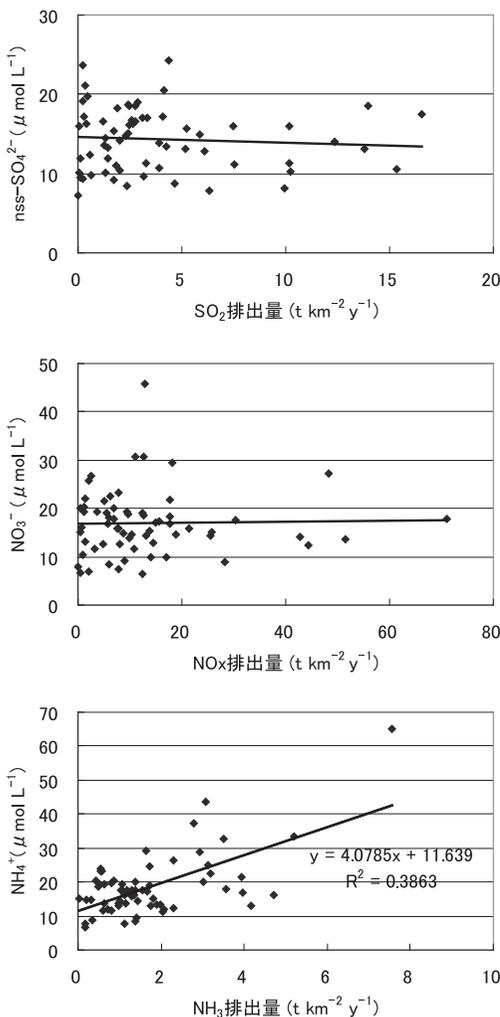


図 4.2.3 イオン成分濃度と SO_2 、 NO_x 、 NH_3 排出量との関係

SO_2 排出量と nss-SO_4^{2-} 濃度、 NO_x 排出量と NO_3^- 濃度との間には相関が見られなかったが、 NH_3 排出量の大きい地域においては NH_4^+ 濃度が高い傾向が見られた($r=0.621$, $n=64$, $p<0.05$)。このことから、 NH_4^+ は nss-SO_4^{2-} や NO_3^- と比較して、近隣の発生源による影響を受けやすいことが示唆される。

平成21年度は、桜島の噴火回数が観測史上最多を計測する等活動が活発な年であったため、大気への SO_2 の放出量が例年よりも多かったと考えられるが、全調査地点で見ると、 nss-SO_4^{2-} 濃度と桜島との距離との間には有意な相関が見られなかった。ただ、桜島と約10kmの距離にある鹿児島は今回参考値として扱っているが、前年度よりも nss-SO_4^{2-} 濃度が高くなっていったことから、影響を完全には否定できない。桜島については、平成22年度も活発な活動が観測されていることから、今後もその影響について注視する必要がある。

4.2.4 nss-SO_4^{2-} 濃度と緯度経度との関係

大陸に近い地点ほど、大気中の粒子状 SO_4^{2-} 濃度が高くなることが報告されていることから¹⁰⁾、湿性沈着においても同様の傾向を示すかどうかを確認するため、 nss-SO_4^{2-} 濃度と緯度経度との関係について解析を行った。その結果を図 4.2.4 に示す。

nss-SO_4^{2-} 濃度と経度との関係について、年間データにおいては、乾性沈着の結果とは異なり相関が見られなかったが、冬季には西側に位置する地点ほど濃度が高い傾向が見られた。

nss-SO_4^{2-} 濃度と緯度との関係について、高緯度の地域においては暖房使用等により冬季の nss-SO_4^{2-} 濃度が高くなると考えられたが、春季および夏季は高緯度地域の方が低緯度地域よりも nss-SO_4^{2-} 濃度が高い傾向が見られたものの、秋季および冬季においては緯度と nss-SO_4^{2-} 濃度との相関は見られなかった。これらの結果から、 nss-SO_4^{2-} は近隣の発生源による影響よりも、大陸からの越境汚染等による影響を受けている可能性が示唆される。

4.2.5 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21年度の季節変動

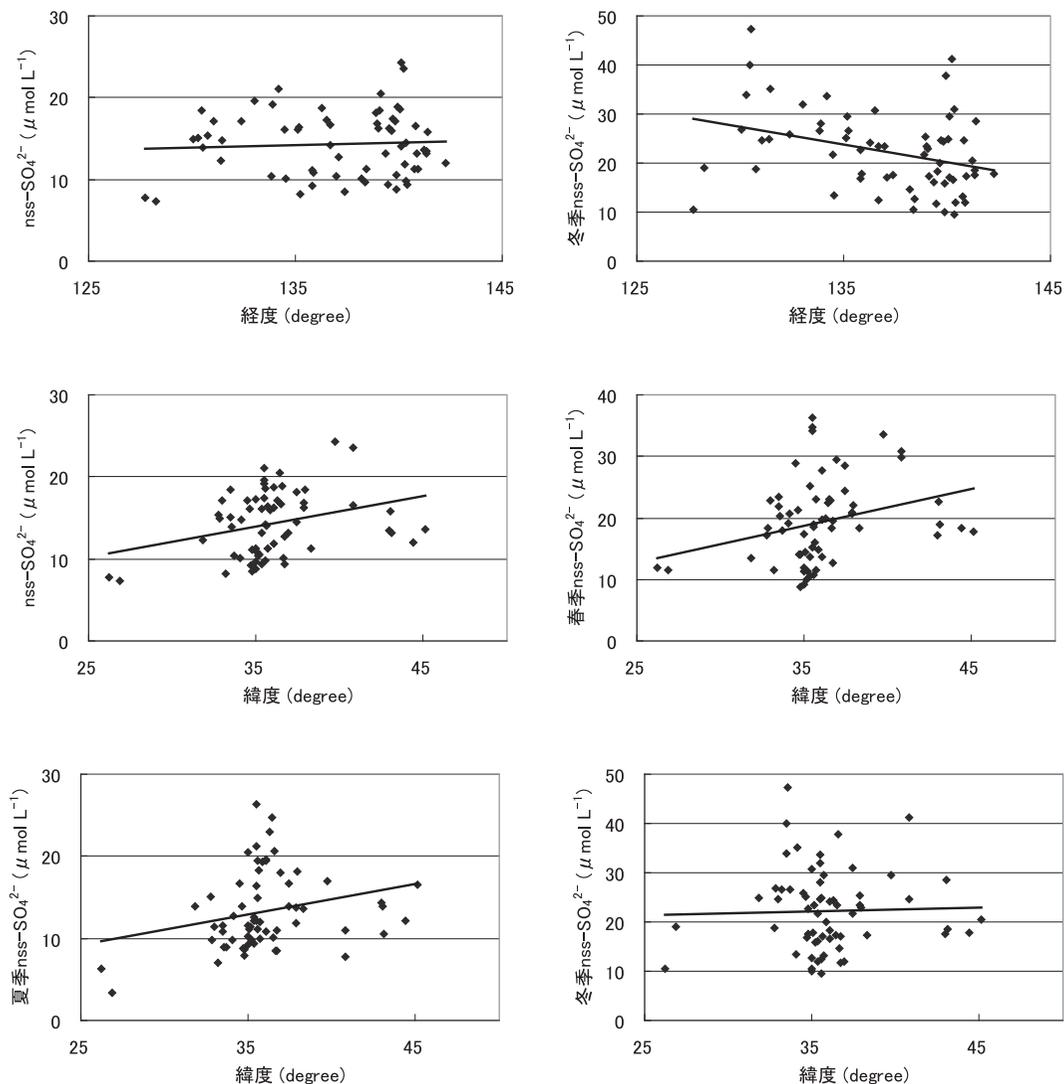


図 4.2.4 nss-SO_4^{2-} 濃度と緯度経度との関係

を地域区別に図 4.2.5 に示す。地域区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えられたためである。

降水量は、東部・中央部・西部において、夏季に多く、冬季に少ない傾向を示した。北部と南西諸島では、秋季に多く、春季に少ない傾向を示した。日本海側では、冬季に多く、春季に少ない傾向を示した。

H^+ 濃度は、西部で、冬季に高くなる傾向が顕

著であった。日本海側でも、冬季に高濃度であった。東部では、夏季に高い傾向が見られた。中央部では、9月および1月にピークを持つ二山型の変動を示した。

nss-SO_4^{2-} 、 NO_3^- および NH_4^+ 濃度は、 H^+ 濃度の地域別季節変動パターンと比較的類似した傾向を示し、西部では冬季に高濃度となる傾向が見られたが、東部では夏季と冬季に高濃度となる傾向が見られた。

nss-Ca^{2+} 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。

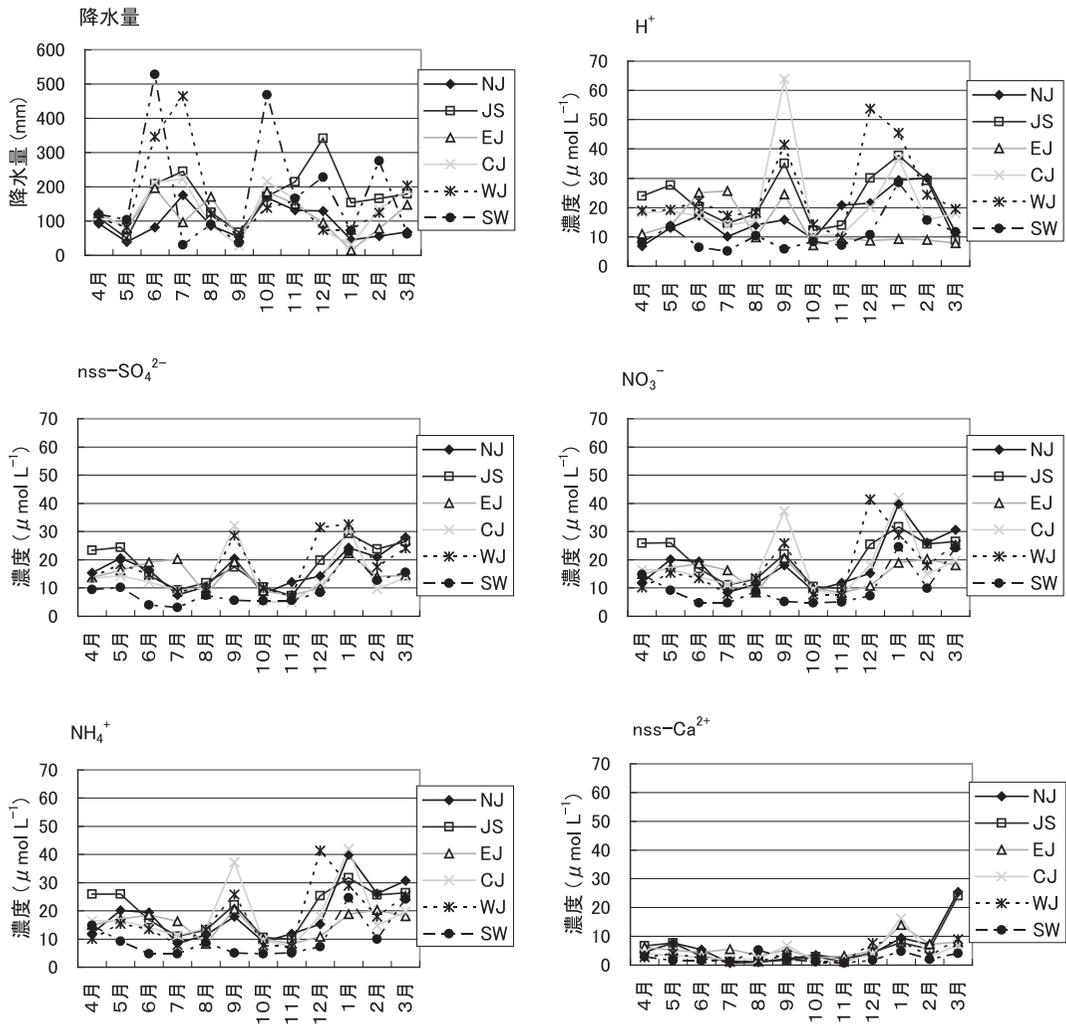


図 4.2.5 イオン成分濃度の地域別季節変動(中央値)

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、 $nss-SO_4^{2-}$ 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19～21年度も引き続き同様の傾向がみられた。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21年度の年間データが有効となった地点(64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。

表 4.3.1 降水量と主要イオン成分の年間沈着量

(単位)		H21年度	
降水量	(mm y ⁻¹)	1,696	787 (利尻) 2,933 (伊自良湖)
nss-SO ₄ ²⁻	(mmol m ⁻² y ⁻¹)	22.8	10.0 (長野) 43.8 (秋田千秋)
NO ₃ ⁻	(%)	27.3	8.0 (館山) 55.9 (伊自良湖)
NH ₄ ⁺	(%)	28.7	11.6 (長野) 63.7 (前橋)
nss-Ca ²⁺	(%)	7.2	2.2 (利尻) 18.6 (福井)
H ⁺	(%)	28.8	9.4 (札幌白石) 79.8 (阿蘇)

※数値は、中央値 最小値(地点名) 最大値(地点名) を示す。

nss-SO₄²⁻沈着量は日本海側、次いで西部で多い傾向を示した。

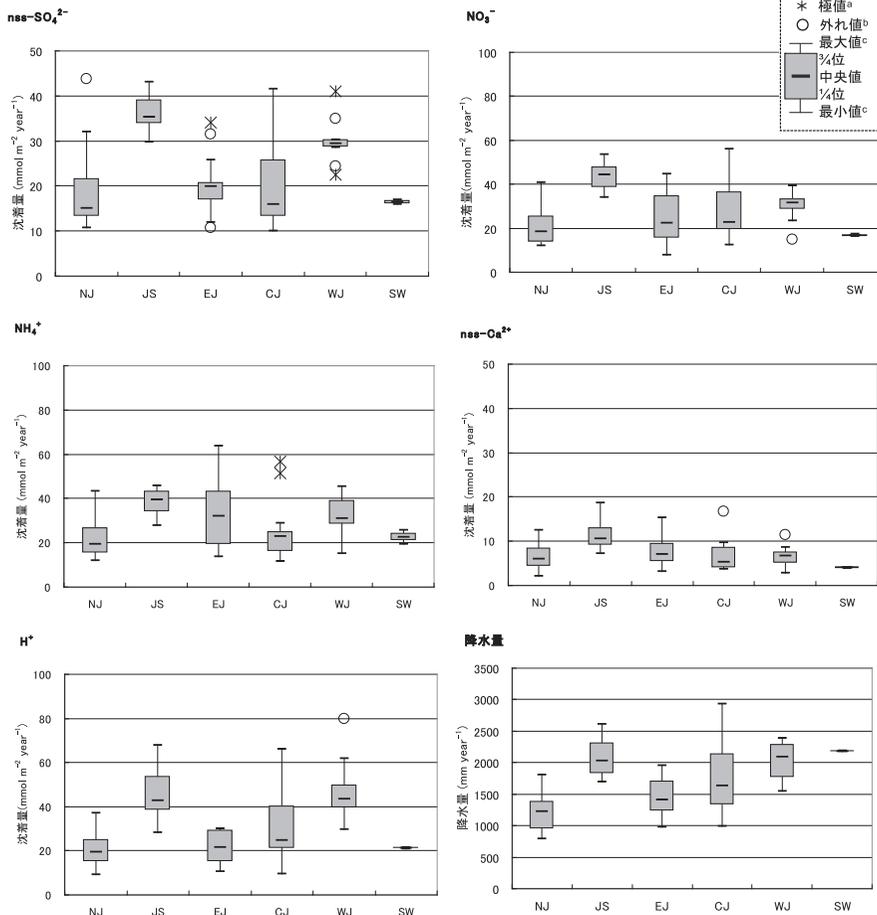
NO₃⁻沈着量は日本海側、次いで東部、中央部および西部で多く、北部および南西諸島では少ない傾向を示した。

NH₄⁺沈着量は日本海側、次いで東部および西部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、日本海側で多い傾向を示した。

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。

また、外れ値や極値はnss-SO₄²⁻沈着量に多く、局地的な要因またはその他の要因が示唆された。

次に、NH₄⁺の土壌や湖沼への影響を考慮した



- 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 4.3.1 主要イオン成分年間沈着量および降水量の分布

沈着量について検討した。 NH_4^+ は降水の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もたらす。また窒素成分は、閉鎖系水域に負荷されると富栄養化の原因ともなり、近年では森林などに対しても窒素負荷過剰の悪影響が懸

念されている。潜在水素イオン($\text{H}_{\text{eff}} = \text{H}^+ + 2\text{NH}_4^+$)は土壌の酸性化の、全無機態窒素($\Sigma\text{N} = \text{NO}_3^- + \text{NH}_4^+$)は湖沼の富栄養化の指標として¹¹⁾、また窒素負荷過剰の指標としても用いられている¹²⁾。 H_{eff} および ΣN の年間沈着量について、地

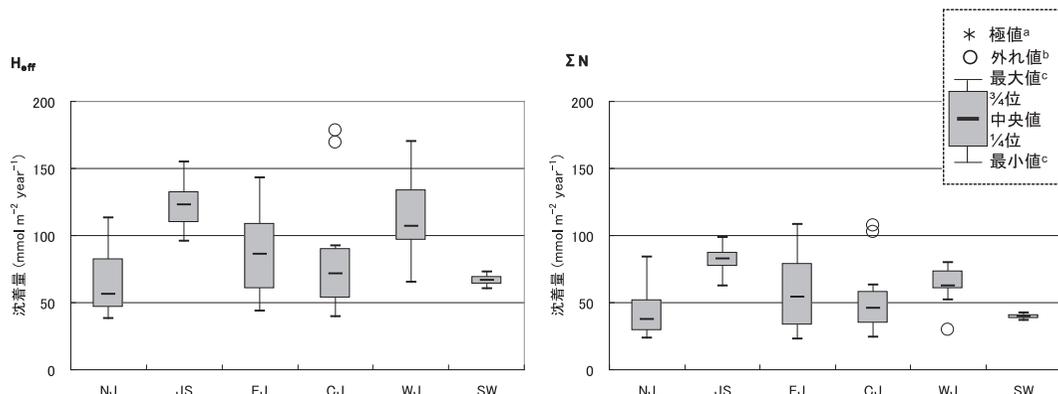


図 4.3.2 H_{eff} および ΣN の年間沈着量の分布

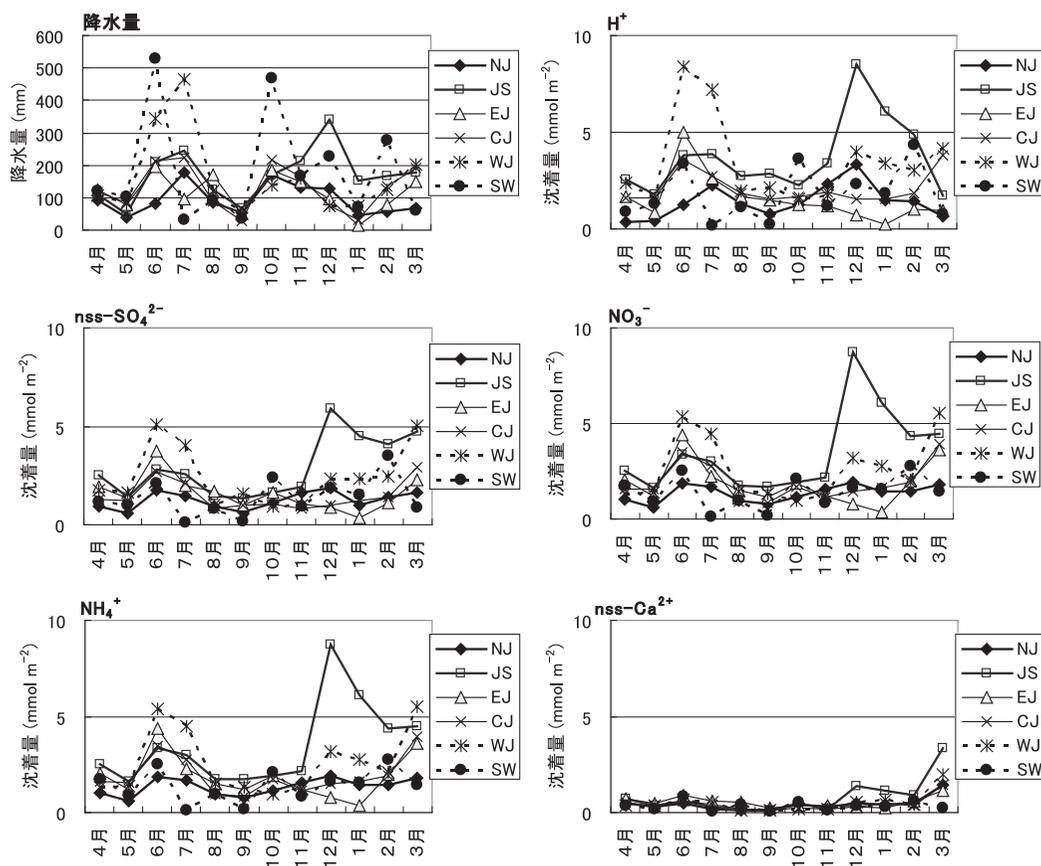


図 4.3.3 イオン成分沈着量の地域別季節変動(中央値)

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、日本海側および西部で多く、次いで東部で多い傾向にあった。また、中央部では、 H_{eff} および ΣN とともに、同じ 2 地点が沈着量の多い外れ値となった。

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。4.2.5 と同様に、月間代表値としては中央値を採用した。

H^+ 沈着量は、日本海側では冬季に多い傾向が、西部では梅雨期に多い傾向が顕著であった。東部では、6 月に多く、冬季に少ない傾向を示した。

$nss-SO_4^{2-}$ 、 NO_3^- および NH_4^+ の沈着量は、 H^+ 沈着量に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中でも 12 月に多い傾向が顕著であった。一方、西部では 6 月、7 月、3 月に、東部では 6 月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。

$nss-Ca^{2+}$ 沈着量は、日本海側で 3 月に多い傾向を示したが、全体的には $nss-SO_4^{2-}$ 、 NO_3^- および NH_4^+ 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，32，78-152，2007
- 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) 全国環境研協議会：第 4 次酸性雨全国調査報告書(平成 15 年度)，全国環境研会誌，30，58-135，2005
- 5) 全国環境研協議会：第 4 次酸性雨全国調査報告書(平成 16 年度)，全国環境研会誌，31，118-186，2006
- 6) 全国環境研協議会：第 4 次酸性雨全国調査報告書(平成 18 年度)，全国環境研会誌，33，126-196，2008
- 7) 全国環境研協議会：第 4 次酸性雨全国調査報告書(平成 19 年度)，全国環境研会誌，34，193-223，2009
- 8) 全国環境研協議会：第 4 次酸性雨全国調査報告書(平成 20 年度)，全国環境研会誌，35，88-138，2010
- 9) 酸性雨研究センター：平成 21 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)，2010
- 10) 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
- 11) 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
- 12) 伊豆田猛：酸性降下物と植物，伊豆田猛(編著)，植物と環境ストレス，p.43-87，コロナ社，2006

5. 乾性沈着(フィルターバック法)

平成 21 年度のフィルターバック法(以下，FP 法)による乾性沈着調査は全国 32 地点で実施された。調査地点を図 5.1.1 に示す。

年平均濃度等を表 5.2.1～表 5.2.3 に示す。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一部含まれている。ただし、データ確定は部会基準(5.1 に後述)で行ったため、国設データについては環境省公表データと異なる場合

表 5.1.1 フィルターバック法による調査結果の有効データ数

成分	地点数	月平均濃度						年平均濃度					
		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(%)	欠測数	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	32	28	356	13	343	42	96	0	32	5	27	2	84
SO ₂	32	28	356	13	343	1	96	0	32	5	27	0	84
HCl	32	28	356	15	341	6	96	0	32	5	27	0	84
NH ₃	32	40	344	14	330	0	96	1	31	5	26	0	84
SO ₄ ²⁻	32	28	356	14	342	0	96	0	32	5	27	0	84
NO ₃ ⁻	32	28	356	14	342	0	96	0	32	5	27	0	84
Cl ⁻	32	28	356	13	343	5	96	0	32	5	27	0	84
Na ⁺	32	28	356	14	342	0	96	0	32	5	27	0	84
K ⁺	32	28	356	14	342	0	96	0	32	5	27	0	84
Ca ²⁺	32	28	356	14	342	0	96	0	32	5	27	0	84
Mg ²⁺	32	28	356	14	342	0	96	0	32	5	27	0	84
NH ₄ ⁺	32	40	344	14	330	0	96	1	31	5	26	0	84

データが多く見られた。なお、以下ガス成分は(g)と、粒子成分は(p)と表記する。

5.1.3 非海塩成分の算出

SO₄²⁻(p)およびCa²⁺(p)については、試料中のNa⁺(p)濃度と海水中でのモル濃度比を用いて、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³⁾。

$$\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p}) = \text{SO}_4^{2-}(\text{p}) - 0.060 \times \text{Na}^+(\text{p})$$

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

5.1.4 ガス・粒子間反応の測定結果への影響

大気中では、ガスと粒子の間でさまざまな物理的・化学的解離平衡反応が生じるが、これは大気中だけでなくサンプリング中にフィルター上でも起こりえる。そこで、前年度¹⁾と同様に、平衡関係にあると考えられるガスと粒子については、全硝酸(HNO₃(g)+NO₃⁻(p))や全アンモニア(NH₃(g)+NH₄⁺(p))のようにガスと粒子の総計での評価も行った。

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

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。

(1) ガス状成分

SO₂(g)の年平均濃度の範囲は10.6~113.5nmol m⁻³(平均値36.7nmol m⁻³)であり、最高値は鹿児島、次いで神戸須磨、最低値は旭であった。SO₂(g)濃度は火山に近い地域や都市部などで高い傾向が見られた。

HNO₃(g)の年平均濃度の範囲は2.2~34.5nmol m⁻³(平均値16.0nmol m⁻³)であり、最高値は太宰府、次いで加須、最低値は旭であった。HNO₃(g)濃度は都市部で高い傾向が見られた。

HCl(g)の年平均濃度の範囲は6.4~38.5nmol m⁻³(平均値22.4nmol m⁻³)であり、最高値は鹿児島、次いで辺戸岬、最低値は母子里であった。鹿児島は火山ガスの影響を受けていることが考えられた。

NH₃(g)の年平均濃度の範囲は15.2~393.8nmol m⁻³(平均値121.0nmol m⁻³)であり、最高値は前橋、次いで大里、最低値は利尻であった。NH₃(g)は畜産業の影響を受けていると考えられるところや都市部で高い傾向が見られた。

(2) 粒子状成分

SO₄²⁻(p)の年平均濃度の範囲は19.6~80.4nmol m⁻³(平均値46.3nmol m⁻³)、nss-SO₄²⁻(p)は18.5~76.8nmol m⁻³(平均値43.0nmol m⁻³)であり、最高値は太宰府、次いで鹿児島、最低値は母子里であった。nss-SO₄²⁻(p)濃度は西日本で高い傾向が見られた。

NO₃⁻(p)の年平均濃度の範囲は5.7~68.6nmol m⁻³(平均値32.5nmol m⁻³)であり、最高値は市原、次いで前橋、最低値は伊自良湖であった。NO₃⁻(p)濃度は、都市部で高い傾向が見られた。

Cl⁻(p)の年平均濃度の範囲は1.4~184.1nmol m⁻³(平均値41.4nmol m⁻³)であり、最高値は旭、

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	11.4	3.0	20.1	15.2
2	北海道	母子里	13.7	2.5	6.4	34.4
3	北海道	札幌北	57.5	6.9	13.2	57.1
4	札幌市	札幌白石	64.8	8.0	13.1	59.9
5	新潟県	新潟曾和	16.2	12.9	25.8	77.2
6	新潟県	長岡	20.8	17.8	17.7	97.9
7	新潟市	新潟小新	(37.1)	(15.5)	(26.6)	(102.8)
8	群馬県	前橋	23.7	17.9	16.6	393.8
9	埼玉県	加須	34.1	33.7	29.5	195.8
10	千葉県	市原	67.9	11.1	26.6	94.8
11	千葉県	旭	10.6	2.2	6.8	—
12	千葉県	佐倉	27.0	15.6	31.7	100.9
13	長野県	長野	20.4	17.4	11.6	90.6
14	静岡県	静岡北安東	37.5	27.6	25.4	111.6
15	富山県	射水	(13.4)	(6.0)	(11.6)	(57.3)
16	石川県	金沢	20.1	7.3	11.4	22.6
17	福井県	福井	51.1	24.2	37.8	95.6
18	岐阜県	伊自良湖	14.0	12.6	7.4	41.5
19	愛知県	豊橋	42.5	25.5	27.4	211.4
20	名古屋市	名古屋緑	32.3	22.3	21.9	143.3
21	大阪府	大阪	49.0	27.5	29.2	165.8
22	和歌山県	海南	53.6	22.0	26.8	101.7
23	兵庫県	神戸須磨	74.7	29.5	32.0	108.0
24	鳥取県	湯梨浜町	(16.7)	(7.8)	(25.6)	(56.0)
25	山口県	山口	28.5	18.8	19.0	70.0
26	高知県	香北	16.8	7.6	9.0	94.2
27	福岡県	太宰府	58.5	34.5	33.5	209.9
28	佐賀県	佐賀	(30.5)	(9.1)	(12.9)	(144.7)
29	宮崎県	宮崎	(76.2)	(10.2)	(25.2)	(111.2)
30	鹿児島県	鹿児島	113.5	14.7	38.5	144.2
31	沖縄県	沖縄大里	17.7	4.1	28.6	356.4
32	沖縄県	沖縄辺戸岬	13.0	3.7	38.5	51.7
		全国最低値	10.6	2.2	6.4	15.2
		全国最高値	113.5	34.5	38.5	393.8
		全国中央値	28.5	15.6	25.4	96.7
		全国平均値	36.7	16.0	22.4	121.0

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)定量下限以下の値はN. D. で示した。

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	SO ₂ ²⁻ (p)	nss-SO ₄ ²⁻ (p)	NO ₃ ⁻ (p)	Cl ⁻ (p)	Na ⁺ (p)	K ⁺ (p)	Ca ²⁺ (p)	nss-Ca ²⁺ (p)	Mg ²⁺ (p)	NH ₄ ⁺ (p)
			(nmol・m ⁻³)									
1	北海道	利尻	28.8	23.3	11.4	76.9	91.3	4.0	4.3	2.3	10.7	27.8
2	北海道	母子里	19.6	18.5	7.0	10.8	17.8	2.4	1.9	1.5	2.2	34.6
3	北海道	札幌北	31.0	28.7	20.4	27.1	36.7	3.3	7.8	6.9	3.9	58.3
4	札幌市	札幌白石	30.4	28.6	22.9	28.3	29.6	3.2	6.7	6.1	4.3	56.1
5	新潟県	新潟曾和	40.1	36.6	24.0	34.8	58.1	3.6	6.0	4.7	6.7	54.2
6	新潟県	長岡	42.6	40.5	26.7	19.7	34.4	3.8	9.5	8.8	4.5	67.9
7	新潟市	新潟小新	(23.9)	(19.2)	(16.1)	(69.1)	(77.4)	(2.9)	(3.5)	(1.8)	(8.4)	(30.3)
8	群馬県	前橋	34.3	33.2	62.0	15.6	17.6	4.8	12.0	11.6	3.8	100.8
9	埼玉県	加須	34.4	33.1	49.8	15.1	22.4	3.8	8.4	7.9	3.3	86.4
10	千葉県	市原	61.1	55.5	68.6	109.1	92.2	15.6	31.9	29.9	12.7	91.2
11	千葉県	旭	50.2	40.3	57.2	184.1	164.2	12.7	16.3	12.6	15.4	-
12	千葉県	佐倉	50.1	46.7	47.3	41.9	55.3	8.4	12.4	11.1	7.0	73.8
13	長野県	長野	35.4	34.7	18.1	3.4	10.9	3.2	4.8	4.6	1.6	62.9
14	静岡県	静岡北安東	52.5	50.2	33.5	12.4	37.2	4.8	10.7	9.8	4.3	75.6
15	富山県	射水	(37.5)	(35.4)	(23.8)	(27.4)	(35.8)	(3.9)	(6.7)	(5.9)	(4.8)	(70.8)
16	石川県	金沢	35.8	33.8	12.8	15.7	32.5	3.9	6.0	5.3	4.3	48.3
17	福井県	福井	61.2	57.5	29.7	42.9	61.3	6.4	14.0	12.6	8.0	90.2
18	岐阜県	伊自良湖	40.7	40.1	5.7	1.4	9.7	3.1	3.1	2.9	1.4	60.1
19	愛知県	豊橋	50.2	47.4	47.7	23.6	45.5	4.4	11.3	10.3	6.1	97.1
20	名古屋市	名古屋緑	34.3	32.9	31.3	7.1	21.6	5.0	7.8	7.3	2.5	77.2
21	大阪府	大阪	45.5	43.4	40.9	19.5	34.5	4.1	13.4	12.6	4.5	102.0
22	和歌山県	海南	53.5	51.4	30.3	11.9	34.9	4.1	8.9	8.2	4.6	81.4
23	兵庫県	神戸須磨	46.2	43.9	45.0	24.0	37.1	3.3	8.3	7.5	3.7	78.7
24	鳥取県	湯梨浜町	(48.7)	(45.7)	(22.1)	(34.6)	(49.2)	(3.6)	(8.5)	(7.4)	(5.7)	(100.8)
25	山口県	山口	53.4	51.8	23.3	10.6	26.3	4.2	7.6	7.0	3.1	95.2
26	高知県	香北	47.1	46.3	8.2	2.9	14.2	3.0	4.1	3.8	1.9	68.4
27	福岡県	太宰府	80.2	76.8	54.1	28.5	56.4	7.2	20.1	18.8	8.0	119.3
28	佐賀県	佐賀	(31.9)	(30.7)	(14.4)	(9.5)	(21.1)	(3.4)	(5.6)	(5.1)	(3.0)	(76.5)
29	宮崎県	宮崎	(49.7)	(46.4)	(32.8)	(31.9)	(54.6)	(6.1)	(8.3)	(7.1)	(7.0)	(84.7)
30	鹿児島県	鹿児島	80.4	76.1	43.8	47.5	69.6	7.1	22.6	21.0	8.4	107.9
31	沖縄県	沖縄大里	52.5	43.7	28.4	122.1	144.6	6.3	18.6	15.4	17.9	53.6
32	沖縄県	沖縄辺戸岬	60.1	47.2	28.3	180.8	213.2	7.9	14.9	10.1	25.9	46.6
		全国最低値	19.6	18.5	5.7	1.4	9.7	2.4	1.9	1.5	1.4	27.8
		全国最高値	80.4	76.8	68.6	184.1	213.2	15.6	31.9	29.9	25.9	119.3
		全国中央値	46.2	43.4	29.7	23.6	36.7	4.1	8.9	8.2	4.5	74.7
		全国平均値	46.3	43.0	32.5	41.4	54.4	5.3	10.9	9.7	6.7	73.7

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。

次いで辺戸岬、最低値は伊自良湖であった。

Na⁺(p)の年平均濃度の範囲は9.7~213.2nmol m⁻³(平均値54.4nmol m⁻³)であり、最高値は辺戸岬、次いで旭、最低値は伊自良湖であった。旭や辺戸岬ではNa⁺(p)とCl⁻(p)がともに高濃度で観測されており、海塩の影響が強いと考えられる。逆に、Na⁺(p)とCl⁻(p)濃度が低い伊自良湖は、内陸のため海塩の影響を受けにくいと考えられる。

K⁺(p)の年平均濃度の範囲は2.4~15.6nmol m⁻³(平均値5.3nmol m⁻³)であり、最高値は市原、次いで旭、最低値は母子里であった。

Ca²⁺(p)の年平均濃度の範囲は1.9~31.9nmol m⁻³(平均値10.9nmol m⁻³)、nss-Ca²⁺(p)は1.5~29.9nmol m⁻³(平均値9.7nmol m⁻³)であり、最高値は市原、次いで鹿児島、最低値は母子里であった。市原は、近傍の石灰製造工場の影響を受けていることが考えられた。

Mg²⁺(p)の年平均濃度の範囲は1.4~25.9nmol m⁻³(平均値6.7nmol m⁻³)であり、最高値は辺戸

岬、次いで大里、最低値は伊自良湖であった。

NH₄⁺(p)の年平均濃度の範囲は27.8~119.3 nmol m⁻³(平均値73.7nmol m⁻³)であり、最高値は太宰府、次いで鹿児島、最低値は利尻であった。

(3) ガス状および粒子状成分の総計

全硫酸(SO₂(g)+nss-SO₄²⁻(p))の年平均濃度の範囲は32.2~189.6nmol m⁻³(平均値79.7nmol m⁻³)であり、最高値は鹿児島、次いで太宰府、最低値は母子里であった。全硫酸は西日本で高い傾向が見られた。

全硝酸(HNO₃(g)+NO₃⁻(p))の年平均濃度の範囲は9.5~88.6nmol m⁻³(平均値48.5nmol m⁻³)であり、最高値は太宰府、次いで加須、最低値は母子里であった。全硝酸濃度は都市部で高い傾向が見られた。

全塩化物(HCl(g)+Cl⁻(p))の年平均濃度の範囲は8.7~219.3nmol m⁻³(平均値63.8nmol m⁻³)であり、最高値は辺戸岬、次いで旭、最低値は伊自良湖であった。

全アンモニア(NH₃(g)+NH₄⁺(p))の年平均濃

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	全硫酸	全硝酸	全塩化物	全アンモニア
			SO ₂ (g)+nssSO 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	34.6	14.4	97.0	43.1
2	北海道	母子里	32.2	9.5	17.2	69.0
3	北海道	札幌北	86.2	27.2	40.3	115.4
4	札幌市	札幌白石	93.5	30.9	41.3	116.0
5	新潟県	新潟曾和	52.8	36.8	60.6	131.5
6	新潟県	長岡	61.3	44.5	37.3	165.8
7	新潟市	新潟小新	(56.3)	(31.6)	(95.7)	(133.1)
8	群馬県	前橋	56.9	79.8	32.2	494.7
9	埼玉県	加須	67.2	83.5	44.6	282.2
10	千葉県	市原	123.4	79.7	135.7	186.0
11	千葉県	旭	50.8	59.4	190.9	-
12	千葉県	佐倉	73.7	62.9	73.6	174.8
13	長野県	長野	55.1	35.5	14.9	153.5
14	静岡県	静岡北安東	87.8	61.0	37.8	187.2
15	富山県	射水	(48.7)	(29.9)	(39.0)	(128.1)
16	石川県	金沢	53.8	20.2	27.1	70.9
17	福井県	福井	108.6	54.0	80.7	185.7
18	岐阜県	伊自良湖	54.1	18.3	8.7	101.6
19	愛知県	豊橋	89.9	73.2	51.0	308.4
20	名古屋市	名古屋緑	65.2	53.6	29.0	220.5
21	大阪府	大阪	92.3	68.4	48.7	267.8
22	和歌山県	海南	105.0	52.3	38.7	183.1
23	兵庫県	神戸須磨	118.6	74.4	55.9	186.7
24	鳥取県	湯梨浜町	(62.4)	(29.9)	(60.2)	(156.8)
25	山口県	山口	80.2	42.1	29.6	165.1
26	高知県	香北	63.1	15.8	11.9	162.6
27	福岡県	太宰府	135.3	88.6	62.0	329.2
28	佐賀県	佐賀	(61.1)	(23.5)	(22.3)	(221.2)
29	宮崎県	宮崎	(122.7)	(43.0)	(57.1)	(195.8)
30	鹿児島県	鹿児島	189.6	58.5	86.1	252.2
31	沖縄県	沖縄大里	61.4	32.4	150.7	410.1
32	沖縄県	沖縄辺戸岬	60.2	32.0	219.3	98.3
全国最低値			32.2	9.5	8.7	43.1
全国最高値			189.6	88.6	219.3	494.7
全国中央値			67.2	52.3	44.6	179.0
全国平均値			79.7	48.5	63.8	194.7

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。

度の範囲は43.1~494.7nmol m⁻³(平均値194.7nmol m⁻³)であり、最高値は前橋、次いで大里、最低値は利尻であった。全アンモニア濃度は周辺の畜産業の影響を受けている地点や都市部で高い傾向が見られた。

5.2.2 月平均濃度の季節変化および地域特性

地点別月平均濃度について、6つの地域区分(北部、日本海側、東部、中央部、西部、南西諸島)ごとに平均濃度を算出した。ここでは、地域区分別の月変化および包括的な地域特性を述べる。

平成21年度は、7月にnss-SO₄²⁻(p)およびHNO₃(g)濃度などの低下が見られた。7月は、19日~26日の期間に長期間の豪雨「(気象庁命名による)平成21年7月中国・九州北部豪雨」が起こるなど、活発な梅雨前線が本州付近に停滞して、曇りや雨

の日が多く見られた。こうした天候の影響により、光化学反応の抑制や、降雨による洗浄除去(washout)を受けたものと思われる⁴⁾。

(1) ガス状成分

ガス状成分の地域別月平均濃度の経月変化を図5.2.1に示す。SO₂(g)濃度は冬季に高い傾向が見られ、その傾向は特に北部で顕著であった。これは冬季の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。また春季には、特に西部でSO₂(g)濃度が高くなる傾向があり、汚染大気の流れの影響を受けている可能性が考えられた^{1,5)}。HNO₃(g)濃度は夏季に高く、冬季に低くなる傾向が見られた。夏季にHNO₃(g)濃度が高くなる要因としては、夏季は光化学反応が活発になり窒素酸化物からHNO₃(g)への酸化が促進されることや、揮発性粒子であるNH₄NO₃などの解離が進む

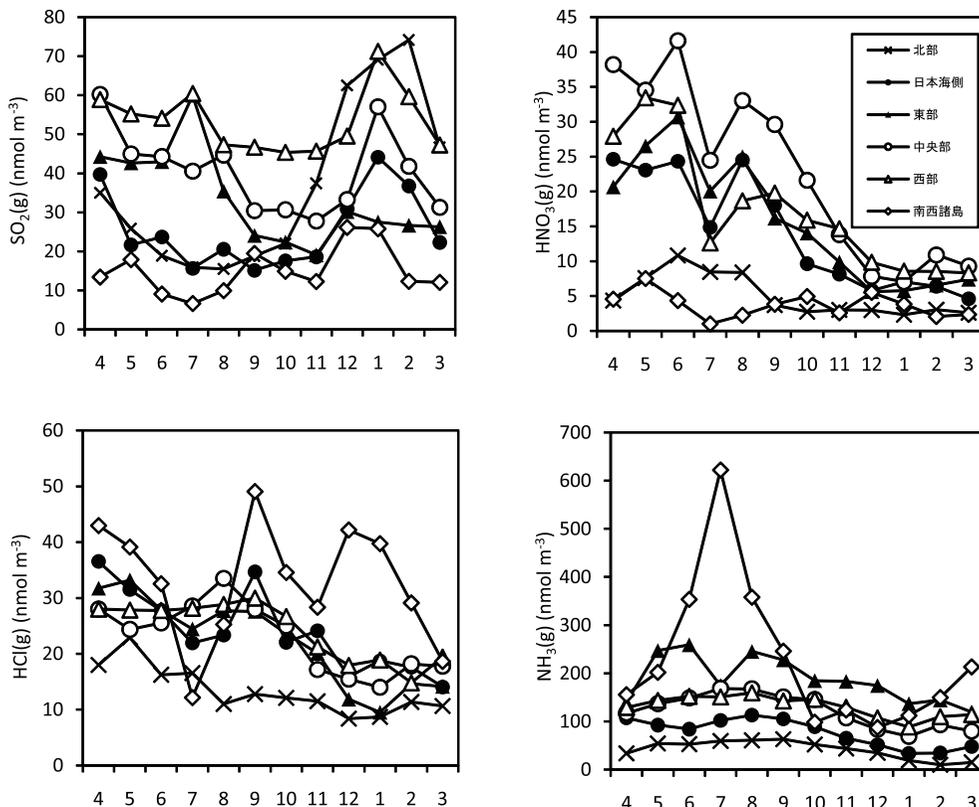


図 5.2.1 ガス状成分の地域別月平均濃度の経月変化

ことなどが考えられる¹⁾。HCl(g)濃度は南西諸島を除いて冬季に低くなる傾向が見られた。NH₃(g)濃度は、HNO₃(g)と同様に、夏季に高く冬季に低くなる傾向が見られた。とくに南西諸島では夏季の高濃度が顕著であるが、大里できわめて高い濃度を示したためである。

(2) 粒子状成分

粒子状成分の地域別月平均濃度の経月変化を図 5.2.2 に示す。nss-SO₄²⁻(p)濃度は春季に高い値を示し、その傾向はとくに西部で顕著であった。南西諸島では冬季にも高い傾向があった。NO₃⁻(p)濃度は冬季～春季に高くなる傾向が見られ、東部で高い傾向があった。地域別月平均濃度について NH₄⁺(p)と nss-SO₄²⁻(p)および NO₃⁻(p)濃度との相関係数を表 5.2.4 に、nss-SO₄²⁻(p)と NH₄⁺(p)の関係を図 5.2.3 に示す。東部を除く地域では NH₄⁺(p)/nss-SO₄²⁻(p)モル比はおおむね 1～2 の間にあり、ほとんどの地点で nss-SO₄²⁻(p)と NH₄⁺(p)濃度に良好な相関関係が認めら

れ、硫酸塩を含む粒子の大部分はアンモニアで中和された硫酸アンモニウムや硫酸水素アンモニウムとして存在すると考えられた。南西諸島では NH₄⁺(p)/nss-SO₄²⁻(p)モル比が低い傾向があり、アンモニアによる中和が他の地域と比べて進んでいないと考えられる。また、東部や中央部の都市部では硫酸塩に対してアンモニウム塩が過剰になっている場合が多く、NO₃⁻(p)と NH₄⁺(p)濃度の相関係数も高いことから、NH₄⁺(p)は硫酸塩以外に硝酸塩などとしても存在していると考えられる。

Na⁺(p)濃度は南西諸島で高く、とくに秋季から冬季にかけて高かった。Cl⁻(p)や Mg²⁺(p)濃度も Na⁺(p)と同様の季節変化を示しており、これらの濃度変動パターンはよく似ていた。地域別月平均濃度について、Na⁺(p)と Mg²⁺(p)の関係、Na⁺(p)と Cl⁻(p)の関係および Na⁺(p)濃度と Cl⁻(p)+HCl(g)濃度の関係を図 5.2.4 に示す。Na⁺(p)と Mg²⁺(p)の関係は海水比とよく一致し

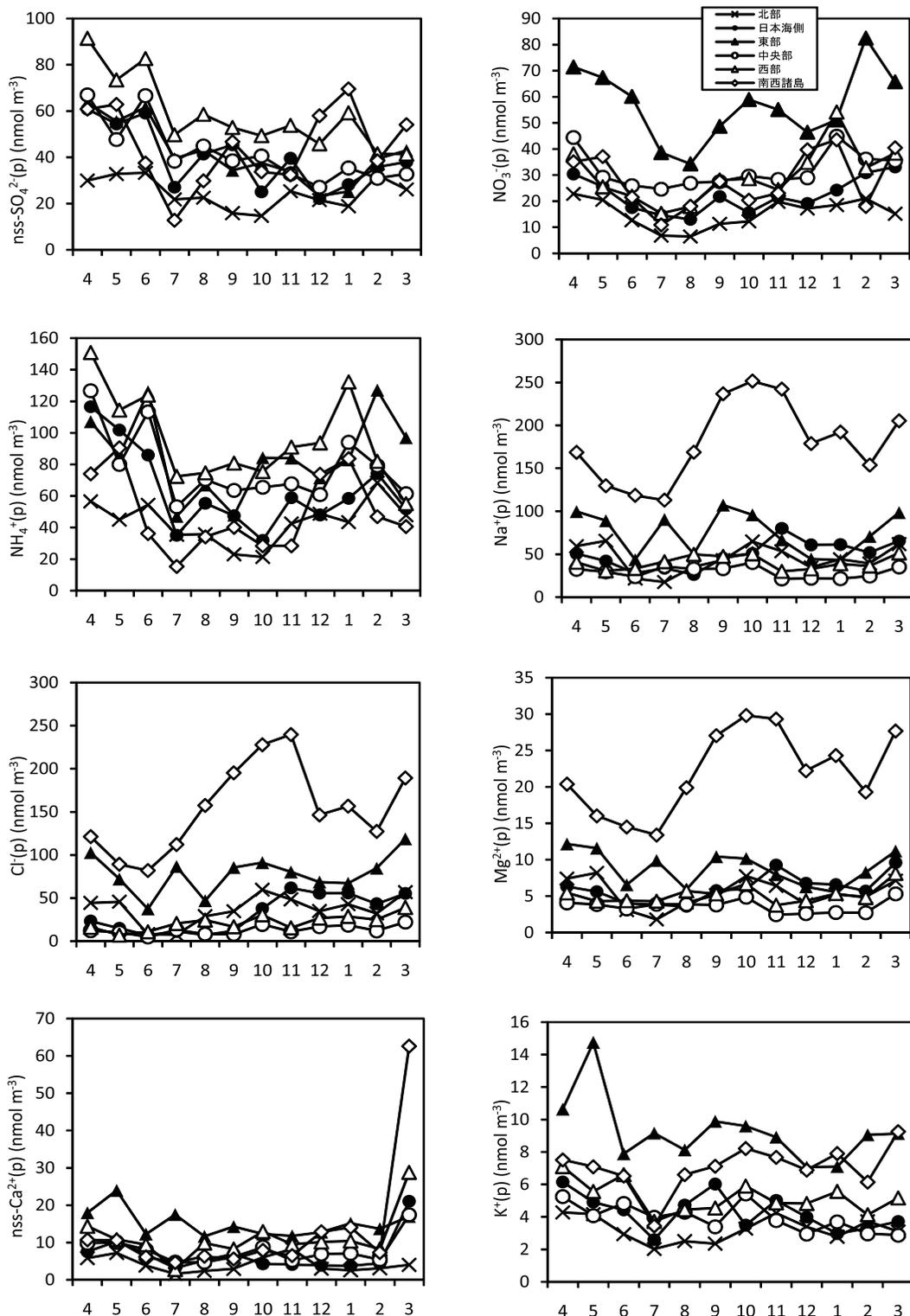


図 5.2.2 粒子状成分の地域別月平均濃度の経月変化

表 5.2.4 NH₄⁺(p)と nss-SO₄²⁻(p) および NO₃⁻(p)との相関係数

No.	都道府県市	地点名	NH ₄ ⁺ (p)	
			nss-SO ₄ ²⁻ (p)	NO ₃ ⁻ (p)
1	北海道	利尻	0.95	0.53
2	北海道	母子里	0.91	0.69
3	北海道	札幌北	0.68	0.65
4	札幌市	札幌白石	0.72	0.70
5	新潟県	新潟曾和	0.69	0.75
6	新潟県	長岡	0.70	0.39
7	新潟市	新潟小新	(0.96)	(0.88)
8	群馬県	前橋	0.87	0.93
9	埼玉県	加須	0.20	0.86
10	千葉県	市原	0.51	0.80
11	千葉県	旭	—	—
12	千葉県	佐倉	0.45	0.48
13	長野県	長野	0.62	0.50
14	静岡県	静岡北安東	0.92	0.86
15	富山県	射水	(0.23)	(0.57)
16	石川県	金沢	0.89	0.14
17	福井県	福井	0.82	0.41
18	岐阜県	伊自良湖	0.98	-0.23
19	愛知県	豊橋	0.87	0.62
20	名古屋市	名古屋緑	0.97	0.83
21	大阪府	大阪	0.51	0.77
22	和歌山県	海南	0.70	0.17
23	兵庫県	神戸須磨	0.60	0.80
24	鳥取県	湯梨浜町	(0.98)	(0.78)
25	山口県	山口	0.89	0.15
26	高知県	香北	0.83	0.19
27	福岡県	太宰府	0.74	0.65
28	佐賀県	佐賀	(0.91)	(0.36)
29	宮崎県	宮崎	(0.48)	(0.32)
30	鹿児島県	鹿児島	0.70	0.57
31	沖縄県	沖縄大里	0.89	0.81
32	沖縄県	沖縄辺戸岬	0.91	0.71

ており、これまでに報告されているように¹⁾、これらは海塩の寄与が大きいことを示唆する。一方、Cl⁻(p)は海水比(1.164)に対して少なくなっているが、これは海塩粒子が硝酸や硫酸と反応することによってクロリンロスが起こったためと考えられる。中央部や西部ではCl⁻(p)/Na⁺(p)モル比がそれぞれ0.431, 0.543と小さい傾向が見られることから、他の地域に比べてクロリンロスが起こりやすいと考えられた。Cl⁻(p)だけよりもCl⁻(p)+HCl(g)の方が海水比に近くなっており、海塩粒子にNaCl(p)+HNO₃(g)→NaNO₃(p)+HCl(g)のような反応が起こって、海塩粒子中のCl⁻(p)の一部がHCl(g)として大気中に放出された可

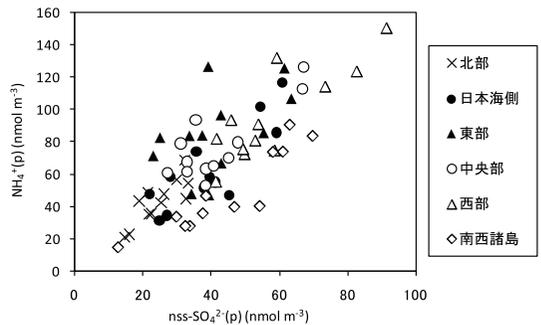


図 5.2.3 地域別月平均濃度の関係

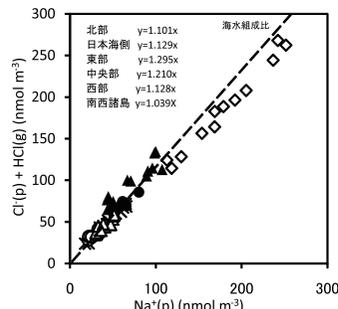
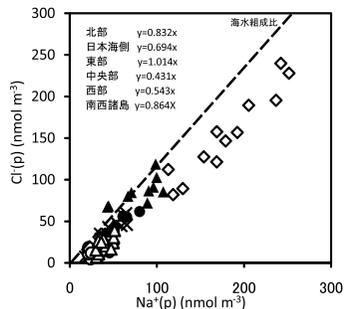
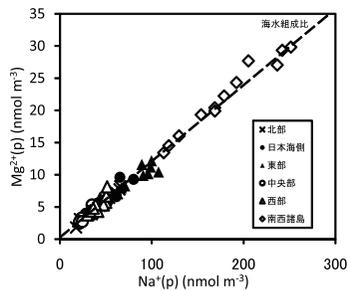


図 5.2.4 地域別月平均濃度の関係

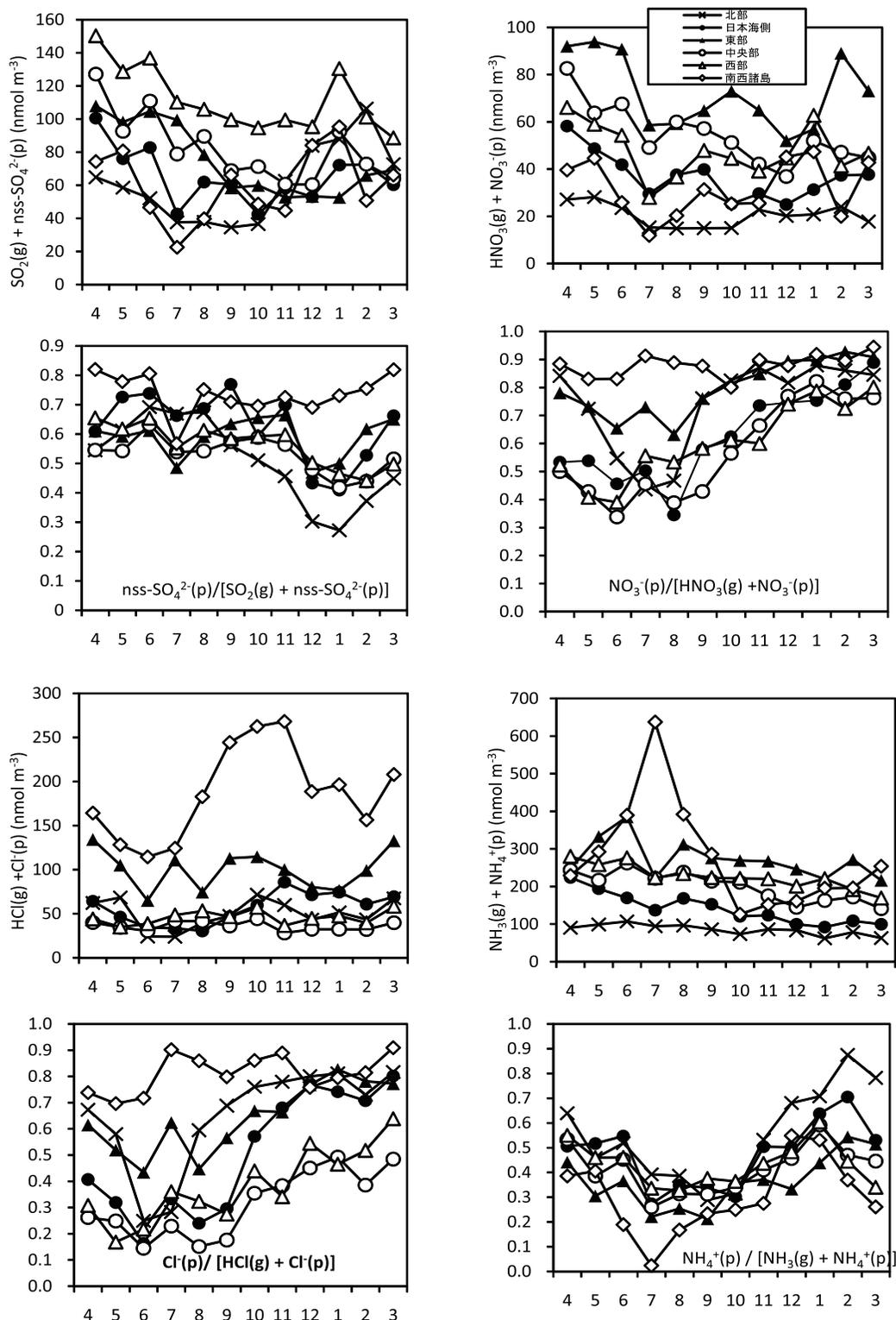


図 5.2.5 全硫酸，全硝酸，全塩化物，全アンモニア濃度および各粒子化率の地域別月平均値の経月変化

能性を示唆する。また都市域の東部や中央部では、海水比より $\text{Cl}^-(\text{p}) + \text{HCl}(\text{g}) / \text{Na}^+(\text{p})$ モル比がわずかに大きくなっており、人為的発生源由来等の $\text{HCl}(\text{g})$ の寄与も考えられた。

$\text{nss-Ca}^{2+}(\text{p})$ 濃度は春季に高くなる傾向が見られ、とくに3月には北部を除いて高濃度が観測された。気象庁によると⁶⁾、3月には13~14、16~17、20~24日に黄砂が観測されており、とくに3月21日に観測された黄砂は大規模で、 $\text{nss-Ca}^{2+}(\text{p})$ 濃度は黄砂の飛来の影響を受けて高くなっていると考えられる。3月の $\text{nss-Ca}^{2+}(\text{p})$ 濃度は南西諸島、西部で高く、北部でもっとも低くなっており、黄砂発生源のアジア大陸に近い地域で黄砂の影響を受けやすいことが示唆される。

(3) ガス状および粒子状成分の総計

全硫酸($\text{SO}_2(\text{g}) + \text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$)、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($\text{NH}_3(\text{g}) + \text{NH}_4^+(\text{p})$)濃度およびそれぞれの粒子化率の地域別月平均値の経月変化を **図 5.2.5** に示す。粒子化率は、粒子状成分濃度をガス状および粒子状成分の総濃度で除したものと

した。

全硫酸($\text{SO}_2(\text{g}) + \text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$)濃度は火山ガスや越境汚染の影響を受けやすいと考えられる西部で高い傾向が見られた。季節変化は地域によって異なり、北部は冬季に高くなる傾向が、日本海側、中央部、東部は春季に高くなる傾向が見られた。南西諸島では春季と冬季に高い傾向があった。西部では、他の地域より高い値で推移し、とくに春季に高い傾向があった。全硫酸濃度の季節変化にはローカルな自然的・人為的 SO_2 発生源の影響や汚染大気の流れなどさまざまな要因が考えられる。粒子化率は南西諸島では通年にわたり高く、地域からの $\text{SO}_2(\text{g})$ の寄与が小さいことや、温暖な気候のため粒子化が促進されやすいことが考えられた。他の地域では粒子化率は冬季に下がる傾向があり、とくに北部で冬季の低下が顕著であった。北部では暖房等の使用に伴うローカル $\text{SO}_2(\text{g})$ の寄与が大きくなることや、低温で粒子化が進まないことなどの原因により、他の地域と比べて冬季の粒子化率が低くなる可能性がある。

全硝酸($\text{HNO}_3(\text{g}) + \text{NO}_3^-(\text{p})$)濃度は一年を通し

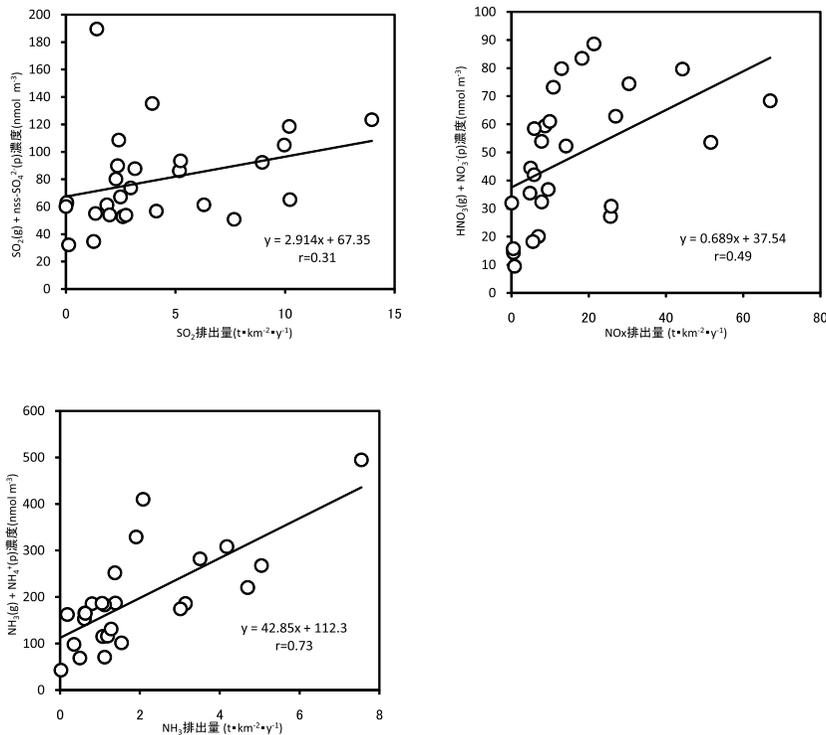


図 5.2.6 排出量推計値と濃度の関係

て都市域の東部や中央部で高い傾向があり、とくに春季に高くなる傾向があった。粒子化率は南西諸島を除いて夏季に低く冬季に高かった。気温が高い時期には NH_4NO_3 など揮発性粒子の解離が起こりやすいためであると考えられる。

全塩化物($\text{HCl}(\text{g}) + \text{Cl}^-(\text{p})$)濃度は全期間にわたって南西諸島でもっとも高く、次いで東部であった。季節変化はあまり明確でないが、秋季に濃度が増加する傾向が見られた。

全アンモニア($\text{NH}_3(\text{g}) + \text{NH}_4^+(\text{p})$)濃度は近隣からの $\text{NH}_3(\text{g})$ の寄与が大きいと考えられる東部や南西諸島で高く、北部や日本海側で低かった。季節変化を見ると、春季から夏季に高く、冬季に低い傾向が見られた。粒子化率は、硝酸と同様に、夏季に低く冬季に高かった。夏季に粒子化率が低くなる要因としては、揮発性の NH_4NO_3 や NH_4Cl などの解離は気温が高い夏季に促進されるためや、土壌から放出されるアンモニアの影響などが考えられる。

5.2.3 排出量推計値と二次生成粒子濃度の関係

排出量インベントリーマップから計算された SO_2 、 NO_x および NH_3 排出量推計値と $\text{SO}_2(\text{g}) + \text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ 、 $\text{HNO}_3(\text{g}) + \text{NO}_3^-(\text{p})$ および $\text{NH}_3(\text{g}) + \text{NH}_4^+(\text{p})$ 濃度の関係を図5.2.6に示す。 SO_2 排出量推計値と $\text{SO}_2(\text{g}) + \text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ 濃度との間には $r=0.31$ ($p>0.05$)と相関が見られず、 $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ は地域からのローカルな発生よりも移流の影響を受けていることが示唆された。一方、 NO_x 排出量推計値と $\text{HNO}_3(\text{g}) + \text{NO}_3^-(\text{p})$ 濃度との間には $r=0.49$ ($p<0.01$)と相関が見られ、全硝酸濃度は、自動車ガス等のローカルな影響が大きいことが示唆された。また、 NH_3 排出量推計値と $\text{NH}_3(\text{g}) + \text{NH}_4^+(\text{p})$ 濃度は $r=0.73$ ($p<0.01$)と相関が見られ、全アンモニア濃度も地域汚染の影響が大きいことが示唆された。

5.2.4 全硝酸濃度と $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ 濃度の関係

地域別の $\text{HNO}_3(\text{g}) + \text{NO}_3^-(\text{p})$ と $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ の年平均値およびその当量濃度比を図5.2.7に示す。 $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ 濃度は北部で低く、西日本で高い値を示した。これについて、Aikawa et al.⁷⁾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お

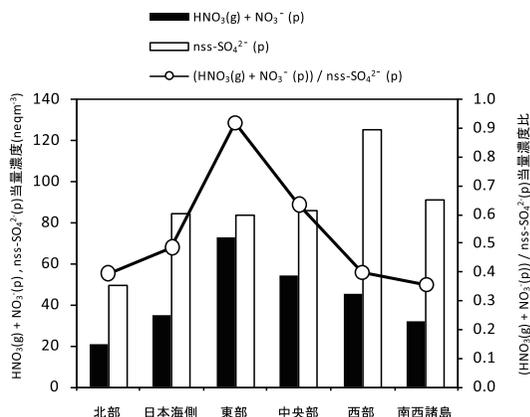


図 5.2.7 $\text{HNO}_3(\text{g}) + \text{NO}_3^-(\text{p})$ 濃度と $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ 濃度の関係

り、 $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ 濃度は移流の影響を受けていると考えられた。一方、全硝酸濃度は都市域である東部・中央部で高く、当量濃度比も東部・中央部で高くなっていった。全硝酸は、 $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ と挙動が異なり都市部で高濃度となっており、周囲の汚染を反映した地域汚染の影響が大きいことが考えられた。

一 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20年度)，全国環境研会誌，35，107-117，2010
- 2) 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
- 3) 国立天文台：理科年表，p.955，丸善出版東京，2010
- 4) 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，33，145-157，2008
- 5) 全国環境研協議会：第4次酸性雨全国調査報告書(平成19年度)，全国環境研会誌，34，212-219，2009
- 6) 気象庁：[地球環境のデータバンク] 黄砂，http://www.data.kishou.go.jp/obs-env/kosahp/kosa_data_index.html，2010
- 7) 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

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 $z(=10\text{m})$ 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(土地利用状況)などから推定する。

本報告で用いたモデルは松田(2001)¹⁾のモデルをベースに、高橋ら(2002)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(2004)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り、野口ら(2006)が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.4-1を用いた⁸⁾。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、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(全国環境研協議会(2003))⁹⁾および第4次酸性雨全国調査(全国環境研協議会(2005-2010))¹⁰⁻¹⁵⁾では、同ファイルの Ver.3-2から Ver.4-0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.4-1による計算は、過去に報告した計算結果と一致しない。Ver.4-1は、Ver.4-0からキャノピー高さの設定が変更されている。

この乾性沈着推計ファイルは、二酸化硫黄(SO_2)とアンモニア(NH_3)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。そのため、沈着速度算出に当たっては、濡れ効果(基準85%)を考慮している。粒子状物質に関しては、考慮済みの森林を除いて微小粒子を対象にしており、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、森林、農地、草地の場合の風速が0となる場合の高さ補正の要素(キャノピー高さの70%)を取り入れている¹⁶⁾。

なお、FP法では粒子とガスの完全な分別捕集は難しい。しかし、乾性沈着ではガスと粒子の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のうち、年平均濃度の算出が完全度等により除外とならなかった調査地点について、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^{17,18)}、アメダス^{17,18)}、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。季節区分には温量指数と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)^{19,20)}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、土地利用状況(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。FP法による濃度測定地点周辺の土地利用割合は国土地理院のデータから海を除く半径25km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。

各土地利用状況における月平均 V_d とそれに対応する土地利用割合、および月平均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、

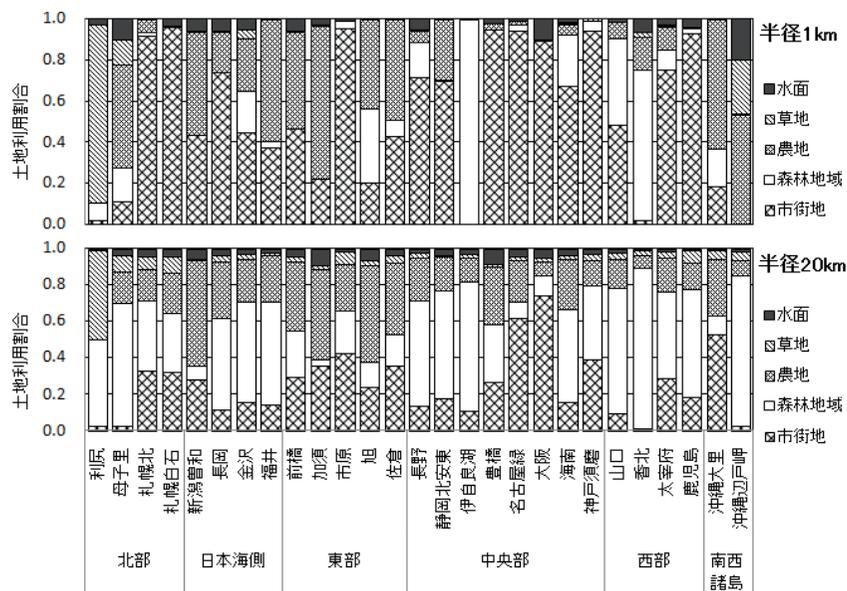


図 5.3.1 各地点の半径1 km および半径20km の土地利用割合

表 5.3.1 土地利用区分ごとの平均 Vd (m day⁻¹)

	SO ₄ ²⁻ (p)	NO ₃ ⁻ (p)	NH ₄ ⁺ (p)	SO ₂	HNO ₃	NH ₃	NO ₂	NO
市街地	65	65	65	160	3800	43	26	0.00
森林地域	500	660	510	830	3300	310	32	1.5
農地	110	110	110	490	1100	220	57	1.2
草地	140	140	140	510	1400	220	46	1.2
積雪	84	84	84	350	360	390	1.2	0.24
水面	71	71	71	240	240	260	0.96	0.19

農地、草地の Vd の代わりに、積雪の Vd を用いた。大気濃度は FP 法で測定した粒子状物質 (nss-SO₄²⁻, NO₃⁻, NH₄⁺) およびガス (SO₂, HNO₃, NH₃), 自動測定器で測定した NO₂, 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沈着量を算出した。

環境省の長期モニタリング報告書²¹⁾では、Vd は半径 1 km の森林と草地の利用割合で計算されている。それに合わせて、平成20年度の報告¹⁵⁾では、半径 1 km の土地利用割合(森林・草地以外も含む)で乾性沈着量を算出した。しかし、得られた乾性沈着量が地域を代表する数値として扱われる可能性が高いのに対し、半径 1 km ではごく局地的な状況で変動が大きいこと、必ずしも大気濃度と気象データの測定地点が一致していないことなどの理由により、本報告書では半径20km のものを用いた。

各地点の半径 1 km と半径20km の土地利用割合を 図 5.3.1 に、土地利用区分ごとの平均 Vd (乾性沈着量評価対象の全地点における平成21年度の月平均 Vd の算術平均値)を 表 5.3.1 に示す。地点により詳細な状況は異なるが、全体的には半径20 km の土地利用割合は、半径 1 km のものに比べて、市街地・農地・草地は減少、森林地帯は増加の傾向がみられる。平均 Vd の数値から乾性沈着量は、森林地域の割合が大きいと粒子状物質および SO₂ が大きく、市街地の割合が小さいと NH₃ が大きく評価されると考えられる。なお、この土地利用割合の範囲については、今後も検討が必要と思われる。

5.3.3 乾性沈着量と湿性沈着量の比較

乾性沈着量は月平均濃度から算出しているため、FP 法で大気濃度の測定を実施した地点のうち、1年のうち3カ月以上の月平均値が欠測また

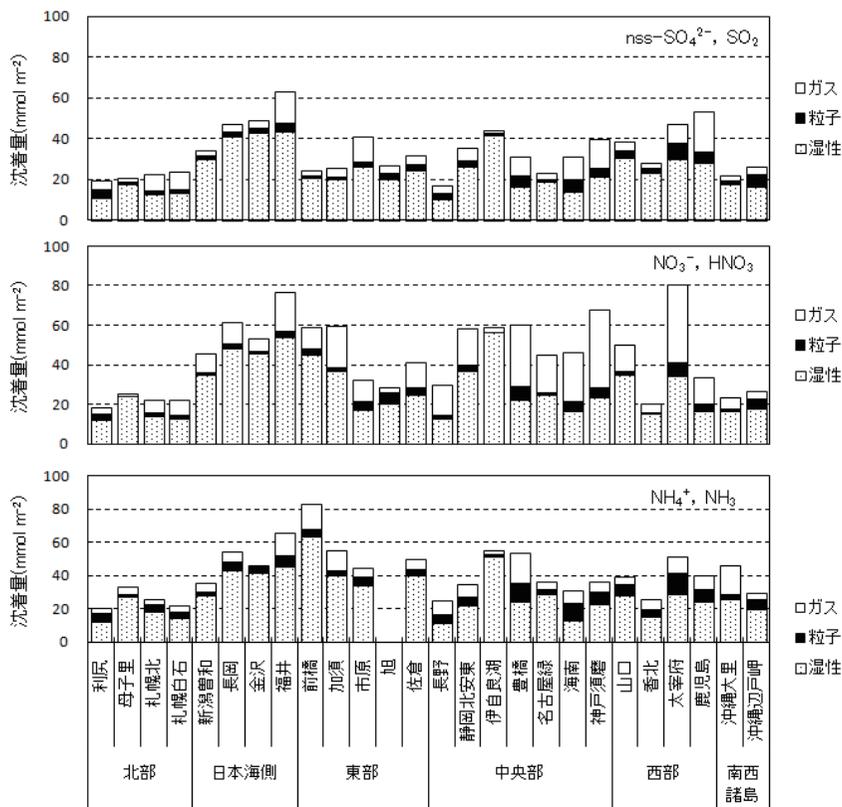


図 5.3.2 各調査地点の沈着量

は参考値となった調査地点を除いて年間値で評価した。硫酸成分は、非海塩由来について求めた。湿性沈着調査を実施していない大阪を除く地点の結果を図 5.3.2 に示す。

大阪を含む乾性沈着量(ガス+粒子)は、非海塩由来硫酸成分が2.0(伊自良湖)~25(鹿児島)(平均値9.4)mmol m⁻² year⁻¹、硝酸成分が1.5(母子里)~46(太宰府)(平均値17)mmol m⁻² year⁻¹、アンモニウム成分が3.8(伊自良湖)~30(豊橋)(平均値13)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、4.7%(伊自良湖)~57%(海南)(平均値29%)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、4.9%(伊自良湖)~66%(神戸須磨)(平均値37%)、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、6.8%(伊自良湖)~59%(海南)(平均値32%)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ほとんどの地点で湿性沈

着量が乾性沈着量よりも多く、伊自良湖では乾性沈着の占める割合が5%未満だった。硝酸成分については、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、豊橋、神戸須磨、海南では60%を超えていた。アンモニウム成分については、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、長野、豊橋、海南では50%を超えていた。

5.3.4 NO_x(NO, NO₂)の乾性沈着量

FP法と並行して大気中のNO, NO₂濃度を自動測定機により測定している利尻、札幌北、福井、加須、長野、伊自良湖、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(図 5.3.3)。NOの乾性沈着量は0.010(利尻)~0.075(福井)(平均値0.037)mmol m⁻²year⁻¹と少なかった。NO₂の乾性沈着量は0.45(利尻)~10(大阪)(平均値5.6)mmol m⁻² year⁻¹だった。NO_x(NO+NO₂)の乾性沈着量が全窒素酸化物乾性沈着量(NO_x+NO₃⁻(p)+HNO₃)に占める割合

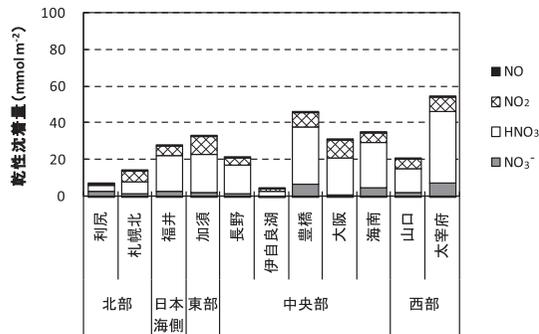


図 5.3.3 窒素酸化物の乾性沈着量

は、6.8% (利尻)~39% (札幌北) (平均値22%), 総窒素酸化物沈着量 ($\text{NO}_x + \text{NO}_3^- (\text{p}) + \text{HNO}_3 + \text{湿性 NO}_3^-$) に占める割合は1.7% (伊自良湖)~19% (札幌北) (平均値9.7%) であった。湿性および乾性のアンモニウム成分も加えた全窒素沈着量に占める割合は0.88% (伊自良湖)~9.9% (札幌北) (平均値5.5%) であった。

5.3.5 乾性沈着量の経年変化

平成21年度にFP法で大気濃度の測定を実施した地点のなかで、継続して調査を実施し平成15~21年度の7年間のうち5年間の年沈着量の算出が有効となった調査地点を対象とした。各地域区分

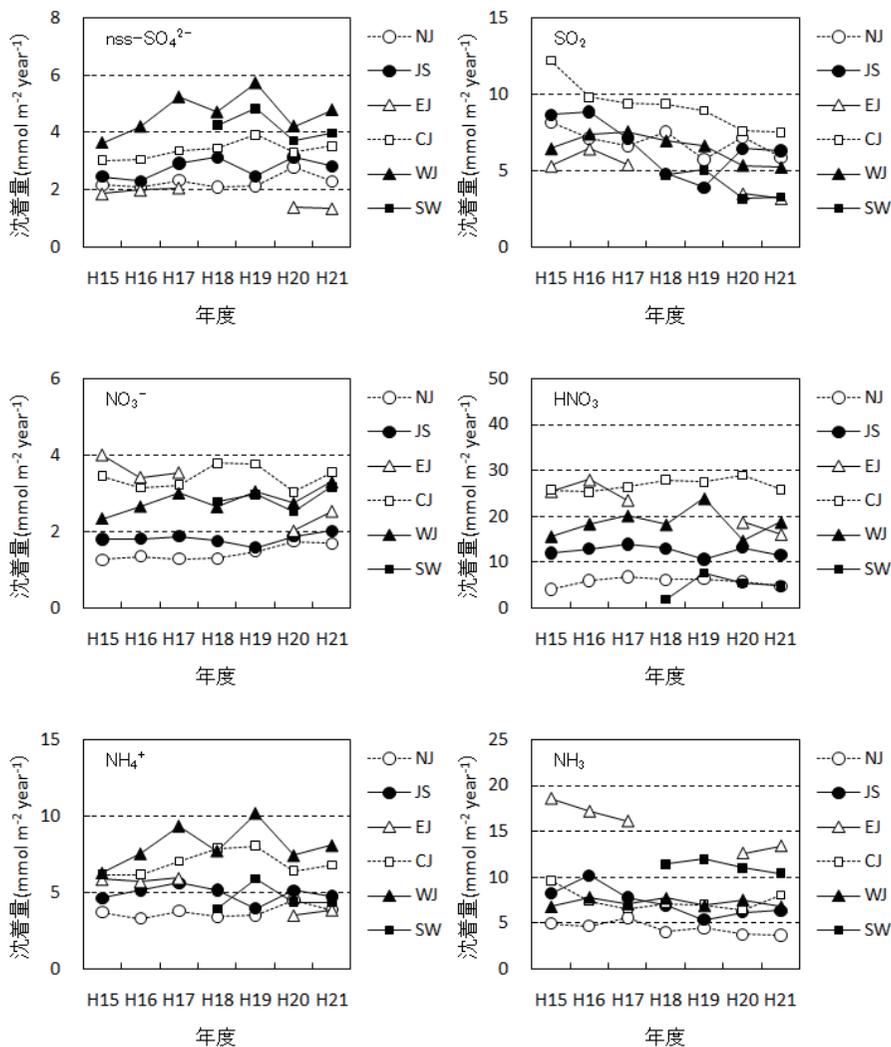


図 5.3.4 各地域区分部分の乾性沈着量の経年推移

の地点数は、北部(NJ) 4, 日本海側(JS) 5, 東部(EJ) 2, 中央部(CJ) 6, 西部(WJ) 3, 南西諸島(SW) 2である。EJとSWについては継続している調査地点数が2地点と少なく、地点間で乾性沈着量の差が大きい成分もあったため、2地点とも算出が有効となった期間について比較した。前述の5.3.2~5.3.4の平成21年度の乾性沈着量の推計において、気象データの全部または一部を大気汚染常時監視測定局等の測定結果を用いた地点については、平成15~17年度までの大気汚染常時監視測定局等の測定結果を所持していない。そのため、年度間の比較条件を統一するため各調査地点に近い気象官署^{1,2)}、アメダス^{2,3)}の測定値(風速、気温、湿度、日射量、雲量)を用いて全期間を算出した。したがって、平成21年度の推計結果とは多少異なっている。なお、5.3.2~5.3.4の結果と比較し、粒子の乾性沈着量を使用した気象データの種類により著しく異なった地点(伊自良湖)については除外した。その他の推計条件については、5.3.2のとおりである。地域区分ごとの平均沈着量を図5.3.4に示した。

nss-SO₄²⁻粒子沈着量は、WJ, SWで大きく、NJ, EJで小さい値で推移した。WJ, CJでは、平成15~19年まで増加傾向を示していたがその後はやや減少している。SWの推移は、WJと似ていた。JS, NJではやや増加傾向、EJではやや減少傾向を示している。NO₃⁻粒子沈着量は、CJ, SWで大きく、NJ, JSで小さい値で推移した。EJでは平成15~17年度は他の地域より大きかったが、平成20, 21年度は減少した。他の地域ではおおむね横ばいからやや増加傾向である。NH₄⁺粒子沈着量は、WJ, CJで大きく、NJで小さい値で推移した。WJ, CJの推移は、nss-SO₄²⁻粒子沈着量の推移と似ている。EJでは減少傾向を示し、他の地域ではおおむね横ばいからやや増加傾向である。

SO₂沈着量はCJで大きく、各地点ともおおむね減少傾向を示した。HNO₃沈着量は、CJで大きく、NJ, SWで小さい値で推移した。EJで減少傾向を示し、他の地域ではおおむね横ばい傾向である。NH₃沈着量は、EJ, SWで大きい値で推移した。その理由として発生源(畜産系)近くの調査地点の影響を受けたためと考えられる。その他の地点は横ばいからやや減少傾向を示している。

—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) M. L. Wesely: Parameterization of surface resistances to gaseous dry deposition In regional-scale numerical model, Atmos. Environ., 23, 1293-1304, 1989
- 5) J. W. Erisman, D. Baldocchi: Modeling dry deposition of SO₂, Tellus, 46B, 159-171, 1994
- 6) C. J. Walcek, R. A. Brost, J. S. Chang, M. L. Wesely: SO₂, sulfate and HNO₃ deposition velocities computed using regional land use and meteorological data, Atmos. Environ., 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 Ver4-1，http://www.ies.hro.or.jp/seisakuka/acid_rain/kanseichinchaku/kanseichinchaku.htm
- 9) 全国環境研協議会：第3次酸性雨全国調査報告書，全国環境研会誌，28，126-196，2003
- 10) 全国環境研協議会：第4次酸性雨全国調査報告書(平成15年度)，全国環境研会誌，30，58-135，2005
- 11) 全国環境研協議会：第4次酸性雨全国調査報告書(平成16年度)，全国環境研会誌，31，118-186，2006
- 12) 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
- 13) 全国環境研協議会：第4次酸性雨全国調査報告書(平成18年度)，全国環境研会誌，33，126-196，2008
- 14) 全国環境研協議会：第4次酸性雨全国調査報告書(平成19年度)，全国環境研会誌，34，193-223，2009
- 15) 全国環境研協議会：第4次酸性雨全国調査報告書(平成20年度)，全国環境研会誌，35，88-138，2010
- 16) 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
- 17) 気象庁：気象庁月報 2009年1月—2009年12月，(CD-ROM)
- 18) 気象業務支援センター：気象観測月報2010年1月—2010年3月，(CD-ROM)
- 19) 野口泉：乾性沈着速度評価モデル(インフェレンシャル法)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會講演要旨集，22-23，2007
- 20) 野口泉，布和放斯尔，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
- 21) 環境省：長期モニタリング報告書(平成15~19年度)，2009

6. パッシブサンプラー

パッシブ法ではFP法のみでは測定できないNO₂、NO_x、O₃と、FP法と共通で測定できるNH₃濃度の測定を行っている。これはガス状物質が粒子状物質より濃度のばらつきが多いこと、硝酸成分およびアンモニウム成分のいずれも乾性沈着量に占める割合はガス状物質が大きいことなどの理由による。さらに、FP法ではアーティファクトとしてNH₄⁺の一部がNH₃として評価される¹⁾ことも理由である。したがって、より多くの地点でガス状物質を測定することと、FP法で測定できない、あるいは分別できない成分を測定する目的で実施されたものである。なお、NO濃度はNO_x濃度からNO₂濃度を差し引いて算出している。またいずれも定量下限値は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法と同様とした。NO₂およびNOの濃度算出については気温のほかにも湿度を用いる必要があるが、湿度データは局地性が高く、濃度算出に適当なデータが得られないことが多い。このことから、第4次調査データ同様温度のみの補正とし、湿度は一律70%として算出した。なおこれまでの検討で温度のみの補正結果が自動測定装置によく合致することが確認されている。

しかし、パッシブ法においては、NH₃濃度算出係数が改訂されるなどまだ検討課題があること、FP法で得られたデータと同様には扱えない場合があることなどから、乾性沈着量の評価には用いていない。

6.1 測定地点

平成21年度調査においては、測定方法がN式からO式に統一された。このことから北海道から中国四国地方をはじめとした西日本まで同一手法にて測定が行われることとなり、より調査の比較検討が容易となった。調査地点は大都市(例えば県庁所在地)、工業地域、中小都市域、田園地域、山林地域などからその目的に応じ、1地点以上選定することにより設定した。調査は通年でを行い、試料採取周期は1カ月(4週間または6週間)とした。21年度は24機関43地点で実施された。また今回は全国を地域区分しての評価を試みた。地点数が少ないため、必ずしも地域を代表していない場合もあるので注意していただきたい(図

6.1.1)。

6.2 測定結果

測定結果に関する図表は以下のとおりである。なお、月別濃度等については、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/ja/database_B2.html)にて公開予定である。

データ概況を表6.1.1に、成分濃度と排出量の相関を図6.1.2に、地域別季節変動を図6.1.3に、O₃、PO(ポテンシャルオゾン)と標高の関係を図6.1.4に示す。

表6.1.1に示すとおり、平成21年度データの欠測数および期間適合度60%以下の割合では、NO₂、NO_x、NOで期間適合度が低かった。これはブランク値に対する情報不足により、参考値となった場合多かったためである。またO₃の欠測数(13)では、冬季調査が困難で、実施できなかった八海山の4月分のデータが含まれている。

(1) NO₂

最高年平均濃度は札幌白石(16.2ppb)、最低濃度は天塩FRS(0.3ppb)だった。経月変化は全体的には例年と同様に、冬季(12~2月)に高く、夏季(6~8月)に低い結果となった。とくに都市域の高濃度の地点ではほぼこのとおりの傾向を示している。低濃度の地点でも概ね同様の傾向にあるが、例外の地点も存在し、鱒ヶ沢舞戸、牡鹿などは一定の傾向が見られない。これは、都市域など発生源で冬季に排出量が増加し、多くの地点でその傾向を反映した結果となるが、上記の地点は気象条件により都市域の影響度合いが変化するためと考えられる。

また札幌市南側郊外の札幌滝野、札幌南では7月に濃度上昇が認められる。近接する都市域内の札幌白石、札幌北でも認められるが相対的に郊外よりも小さなことから、札幌市より南からの流入によると考えられる。

(2) NO

最高年平均濃度は仙台幸町(9.3ppb)、最低濃度は八幡平(ND)だった。NO₂と同様に全体的には冬季に高くなる傾向にある。地域別季節変動(図6.1.3)で中央部(CJ)が高いが、これは測定点が海南のみであり、地域の代表性は高いことも考えられる。地点別では鱒ヶ沢舞戸、牡鹿など

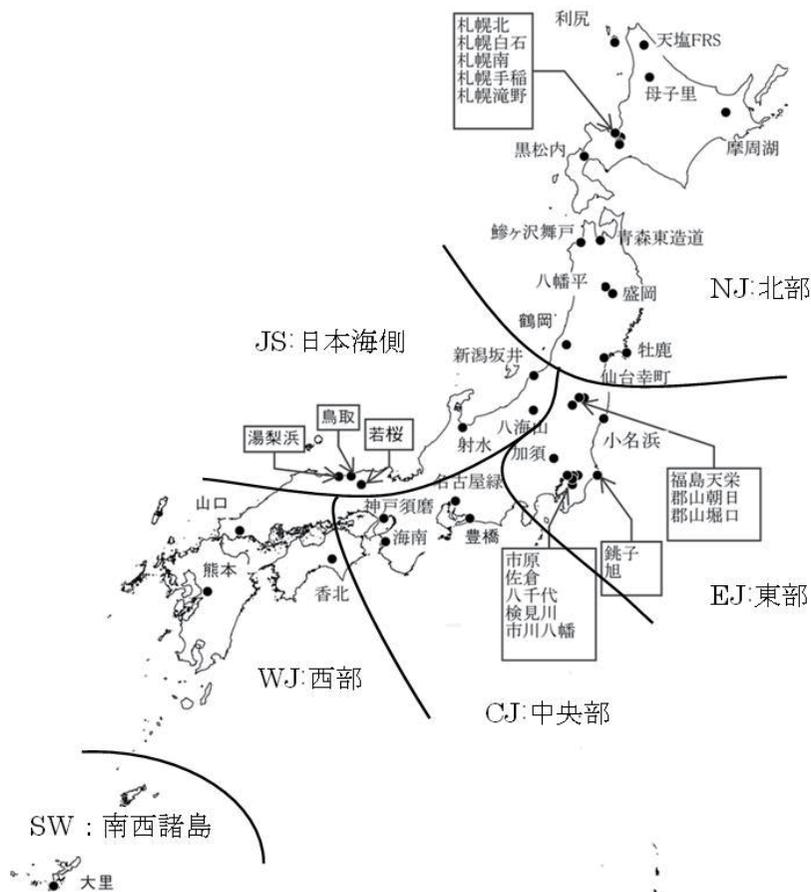


図 6.1.1 パッシブサンプラー測定地点および地域区分

表 6.1.1 データ概況(平成 21 年度)

項目	地点数	月別						年間					
		欠測数	データ数	適合数	有効割合	<適合度	<DL値*	欠測数	データ数	適合数	有効割合	<適合度	<DL値*
NO ₂	26	33	279	271	97%	8	8	0	26	24	92%	2	2
NO	26	33	279	271	97%	8	12	0	26	24	92%	2	2
NO _x	26	33	279	271	97%	8	2	0	26	24	92%	2	0
O ₃	30	13	347	339	98%	8	1	0	30	30	100%	0	2
SO ₂	9	1	107	103	96%	4	46	0	9	9	100%	0	1
NH ₃	35	7	413	407	99%	6	22	0	35	35	100%	0	0

(* : <DL 値は ND の数を示す)

は一定の傾向が見られない。香北が夏季に濃度が高い傾向にあり、他地点との相違がみられる。

(3) NO_x

最高年平均濃度は札幌白石(24.6ppb)、最低濃度は八幡平(0.6ppb)だった。地域別季節変動ではいずれの地域もほぼNO、NO₂同様に冬季に高く夏季に低い傾向にあり、全体的にはこのような季節変動を示すと考えられる。一方、利尻と天塩

FRSのように明確な傾向は見られない地点もあった。年平均濃度と周辺排出量は正の相関があり(図 6.1.2)、とくに都市域で測定されるNO_xは周辺からの排出量の寄与が大きいことが唆される。

(4) O₃

最高年平均濃度は八海山(49.4ppb)で最低濃度は山口(23.4ppb)だった。しかし、八海山は冬季

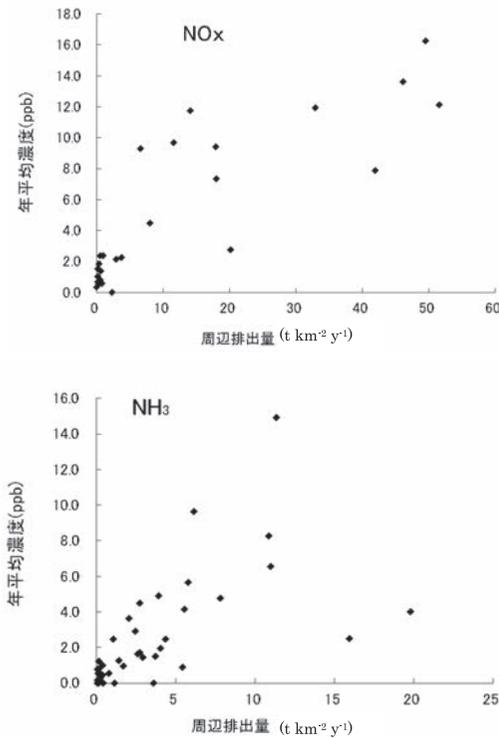


図 6.1.2 NOx 及び NH₃ 濃度と排出量(NH₃ は旭局を除く)

の測定が行われていないため、通年の測定の行われている地点での最高年平均濃度は八幡平(47.0 ppb)となる。全体的に冬～春季(2～5月)に高く、夏季まで減少を続け、秋季(9～11月)以降徐々に増加する傾向が認められた。これは成層圏 O₃の降下と、季節風による大陸からの汚染気塊の流入が原因として考えられる。

地理的な傾向としては日本海側は年間を通じて濃度が高く、夏季にも30ppb程度を維持している(図 6.1.3)。西部、中央部、東部で9月に濃度の上昇が認められた。西日本では越境汚染により秋に濃度上昇することが指摘されており²⁾、この影響は東日本まで及んでいたと考えられる。

次に、O₃濃度と標高およびPO濃度と標高との関係を検討した(図 6.1.4)。POは次の式で表される^{3),4)}。

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

(NO₂: 二酸化窒素濃度, NO_x: 窒素酸化物濃度)

利尻や牡鹿など海岸付近の地域を除くと標高とO₃濃度に正の相関が見られる。しかしPO濃度で検討すると標高200mより低い地点の多くはPO濃度がO₃濃度よりも大幅に高くなるため単純な

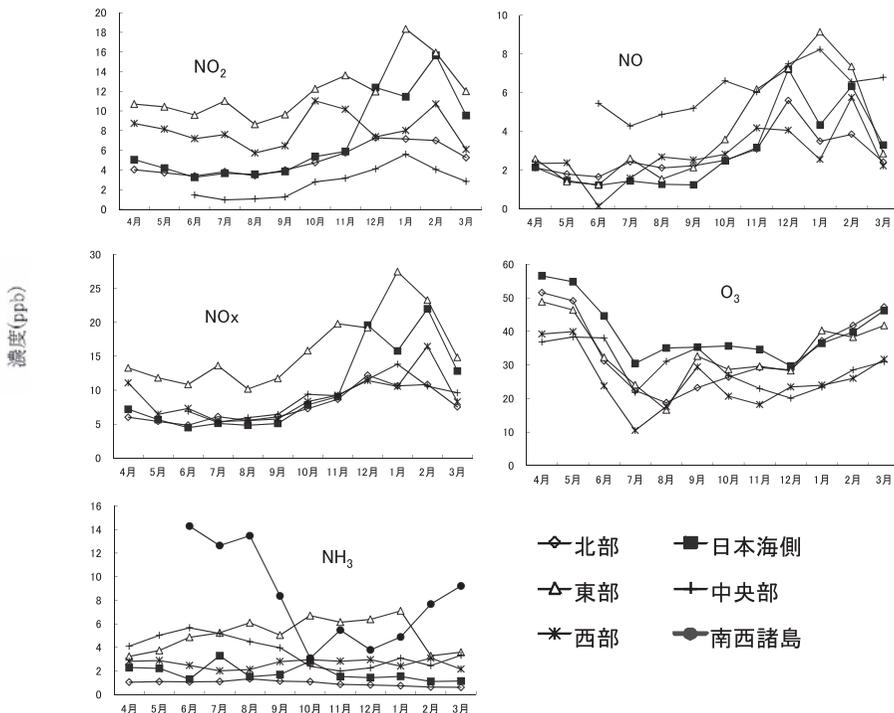


図 6.1.3 地域別季節変動

相関関係は見られない。

POが大幅に高くなる地点の多くは海に近い都市域に位置している。これらのことから、離島や海に近い都市域のO₃濃度は海からの輸送による比較的高濃度のバックグラウンドO₃が支配的であるが、都市域ではNOなどの大気汚染物質との反応によりO₃が消費されていることが示唆される。現在海岸付近の遠隔・田園地域での測定地点が少ないため検証が難しいが、今後より多くの地点での測定が望まれる。

一方、200mより高い地域ではPO濃度、O₃濃度ともにおおむね標高との関係がみられ、これは従来言われている上空のオゾン層との大気混合の影響によるものと思われる。

(5) NH₃

最高年平均濃度は旭(70.6ppb)で最低濃度は福島天栄(0.2ppb)だった。旭は突出して高濃度であり、測定地点近傍の発生源の影響が強いと考えられる。旭を除いた年平均濃度と周辺排出量の散布図を図6.1.2に示す。おおむね排出量の多い地域で高濃度であることが確認される。一部排出量の多い地域でも低濃度の地点(小名浜, 市原)が見

受けられるが、測定地点の風向や地理的な要因に影響されていると思われる。

全国的な濃度分布では(図6.1.3), 1.0ppbを下回る地点は東北、北海道に多く、関東以西にはほとんどないことから、全体としては東北、北海道で濃度の低い傾向が見られた。また全地域で明確な季節変動は認められなかった。なおNH₃濃度は比較的近隣の発生源の影響が支配的であり、風向の影響が大きいと考えられた。

—参考文献—

- 1) 野口泉：ガス状および粒子状アンモニアの捕集測定方法(拡散デニューダ法, フィルターパック法およびパッシング法), 第48回大気環境学会講演要旨集, 244-245, 2007
- 2) 大原利真：光化学オキシダントと浮遊粒子状物質の全国的・地域的特性, 第48回大気環境学会年会講演要旨集, 116-119, 2007
- 3) 竹川秀人, 箕浦宏明：特集大気環境都市大気の実態と挙動解析 汚染大気的光化学反応, 豊田中央研究所R&Dレビュー, 35, 13-20, 2003
- 4) 光化学オキシダントと粒子状物質等の汚染特性解明に関する研究最終報告平成19~21年度, 国立環境研究所研究報告第203号, 159-168, 2010

7. ま と め

平成21年度酸性雨全国調査で得られた成果の概要は以下のとおりである。

7.1 湿性沈着

日本海側および西部では、冬季にnss-SO₄²⁻およびH⁺濃度が高い傾向を示した。この傾向は、平成17年度までは日本海側で顕著であったが、18年度には西部でも冬季に高濃度となる傾向が確認され、19~21年度も引き続き同様の傾向にあった。地理的要因や冬季の風向等を考慮すると、越境大気汚染の影響が示唆された。H_{eff}およびΣN沈着量は、日本海側および西部で多く、次いで東部で多い傾向にあった。

7.2 FP法によるガスおよびエアロゾル濃度

全国32地点でFP法による乾性沈着調査を実施した。地域特性の解析結果および排出量推計値と2次生成粒子濃度との関係から、全硝酸濃度および全アンモニア濃度は地域汚染の影響が大きい、全硫酸濃度は地域汚染だけでなく越境汚染の影響を受けていることが示唆された。

7.3 乾性沈着量評価と湿性沈着との比較

FP法の測定結果から、乾性沈着推計ファイル

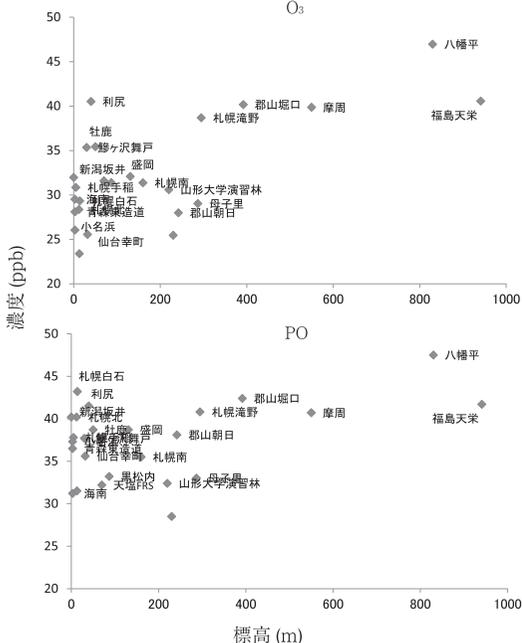


図 6.1.4 濃度と標高, PO濃度と標高の関係図 (郡山堀口・福島天栄のPOは参考値)

Ver.4-1を用いてインファレンシャル法による乾性沈着量の推計を行った。

平成21年度の乾性沈着量(ガス+粒子)の年平均値は、非海塩由来硫酸成分が $9.4\text{mmol m}^{-2}\text{ year}^{-1}$ 、硝酸成分が $17\text{mmol m}^{-2}\text{ year}^{-1}$ 、アンモニウム成分が $13\text{mmol m}^{-2}\text{ year}^{-1}$ だった。

7.4 パッシブ法によるガス成分濃度

パッシブサンプラーによる測定法が〇式に統一された。しかし調査地点が西日本ではまだ少ないことから、より多くの測定地点設置が望まれる。O₃濃度は日本海側が高く、また西日本では秋に濃度上昇が認められるなど地域的な特徴が見られた。NO_xは都市部で高く、NH₃は千葉がきわめて高いなど、NO_x、NH₃は測定地点周辺の影響が大きいと考えられる。