

第5次酸性雨全国調査報告書(平成23年度)

全国環境研協議会 酸性雨広域大気汚染調査研究部会

堀江洋佑, 野口泉, 西山亨, 岩崎綾, 木戸瑞佳, 中村雅和, 遠藤朋美, 松本利恵, 山口高志, 北村洋子, 横山新紀,
家合浩明, 山水敏明, 松倉祐介, 大場和生, 田部貴大, 濱村研吾, 小塚義昭, 竹内浄, 財原宏一

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(フィルターパック法)によるガス・エアロゾル調査を実施しました。この結果、都市部における酸性雨の状況、硫酸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、中国における硫酸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3年目、2011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及び解析により、東アジア酸性雨モニタリングネットワークの充実に貢献したいと考えています。

このように、本部会の取組は、我が国における酸性雨調査を面的および項目的に補完しており、環境省および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・貢献がきわめて大きいことを示していると思われまふ。

加えて、最近ではPM_{2.5}による大気汚染等の問題により、環境行政に対する国民の関心が非常に高くなっております。このような中で、われわれ地方環境研究機関が中心となって独自の調査研究を行っていくことは、環境行政の推進に必要不可欠であり、今後も継続していくことが重要であると思われまふ。

最後になりましたが、行財政状況のたいへん厳しい中、本部会の活動に御参加いただきました全国環境研協議会会員機関と調査担当の皆様、本調査の企画・解析等に御尽力されました各委員、有益な御助言・御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御協力・御支援をいただきました環境省、独国立環境研究所、(一財)日本環境衛生センター／アジア大気汚染研究センター、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御支援・御協力を賜りますようお願い申し上げます。

平成25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 工藤 真哉
(青森県環境保健センター所長)

1. 調査目的

全国環境研協議会(以下、全環研)は、表1.1.1に示すように1991年度から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ヵ年の調査の後、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ヵ年、2008年度まで計6年間の調査を実施した。なお、第1～3次調査結果は国立環境研究所地球環境研究センターにおける地球環境データベースにて公開されており(<http://db.cger.nies.go.jp/dataset/acidrain/ja/index.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インファレンシャル法による乾性沈着速度算出および乾性沈着量評価、以上の3つが主なテーマである。第5次調査の特徴と

しては、①第4次調査から準備年をおかずに継続して実施していること、②パッシブ法を小川式(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・アンモニウムイオン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

2011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66地点、乾性沈着調査地点は55地点(フィルターパック法:36地点、パッシブ法:38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。

2011年度の調査期間は原則として2011年3月28日～2012年3月26日であり、季節および月の区切りは表2.1.2に示すとおりである。

本調査および報告書の作成は全環研・酸性雨広域大気汚染調査研究部会が主導して行われた。2011～2012年度の部会組織および報告書の担当を表2.1.3に示す。

2.2 調査方法

2.2.1 湿性沈着

調査地点は1地点の場合は原則として都市域で実施し、複数地点の場合は都市域および都市域か

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

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		第5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	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:32地点 2004年度:61地点 2005年度:35地点 2006年度:57地点 2007年度:61地点 2008年度:60地点	2003年度:59地点 2004年度:61地点 2005年度:35地点 2006年度:59地点 2007年度:34地点 2008年度:37地点	2009年度:72地点 2010年度:67地点 2011年度:66地点	2009年度:42地点 2010年度:41地点 2011年度:38地点
調査手法	ろ過式採取法(バク採取)による原則1週間単位の試料採取	バク採取(バク採取)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1～2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成分分離、原則1～2週間単位の試料採取	パッシブサンプラー(O式)によるガス成分調査、原則1～2週間単位の試料採取	パッシブサンプラー(O式)によるガス成分調査、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	通年調査	通年調査	通年調査
データの公表	国立環境研究所地球環境研究センターホームページ(http://www-cger.nies.go.jp/acid/acid0.htm)に掲載	国立環境研究所地球環境研究センターホームページ(http://www-cger.nies.go.jp/acid2/acid2-0.htm)に掲載	国立環境研究所地球環境研究センターホームページ(http://www-cger.nies.go.jp/acid3/acid3-index.html)に掲載	国立環境研究所地球環境研究センターホームページに掲載予定	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	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	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4年度)) 全国公害研会誌 VOL.22, NO.4, (第2次酸性雨全国調査報告書(平成8年度)) 全国公害研会誌 VOL.23, NO.4, (第2次酸性雨全国調査報告書(平成9年度))	全国環境研会誌 VOL.26, NO.2, (第3次酸性雨全国調査報告書(平成11年度)) 全国環境研会誌 VOL.27, NO.2, (第3次酸性雨全国調査報告書(平成12年度)) 全国環境研会誌 VOL.28, NO.3, (第3次酸性雨全国調査報告書(平成11～13年度))	全国環境研会誌 VOL.30, NO.2, (第4次酸性雨全国調査報告書(平成15年度)) 全国環境研会誌 VOL.31, NO.3, 4, (第4次酸性雨全国調査報告書(平成16年度)) 全国環境研会誌 VOL.32, NO.3, 4, (第4次酸性雨全国調査報告書(平成17年度)) 全国環境研会誌 VOL.33, NO.3, 4, (第4次酸性雨全国調査報告書(平成18年度)) 全国環境研会誌 VOL.34, NO.3, 4, (第4次酸性雨全国調査報告書(平成19年度)) 全国環境研会誌 VOL.35, NO.3, 4, (第4次酸性雨全国調査報告書(平成20年度))	全国環境研会誌 VOL.36, NO.3, (第5次酸性雨全国調査報告書(平成21年度)) 全国環境研会誌 VOL.37, NO., (第5次酸性雨全国調査報告書(平成22年度))			

表 2.1.1 調査地点の属性および調査内容

支庁	都道府県名	地点名	調査機関名	排出量 ⁽¹⁾ (t km ² y ⁻¹)			地域区分 ⁽²⁾	緯度 (度)	経度 (度)	属性 ⁽³⁾	観性 ⁽⁴⁾			標高 (m)	海岸からの 距離(km)	サンパ-設置 位置 ⁽⁵⁾	土地利用など		
				SO ₂	NO _x	NH ₃					FP	〇式	自動						
北海道	北海道	札幌	北海道立総合研究機構 環境科学研究所	1.27	0.51	0.02	NJ	45.12	141.21	☆	○	○	○	40	0.8	地上高3m	未指定(住、農)		
		天塩VRS	北海道立総合研究機構 環境科学研究所	0.01	0.09	0.50	NJ	45.06	142.10		◆			70	30.0	地上高8m	未指定(森林)		
		稚子里	北海道立総合研究機構 環境科学研究所	0.12	0.76	0.49	NJ	44.36	142.27	□	□	□	○	287	40.0	地上高8m	未指定(森林)		
		札幌北	北海道立総合研究機構 環境科学研究所	5.18	26.61	1.07	NJ	43.08	141.33	☆	○	○	☆	12	13.0	地上高9m	住居地域(市街地)		
		樺田	北海道立総合研究機構 環境科学研究所	0.03	0.30	1.00	NJ	43.56	144.51	○	○	○	○	550	30.0	地上高6.5m	未指定(森林)		
		黒松内	北海道立総合研究機構 環境科学研究所	0.03	0.33	0.36	NJ	42.65	140.31	○	○	○	○	87	13.0	地上高5m	未指定(森林)		
		札幌白石	札幌市衛生研究所	5.23	26.81	1.19	NJ	43.06	141.38	○	○	○	○	14	17.0	地上高14m	近接商業地域、市街地		
		札幌手稲	札幌市衛生研究所	4.03	21.06	0.69	NJ	43.15	141.22	○	○	○	○	5	0.7	地上高1.5m	市街地調整区域		
		札幌東野	札幌市衛生研究所	3.79	12.34	0.65	NJ	42.91	141.38	○	○	○	○	295	31.0	地上高8m(2階屋上)	山林		
		青森東道	青森県環境保健センター	1.18	3.59	0.44	NJ	40.83	140.79	○	○	○	○	3	0.7	地上高20m	住居地域(市街地)		
北海道・東北	青森県	郷・武蔵戸	青森県環境保健センター	0.20	1.15	0.51	NJ	40.78	140.24	○	○	○	○	30	0.4	地上高13m	都市計画未指定		
		盛岡	岩手県環境保健研究所	1.21	5.94	1.33	NJ	39.68	141.14	○	○	○	○	131	70.0	地上高12m	準工業地域 市街地		
		八幡平	岩手県環境保健研究所	0.47	1.99	1.15	NJ	39.82	140.94	○	○	○	○	830	89.0	地上高5m	森林地域		
		秋田県	秋田県健康環境センター	4.37	6.14	0.53	NJ	39.72	140.13	○	○	○	○	16	5.5	地上高20m	商業地域		
		山形県	山形県環境科学研究所	0.12	0.71	0.38	NJ	38.55	139.87	○	○	○	○	220	26.0	地上高5m	未指定(森林)		
	福島県	福島天栄	福島県環境センター	0.61	1.22	0.50	EJ	37.25	140.04		○	○	○	941	84.0	地上高1.2m	田園		
		郡山朝日	福島県環境センター	1.32	6.08	1.37	EJ	37.41	140.36		○	○	○	242	60.0	地上高10m	都市		
		郡山堀川	郡山市環境保全センター	1.23	5.27	1.00	EJ	37.41	140.23		○	○	○	392	70.0	地上高10m	田園		
		小名浜	いわき市環境監視センター	13.81	16.92	0.99	EJ	36.96	140.89	○	○	○	○	3	2.5	地上高約1.5m	第1種住居地域		
		新沼倉南	新潟県保健環境科学研究所	2.60	9.40	1.28	JS	37.85	138.94	○	○	○	○	2	3.1	地上高2.5m, FP:3.5m	市街地調整区域		
新潟県	長岡	新潟県保健環境科学研究所	1.87	4.94	0.62	JS	37.45	138.87	○	○	○	○	27	19.0	地上高5m	住居地域			
	新潟大山	新潟市衛生環境研究所	2.76	12.66	1.74	JS	37.94	139.08	○	○	○	○	10	1.2	地上高4m	住居地域			
	新潟坂井	新潟市衛生環境研究所	2.82	9.50	1.64	JS	37.89	138.98	○	○	○	○	0	1.5	地上高3m	住居地域			
	新潟小浜	新潟市衛生環境研究所	2.64	9.75	1.66	JS	37.87	139.00	○	○	○	○	6	1.7	地上高15m	住居地域			
	日光中宮	栃木県保健環境センター	0.13	0.97	0.76	EJ	36.74	139.48	○	○	○	○	1300	95.0	地上高1m	住宅地			
	栃木県	宇都宮 ⁽⁶⁾	栃木県保健環境センター	2.88	10.95	2.79	EJ	36.60	139.94	○	○	○	○	140	65.0	地上高10m	住宅地		
		小山	栃木県保健環境センター	3.13	12.59	3.08	EJ	36.31	139.83	○	○	○	○	35	63.0	地上高6m	住宅地		
		埼玉県	埼玉県環境科学国際センター	2.49	18.24	3.51	EJ	36.09	139.56	○	▲	○	○	13	55.0	地上高11m	農用地域		
		さいたま	さいたま市健康科学研究所	7.46	48.21	6.19	EJ	35.86	139.65	○	○	○	○	15	35.0	地上高15m	商業地域		
		茨城県	上野	茨城県霞ヶ浦市霞成科学センター	1.44	7.73	3.20	EJ	36.08	140.27	○	○	○	○	18	31.0	地上高1m	農地	
関東・甲信・静岡	群馬県	前橋	群馬県衛生環境研究所	4.13	12.96	7.66	EJ	36.40	139.10	○	○	○	○	120	110.0	地上高約20m	市街地調整区域		
		市川	千葉県環境保健研究所	8.63	69.68	4.64	EJ	35.72	139.93	○	▲	○	○	5	6.1	地上高20m	住居地域		
		市原	千葉県環境保健センター	13.96	44.28	3.14	EJ	35.53	140.07	○	○	○	○	1	1.2	Water:FP:5m,〇式:10m	工業地域		
		香取	千葉県環境保健センター	17.03	20.01	4.00	EJ	35.89	140.55	○	▲	○	○	40	15.0	地上高3m	調整区域		
		銚子	千葉県環境保健センター	10.17	8.98	3.92	EJ	35.74	140.74	○	▲	○	○	50	4.5	Water:5m, 〇式:0m	商業地域		
	千葉県	一宮	千葉県環境保健研究所	0.23	1.97	0.97	EJ	35.35	140.38	○	○	○	○	3	1.0	地上高3m	商業地域		
		旭	千葉県環境保健センター	7.68	6.66	4.12	EJ	35.73	140.72	○	▲	○	○	58	4.7	地上高6m	商業地域		
		佐倉	千葉県環境保健研究所	2.96	26.96	3.01	EJ	35.73	140.21	○	▲	○	○	25	19.0	地上高3m	住居地域		
		南房	千葉県環境保健センター	0.18	1.14	0.92	EJ	35.16	140.16	○	○	○	○	360	4.5	地上高6m	未指定(森林)		
		富野本	千葉県環境保健研究所	12.33	42.86	9.97	EJ	35.65	140.10	○	○	○	○	21	4.1	地上高3m	住居系		
神奈川県	平塚	神奈川県環境科学センター	1.42	17.70	3.03	EJ	35.35	139.35	○	○	○	○	9	3.7	地上高約22m	準工業地域			
	川崎	川崎市公害研究所	16.66	71.13	2.94	EJ	35.52	139.71	○	○	○	○	1	1.2	地上高12.9m	住居			
	長野県	長野	長野県環境保全研究所	1.33	4.76	0.61	CJ	36.64	138.18	○	○	○	○	363	52.5	地上高15m(FP:3m)	第1種住居		
		静岡小浜	静岡県環境保健研究所	3.29	10.23	1.42	CJ	34.97	138.40	○	○	○	○	14	3.6	地上高14m	住居地域(市街地)		
		静岡北安	静岡県環境衛生科学研究所	3.15	9.89	1.38	CJ	35.00	138.39	○	○	○	○	10	7.1	地上高9.3m	市街地調整区域		
		富山県	富山県	富山県環境科学センター	6.11	16.56	1.80	JS	36.70	137.10	○	▲	○	○	22	8.0	Water:地上高12.5m	第一種中高層住宅専用地域	
			石川町	石川県保健環境センター	2.74	6.93	1.12	JS	36.53	136.71	○	○	○	○	120	14.0	地上高14m	第2種住居専用地域	
	福井県		福井県衛生環境研究所	2.41	7.77	0.80	JS	36.07	136.26	○	○	○	○	11	18.0	地上高9m	市街地調整区域		
	岐阜県		伊自良瀬	2.00	5.52	1.54	CJ	35.57	136.70	☆	☆	○	☆	140	60.0	地上高4.3m	林地		
	近畿・東海・北陸		愛知県	豊橋	愛知県環境調査センター	2.36	10.81	4.18	CJ	34.74	137.38	○	▲	○	○	20	6.0	地上高8m(屋上2階)	住居地域
名古屋		名古屋環境科学研究所	13.05	53.43	4.44	CJ	35.10	136.92	○	○	○	○	0	3.0	地上高19.2m	準工業地域			
三重県		四日市市街	4.10	17.71	2.31	CJ	34.99	136.49	○	○	○	○	190	15.1	地上高15m	郊野			
滋賀県		大津柳が崎	滋賀県琵琶湖環境科学研究所	3.92	17.74	1.34	CJ	35.03	135.87	○	○	○	○	87	53.0	地上高約28m	住宅地		
京都府		京都府津	京都府保健環境研究所	1.85	13.84	1.98	CJ	34.74	135.83	○	○	○	○	32	38.0	地上高約15m	住宅地		
		京都府京	京都府保健環境研究所	0.39	1.10	0.27	JS	35.70	135.16	○	○	○	○	80	7.0	地上高5m	未指定(森林)		
		京都府生	京都市衛生環境研究所	3.96	17.81	1.65	CJ	35.00	135.73	○	○	○	○	26	47.0	地上高21m	準工業地域(市街地)		
		大阪府	大阪府環境農林水産総合研究所	6.96	66.99	6.04	CJ	34.68	135.54	○	○	○	○	2	15.0	地上高20m(屋上)	準工業地域		
		兵庫県	神戸市御影 (財) びよー環境創造協会 兵庫県環境保健センター	10.20	30.41	1.05	CJ	34.65	135.13	○	○	▲	○	15	0.8	地上高約17m	準工業地域		
和歌山県		奈良県	奈良県保健環境研究所	1.75	13.03	2.04	CJ	34.68	135.82	○	○	○	○	94	35.0	地上高約11m	商業		
	和歌山県	海南	和歌山県環境衛生研究所	9.97	14.10	1.12	CJ	34.16	135.21	○	○	▲	○	3	0.4	地上高12.5m(2階上)	市街地調整区域		
		若桜	鳥取県衛生環境研究所	0.03	0.50	0.30	JS	35.35	134.49	○	○	○	○	800	28.1	地上高2.5m	未指定		
		鳥取県	鳥取県衛生環境研究所	0.25	1.30	0.86	JS	35.49	133.89	○	○	▲	○	2	1.3	地上高11m(2階上)	未指定		
		島根県	松江	島根県保健環境科学研究所	0.46	2.49	0.56	JS	35.47	133.01	○	○	○	○	5	6.0	地上設置	区域外	
		広島県	広島安佐南	広島市衛生研究所	3.35	12.32	1.04	WJ	34.46	132.41	○	○	○	○	80	11.0	1階屋上+1.5m高	住居地域	
	山口県	山口県	山口県環境保健センター	2.28	5.84	0.63	WJ	34.15	131.43	○	○	○	○	13	13.0	地上高1m(FP, 〇式:5.8m)	住居		
		徳島県	徳島	徳島県保健環境センター	2.04	8.03	1.76	CJ	34.07	134.56	○	○	○	○	18	3.0	地上高18m	住居地域	
		高知県	香北	高知県環境研究所	0.04	0.46	0.18	WJ	33.71	133.86	○	○	○	○	236	21.0	3階屋上(1.14m)	区域外	
		福岡県	太宰府	福岡県保健環境研究所	3.94	21.34	1.90	WJ	33.51	130.50	○	○	○	○	27	18.0	地上高18m, (FP:1.5m)	市街地調整区域	
福岡			福岡市保健環境研究所	2.43	14.89	1.38	WJ	33.50	130.31	○	○	○	○	190	9.2	地上高10m(FP:1.5m)	市街地調整区域		
佐賀県	佐賀県環境センター		2.50	6.92	1.63	WJ	33.27	130.27	○	○	○	○	4	11.0	地上高8.5m(屋上)	第1種住居地域			
長崎県	諫早		長崎県保健環境科学研究所	5.88	7.58	1.30	WJ	32.86	130.04	○	○	○	○	23	4.0	地上高10m	住居地域(市街地)		
阿蘇	熊本県保健環境科学研究所		0.30	1.33	1.72	WJ	32.97	131.05	○	○	▲	○	480	46.0	地上高1m	未指定			
熊本県	宇土	熊本県保健環境科学研究所	2.07	8.38	1.47	WJ	32.67	130.65	○	○	○	○	20	2.7	地上高1m	未指定			
	熊本	熊本県環境保健研究所	1.71	8.83	3.66	WJ	32.78	130.76	○	○	▲	○	40	12.9	Water:地上高9m, (バッシン:10m)	住宅地域			
	大分県	大分県衛生環境研究所	0.16	0.80	1.29	WJ	33.02	131.15	○	○	○	○	560	35.0	地上高4.7m	木質採取管理地			
	宮崎県	宮崎	宮崎県衛生環境研究所	0.56	3.25	1.44	WJ	31.83	131.02	○	○	○	○	20	3.5	地上高14m(屋上)	都市計画調整(準工業地域)		
	鹿児島県	鹿児島	鹿児島県環境保健センター	7.41	5.98	1.37	WJ	31.35	130.34	○	▲	1	9.1	Water:地上高4.5m, (FP:21m)	準工業地域				
	沖縄県	大里	沖縄県衛生環境研究所	6.30	7.83	2.08	SW	26.19	127.75	○	○	▲	○	109	1.8	地上高8m(2階屋上)	未指定		
		辺戸岬	沖縄県衛生環境研究所	0.00	0.05	0.35	SW	26.87	128.25	☆	☆	☆	☆	60	0.2	地上高1.5m	特別地域		
		調査地点数														66	36	38	19

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。

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(R_1)および電気伝導率バランス(R_2)により、基準範囲を超える場合は、再分析を行うなどの精度管理を行っている。また、分析精度の確保に関しては、環境省のモニタリングネットワーク(以下、JADS)の測定局を対象に行われている分析機関間比較調査に本調査参加機関も多数参加し、全環研としても解析を行うことにより、分析データの信頼性を確保している。

表 2.1.2 調査期間の季節・月区分

季節	月	平成23年度	週
春	4	3月28日 ~ 4月25日	4
	5	4月25日 ~ 6月6日	6
夏	6	6月6日 ~ 7月4日	4
	7	7月4日 ~ 8月1日	4
秋	8	8月1日 ~ 8月29日	4
	9	8月29日 ~ 9月26日	4
	10	9月26日 ~ 11月7日	6
	11	11月7日 ~ 12月5日	4
冬	12	12月5日 ~ 1月4日	4
	1	1月4日 ~ 1月30日	4
	2	1月30日 ~ 2月27日	4
春	3	2月27日 ~ 3月26日	4

注) 週単位の試料交換日は原則として月曜日とした。

表 2.1.3 全国環境研協議会・酸性雨広域大気汚染調査研究部会組織

部会役職	所 属	氏 名	担当 年度	報告書等 担当部分
部会長	川崎市公害研究所 (現 川崎市環境総合研究所)	広瀬 健二	H23	
	"	山田 健二郎	H24	
理事委員	さいたま市健康科学研究センター	宮崎 元伸	H23-24	
理事委員代理	さいたま市健康科学研究センター	市川 浩之	H23	
	"	城 裕樹	H24	
支部委員	青森県環境保健センター	岩間 貴士	H23	D
	"	松倉 祐介	H24	D
	埼玉県環境科学国際センター	松本 利恵	H23-24	D, 5.3章
	名古屋市環境科学調査センター	大場 和生	H23-24	D
	島根県保健環境科学研究所	田部 貴大	H23-24	D
	福岡県保健環境研究所	濱村 研吾	H23-24	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	野口 泉	H23-24	3章
委 員	"	山口 高志	H23-24	6章
	宮城県保健環境センター	北村 洋子	H23-24	6章
	新潟県保健環境科学研究所	家合 浩明	H23-24	
	"	遠藤 朋美	H24	5.1-5.2章
	千葉県環境研究センター	横山 新紀	H23-24	6章
	富山県環境科学センター	木戸 瑞佳	H23-24	5.1-5.2章
	三重県保健環境研究所	西山 亨	H23-24	4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	H23-24	1-4章
	高知県環境研究センター	武市 佳子	H23	
	広島市衛生研究所	山水 敏明	H24	
	宮崎県衛生環境研究所	中村 雅和	H23-24	5.1-5.2章
	沖縄県衛生環境研究所	岩崎 綾	H23-24	4章
	国立大学法人東京農工大学 農学部	松田 和秀	H23-24	
	独立行政法人国立環境研究所 地球環境研究センター	向井 人史	H23-24	
有識者	法政大学 生命科学部	村野 健太郎	H23-24	
	環境省	山本 陽介	H23	
	"	後藤 隆久	H24	
	財団法人日本環境衛生センター アジア大気汚染研究センター	大泉 毅	H23-24	
事務局	川崎市公害研究所 (現 川崎市環境総合研究所)	松尾 清孝	H23	
	"	小塚 義昭	H24	
	"	竹内 淨	H23-24	
	"	財原 宏一	H23-24	

注) 「報告書担当部分」におけるDはデータ収集、数字は報告書の章を表す。

表 2.2.1 測定項目別の捕集ろ紙

項 目	捕集ろ紙名
F P	粒子状成分
	テフロン(PTFE)
	HNO ₃
	SO ₂
	HCl
パ ッ シ ブ	NH ₃
	NO ₂
	NO _x
	NH ₃
	O ₃
	(SO ₂)*
	*第5次調査では測定対象外

2.2.2 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)方法である小川式パッシブ法(以下、パッシブ法)を用いている。

2011年度のパッシブ法の調査地点は、それぞれ38地点である。調査地点は大都市(たとえば県庁所在地)・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また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。

パッシブ法は、THE OGAWA SAMPLERとして欧米でもモニタリングに用いられている方法であり、測定方法としてはFP法と同様に世界的にもよく知られている。本方法は、拡散長抵抗方法が用いられ、濃度と捕集量の関係が理論的に証明されており、他の方法と比較することなく濃度の算出が可能である。また捕集効率が100%に近く、分子拡散係数が得られれば、他の成分でも測定が可能である。しかし、抵抗が大きく、ブランク値および分析の定量下限値の影響を受けやすい。とくにSO₂に関しては、都市部以外の地域では精度の高い測定結果を得るのは困難であるため第5次調査では測定対象となっていない。しかし、従来のマニュアル⁷⁾で用いられていたトリエタノールアミン(TEA)ではなく、K₂CO₃により改良された低濃度用ろ紙の測定結果と、従来法との換算式も報告されている⁸⁾。これを受け、メーカーからK₂CO₃含浸ろ紙が市販されるようになった。このことにより、従来のマニュアル⁷⁾に加えて、マニュアルとは異なる点を含む全環研用パッシブ法のマニュアル補足版が作成される予定である。

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

2011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、Kannari ら(2007)⁹⁾による2000年度ベースのSO₂、NO_xおよびNH₃排出量の情報を用いて、必要に応じて排出量別の解析を実施した。それぞれの排出量は3次メッシュ(約1km四方)で得られており、調査地点周辺(半径20km相当：対象範囲は、測定地点を中心とした半径20kmの円内に3次メッシュの中心点が存在するメッシュとした。)の排出量を算出した。

— 参考文献 —

- 1) 母子里のデータは、北大北方生物圏フィールド科学センターとの共同研究による。
- 2) 天塩 FRS のデータは、国立環境研地球環境研究センター、北大北方生物圏フィールド科学センターおよび北大工学研究科との共同研究による。
- 3) 環境省環境保全対策課：湿性沈着モニタリング手引き書(第2版)、2001、http://www.env.go.jp/air/acidrain/man/wet_deposi/index.html
- 4) 全環研：第3次酸性雨全国調査報告書(平成11～13年度のまとめ)、全国環境研会誌、28、2-196、2003
- 5) 松本光弘、村野健太郎：インフ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)、2010年8月、<http://www.city.yokohama.lg.jp/kankyo/mamoru/kenkyu/shiryo/pub/d0001/d0001.pdf>
- 8) 恵花孝昭、野口泉、樋口慶郎、2009、O式パッシブサンブラー法におけるSO₂捕集剤の検討(第2報)、第50回大気環境学会年会講演要旨集、p.437
- 9) A. Kannari, Y. Tonooka, T. Baba, K. Murano: Development of multiple-species 1 km × 1 km resolution hourly basis emissions inventory for Japan, *Atmos. Environ.*, **41**, 3428-3439, 2007

3. 気象概況および大気汚染物質排出量の状況

降水量が多い場合、湿性沈着成分濃度は低下するが、沈着量は増加する。また気温および日射は乾性沈着成分の生成や存在形態に影響すると考えられる。一方、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则认为られる。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 2011年度の気象概況

2011年度の主な特徴は、春の全国的な低温と夏から秋にかけての全国的な高温、多くの地方でのかなり早い梅雨入り・梅雨明け、7月の新潟・福島豪雨や9月の台風第12号と台風第15号による記録的な大雨である。

年平均気温は北日本から西日本にかけて平年並で、沖縄・奄美では低かった。年降水量は北・東日本日本海側、西日本で多く、とくに北日本日本海側ではかなり多かった。年間日照時間は西日本、沖縄・奄美で少なく、とくに沖縄・奄美ではかなり少なかった。

春の平均気温は全国で低く、とくに西日本と沖縄・奄美では、かなり低かった。日本海を通る低気圧や前線の影響を受けることが多く、北・東日本日本海側では降水量がかなり多く、日照時間は少なかった。

夏の平均気温は、全国的に高く、北日本では平年を1℃以上上回った。しかし、太平洋高気圧が弱まって気温が平年を下回る時期もあるなど気温の変動が全国的に大きかった。降水量は、西日本で多く、北日本日本海側、東日本では平年並、北日本太平洋側、沖縄・奄美では少なかった。7月には新潟・福島豪雨により甚大な災害が発生した。そのほか、台風や前線、湿った気流などの影響により各地で大雨となった時期があった。日照時間は、西日本で少なく、北・東日本、沖縄・奄美では平年並だった。

秋の平均気温は、東・西日本、沖縄・奄美でかなり高く、北日本では高かった。東・西日本では平年を1℃以上上回った。降水量は、北日本日本海側、西日本太平洋側でかなり多く、北日本太平洋側、東日本、西日本日本海側、沖縄・奄美では多かった。9月には、月のはじめは台風第12号の

表 3.1.1 気 象 概 況 (<http://www.jma.go.jp/jma/press/tenko.html>)

平均気温	
4月	西日本と沖縄・奄美ではかなり低く、東日本、東北地方で低かった。一方、北海道地方では高かった。
5月	北海道地方と沖縄・奄美で低く、特に北海道地方では平年を1℃以上下回ったところが多かった。東北地方、東日本、西日本では平年並であった。
6月	全国的に高く、沖縄・奄美でかなり高かった。東日本では平年を1℃以上上回った。
7月	北日本から西日本にかけて高く、北・東日本では平年を1℃以上上回った。沖縄・奄美では平年並であった。
8月	北日本で高く、東・西日本、沖縄・奄美では平年並だった。
9月	全国的に高く、北・東日本では平年を1℃以上上回った。
10月	北日本で高く、東・西日本、沖縄・奄美で平年並だった。
11月	全国的に平年を1℃以上上回り、東・西日本、沖縄・奄美でかなり高く、北日本で高かった。松江(島根県)、福岡、徳島、西表島(沖縄県)など19地点で11月の月平均気温の高い方からの一位を更新した。
12月	北日本から西日本にかけて低く、北日本では平年を1℃以上下回った。沖縄・奄美では平年並だった。
1月	北日本から西日本にかけて低く、北日本では平年を1℃以上下回った。沖縄・奄美では平年並だった。
2月	北日本から西日本にかけて低く、平年を1℃以上下回った。沖縄・奄美では平年並だった。
3月	北日本で低く、東・西日本で平年並だった。沖縄・奄美では高かった。
降水量	
4月	西日本太平洋側ではかなり少なく、東日本太平洋側、西日本日本海側、沖縄・奄美で少なかった。一方、北日本と東日本日本海側では多かった。
5月	東日本、西日本、沖縄・奄美ではかなり多く、北日本で多かった。新庄(山形県)、名古屋(愛知県)、京都、宮古島(沖縄県)など全国22地点で5月の降水量の最大値を更新した。
6月	北日本日本海側ではかなり多く、西日本で多かった。酒田(山形県)、雲仙岳(長崎県)、人吉(熊本県)、阿久根(鹿児島県)など全国6地点で6月の降水量の最大値を更新した。北日本太平洋側、東日本日本海側では平年並で、東日本太平洋側、沖縄・奄美では少なかった。
7月	北日本太平洋側、西日本日本海側、沖縄・奄美で少なく、北日本日本海側、東日本では平年並であった。西日本太平洋側では多かった。
8月	西日本日本海側で多く、北日本日本海側、東日本、西日本太平洋側、沖縄・奄美では平年並であった。北日本太平洋側では少なかった。
9月	北日本、東日本日本海側、西日本太平洋側でかなり多く、これらの地域では平年の300%を上回ったところもあった。東日本太平洋側、西日本日本海側では多く、沖縄・奄美では少なかった。留萌(北海道)、日光(栃木県)、徳島、南大東島(沖縄県)など全国7地点で9月の降水量の最大値を更新した。
10月	沖縄・奄美でかなり多く、西日本で多かった。延岡(宮崎県)では10月の月降水量の多い方からの一位を更新した。北日本日本海側、北・東日本太平洋側では平年並で、東日本日本海側では少なかった。
11月	沖縄・奄美でかなり多く、西日本で多かった。日田(大分県)、福江(長崎県)では11月の月降水量の多い方からの一位を更新した。東日本では平年並で、北日本日本海側では少なく、北日本太平洋側ではかなり少なかった。
12月	北・東日本日本海側で多かった。岩見沢(北海道)、三宅島(東京都)、境(鳥取県)では12月の月降水量の多い方からの一位を更新した。北・東日本太平洋側、西日本、沖縄・奄美では平年並だった。降雪の深さ月合計は、北日本日本海側、西日本日本海側で多く、北日本太平洋側、東日本では平年並だった。紋別(北海道)では、12月の降雪の深さ月合計値の多い方からの一位を更新した。西日本太平洋側では少なかった。月最深積雪は、北日本を中心に全国で平年を上回ったところが多かった。岩見沢(北海道)では、12月の月最深積雪の大きい方からの一位を更新した。
1月	北日本、西日本日本海側で少なく、東日本、西日本太平洋側、沖縄・奄美で平年並だった。舞鶴(京都府)では1月の月降水量の多い方からの一位を更新し、人戸(青森県)では1月の月降水量の少ない方からの一位を更新した。降雪の深さ月合計は、東・西日本日本海側では平年並で、北日本では少なかったが、平年を上回った地点もあった。月最深積雪は、全国の多くの地点で、多いもしくは平年並となった。岩見沢(北海道)では、1月の月最深積雪の大きい方からの一位を更新した。
2月	西日本日本海側でかなり多く、北日本日本海側、東日本、西日本太平洋側で多かった。北日本太平洋側、沖縄・奄美で平年並だった。降雪の深さ月合計は、西日本日本海側でかなり多く、北日本太平洋側、東日本日本海側で多かった。北日本日本海側、東・西日本太平洋側では平年並だった。月最深積雪は、全国で平年を上回った所が多かった。岩見沢(北海道)、舞鶴(京都府)では、2月の月最深積雪の大きい方からの一位を更新した。
3月	東日本日本海側でかなり多く、北・東日本太平洋側、西日本で多かった。北日本日本海側では平年並で、沖縄・奄美では少なかった。酒田(山形県)、福島、上野(三重県)、鳥取、奈良では3月の月降水量の多い方からの一位を更新した。降雪の深さ月合計は、北日本日本海側で少なく、東・西日本日本海側で平年並だった。北日本太平洋側ではかなり多かった。月最深積雪は、北日本を中心に平年を上回った所が多かった。
日照時間	
4月	東日本から西日本にかけての太平洋側と沖縄・奄美ではかなり多く、西日本日本海側で多かった。一方、北日本では少なく、東日本日本海側は平年並だった。
5月	全国で少なく、特に、北日本日本海側、西日本日本海側、沖縄・奄美でかなり少なかった。沖永良部(鹿児島県)、那覇、名護、久米島(以上、沖縄県)の4地点で5月の月間日照時間の最小値を更新した。
6月	西日本でかなり少なく、北日本日本海側、東日本太平洋側で少なかった。雲仙岳、福江(以上、長崎県)の2地点で6月の月間日照時間の最小値を更新した。北日本太平洋側、東日本日本海側、沖縄・奄美では平年並だった。
7月	北・東日本太平洋側、西日本日本海側で多かった。北・東日本日本海側、西日本太平洋側では平年並で、沖縄・奄美では少なかった。
8月	北日本日本海側で多く、北日本太平洋側、東日本、西日本太平洋側、沖縄・奄美では平年並であった。西日本日本海側では少なかった。
9月	東日本でかなり多く、西日本日本海側で多かった。西日本太平洋側、沖縄・奄美では平年並で、北日本では少なかった。苫小牧、広尾(以上、北海道)で9月の月間日照時間の最小値を更新した。
10月	沖縄・奄美でかなり少なく、西日本で少なかった。北日本、東日本太平洋側では平年並で、東日本日本海側では多かった。石垣島(沖縄県)で10月の月間日照時間の少ない方からの一位を更新した。
11月	沖縄・奄美でかなり少なく、東・西日本で少なかった。久米島(沖縄県)では11月の月間日照時間の少ない方からの一位を更新した。北日本太平洋側では多く、北日本日本海側ではかなり多かった。
12月	東・西日本日本海側、沖縄・奄美でかなり少なく、北日本日本海側で少なかった。与那国島、西表島(以上、沖縄県)では12月の月間日照時間の少ない方からの一位を更新した。北日本から西日本にかけての太平洋側では平年並だった。
1月	沖縄・奄美でかなり少なく、東日本で少なかった。名瀬、沖永良部(以上、鹿児島県)、名護(沖縄県)では1月の月間日照時間の少ない方からの一位を更新した。一方、北日本太平洋側ではかなり多く、北日本日本海側で多かった。広尾(北海道)では1月の月間日照時間の多い方からの一位を更新した。西日本では平年並だった。
2月	西日本でかなり少なく、北日本日本海側、東日本、沖縄・奄美で少なかった。西郷(島根県)では2月の月間日照時間の少ない方からの一位を更新した。北日本太平洋側では平年並だった。
3月	北日本太平洋側でかなり少なく、北日本日本海側、東・西日本で少なかった。広尾(北海道)、むつ(青森県)で3月の月間日照時間の少ない方からの一位を更新した。沖縄・奄美では平年並だった。

影響により、また下旬はじめは台風第15号の影響により、全国的に大雨となった。日照時間は、沖縄・奄美ではかなり少なく、北日本日本海側、西日本で少なかった。北日本太平洋側では平年並で、東日本太平洋側では多く、東日本日本海側ではかなり多かった。

冬の平均気温は、北日本から西日本にかけて低く、北日本では平年を1℃以上下回った。沖縄・奄美では平年並だった。冬の降水量は、東・西日本日本海側で多く、北日本、東・西日本太平洋側、沖縄・奄美で平年並だった。冬の降雪の深さ合計は、東・西日本日本海側で多く、北日本、東日本太平洋側で平年並だった。西日本太平洋側では少なかった。日照時間は、東・西日本日本海側、沖縄・奄美でかなり少なく、北日本日本海側、東・西日本太平洋側で少なかった。北日本太平洋側では多かった。

黄砂観測日数は5月が多かった。前年度41日に対し、14日と減少した²⁾。

2011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排出量が漸減したとの報告⁷⁾もあるが、その排出量はいままであり、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⁸⁾。

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

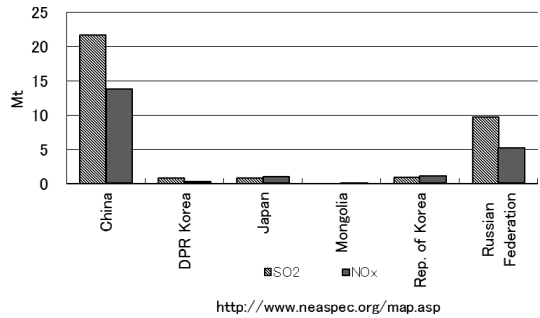


図 3.2.1 北東アジアのSO₂およびNO_x排出量(2000年)²⁾

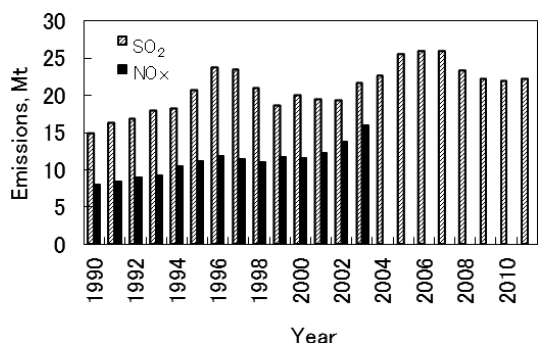


図 3.2.2 中国におけるSO₂およびNO_x排出量^{3,4)}

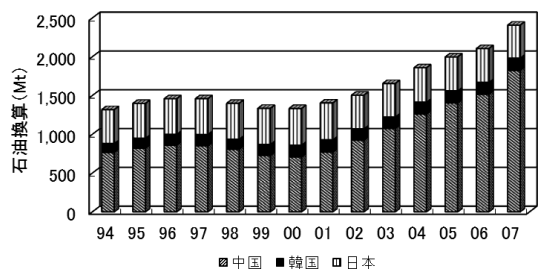


図 3.2.3 中国、韓国および日本のエネルギー消費のトレンド⁵⁾

路などの幹線道路近傍の排出量が多い⁹⁾。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¹⁰⁾。

—参考文献—

- 1) 気象庁報道発表資料, <http://www.jma.go.jp/jma/press/tenko.html>, 2012
- 2) 気象庁:黄砂, <http://www.data.kishou.go.jp/obs-env/>

- kosahp/kosa_data_index.html, 2012
- 3) North East Asia Sub-regional Programme for Environment Cooperation (NEASPEC), NEASPEC AND THE ENVIRONMENTAL PROFILES, <http://www.neaspec.org/map.asp>, 2008
 - 4) 国家環境保護总局: http://jcs.mep.gov.cn/hjzl/zkgb/2011zkgb/201206/t20120606_231049.htm, 2012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/>, 2012
 - 7) 大原利眞: 東アジアにおける広域越境大気汚染モデリングの最新動向, 水環境学会誌, **35**, 6-9, 2012
 - 8) 気象庁: 火山, <http://www.seisvol.kishou.go.jp/tokyo/volcano.html>, 2012
 - 9) A. Kannari, Y. Tonooka, T. Baba, K. Murano: Development of multiple-species 1 km × 1 km resolution hourly basis emissions inventory for Japan, *Atmos. Environ.*, **41**, 3428-3439, 2007
 - 10) 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、2011年度のとりまとめについて報告する。

2011年度の湿性沈着調査に対し、49機関66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、2011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/dataset/acidrain/ja/index.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前に、各機関の測定データの精度について、以下の評価を行った。

4.1.1 データの完全度

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

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。

2011年度は、月間データでは790個中10データ(1.3%)が除外され、年間データでは66地点すべてが完全度を満たしており除外されたデータはなかった。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。

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)」²⁾に従って、イオンバランス(以下、R₁)および電気伝導率バランス(以下、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

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

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

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

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

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

Λ_{obs} : 降水試料の電気伝導率測定値

および分析は、原則週単位で行われているため、本来、 R_1 および R_2 は個々の試料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、 R_1 および R_2 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や、年間での加重平均値が許容範囲内であった場合でも月単位の加重平均値の多くが月数許容範囲外である場合は解析対象となりえるか検討した。その結果、2011年度は66地点中、 R_1 および R_2 で2地点(3.0%)を除外した。完全度とあわせると2011年度は66地点中、2地点(3.0%)が除外された。

完全度および年間の加重平均値が R_1 および R_2 の基準を満たした地点の月間データにおいて、 R_1 による評価では、全ての項目が測定された756個のデータ中、 R_1 が許容範囲内にあったデータは734個(適合率97.1%)であった。同様に、 R_2 による評価では、 R_2 が許容範囲内にあったデータは738個(適合率97.6%)であった。 R_1 および R_2 の分布を図4.1.1に示す。2003～2010年度における R_1 および R_2 の適合率は、 R_1 : 92～96%、 R_2 : 97～98%の範囲にあり高いレベルで保たれている^{1,3,4,5,6,7,8,9)}。

756個のデータ中、 R_1 または R_2 が許容範囲外であったデータは38個(5.0%)であった。許容範囲外データのうち、 $R_1 > 0$ かつ $R_2 > 0$ となったデータがもっとも多く(15個(39%))、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。 $R_1 < 0$ かつ $R_2 > 0$ となったデータが次に多く(12個(32%))、測定の際に陰イ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、2011年度は全環研会員

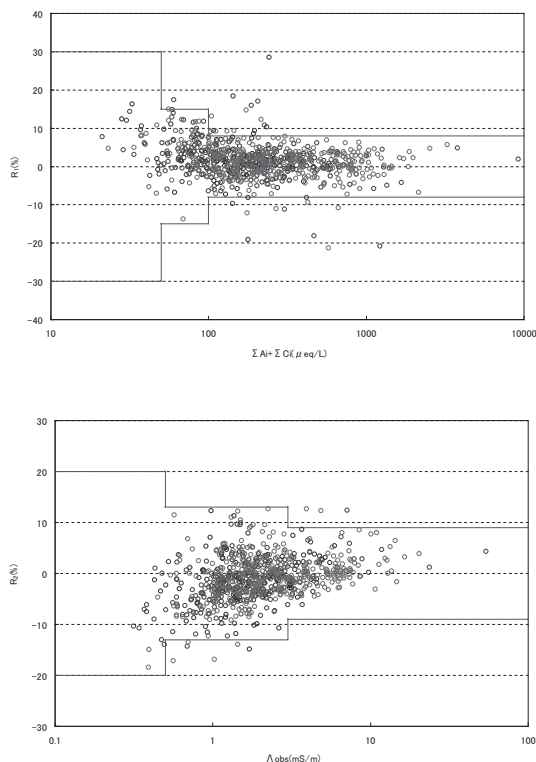


図 4.1.1 イオンバランス(R_1)と総イオン濃度($\Sigma A_i + \Sigma C_i$)および電気伝導率バランス(R_2)と実測値との比較

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35機関(以下、精度管理参加機関)がこの調査に参加した。このうち全環研に湿性沈着の結果を報告している機関(以下、全環研報告機関)は30機関であった。

測定成分ごとのフラグ数と相対標準偏差を表4.1.2に示す。フラグ数は、東アジア酸性雨モニタリングネットワーク(EANET)の精度管理目標値(DQOs: Data Quality Objectives, 分析の正確さ: $\pm 15\%$)を用い、DQOsの2倍まで($\pm 15\% \sim \pm 30\%$)の測定値にはフラグEを、DQOsの2倍($\pm 30\%$)を超える測定値にはフラグXを付けて判定した。相対標準偏差を求める際には、分析精度管理調査結果報告書¹⁰⁾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98.3%、フラグEまたはフラグXが付いたデー

表 4.1.2 平成23年度分析精度管理調査におけるフラグ数と相対標準偏差

	pH	EC	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	NH ₄ ⁺
高濃度試料	フラグE	0	0	0	0	0	1	0	1	1
	フラグX	0	1	0	0	0	2	0	0	0
	相対標準偏差	1.2% (n=34)	2.4% (n=34)	2.7% (n=35)	3.7% (n=34)	2.5% (n=34)	2.5% (n=33)	6.4% (n=35)	5.0% (n=34)	3.1% (n=34)
低濃度試料	フラグE	0	1	4	3	1	3	9	5	8
	フラグX	0	1	0	0	0	0	6	0	1
	相対標準偏差	1.0% (n=34)	4.4% (n=34)	6.3% (n=34)	5.8% (n=35)	3.2% (n=34)	5.2% (n=33)	18.7% (n=35)	10.1% (n=35)	11.8% (n=34)

タは、それぞれ0.9%および0.9%であった。また、低濃度試料では、DQOsを満たすデータが87.7%、フラグEまたはフラグXが付いたデータは、それぞれ10.0%および2.3%であった。2010年度⁹⁾に比較して、高濃度試料は、分析精度がほぼ維持されているものの、低濃度試料については、悪化がみられた。フラグは陽イオン(とくに低濃度試料)において、多く付与された。

一方、国設局管理機関(20機関)が2011年度に行った精度管理調査¹⁰⁾では、高濃度試料ではDQOsを満たすデータが99.0%、フラグEまたはフラグXが付いたデータは、それぞれ1.0%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98.5%、フラグEまたはフラグXが付いたデータは、それぞれ1.0%および0.5%であった。陽イオンの分析データの一部にフラグがついた。

次に、精度管理参加機関間でバラツキの大きな成分を確認するため、各成分の測定結果の相対標準偏差を比較した。高濃度試料については7%以下、低濃度試料では19%以下であった。特に低濃度試料のK⁺とMg²⁺のバラツキが大きかった。国設管理機関が2011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13%以下であった。

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

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、低濃度試料ともに陽イオンであり、また、陽イオンにフラグの付

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、全体の精度改善につながることを期待される。また、pHではフラグ付与数が0であり、バラツキも小さいが、H⁺濃度に換算すると、大きなバラツキが予想される。R₁およびR₂の計算過程ではH⁺濃度として効いてくると、実際の降水試料の評価ではH⁺沈着量としての評価も重要であることなどから、pHについては、H⁺濃度として測定機関間のバラツキがより小さくなるよう努力していく必要性が考えられる。

続いて、イオン成分の定量下限値とフラグ付与の関係について調べた。定量下限値は、イオン成分分析用検量線を作成する際の最低濃度標準液を5回以上の繰り返し測定したときの標準偏差(s)から求められる。検出下限値は3s(μmol L⁻¹)、定量下限値は10s(μmol L⁻¹)として計算される。このため、定量下限値は、イオン類測定の際の定量値のバラツキ度合いとみなすことができる。イオン成分の定量下限値が定量下限値に係るDQOsを満たしていない機関数と、その機関のうち分析精度管理調査でフラグが付与された機関数について表 4.1.3 に示す。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、SO₄²⁻(8機関(23%))、Ca²⁺(7機関(20%))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、K⁺で3機関、Mg²⁺で2機関、SO₄²⁻、Ca²⁺で1機関でありNO₃⁻、Cl⁻、Na⁺、NH₄⁺およびではみられなかった。以上のことと前述のフラグ数から、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かった。

さらなる分析精度向上のためには、日常の実降

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 n = 35

	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	8	3	4	4	3	7	4	2
上記機関のうち、低濃度試料のフラグがついた機関数	1	0	0	0	3	1	2	0
上記機関のうち、高濃度試料のフラグがついた機関数	0	0	0	0	2	0	1	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								

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 n = 514

	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	NH ₄ ⁺	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	EC
推奨値 (単位: μmol 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	1	5	9	0	3	13	4	12	8
全データ数に占める割合	(0.2%)	(1.0%)	(1.8%)	(0.0%)	(0.6%)	(2.5%)	(0.8%)	(2.3%)	(1.6%)

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

4.1.3 フィールドブランク

フィールドブランク試験を実施するごとに、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⁵⁾。

2011年度調査において、FB 試験は40地点(全66地点の62%)にて計514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および割合を示した。超過したデータ割合が高い順に K⁺ で2.5%(13回)、Mg²⁺ で2.3%(12回)、次いで Cl⁻ で1.8%(9回)、電気伝導率(EC)で1.6%(8回)、NO₃⁻ で1.0%(5回)であり、その他イオンでは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とんどの地点で適正に実施されていることが示されたが、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、流路からの汚染を低減化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。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、2011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%以上の地点のデータを有効とした。なお、試料採取時にオーバーフローがあり、降水量の算出ができない試料については、近接の気象観測所等の降水量データを採用した。

4.2.1 降水量および酸性成分濃度による地域区分

地域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。地点ごとの地域区分を、図 4.2.1 および表 4.2.1 に示す。なお、地域区分の設定方法等については、既報¹⁾を参照いただきたい。

4.2.2 pH, EC およびイオン成分濃度の年加重平均値

2011年度の年間データが有効となった地点(64

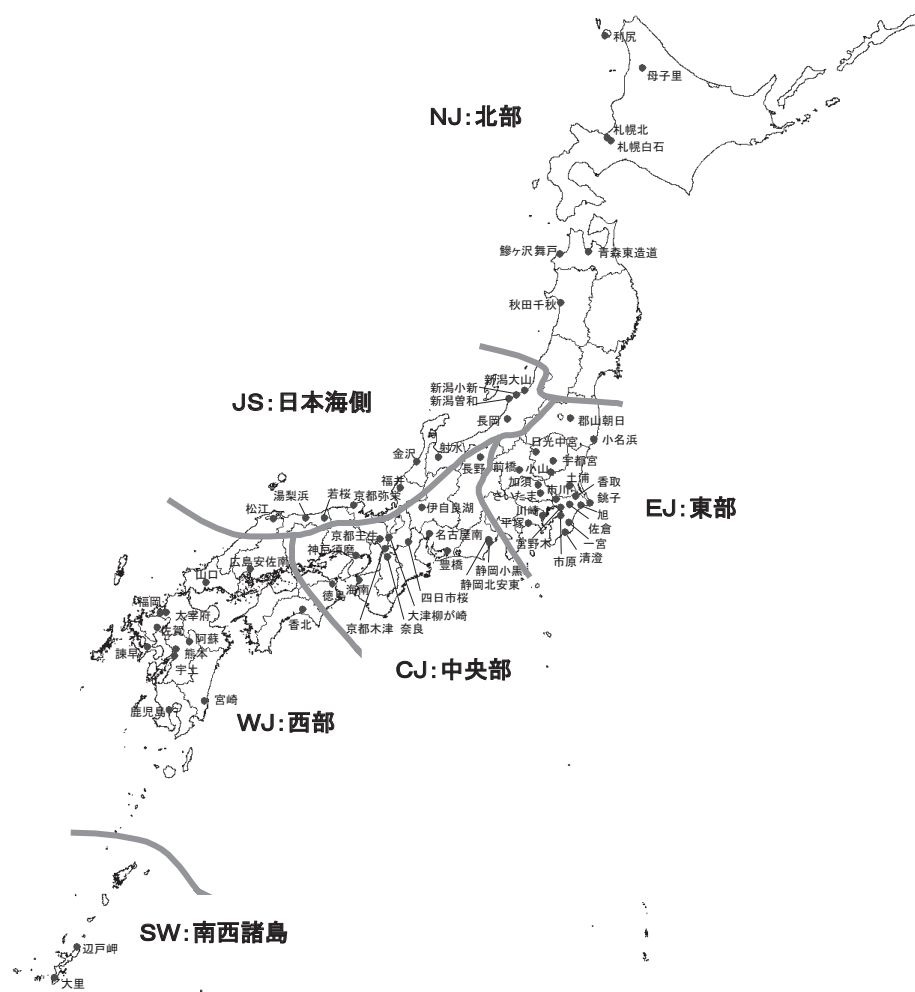


図 4.2.1 地域区分

地点)における、降水量および湿性イオン成分濃度等の年加重平均濃度を表 4.2.1 に示す。また、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(nss: non sea salt)」を表し、海塩性イオン(Na^+ をすべて海塩由来として海塩組成比から算出)を差し引いた残りであることを示している。

2011 年度の年間降水量は、925 (長野)～3,294mm (阿蘇)の範囲にあり、単純平均は 1,970mm 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、4.52 (鹿児島)～5.98 (旭)の範

囲で、加重平均は 4.76 であった。 H^+ 濃度としては、加重平均は $17.2 \mu\text{mol L}^{-1}$ であり、日本海側および西部で高く、東日本および南西諸島で低い傾向がみられた。

年間平均 EC は、0.72 (日光中宮)～11.54 mS m^{-1} (辺戸岬)の範囲で、加重平均は 2.30mS 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、3.3 (長野)～711.6 $\mu\text{mol L}^{-1}$ (辺戸岬)の範囲で、加重平均は $73.5 \mu\text{mol L}^{-1}$ 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-SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+ および nss-Ca^{2+}) について記す。

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	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 ⁺
		SO ₂	NO _x	NH ₃														
区分 ¹⁾													(μmol L ⁻¹)					
利尻	NJ	1.27	0.51	0.02	1216	4.67	3.71	21.6	12.6	14.7	167.0	14.1	148.7	3.7	5.4	2.1	16.5	21.6
母子里	NJ	0.12	0.76	0.49	1738	4.82	2.28	14.4	9.8	14.0	87.0	11.3	77.0	3.7	5.3	3.6	9.0	15.1
札幌北	NJ	5.18	25.61	1.07	1190	4.76	2.34	16.3	12.0	13.8	80.6	18.9	70.1	2.1	4.3	2.7	7.8	17.4
札幌白石	NJ	5.23	25.81	1.19	1054	4.87	1.94	16.4	13.6	15.1	60.2	19.2	44.7	2.0	5.6	4.6	6.4	13.4
青森東道道	NJ	1.18	3.59	0.44	1412	4.56	3.45	22.4	14.8	17.0	140.8	23.7	125.5	5.0	5.6	2.8	12.3	27.6
磐梯沢舞戸	NJ	0.20	1.15	0.51	1401	4.57	6.88	37.4	16.1	21.7	379.7	34.5	351.6	8.3	12.0	4.2	36.1	27.2
秋田千秋	NJ	4.37	6.14	0.53	1918	4.77	3.47	31.0	21.6	34.0	170.5	35.8	155.2	5.2	8.9	5.4	16.4	16.9
郡山朝日	EJ	1.32	6.08	1.37	1079	5.00	0.89	10.7	10.2	13.1	10.6	16.9	7.5	1.0	3.7	3.5	2.0	10.0
小名浜	EJ	13.81	16.92	0.99	1396	4.81	2.10	22.7	19.8	20.2	52.3	26.4	47.9	1.9	8.6	7.6	5.9	15.4
土浦	EJ	1.44	7.73	3.20	1425	4.97	1.22	11.8	10.5	14.2	25.4	18.4	23.0	1.1	2.7	2.2	3.6	10.6
前橋	EJ	4.13	12.96	7.55	1381	5.13	1.23	12.3	11.6	26.0	14.0	38.6	10.0	0.9	2.7	2.5	1.8	7.4
宇都宮	EJ	2.88	10.93	2.79	1763	4.79	1.51	14.6	14.0	23.4	14.2	26.0	9.8	1.0	3.9	3.7	2.4	16.2
小山	EJ	3.13	12.59	3.08	1332	5.28	1.27	13.8	12.9	23.7	19.3	32.8	14.1	1.1	6.2	5.9	3.0	5.3
日光中宮	EJ	0.13	0.97	0.16	3033	5.14	0.72	6.0	5.6	7.7	9.8	6.9	7.2	1.0	2.2	2.1	1.9	7.2
加須	EJ	2.49	18.24	3.51	1475	4.83	1.52	13.8	12.9	27.3	21.2	28.4	15.7	1.1	6.2	5.9	2.2	14.7
さいたま	EJ	7.46	48.21	5.19	1563	4.65	1.85	15.3	13.9	26.9	27.2	29.0	22.0	0.8	4.9	4.4	2.4	22.3
市川	EJ	8.63	59.68	4.64	1432	4.75	2.18	20.9	16.8	20.1	91.5	21.2	66.7	1.9	5.4	4.5	12.0	17.8
市原	EJ	13.96	44.28	3.14	1635	5.25	1.39	20.3	17.9	13.3	47.8	19.0	38.8	1.4	13.4	12.5	6.4	5.7
香取	EJ	17.03	20.01	4.00	1665	5.18	1.81	19.6	15.6	14.1	77.6	28.2	65.3	2.2	5.7	4.2	8.0	6.6
銚子	EJ	10.17	8.98	3.92	1644	5.24	2.76	22.0	13.9	11.7	159.0	32.5	132.4	4.3	5.3	2.3	15.2	5.8
一宮	EJ	0.23	1.97	0.97	1701	4.94	2.45	19.2	12.6	11.2	126.5	13.0	109.0	3.0	5.5	3.1	11.3	11.4
旭	EJ	7.68	8.66	4.12	1637	5.58	2.79	20.7	13.7	11.7	147.2	73.8	114.9	3.2	4.4	1.9	12.6	1.0
佐倉	EJ	2.96	26.96	3.01	1482	4.79	1.50	15.9	14.0	17.8	38.2	15.5	31.2	1.9	6.1	5.4	4.4	16.2
清澄	EJ	0.16	1.14	0.92	2048	5.22	2.89	30.5	24.0	13.4	152.8	9.8	107.0	7.1	6.7	4.3	17.7	6.1
宮野木	EJ	12.33	42.86	3.97	1344	4.98	1.39	16.8	15.0	14.7	36.8	18.9	29.1	1.8	6.4	5.7	4.8	10.5
川崎	EJ	16.56	71.13	2.94	1683	4.80	2.19	21.2	17.2	18.4	86.8	24.8	66.0	2.6	7.0	5.5	7.6	15.9
平塚	EJ	1.42	17.70	3.03	1360	4.85	2.74	18.7	12.1	16.7	130.2	19.8	108.7	3.2	7.5	5.1	13.4	14.1
新潟大山	JS	2.75	12.68	1.74	1965	4.73	3.09	23.5	16.5	18.6	122.8	24.0	114.4	3.2	6.5	3.9	13.0	18.8
新潟小新	JS	2.64	9.73	1.66	1899	4.67	2.83	19.6	13.6	17.8	106.3	16.1	99.1	2.7	4.9	2.7	11.1	21.3
新潟曽和	JS	2.60	9.49	1.28	1865	4.63	3.16	23.3	16.9	20.8	122.8	17.1	105.6	3.3	6.4	4.0	12.6	23.2
長岡	JS	1.87	4.94	0.62	3107	4.60	3.22	22.7	16.1	18.7	125.1	17.1	107.7	3.1	4.9	2.5	12.8	24.9
射水	JS	6.11	15.55	1.80	2665	4.56	3.06	19.5	13.6	18.8	107.3	17.0	96.5	2.8	5.2	3.0	10.9	27.4
金沢	JS	2.74	6.93	1.12	2907	4.57	3.23	22.4	16.5	19.1	108.2	16.0	97.3	3.6	5.5	3.3	11.2	27.2
福井	JS	2.41	7.77	0.80	2535	4.54	2.95	21.0	16.1	19.0	96.5	17.6	81.8	2.1	4.3	2.5	9.7	28.6
長野	CJ	1.35	4.76	0.61	925	4.88	1.06	10.7	10.5	15.2	5.2	16.3	3.3	1.0	4.2	4.1	1.1	13.2
伊自良湖	CJ	2.00	5.52	1.54	3036	4.73	1.46	13.1	12.3	14.8	15.9	14.0	12.6	0.5	1.7	1.5	1.6	18.7
静岡北東	CJ	3.15	9.89	1.38	2866	4.86	1.75	10.6	7.4	7.5	60.3	7.0	53.0	1.2	3.0	1.9	5.8	13.7
静岡小黒	CJ	3.29	10.23	1.42	2455	4.79	2.05	14.4	10.4	11.2	75.8	14.9	65.6	2.2	4.0	2.5	7.7	16.1
名古屋南	CJ	13.05	53.43	4.44	1551	5.05	1.21	11.2	10.2	12.6	16.9	18.5	17.0	1.2	3.4	3.0	1.5	9.0
豊橋	CJ	2.36	10.81	4.18	1757	4.97	1.41	11.6	9.1	10.0	51.1	11.0	42.7	1.1	4.9	3.9	5.8	10.6
四日市桜	CJ	4.10	17.71	2.31	2534	4.60	1.96	11.2	9.5	18.0	45.0	26.5	27.2	2.8	3.1	2.5	3.5	25.0
大津柳が崎	CJ	3.92	17.74	1.34	1868	4.77	1.20	9.4	9.0	14.0	8.1	13.8	7.3	0.8	2.1	1.9	0.9	17.0
京都壬生	CJ	3.96	17.81	1.65	1787	4.71	1.12	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	19.4
京都木津	CJ	1.85	13.84	1.98	1450	4.78	1.10	9.6	9.2	12.9	8.7	11.4	6.8	1.0	2.6	2.4	1.2	16.6
京都弥栄	JS	0.39	1.10	0.21	3121	4.60	3.67	23.4	15.2	17.6	156.5	13.5	135.4	4.2	5.9	2.9	15.2	25.1
神戸須磨	CJ	10.20	30.41	1.05	1769	4.79	1.39	14.1	12.8	14.0	23.0	12.7	22.4	1.1	5.3	4.8	3.1	16.1
奈良	CJ	1.75	13.03	2.04	1576	4.86	1.19	9.2	8.7	13.5	9.9	13.7	7.7	0.7	4.6	4.4	1.4	13.9
海南	CJ	9.97	14.10	1.12	1992	4.86	1.10	9.4	8.3	7.8	21.1	6.7	17.7	0.5	2.3	1.9	2.0	13.9
若桜	JS	0.03	0.50	0.30	2802	4.78	1.66	12.8	10.2	11.8	46.6	12.5	43.9	1.4	2.5	1.6	4.5	16.7
湯梨浜	JS	0.25	1.30	0.86	2296	4.70	3.77	22.8	12.5	16.3	201.4	17.6	169.9	3.8	5.5	1.9	18.9	20.0
松江	JS	0.46	2.49	0.56	2220	4.60	3.41	23.3	16.5	23.2	128.9	17.6	112.0	3.3	6.4	3.9	13.3	25.3
広島安佐南	WJ	3.35	12.32	1.04	1562	4.69	1.60	15.9	14.8	17.8	19.9	15.9	17.7	1.7	4.3	3.9	2.1	20.3
山口	WJ	2.28	5.84	0.63	2123	4.68	1.61	14.5	12.9	15.3	26.9	11.8	26.5	2.0	3.8	3.2	3.4	21.1
香北	WJ	0.04	0.46	0.18	2918	4.86	0.98	8.2	7.6	6.3	14.4	7.2	10.9	0.6	1.0	0.8	1.9	13.8
徳島	CJ	2.04	8.03	1.76	2707	4.88	1.80	11.0	7.5	9.1	71.4	11.1	58.8	2.6	3.4	2.1	6.9	13.3
大宰府	WJ	3.94	21.34	1.90	1778	4.67	1.83	15.8	13.0	16.8	41.6	15.8	38.4	2.5	5.2	4.2	4.7	20.6
福岡	WJ	2.43	14.89	1.38	2272	4.64	2.44	17.5	13.4	15.3	80.3	13.5	68.4	2.1	3.7	2.2	7.8	23.1
佐賀	WJ	2.50	6.92	1.63	2212	4.57	1.76	16.7	15.8	14.6	16.4	13.2	16.2	1.4	4.2	3.8	2.2	26.9
熊本	WJ	5.88	7.58	1.30	2464	4.80	1.27	13.6	12.5	10.7	20.4	10.4	17.0	1.0	1.9	1.5	4.7	16.0
阿蘇	WJ	0.30	1.33	1.72	3294	4.83	1.27	14.2	13.7	10.9	13.6	15.4	9.0	2.5	3.8	3.6	1.5	14.7
宇土	WJ	2.07	8.38	1.47	2212	4.69	1.44	13.4	12.7	10.7	14.3	13.7	10.8	1.0	2.2	1.9	1.3	20.2
熊本	WJ	1.71	8.83	3.56	2284	4.81	1.07	12.6	12.2	12.3	9.9	15.6	7.5	1.9	2.9	2.8	1.3	15.5
宮崎	WJ	0.56	3.25	1.14	3188	4.79	1.94	14.4	10.8	9.8	70.1	10.4	60.0	2.0	3.3	2.0	7.2	16.4
鹿児島	WJ	1.41	5.88	1.37	1798	4.52	2.80	39.0	37.0	10.0	53.5	16.4	32.6	2.0	22.5	21.8	4.3	30.0
大里	SW	6.30	7.83	2.08	2195	5.03	5.02	23.9	6.3	6.7	314.4	15.5	289.1	7.4	10.8	4.3	32.9	9.3
辺戸岬	SW	0.00	0.05	0.35	1931	4.95	11.54	48.7	6.8									

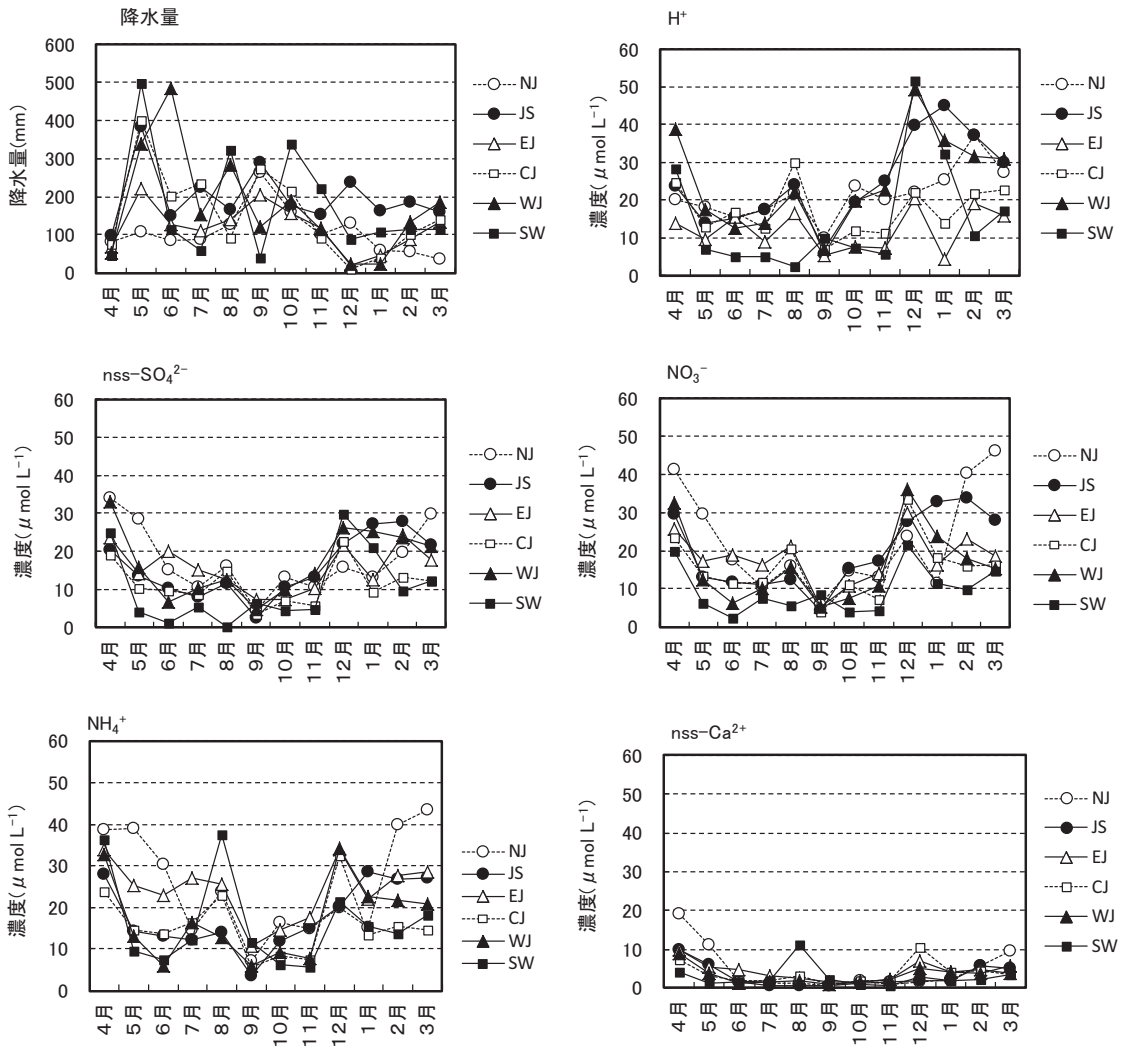


図 4.2.3 イオン成分濃度の地域別季節変動(中央値)

向を示し、北部を除く5地域において冬季に高濃度であった。北部は春季に高濃度となる傾向が見られた。

NH_4^+ 濃度は、北部、東部および南西諸島では春季に高濃度となる傾向が見られ、日本海側、中央部および西部では冬季に高濃度となる傾向が見られた。

nss-Ca^{2+} 濃度は、他のイオン成分に比較して、年間を通し、低い値で推移していた。

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、春季および冬季に、 H^+ 、 nss-SO_4^{2-} 濃度が高い傾向がみられたことであ

る。地理的要因や春季および冬季の風向等を考慮すると、大陸からの汚染物質の移流が示唆された。なお、2005年度までは、この大陸からの越境大気汚染を示唆する傾向は、日本海側で顕著であった^{1,5,6)}が、2006年度にはその傾向が西部でも確認され⁴⁾、2007～2011年度も引き続き同様の傾向がみられた。

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。

表 4.3.1 降水量と主要イオン成分の年間沈着量

(単位)		2011年度	
降水量	(mm y ⁻¹)	1788	925 (長野)
			3294 (阿蘇)
nss-SO ₄ ²⁻	(mmol m ⁻² y ⁻¹)	23.0	9.7 (長野)
			66.5 (鹿児島)
NO ₃ ⁻	(〃)	27.0	14.1 (長野)
			65.1 (秋田千秋)
NH ₄ ⁺	(〃)	30.7	13.3 (海南)
			120.8 (旭)
nss-Ca ²⁺	(〃)	6.3	2.3 (香北)
			39.2 (鹿児島)
H ⁺	(〃)	31.8	1.7 (旭)
			79.1 (金沢)

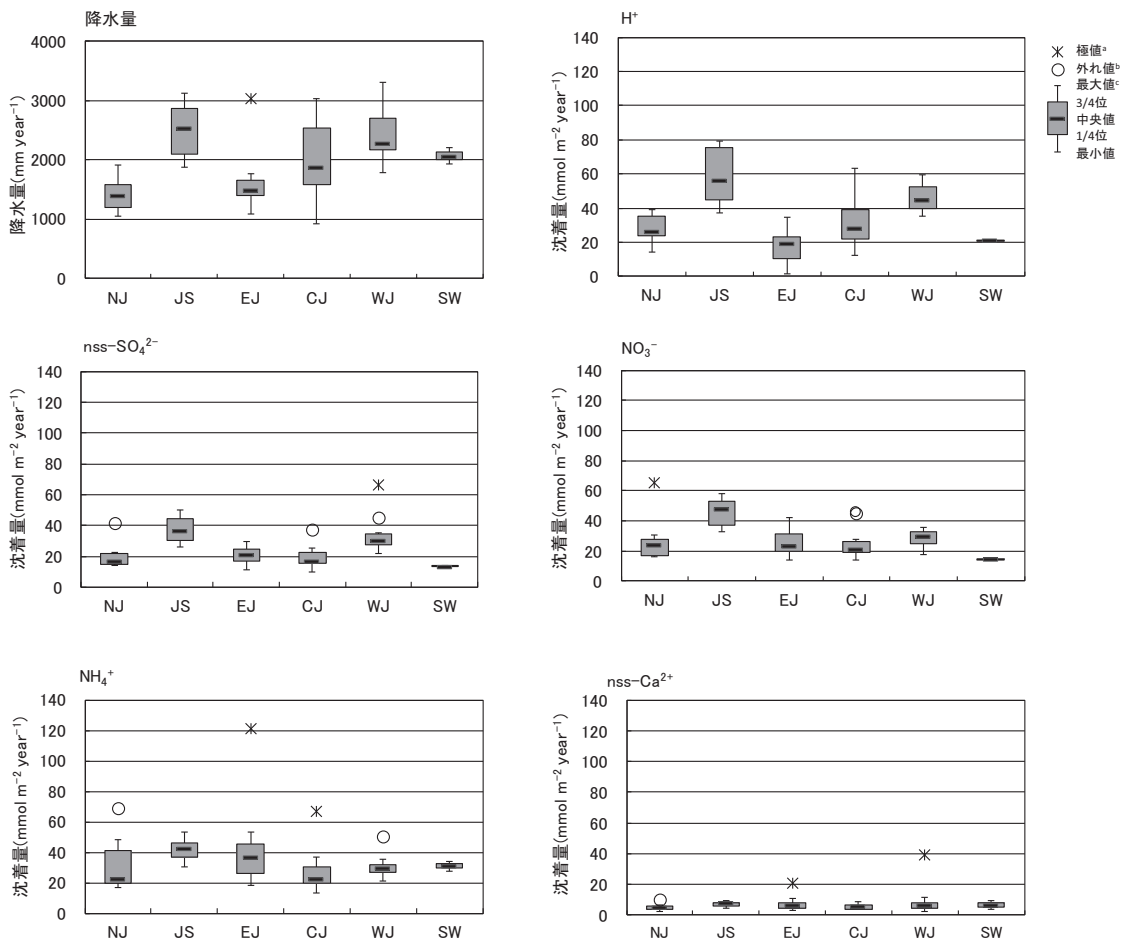
※数値は、中央値 最小値(地点名) 最大値(地点名) を示す。

4.3.1 年間沈着量

2011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⁻ および NO₃⁻ 沈着量は日本海側、次いで西部で多い傾向を示し、中央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、次いで東部で多い傾向を示した。nss-Ca²⁺ 沈着量は、他の非海塩成



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: 極値及び外れ値を除いた最大値又は最小値

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

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・東部・中央部・南西諸島で少ない傾向を示した。

4.3.2 沈着量の季節変動

地域別の降水量(再掲)および主要イオン成分沈着量の季節変動を図4.3.2に示す。4.2.3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顕著であり、西部では初夏や夏に多い傾向があっ

た。

$nss-SO_4^{2-}$ 沈着量は、 H^+ 沈着量程顕著では無いものの、冬季に日本海側で多く、初夏や夏に西部で多い傾向があった。

NO_3^- 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、日本海側では冬季に多い傾向がみられた。西部や中央部では春季から夏季にかけて多い傾向を示した。

NH_4^+ 沈着量は、日本海側では冬季に、その他の地域では初夏に多い傾向を示した。また、南西諸島では8月に非常に多い沈着量があった。

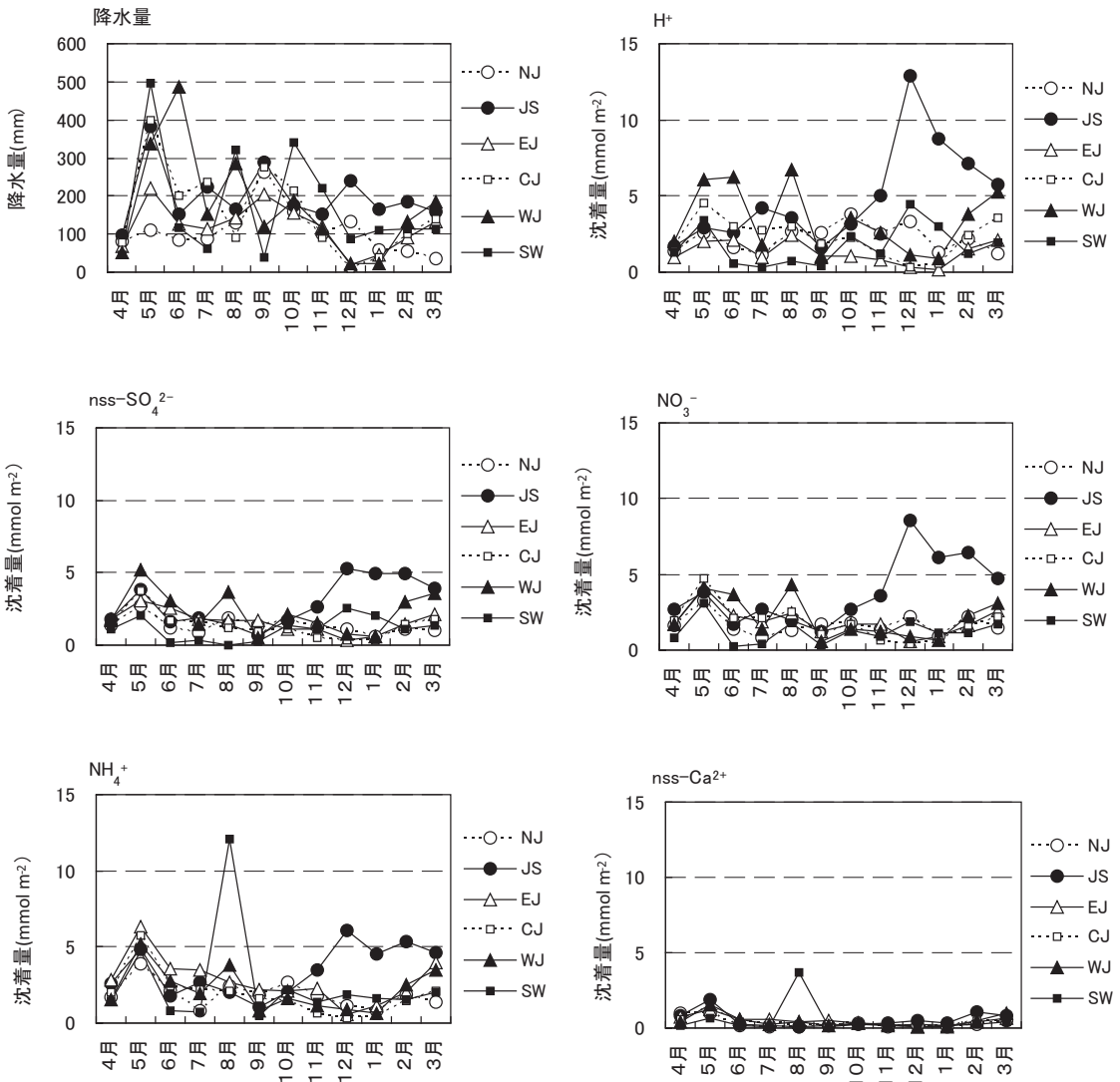


図 4.3.2 イオン成分沈着量の地域別季節変動(中央値)

nss- Ca^{2+} 沈着量は、日本海側で春季および冬季に多い傾向を示し、南西諸島では8月に多かったが、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) 環境省地球環境局環境保全対策課，酸性雨研究センター：湿性沈着モニタリング手引き書(第2版)，2001，http://www.env.go.jp/air/acidrain/man/wet_deposi/index.html
- 3) 全国環境研協議会：第4次酸性雨全国調査報告書(平成15年度)，全国環境研会誌，**30**，58-135，2005
- 4) 全国環境研協議会：第4次酸性雨全国調査報告書(平成16年度)，全国環境研会誌，**31**，118-186，2006
- 5) 全国環境研協議会：第4次酸性雨全国調査報告書(平成18年度)，全国環境研会誌，**33**，126-196，2008
- 6) 全国環境研協議会：第4次酸性雨全国調査報告書(平成19年度)，全国環境研会誌，**34**，193-223，2009
- 7) 全国環境研協議会：第4次酸性雨全国調査報告書(平成20年度)，全国環境研会誌，**35**，88-138，2010
- 8) 全国環境研協議会 酸性雨広域大気汚染調査研究部会：第5次酸性雨全国調査報告書(平成21年度)，全国環境研会誌，**36**，106-146，2011
- 9) 全国環境研協議会 酸性雨広域大気汚染調査研究部会：第5次酸性雨全国調査報告書(平成22年度)，全国環境研会誌，**37**，110-158，2012
- 10) 財団法人日本環境衛生センター アジア大気汚染研究センター：平成23年度酸性雨測定分析精度管理調査結果報告書(国設酸性雨測定所)，2012

5. 乾性沈着(フィルターパック法)

2011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地点を図5.1.1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

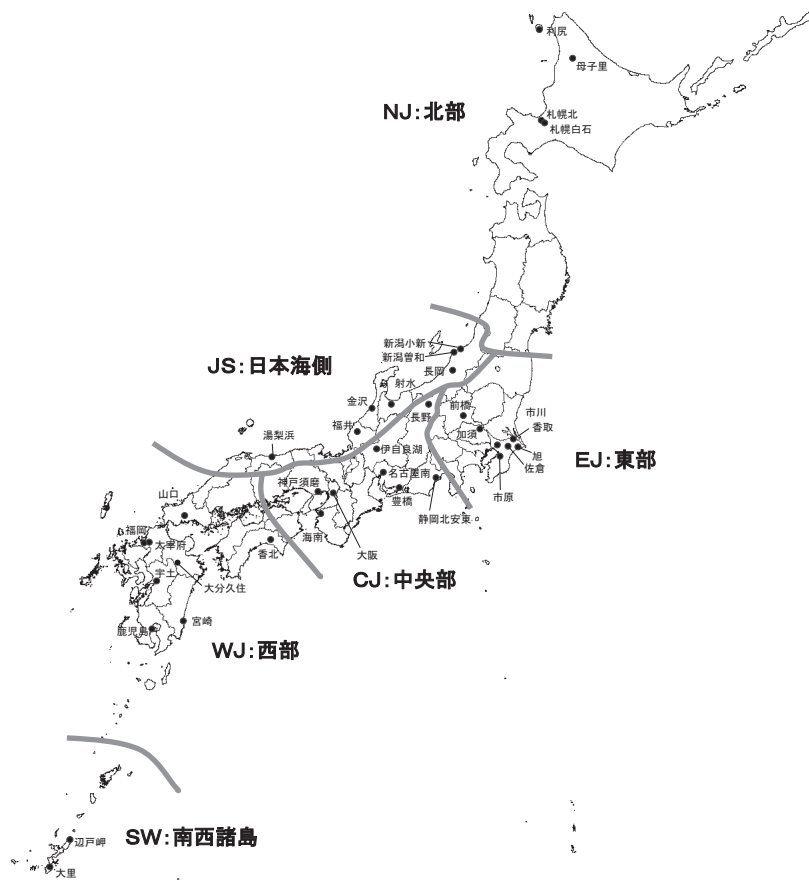


図 5.1.1 FP法の調査地点
地域区分(北部，日本海側，東部，中央部，西部，南西諸島)

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	地点数	欠測数	データ数	月平均濃度			有効データ割合(%)	年平均濃度					
				完全度 60%未満	適合数	定量下限 値未満		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	36	3	429	46	383	57	89	0	36	4	32	1	89
SO ₂	36	3	429	46	383	5	89	0	36	4	32	0	89
HCl	36	3	429	46	383	7	89	0	36	4	32	0	89
NH ₃	36	3	429	46	383	0	89	0	36	4	32	0	89
SO ₄ ²⁻	36	1	431	45	386	0	90	0	36	4	32	0	89
NO ₃ ⁻	36	1	431	45	386	0	90	0	36	4	32	0	89
Cl ⁻	36	1	431	45	386	1	90	0	36	4	32	0	89
Na ⁺	36	1	431	45	386	0	90	0	36	4	32	0	89
K ⁺	36	1	431	45	386	3	90	0	36	4	32	0	89
Ca ²⁺	36	1	431	45	386	0	90	0	36	4	32	0	89
Mg ²⁺	36	1	431	45	386	5	90	0	36	4	32	0	89
NH ₄ ⁺	36	1	431	45	386	0	90	0	36	4	32	0	89

がある。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 [NJ], 日本海側 [JS], 東部 [EJ], 中央部 [CJ], 西部 [WJ], 南西諸島 [SW])で行った。また, FP 法によるガス状成分には(g)を, 粒子状成分には(p)を付すこととした。

5.1 データ確定

5.1.1 完全度

FP 法の有効データ数を表 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80%を満たせば, 年平均値は解析対象とした。

FP 法は吸引流量の変動が大きい場合などに異常値になりやすいことが報告されている¹⁾。そのため, 意図的に流量を変更したなどの明確な理由がないにもかかわらず流量変動が大きかった場合(変動係数30%以上)は参考値とし解析対象から除外した。また, サンプルングや測定に不具合があると考えられた場合も参考値または欠測とした。

5.1.2 定量下限値の設定

定量下限値は, 前年度²⁾と同様に, EANET³⁾の基準値(粒子: $0.01\mu\text{g m}^{-3}$, ガス: 0.1ppb)を用いた。吸引流量は 1 L min^{-1} を基準にし, $X\text{ L min}^{-1}$ 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, 定量下限値未満はゼロとした。

5.1.3 非海塩成分の算出

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

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

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

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ルング中にフィルター上でも起こりえる。そこで, 前年度²⁾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, ガス状成分および粒子状成分の総計を表 5.2.3 に示す。

5.2.1.1 ガス状成分

SO₂(g)の年平均濃度の範囲は $10.8\sim 116.3\text{ nmol m}^{-3}$ (平均値 40.2 nmol m^{-3})であり, 最高値は鹿児島, 次いで宇土, 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 $2.3\sim 30.8\text{ nmol m}^{-3}$ (平均値 12.3 nmol m^{-3})であり, 最高値は加

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	10.8	3.2	21.2	14.9
2	北海道	母子里	12.3	2.3	6.3	17.7
3	北海道	札幌北	58.2	7.0	13.1	43.7
4	札幌市	札幌白石	45.1	8.6	11.8	71.7
5	新潟県	新潟曽和	15.2	11.4	24.7	69.2
6	新潟県	長岡	(7.7)	(6.1)	(5.8)	(43.7)
7	新潟県	新潟小新	25.4	15.0	27.0	82.1
8	群馬県	前橋	14.6	11.6	10.4	328.3
9	埼玉県	加須	29.8	30.8	23.9	188.0
10	千葉県	市川	53.0	13.3	31.2	157.6
11	千葉県	市原	89.4	8.2	20.8	125.3
12	千葉県	香取	19.1	5.8	16.5	593.7
13	千葉県	旭	16.0	3.7	8.8	2681.2
14	千葉県	佐倉	35.5	11.5	29.4	119.0
15	長野県	長野	19.0	14.6	12.6	95.7
16	静岡県	静岡北安東	40.7	25.3	34.9	135.7
17	富山県	射水	17.1	15.5	21.6	85.7
18	石川県	金沢	25.0	9.2	15.4	33.3
19	福井県	福井	54.4	17.2	32.0	87.6
20	岐阜県	伊自良湖	13.2	9.5	7.1	41.7
21	愛知県	豊橋	39.3	18.3	27.2	178.0
22	名古屋市	名古屋南	45.0	18.2	26.7	136.1
23	大阪府	大阪	(66.6)	(24.9)	(26.6)	(143.3)
24	和歌山県	海南	51.3	15.2	25.6	86.6
25	兵庫県	神戸須磨	83.3	19.4	27.0	101.1
26	鳥取県	湯梨浜	12.6	7.5	29.1	92.4
27	山口県	山口	(34.8)	(18.2)	(24.5)	(82.7)
28	高知県	香北	14.8	7.1	5.9	128.6
29	福岡県	太宰府	41.2	16.2	28.1	129.3
30	福岡市	福岡	30.5	12.7	19.4	41.5
31	熊本県	宇土	104.5	15.0	21.6	147.3
32	大分県	大分久住	86.6	9.0	14.0	37.1
33	宮崎県	宮崎	48.2	7.2	18.8	96.0
34	鹿児島県	鹿児島	116.3	12.3	33.0	147.8
35	沖縄県	大里	17.6	3.8	28.5	274.1
36	沖縄県	辺戸岬	(20.6)	(3.2)	(182.0)	(45.8)
全国最低値			10.8	2.3	5.9	14.9
全国最高値			116.3	30.8	34.9	2681.2
全国中央値			33.0	11.6	21.6	98.6
全国平均値			40.2	12.3	21.0	205.3

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

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

須、次いで静岡北安東、最低値は母子里であった。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5.9~34.9nmol m⁻³(平均値21.0nmol m⁻³)であり、最高値は静岡北安東、次いで鹿児島、最低値は香北であった。

NH₃(g)の年平均濃度の範囲は14.9~2681.2nmol m⁻³(平均値205.3nmol m⁻³)であり、最高値は旭、次いで香取、最低値は利尻であった。NH₃(g)濃度は旭のように畜産業の影響を受けていると考えられる地点や都市部で高い傾向が見られた。

5.2.1.2 粒子状成分

SO₄²⁻(p)の年平均濃度の範囲は18.9~65.5nmol m⁻³(平均値40.4nmol m⁻³)、nss-SO₄²⁻(p)は18.2~61.4nmol m⁻³(平均値37.6nmol m⁻³)であり、最高値は鹿児島、次いで太宰府、最低値

は前橋であった。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6.3~66.0nmol m⁻³(平均値29.9nmol m⁻³)であり、最高値は市川、次いで市原、最低値は母子里であった。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1.1~263.0nmol m⁻³(平均値37.2nmol m⁻³)であり、最高値は旭、次いで大里、最低値は伊自良湖であった。

Na⁺(p)の年平均濃度の範囲は10.2~155.3nmol m⁻³(平均値46.6nmol m⁻³)であり、最高値は旭、次いで大里、最低値は長野および伊自良湖であった。旭や大里は海域に近く、Na⁺(p)とCl⁻(p)がともに高濃度で観測されており、海塩の影響を受けていると考えられる。逆に、Na⁺(p)とCl⁻(p)濃度が低い長野や伊自良湖は、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2.0~7.8nmol m⁻³(平均値4.0nmol m⁻³)であり、最高値は旭、次いで鹿児島、最低値は母子里であった。

Ca²⁺(p)の年平均濃度の範囲は1.4~67.4nmol m⁻³(平均値11.7nmol m⁻³)、nss-Ca²⁺(p)は1.0~65.4nmol m⁻³(平均値10.7nmol m⁻³)であり、最高値は市原、次いで市川、最低値は母子里であった。

Mg²⁺(p)の年平均濃度の範囲は1.5~24.3nmol m⁻³(平均値6.3nmol m⁻³)であり、最高値は旭、次いで大里、最低値は長野および伊自良湖であった。

NH₄⁺(p)の年平均濃度の範囲は26.1~104.1nmol m⁻³(平均値66.3nmol m⁻³)であり、最高値は鹿児島、次いで大宰府、最低値は利尻であった。

5.2.1.3 ガス状および粒子状成分の総計

全硫黄(SO₂(g) + nss-SO₄²⁻(p))の年平均濃度の範囲は32.2~177.8 nmol m⁻³(平均値77.8nmol m⁻³)であり、最高値は鹿児島、次いで宇土、最低値は母子里であった。全硫黄濃度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8.6~79.4nmol m⁻³(平均値41.5nmol m⁻³)であり、最高値は市川、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

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 ₄ ²⁻ (p)	nss-SO ₄ ²⁻ (p)	NO ₃ ⁻ (p)	Cl ⁻ (p)	Na ⁺ (p)	K ⁺ (p)	Ca ²⁺ (p)	nss-Ca ²⁺ (p)	Mg ²⁺ (p)	NH ₄ ⁺ (p)
(nmol m ⁻³)												
1	北海道	利尻	27.9	23.2	10.9	61.4	76.9	3.4	3.0	1.3	8.6	26.1
2	北海道	母子里	20.8	19.9	6.3	9.0	15.6	2.0	1.4	1.0	1.7	32.1
3	北海道	札幌北	32.1	30.3	21.7	24.3	30.2	3.3	4.4	3.7	3.2	64.4
4	札幌市	札幌白石	31.5	29.9	23.8	24.2	26.3	3.3	6.7	6.2	3.8	62.7
5	新潟県	新潟曽和	38.6	35.5	23.0	31.2	51.7	3.6	5.4	4.3	5.9	51.8
6	新潟県	長岡	(16.9)	(16.2)	(11.7)	(5.9)	(10.9)	(1.6)	(2.7)	(2.5)	(1.3)	(29.8)
7	新潟市	新潟小新	44.7	39.3	33.7	68.1	89.1	5.2	9.5	7.5	10.2	63.6
8	群馬県	前橋	18.9	18.2	31.6	9.9	11.4	3.3	8.9	8.7	2.7	49.8
9	埼玉県	加須	31.7	30.5	46.2	16.9	20.4	4.0	6.0	5.5	2.7	81.4
10	千葉県	市川	45.1	40.9	66.0	57.8	67.9	4.7	37.9	36.4	10.3	74.6
11	千葉県	市原	51.3	46.0	58.2	89.2	86.7	5.3	67.4	65.4	15.0	48.4
12	千葉県	香取	35.1	31.0	37.2	68.6	66.8	5.0	20.2	18.7	9.4	50.9
13	千葉県	旭	50.0	40.6	55.2	263.0	155.3	7.8	32.4	28.9	24.3	75.3
14	千葉県	佐倉	40.5	37.4	42.6	36.6	50.7	5.3	21.7	20.6	6.9	58.3
15	長野県	長野	33.6	33.0	16.9	2.4	10.2	3.2	4.0	3.7	1.5	60.5
16	静岡県	静岡北安東	52.9	50.0	40.1	20.7	48.7	4.3	11.3	10.2	5.4	98.1
17	富山県	射水	41.3	39.5	21.1	12.8	29.5	3.8	5.8	5.2	3.9	70.1
18	石川県	金沢	38.6	36.7	14.8	9.7	30.4	3.8	5.5	4.8	4.1	50.6
19	福井県	福井	38.5	36.1	21.3	29.2	40.0	4.1	10.3	9.4	5.6	59.7
20	岐阜県	伊自良湖	35.2	34.5	6.4	1.1	10.2	2.4	3.8	3.6	1.5	48.7
21	愛知県	豊橋	46.1	43.2	49.5	26.8	47.8	4.4	11.5	10.4	6.9	86.0
22	名古屋市	名古屋南	32.7	31.0	31.6	14.1	27.1	3.4	6.7	6.1	2.5	71.2
23	大阪府	大阪	(44.6)	(42.6)	(45.6)	(19.1)	(32.7)	(3.8)	(11.2)	(10.5)	(3.6)	(98.8)
24	和歌山県	海南	46.8	44.7	31.0	11.9	34.2	3.5	8.3	7.5	4.5	77.5
25	兵庫県	神戸須磨	52.3	48.7	56.1	34.8	59.3	4.9	17.7	16.4	8.7	88.4
26	鳥取県	湯梨浜	35.7	33.1	16.0	27.8	44.1	3.1	3.9	2.9	4.0	64.7
27	山口県	山口	(41.9)	(40.5)	(22.8)	(7.2)	(22.5)	(2.7)	(5.0)	(4.5)	(2.7)	(79.2)
28	高知県	香北	41.9	41.0	9.7	2.6	14.5	3.4	4.1	3.8	2.3	67.0
29	福岡県	太宰府	53.1	51.1	40.6	17.1	33.2	2.7	9.8	9.0	5.7	104.0
30	福岡市	福岡	52.6	51.0	17.6	8.3	26.0	3.6	5.8	5.2	3.6	82.4
31	熊本県	宇土	45.8	44.1	24.5	10.8	26.8	4.4	7.0	6.4	4.2	83.0
32	大分県	大分久住	38.9	37.9	18.8	8.2	16.3	2.5	5.5	5.2	2.4	63.7
33	宮崎県	宮崎	27.4	24.8	19.7	34.8	42.8	2.4	3.8	2.8	4.6	48.5
34	鹿児島県	鹿児島	65.5	61.4	41.8	47.2	67.7	6.5	15.6	14.0	8.9	104.1
35	沖縄県	大里	46.7	38.6	24.4	110.8	133.9	5.2	9.8	6.8	16.3	53.1
36	沖縄県	辺戸岬	(43.1)	(24.9)	(15.2)	(282.8)	(299.5)	(7.7)	(9.1)	(2.4)	(35.1)	(28.0)
全国最低値			18.9	18.2	6.3	1.1	10.2	2.0	1.4	1.0	1.5	26.1
全国最高値			65.5	61.4	66.0	263.0	155.3	7.8	67.4	65.4	24.3	104.1
全国中央値			39.7	37.7	24.4	24.2	37.1	3.7	6.9	6.3	4.6	64.1
全国平均値			40.4	37.6	29.9	37.2	46.6	4.0	11.7	10.7	6.3	66.3

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

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

見られた。

全塩化物(HCl(g) + Cl⁻(p))の年平均濃度の範囲は8.2~271.8nmol m⁻³(平均値58.3nmol m⁻³)であり、最高値は旭、次いで大里、最低値は伊自良湖であった。

全アンモニア(NH₃(g) + NH₄⁺(p))の年平均濃度の範囲は41.0~2756.5nmol m⁻³(平均値271.5nmol m⁻³)であり、最高値は旭、次いで香取、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 経月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。平均濃度は、参考値のデータは除いて算出した。ここで、南西諸島は

グラフに表示したが、該当するデータがほぼ1地点のため評価から外した。ここでは、地域区別の月変化および包括的な地域特性を述べる。

5.2.2.1 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)濃度は全国的に春季と冬季に高くなる傾向が見られ、汚染大気の流れの影響を受けている可能性が示唆された。西部において6、7月を除いて全月で他の地域に比べ濃度レベルが高かった。2011年度は九州地方にある火山の活動が活発で、2011年1月~9月に新燃岳、2011年4月~6月上旬に阿蘇山、2011年8月下旬~2012年3月に桜島で噴火活動があった⁴⁾。阿蘇山では2011年4月に二酸化硫黄の放出量が一日当たり1000tを観測するなど多い状態が続き、桜島も9月下旬頃より平均放出量が一日当たり1200~

表 5.2.3 ガス状および粒子状成分の総計の年平均濃度(地点別)

No.	都道府県市	地点名	全硫黄	全硝酸	全塩化物	全アンモニア
			$\text{SO}_2(\text{g})+\text{nss}-\text{SO}_4^{2-}(\mu)$	$\text{HNO}_3(\text{g})+\text{NO}_3^-(\mu)$	$\text{HCl}(\text{g})+\text{Cl}^-(\mu)$	$\text{NH}_3(\text{g})+\text{NH}_4^+(\mu)$
			(nmol m ⁻³)			
1	北海道	利尻	34.0	14.0	82.5	41.0
2	北海道	母子里	32.2	8.6	15.3	49.8
3	北海道	札幌北	88.5	28.7	37.4	108.1
4	札幌市	札幌白石	75.0	32.5	36.0	134.4
5	新潟県	新潟曽和	50.7	34.4	56.0	121.0
6	新潟県	長岡	(23.9)	(17.9)	(11.7)	(73.5)
7	新潟市	新潟小新	64.8	48.8	95.1	145.7
8	群馬県	前橋	32.9	43.1	20.3	378.1
9	埼玉県	加須	60.3	77.0	40.7	269.4
10	千葉県	市川	93.9	79.4	89.0	232.2
11	千葉県	市原	135.5	66.4	110.0	173.7
12	千葉県	香取	50.1	43.0	85.2	644.6
13	千葉県	旭	56.6	58.3	271.8	2756.5
14	千葉県	佐倉	72.9	54.1	66.0	177.3
15	長野県	長野	52.0	31.5	15.0	156.2
16	静岡県	静岡北安東	90.7	65.3	55.5	233.9
17	富山県	射水	56.6	36.6	34.3	155.9
18	石川県	金沢	61.7	24.0	25.1	83.9
19	福井県	福井	90.5	38.5	61.2	147.3
20	岐阜県	伊自良湖	47.7	15.9	8.2	90.4
21	愛知県	豊橋	82.5	67.8	54.0	264.0
22	名古屋市	名古屋南	76.0	49.8	40.8	207.4
23	大阪府	大阪	(109.2)	(70.5)	(45.7)	(242.0)
24	和歌山県	海南	96.0	46.2	37.5	164.1
25	兵庫県	神戸須磨	132.0	75.5	61.8	189.5
26	鳥取県	湯梨浜	45.7	23.4	56.9	157.0
27	山口県	山口	(75.4)	(41.0)	(31.7)	(161.9)
28	高知県	香北	55.8	16.8	8.5	195.6
29	福岡県	太宰府	92.2	56.8	45.2	233.3
30	福岡市	福岡	81.5	30.4	27.7	123.9
31	熊本県	宇土	148.6	39.5	32.4	230.3
32	大分県	大分久住	124.5	27.8	22.2	100.8
33	宮崎県	宮崎	73.0	26.9	53.5	144.6
34	鹿児島県	鹿児島	177.8	54.0	80.2	251.9
35	沖縄県	辺戸岬	56.2	28.2	139.3	327.1
36	沖縄県	大里	(45.5)	(18.4)	(464.8)	(73.8)
全国最低値			32.2	8.6	8.2	41.0
全国最高値			177.8	79.4	271.8	2756.5
全国中央値			73.0	38.5	49.4	168.9
全国平均値			77.8	41.5	58.3	271.5

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

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

3200t と多い状態が続いた⁴⁾。西部の地点は、火山による影響を受けた可能性も考えられる。北部では春季から夏季にかけて低濃度であったが、11月～3月にかけてSO₂(g)濃度が上昇した。これは、冬季の暖房等の使用や汚染大気の流れに伴う地域汚染によるものと考えられる。

HNO₃(g)濃度は西部を除く区分で夏季に高く、冬季に低くなる傾向が見られた。夏季の高濃度は、日本海側、東部および中央部で顕著であった。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ためや、揮発性粒子であるNH₄NO₃などの解離が進むためなどが考えられる²⁾。一方、西部では春季に高く、夏季から冬季にかけて横ばいに推移し、他の区分と

は異なる傾向が見られた。

HCl(g)濃度は日本海側、東部および中央部で春季から夏季にかけて高く、冬季に低くなる傾向が見られた。北部と西部では顕著な経月変化はみられなかった。

NH₃(g)濃度は、東部で顕著な経月変化はみられないものの年間を通して高濃度だった。とくに、東部の旭では、月平均NH₃(g)濃度が960～4700nmol m⁻³と非常に高く、このことが東部のNH₃(g)濃度を押し上げた。旭の周辺には養豚場、養鶏場および肥料工場が立地しておりNH₃(g)の発生源が存在する。また、東部の調査地点におけるNH₃排出量は、3.0～7.6 t km⁻² y⁻¹²⁾と全調査地点の中でも多く、地域的な発生源の影響により高濃度になったと考えられる。東部を除く区分

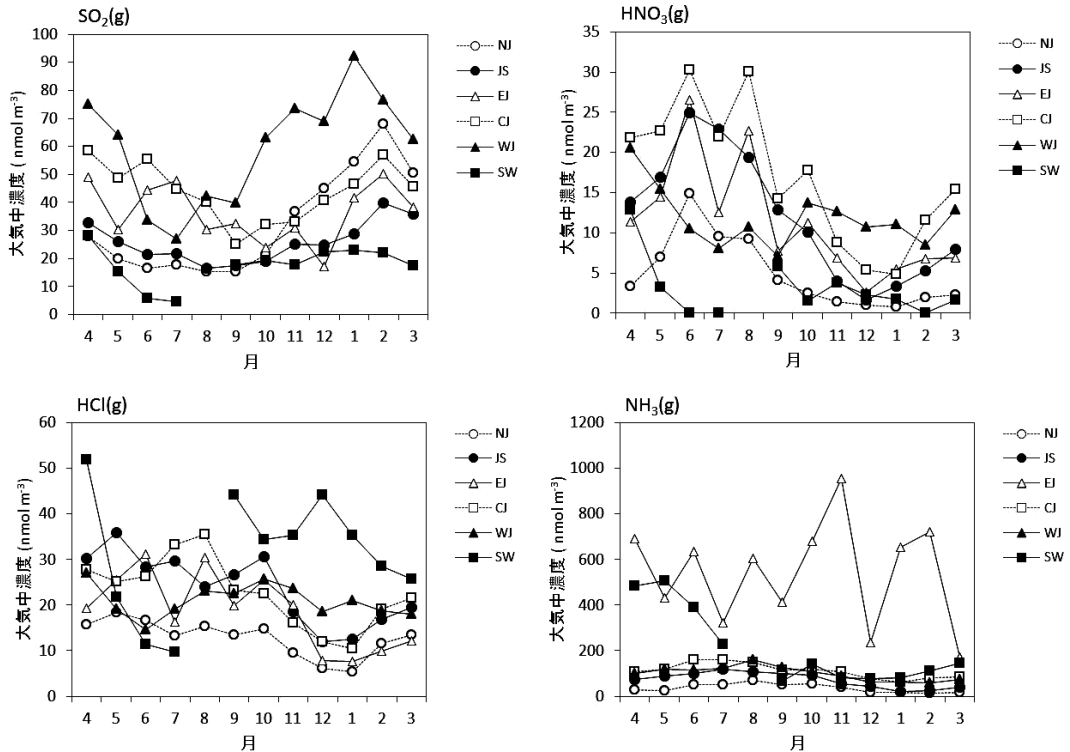


図 5.2.1 ガス状成分の地域別月平均濃度の経月変化

では、NH₃(g)濃度は夏季から秋季にかけて高く、冬季に低くなる傾向が見られた。NH₃(g)濃度は、主な発生源である農業活動が行われる時季に高くなると考えられる。濃度レベルは中央部と西部で高く、北部で低かった。

5.2.2.2 粒子状成分

図 5.2.2 に粒子状成分の地域別年平均濃度の組成を当量濃度で示す。どの地域でも陰イオンと陽イオンは同量程度であり、分析した8成分でイオンバランスはおおむねとれていた。総当量濃度は、東部でもっとも高く、北部でもっとも低かった。東部を除く地域では、陰イオンはnss-SO₄²⁻(p)、陽イオンはNH₄⁺(p)の占める割合が高く、とくに西部でその割合がそれぞれ65%、57%と高かった。東部では、Cl⁻(p)とNa⁺(p)の割合がnss-SO₄²⁻(p)およびNH₄⁺(p)と同程度(それぞれ3～4割)を占め、さらにnss-Ca²⁺(p)が陽イオンの25%を占めるなど、特徴的だった。東部と中央部ではNO₃⁻(p)の割合も高く、都市部に位置する地点が含まれるためと考えられる。

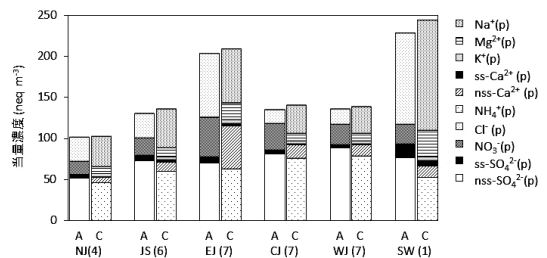


図 5.2.2 粒子状成分の地域別年平均濃度の組成

A: 陰イオン C: 陽イオン ()内は地点数

粒子状成分の地域別月平均濃度の経月変化を図 5.2.3 に示す。nss-SO₄²⁻(p)濃度は、西部を除き春季に高く、冬季に低かった。西部では、春季だけでなく冬季も高くなり、他の地域と異なる傾向を示した。

NH₄⁺(p)濃度は、春季と冬季に高く、夏季に低くなり、とくに中央部と西部では濃度変動が他の地域に比べて顕著だった。

NO₃⁻(p)濃度は、年間を通して東部で高く、北部と日本海側で低かった。いずれの地域も春季に

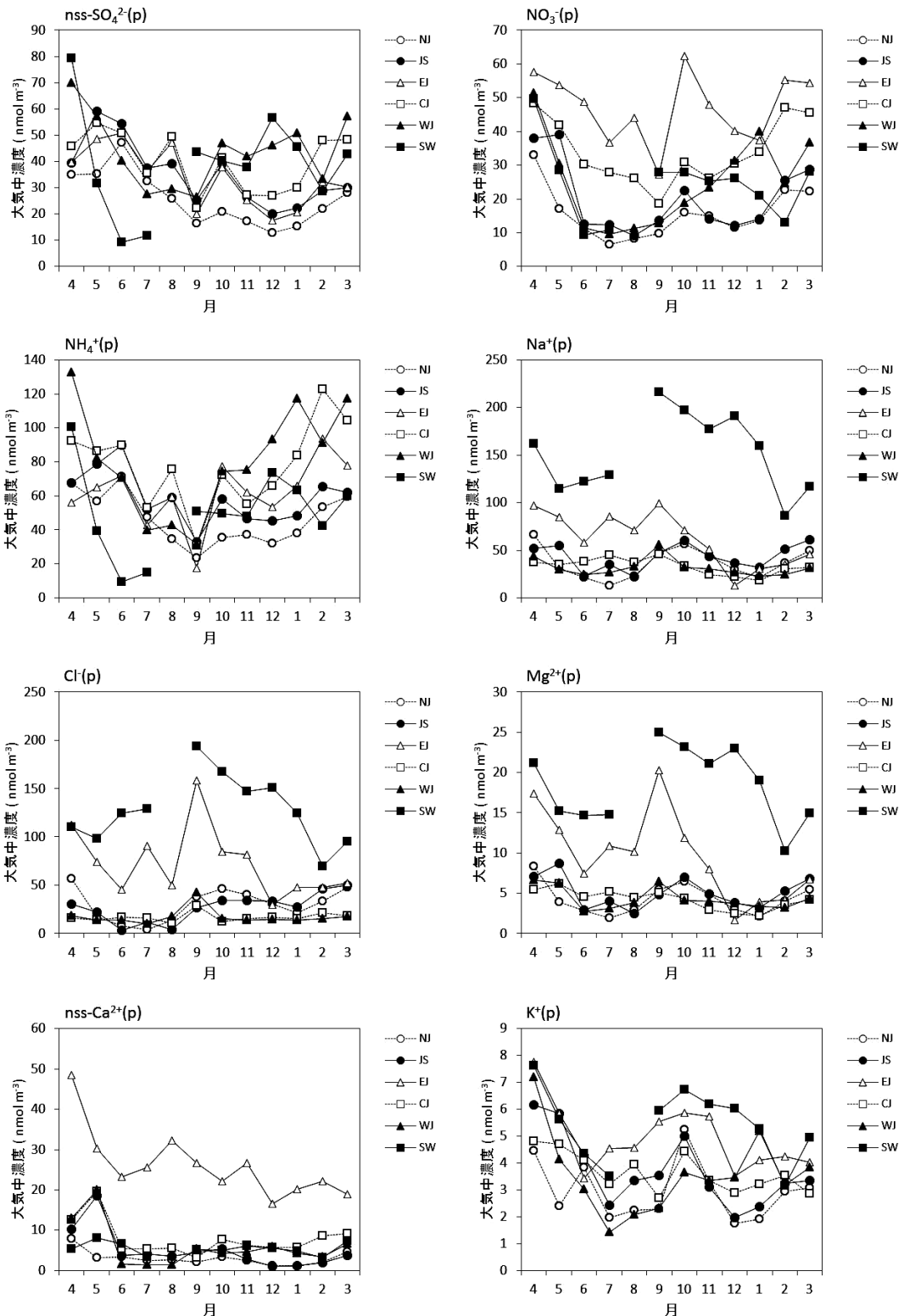


図 5.2.3 粒子状成分の地域別月平均濃度の経月変化

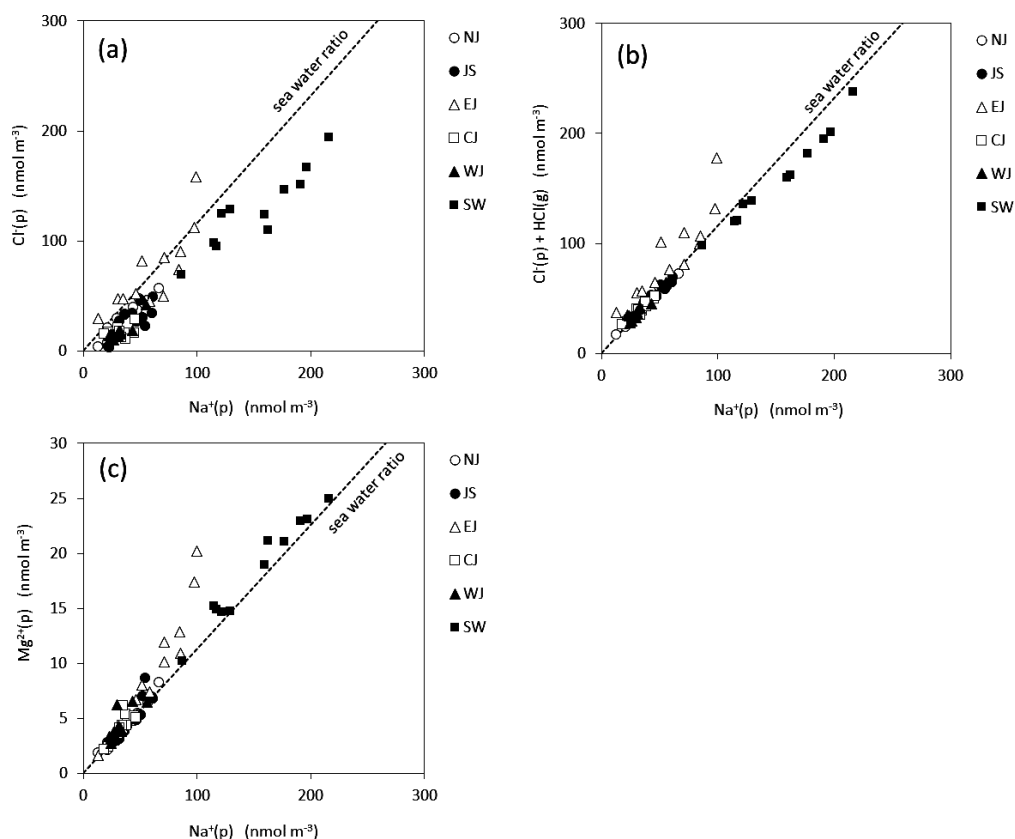


図 5.2.4 粒子状成分の地域別月平均濃度の関係

(a) $\text{Na}^+(\text{p}) : \text{Cl}^-(\text{p})$, (b) $\text{Na}^+(\text{p}) : \text{Cl}^-(\text{p}) + \text{HCl}(\text{g})$, (c) $\text{Na}^+(\text{p}) : \text{Mg}^{2+}(\text{p})$

高く夏季に低かったが、東部と西部ではそれぞれ秋季と冬季にも高くなり他の地域とは異なる経月変化を見せた。

$\text{Na}^+(\text{p})$ 濃度は、東部で高く、中央部と西部で低かった。東部では、春季から秋季にかけて高く、冬季に低かった。東部、中央部および西部では9月にピークが見られた。このような特徴は、 $\text{Cl}^-(\text{p})$ および $\text{Mg}^{2+}(\text{p})$ 濃度にも見られた。 $\text{Na}^+(\text{p})$ と $\text{Cl}^-(\text{p})$ の関係を図 5.2.4 (a) に示す。 $\text{Na}^+(\text{p})$ 濃度と $\text{Cl}^-(\text{p})$ には、いずれの地域も有意な相関関係が認められたが、 $\text{Cl}^-(\text{p})$ が海水比に対して少なくなった。これはクロリンロス²⁾が起こったためと考えられる。 $\text{Na}^+(\text{p})$ と全塩化物($\text{HCl}(\text{g}) + \text{Cl}^-(\text{p})$)の関係を図 5.2.4 (b) に見ると、いずれの地域においても $\text{Cl}^-(\text{p})$ だけより全塩化物($\text{HCl}(\text{g}) + \text{Cl}^-(\text{p})$)の方が海水比に近くなっていることがわかる。このことは、FP法で捕集した

海塩粒子に

$\text{NaCl}(\text{p}) + \text{HNO}_3(\text{g}) \rightarrow \text{NaNO}_3(\text{p}) + \text{HCl}(\text{g})$
のような反応が起こって、海塩粒子中の $\text{Cl}^-(\text{p})$ の一部が $\text{HCl}(\text{g})$ として大気中に放出されて捕集された可能性を示唆する。

$\text{Na}^+(\text{p})$ と $\text{Mg}^{2+}(\text{p})$ の関係を図 5.2.4 (c) に示す。 $\text{Na}^+(\text{p})$ と $\text{Mg}^{2+}(\text{p})$ の関係は海水比(0.11)とよく一致していることから、これらは海塩の寄与が大きいことが示唆される。さらに、2011年9月3日、21日には日本に台風が上陸している⁵⁾。9月に $\text{Na}^+(\text{p})$ 、 $\text{Cl}^-(\text{p})$ 、 $\text{Mg}^{2+}(\text{p})$ にピークが見られた地域の中でも、とくに海域に近い調査地点で9月に濃度が高かった。内陸の調査地点では9月にピークは見られていない。このことから、台風の上陸で海域に近い調査地点で海塩粒子の影響を受けたことで9月にピークが生じたと考えられる。

nss-Ca²⁺(p)濃度はいずれの地域でも春季に高く、とくに、4月または5月に最高値を出していた。気象庁では、2011年4月10～12日、5月1～5日、13～14日、16日、6月4日、2012年3月24日に黄砂を確認している⁶⁾。とくに、5月1～5日の黄砂は、南は那覇から北は新潟まで、5月13日～14日の黄砂は、南は石垣島から北は青森まで確認されるなど日本全国的に観測された⁶⁾。このことから、4、5月のnss-Ca²⁺(p)濃度のピークは黄砂の飛来の影響を受けたと考えられる。一方、東部では春季だけでなく年間を通して他の地域より高かった。とくに、東部の市原では月平均nss-Ca²⁺(p)濃度が22～108nmol m⁻³の範囲にあり、非常に高濃度だった。市原は東京湾に面する京葉コンビナートに近く、地域的な発生源の影響を受けたと考えられる。

K⁺(p)濃度は、いずれの地域でも春季および秋季に高くなった。K⁺(p)濃度は、Na⁺(p)、Cl⁻(p)およびMg²⁺(p)と同じような経月変化を示したが、東部のように春季から秋季にかけて濃度が高くなる傾向は、他の地域では見られなかった。

5.2.2.3 酸性化に影響する粒子状成分の組成

図5.2.5に酸性化に影響する4粒子状成分(nss-SO₄²⁻(p)、NO₃⁻(p)、NH₄⁺(p)、nss-Ca²⁺(p))の地域別年平均濃度を当量濃度で示す。陰イオンおよび陽イオンは、ともに東部、中央部および西部で高かった。イオンバランスは、東部を除く地域では陰イオン過多であったが、東部ではおおむねバランスがとれており、特徴的だった。

4粒子状成分(nss-SO₄²⁻(p)、NO₃⁻(p)、NH₄⁺(p)、nss-Ca²⁺(p))の関係を把握するため、表5.2.4に地域別月平均濃度による粒子状成分間の相関係数を示す。

NH₄⁺(p)とnss-SO₄²⁻(p)は、東部を除く地域で有意な相関関係が認められた。図5.2.6(a)にNH₄⁺(p)とnss-SO₄²⁻(p)の関係を示す。nss-SO₄²⁻(p)/NH₄⁺(p)モル比は、東部を除く地域でおおむね0.5～1.0の範囲にあった。このことは、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などとして存在することを示唆する²⁾。

NH₄⁺(p)とNO₃⁻(p)は、表5.2.4に示すように北部と日本海側を除く地域で有意な相関が認めら

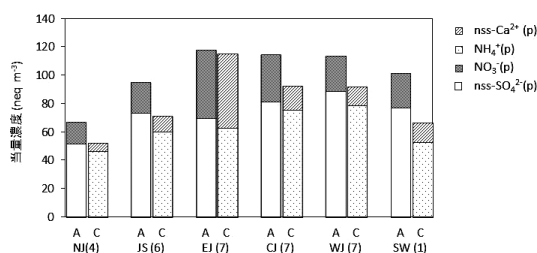


図 5.2.5 粒子状成分の地域別年平均濃度の組成
(酸性化に影響する成分のみ)

A：陰イオン C：陽イオン ()内は地点数

表 5.2.4 酸性化に影響する粒子状成分間の地域別月平均濃度の相関関係

NH ₄ ⁺ (p)			
区分	n	nss-SO ₄ ²⁻ (p)	NO ₃ ⁻ (p)
NJ	12	0.85 ***	0.56
JS	12	0.84 ***	0.46
EJ	12	0.30	0.78 **
CJ	12	0.73 **	0.87 ***
WJ	12	0.87 ***	0.93 ***
SW	11	0.99 ***	0.86 ***

nss-Ca ²⁺ (p)			
区分	n	nss-SO ₄ ²⁻ (p)	NO ₃ ⁻ (p)
NJ	12	0.57	0.75 **
JS	12	0.71 *	0.75 **
EJ	12	0.44	0.23
CJ	12	0.62 *	0.69 *
WJ	12	0.69 *	0.58 *
SW	11	0.10	0.24

*: $p < 0.05$, **: $p < 0.01$, ***: $p < 0.001$

れた。図5.2.6(b)にNH₄⁺(p)とNO₃⁻(p)の関係を示す。NH₄⁺(p)とNO₃⁻(p)に相関関係が認められた地域のうち、中央部と西部ではNO₃⁻(p)/NH₄⁺(p)モル比が0.2～0.6の範囲にあったが、東部ではおおむね0.8に分布しており、異なる特徴を示した。

nss-Ca²⁺(p)とnss-SO₄²⁻(p)については、日本海側、中央部および西部で相関が認められ、nss-Ca²⁺(p)とNO₃⁻(p)においても、北部、日本海側、中央部および西部で相関が認められた。一般的に、黄砂粒子は日本各地の表層土に比べカルシウム含有量が高いことが特徴で⁷⁾、nss-Ca²⁺(p)の由来は黄砂によるものが大きいと考えられる。nss-Ca²⁺(p)に対してnss-SO₄²⁻(p)やNO₃⁻(p)に相関が認められたことは、黄砂粒子が輸送過程で人為起源の大気汚染物質により変質した可能性を裏付けるものと考えられる。日本上空においては、粗大粒子にNO₃⁻(p)がしばしば認めら

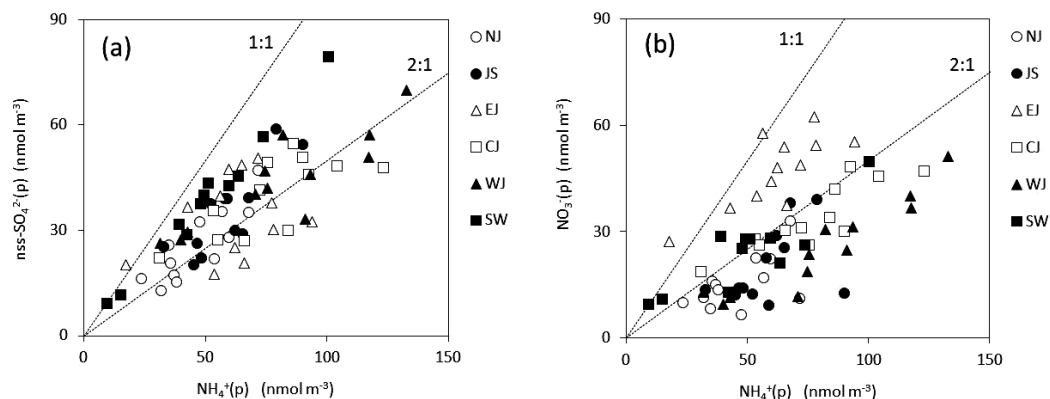


図 5.2.6 $\text{NH}_4^+(\text{p})$ に対する $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ と $\text{NO}_3^-(\text{p})$ の地域別月平均濃度の関係
(a) $\text{NH}_4^+(\text{p}) : \text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$, (b) $\text{NH}_4^+(\text{p}) : \text{NO}_3^-(\text{p})$

れ、粗大粒子領域に多く分布する黄砂粒子に窒素化合物が沈着した可能性が示唆されている⁷⁾。一方、高い $\text{nss-Ca}^{2+}(\text{p})$ 濃度が観測された東部では、 $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ と $\text{NO}_3^-(\text{p})$ に対して相関が認められなかった。前述のとおり、東部を除く地域では酸性化に影響する4成分を比較したところ陰イオン過多であったが、東部ではおおむねバランスがとれていた。このことは、東部では黄砂粒子以外のカルシウム源が存在する可能性を示唆している。現行のFP法では測定している成分が限られているため、東部における高い $\text{nss-Ca}^{2+}(\text{p})$ が何に起因しているのかを特定することは困難であるが、今後周辺環境にも注視していく必要がある。

5.2.2.4 ガス状および粒子状成分の総計

全硫黄 ($\text{SO}_2(\text{g}) + \text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$)、全硝酸 ($\text{HNO}_3(\text{g}) + \text{NO}_3^-(\text{p})$)、全塩化物 ($\text{HCl}(\text{g}) + \text{Cl}^-(\text{p})$)、全アンモニア ($\text{NH}_3(\text{g}) + \text{NH}_4^+(\text{p})$) 濃度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 5.2.7 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。

全硫黄 ($\text{SO}_2(\text{g}) + \text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$) 濃度は西部で高かった。経月変化は、各地域で異なり、北部では冬季に高く、日本海側と東部では春季に、中央部では春季と冬季に、西部では夏季を除く季節に高かった。全硫黄濃度の季節変化にはローカルな自然的・人為的 $\text{SO}_2(\text{g})$ 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、北部や日本海側で高く、西部で低かった。また、粒子化率の経月変化は、北部や日本海側で顕著で、冬季に減少した。これらの地域では、冬季に $\text{SO}_2(\text{g})$ 濃度が高く、粒子化率が減少したと考えられる。暖房の使用に伴う $\text{SO}_2(\text{g})$ や冬季の季節風で移流した $\text{SO}_2(\text{g})$ などの影響によるものと考えられる。

全硝酸 ($\text{HNO}_3(\text{g}) + \text{NO}_3^-(\text{p})$) 濃度は、東部と中央部で高く北部で低かった。全硝酸濃度は、地域によって経月変化が異なった。一方、粒子化率はいずれの地域も夏季に低かった。これは、 NH_4NO_3 のような揮発性粒子が気温の高い季節に解離するなどしたためと考えられる。東部では夏季の粒子化率の減少が緩やかだった。東部では夏季の $\text{NO}_3^-(\text{p})$ 濃度が他の地域に比べ高かったため、粒子化率の減少が緩やかだったと考えられる。

全塩化物 ($\text{HCl}(\text{g}) + \text{Cl}^-(\text{p})$) 濃度は、冬季を除き東部で高かった。粒子化率は、夏季に低く秋季から冬季にかけて高かった。とくに、北部と日本海側では粒子化率の経月変化が顕著であり、冬季の季節風による日本海側の海塩粒子の影響で $\text{Cl}^-(\text{p})$ 濃度が高くなったことが起因していると考えられる。

全アンモニア ($\text{NH}_3(\text{g}) + \text{NH}_4^+(\text{p})$) 濃度は、年間を通して東部で高く、北部で低かった。東部では、 $\text{NH}_3(\text{g})$ 濃度が他の地域に比べ圧倒的に高いことが全アンモニア濃度を高くした。粒子化率は、いずれの地域も夏季に低く冬季に高くなったが、東部では経月変化が緩やかだった。

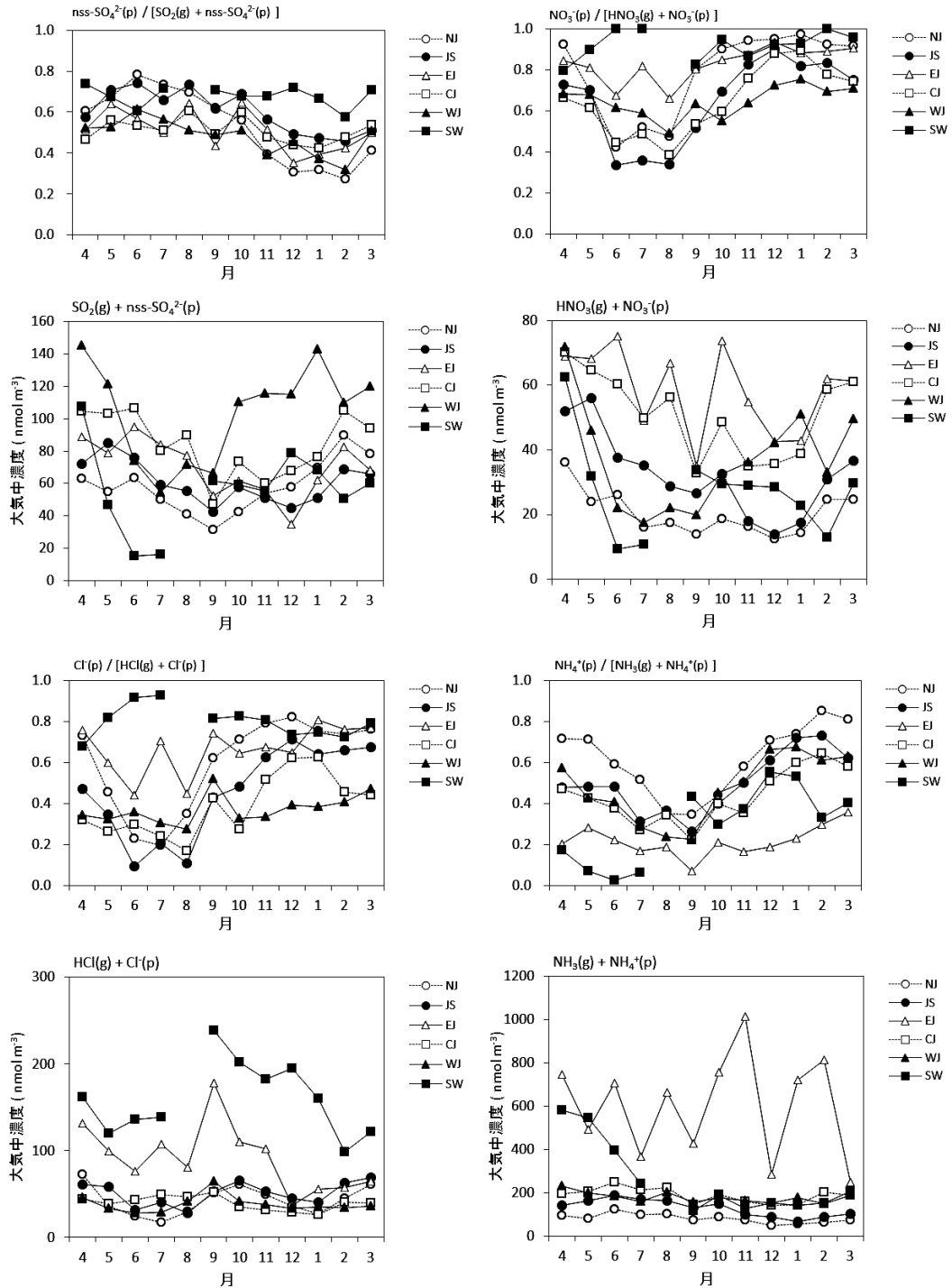


図 5.2.7 全硫黄($\text{SO}_2(\text{g}) + \text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$), 全硝酸($\text{HNO}_3(\text{g}) + \text{NO}_3^-(\text{p})$), 全塩化物($\text{HCl}(\text{g}) + \text{Cl}^-(\text{p})$), 全アンモニア($\text{NH}_3(\text{g}) + \text{NH}_4^+(\text{p})$)濃度およびそれぞれの粒子化率の地域別月平均値の経月変化

表 5.2.5 ガス状および粒子状成分濃度の全国中央値(2003~2011年度)^{2,8-12)}

	2003~2005年度*	2006年度	2007年度	2008年度	2009年度	2010年度	2011年度
SO ₄ ²⁻ (p)	49.3	51.1	48.3	48.4	46.2	39.9	39.7
nss-SO ₄ ²⁻ (p)	47.5	49.0	46.7	45.2	43.4	37.9	37.7
NO ₃ ⁻ (p)	25.1	23.3	25.1	23.3	29.7	23.1	24.4
Cl ⁻ (p)	19.1	18.8	17.3	14.9	23.6	12.9	24.2
Na ⁺ (p)	34.4	34.1	31.8	31.9	36.7	30.2	37.1
K ⁺ (p)	4.6	4.5	4.2	3.8	4.1	3.8	3.7
Ca ²⁺ (p)	6.9	7.6	7.1	6.7	8.9	7.0	6.9
nss-Ca ²⁺ (p)	5.9	6.8	6.4	6.0	8.2	6.0	6.3
Mg ²⁺ (p)	4.5	4.7	4.1	3.8	4.5	4.1	4.6
NH ₄ ⁺ (p)	78.2	80.0	72.3	78.1	74.7	64.0	64.1
HNO ₃ (g)	19.4	19.8	15.4	17.9	15.6	14.7	11.6
SO ₂ (g)	45.8	37.8	35.5	32.9	28.5	26.4	33.0
HCl(g)	23.0	22.8	23.0	21.5	25.4	22.2	21.6
NH ₃ (g)	100.1	111.8	93.2	101.6	96.7	89.7	98.6
年間値適合数	24~26	26	22	27	27	28	32

*3カ年とも有効年間値を得た地点を集計対象とした。

5.2.3 ガス状および粒子状成分の経年変化

第4次調査の2003年度から今回の2011年度(2009年度から第5次調査)までの9年間について、ガス状および粒子状成分濃度の経年変化を表5.2.5に示す^{2), 8)-12)}。年度によって調査地点は異なり、とくに本年度は年間値の解析に適合する調査地点が増えたことから、年度別全国中央値で日本全体の濃度変動を把握した。表5.2.5より、粒子状成分ではSO₄²⁻(p)、nss-SO₄²⁻(p)およびNH₄⁺(p)が減少傾向を示した。大原(2012)はアジア域の人為起源SO₂排出量が2000年~2008年の間に43Mtから57Mtまで増加したものの2006年以降減少に転じたと報告している¹³⁾。nss-SO₄²⁻(p)の減少はアジア域のSO₂排出量の減少傾向と一致する。また、ガス状成分ではHNO₃(g)が減少傾向を示した。これは、日本の平均NO_x濃度がゆるやかに減少している傾向と一致する¹⁴⁾。SO₂(g)は、昨年度までは減少傾向を示した²⁾が、本年度は高くなった。日本の平均SO₂濃度が横ばいに推移している¹⁴⁾ものの、本年度SO₂(g)が増加した要因には、九州地方での活発な火山活動による局地的なSO₂排出量の増加が考えられる。NH₃(g)濃度は、東部で非常に高いNH₃(g)濃度が測定されたため全国年平均値が205.3nmol m⁻³と昨年度の111.1 nmol m⁻³²⁾に比べ約2倍も高かったが、中央値で見るとNH₃(g)濃度は横ばい

に推移していた。

—参考文献—

- 1) 全国環境研協議会 酸性雨調査研究部会：第3次酸性雨全国調査結果、全国環境研会誌、**28**、126-196、2003
- 2) 全国環境研協議会 酸性雨調査研究部会：第5次酸性雨全国調査報告書(平成22年度)、全国環境研会誌、**37**、110-158、2012
- 3) Acid Deposition Monitoring Network in East Asia：東アジアにおけるフィルターバック法に関する技術資料、http://www.eanet.cc/jpn/docea_f.html
- 4) 気象庁：地震・火山月報(防災編)、2011
- 5) 気象庁：台風統計資料、<http://www.data.jma.go.jp/fcd/yoho/typhoon/statistics/index.html>
- 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
- 7) 環境省：黄砂問題検討会報告書、2005
- 8) 全国環境研協議会 酸性雨調査研究部会：第4次酸性雨全国調査報告書(平成17年度)、全国環境研会誌、**32**、78-152、2007
- 9) 全国環境研協議会 酸性雨調査研究部会：第4次酸性雨全国調査報告書(平成18年度)、全国環境研会誌、**33**、126-196、2008
- 10) 全国環境研協議会 酸性雨調査研究部会：第4次酸性雨全国調査報告書(平成19年度)、全国環境研会誌、**34**、193-223、2009
- 11) 全国環境研協議会 酸性雨調査研究部会：第4次酸性雨全国調査報告書(平成20年度)、全国環境研会誌、**35**、88-138、2010
- 12) 全国環境研協議会 酸性雨調査研究部会：第5次酸性雨全国調査報告書(平成21年度)、全国環境研会誌、**36**、106-146、2011
- 13) 大原利真：東アジアにおける広域越境大気汚染モデリングの最新動向、水環境学会誌、**35**、6-9、2012

- 14) 環境省：環境白書 循環型社会白書/生物多様性白書(平成24年版)、235-238、2012

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 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る。 V_d の算出には、野口ら(2006)が表計算ソフト(MS Excel)のファイルとして開発した乾性沈着推計ファイル Ver.4-1-1を用いた^{7,8)}。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。

この乾性沈着推計ファイルは、現在も改良が続けられているため、今回用いた Ver.4-1-1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、このファイルは SO_2 と 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。さらに、森林、農地、草地の場合の風速がゼロ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⁹⁾。粒子状物質に関しては、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考慮済みの森林を除いて精度が落ちる可能性が高い。

5.3.2 乾性沈着量の推計方法

乾性沈着量の推計はFP法で大気濃度の測定を実施した36地点について実施した。また、FP法調査地点のうち自動測定機で NO_2 、 NO 測定を実施した15地点は NO_2 、 NO についても推計した。

V_d の算出において、乾性沈着推計ファイルに入力する気象データ(風速、気温、湿度、日射量、雲量)は、調査実施機関が指定する各調査地点に近い気象官署、アメダス¹⁰⁾、大気汚染常時監視測定局の1時間値を用いた。季節区分(春、夏、秋、冬(積雪なし)、冬(積雪あり))の判定には、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)^{11,12)}を用い、積雪の有無は積雪深さ10cm以上を積雪ありとした。季節区分は1時間ごとに判定し、もっとも出現頻度の高いものを計算月の区分とした。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た。

V_d は表面の状況により異なるため、土地利用状況別に、粒子状物質(SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+ 、以後(p)をつけて表示)およびガス状物質(SO_2 、 HNO_3 、 NH_3 、 NO 、 NO_2 、以後(g)をつけて表示)の V_d をそれぞれ算出した。各調査地点で対象成分ごとに算出した土地利用状況別 V_d (日沈着速

表 5.3.1 土地利用状況別の平均沈着速度(2011年度) (単位: m day^{-1})

	$\text{SO}_4^{2-}(\text{p})$	$\text{NO}_3^-(\text{p})$	$\text{NH}_4^+(\text{p})$	$\text{SO}_2(\text{g})$	$\text{HNO}_3(\text{g})$	$\text{NH}_3(\text{g})$	$\text{NO}_2(\text{g})$	$\text{NO}(\text{g})$
市街地	66	66	66	160	3700	43	27	4.8E-06
森林地域	450	630	490	970	3300	360	35	1.9
農地	120	120	120	520	1100	240	61	1.6
草地	140	140	140	550	1400	240	50	1.6
積雪	90	90	90	340	350	380	1.2	0.23
水面	75	75	75	230	230	250	0.93	0.19

注) 各調査地点で、対象成分ごとに土地利用別に算出した日沈着速度(V_d)の年平均値

表 5.3.2 年乾性沈着量(2011年度地点別)

No.	都道府県市	地点名	SO ₂	HNO ₃	NH ₃	nss-SO ₄ ²⁻	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	NH ₄ ⁺	NO ₂	NO	
			(g)	(g)	(g)	(p)	(p)	(p)	(p)	(g)	(g)	
			mmol m ⁻²									
1	北海道	利尻	3.4	3.2	3.7		3.9	4.7	2.8	5.0	0.3	0.005
2	北海道	母子里	1.5	1.5	2.0		1.7	1.8	0.7	3.0		
3	北海道	札幌北	8.3	6.9	3.9		2.5	2.6	2.1	5.4	13.0	0.02
4	札幌市	札幌白石	6.2	6.8	4.9		1.5	1.6	1.4	3.2		
5	新潟県	新潟曾和	2.4	8.4	4.6		1.7	1.8	1.2	2.4		
6	新潟県	長岡	(1.6)	(4.8)	(3.7)		(1.4)	(1.5)	(1.4)	(2.8)		
7	新潟市	新潟小新	3.8	11.0	5.1		1.7	1.9	1.5	2.8		
8	群馬県	前橋	1.8	8.9	15.4		1.0	1.1	2.1	2.9		
9	埼玉県	加須	3.4	19.1	10.4		1.2	1.3	1.9	3.2	11.8	0.05
10	千葉県	市川	4.4	11.7	4.8		1.3	1.5	2.2	2.3		
11	千葉県	市原	13.6	8.2	7.1		2.5	2.8	3.6	2.6		
12	千葉県	香取	4.1	3.3	50.7		1.9	2.2	2.7	3.0		
13	千葉県	旭	5.0	3.5	303.3		2.9	3.6	5.0	5.8		
14	千葉県	佐倉	6.0	10.0	7.4		2.4	2.6	3.1	3.6		
15	長野県	長野	3.6	12.8	8.7		2.7	2.8	1.7	5.1	4.1	0.04
16	静岡県	静岡北安東	7.5	20.3	9.7		3.8	4.0	4.0	8.0		
17	富山県	射水	3.7	11.8	8.6		2.3	2.4	1.6	4.3	5.4	0.08
18	石川県	金沢	7.0	8.8	2.8		3.1	3.2	1.7	4.6		
19	福井県	福井	15.1	14.1	11.3		2.7	2.9	2.2	4.8	4.5	0.06
20	岐阜県	伊自良湖	1.2	1.9	2.8		0.6	0.7	0.2	1.0	0.8	0.01
21	愛知県	豊橋	10.3	24.3	16.5		5.3	5.7	8.1	11.2	7.9	0.06
22	名古屋市	名古屋南	4.6	19.0	5.8		1.1	1.2	1.2	2.6		
23	大阪府	大阪	(4.6)	(19.0)	(3.7)		(1.1)	(1.1)	(1.2)	(2.5)	9.7	0.01
24	和歌山県	海南	8.1	17.2	6.2		5.3	5.5	4.6	9.4	4.9	0.02
25	兵庫県	神戸須磨	17.7	27.6	6.2		5.0	5.3	7.4	9.3	10.9	0.07
26	鳥取県	湯梨浜	7.3	11.1	14.4		7.3	7.9	5.2	15.9	2.0	0.03
27	山口県	山口	(5.5)	(11.9)	(5.8)		(2.4)	(2.5)	(1.8)	(4.9)	4.7	0.04
28	高知県	香北	2.0	3.7	10.1		2.3	2.4	0.8	4.2		
29	福岡県	太宰府	8.1	18.5	9.1		5.6	5.9	5.8	12.0	8.1	0.12
30	福岡市	福岡	5.2	11.3	2.9		3.5	3.7	1.6	6.0		
31	熊本県	宇土	21.6	10.4	15.1		3.2	3.3	2.3	6.4	7.5	0.19
32	大分県	大分久住	14.2	6.2	2.5		3.3	3.4	2.0	5.8		
33	宮崎県	宮崎	16.4	6.9	12.3		3.0	3.3	3.4	6.4		
34	鹿児島県	鹿児島	25.2	10.6	10.9		4.4	4.7	3.9	7.9		
35	沖縄県	沖縄大里	3.9	6.8	20.7		3.1	3.7	2.4	4.4		
36	沖縄県	沖縄辺戸岬	(9.5)	(5.9)	(4.5)		(6.6)	(12.1)	(5.9)	(7.9)		
		最低値	1.2	1.5	2.0		0.6	0.7	0.2	1.0	0.3	0.005
		最高値	25.2	27.6	303.3		7.3	7.9	8.1	15.9	13.0	0.19
		中央値	5.6	10.2	8.0		2.7	2.8	2.2	4.7	5.4	0.04
		平均値	7.7	10.8	18.7		2.9	3.2	2.8	5.5	6.4	0.05

注)全国最低値は網掛け、全国最高値は白抜きで示した。参考値は()で示した。

度, m day⁻¹)の年平均値を参考として表 5.3.1 に示す。

乾性沈着量は、土地利用状況別 V_d を調査地点周辺の土地利用割合で加重平均し、大気濃度との積を求めた。環境省の長期モニタリング報告書(2009)¹³⁾では、測定局周辺約 1 km の森林と草地の利用割合で計算されているが、本報告書では調査地点周辺約 20 km とし、土地利用の分類を市街地(建物用地、幹線交通用地、その他)、森林地域(森林)、農地(田、その他の農用地)、草地(ゴルフ場などの草地、荒地)、水面(河川および湖沼、海浜)とした。土地利用割合は国土地理院のデー

タ¹⁴⁾から FP 法の測定地点周辺の海を除く半径 20 km にかかるメッシュ値を抽出して求めた。季節を冬(積雪あり)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 nss-SO₄²⁻ (p), NO₃⁻ (p), NH₄⁺ (p), SO₂ (g), HNO₃ (g), NH₃ (g), 自動測定機で測定した 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乾性沈着量を算出した。

FP 法では粒子状物質とガス状物質の完全な分別捕集は難しい。しかし、乾性沈着ではガス状物質と粒子状物質の沈着速度が異なるため、FP 法

で得られた $\text{HNO}_3(\text{g})$ と $\text{NO}_3^-(\text{p})$, $\text{NH}_3(\text{g})$ と $\text{NH}_4^+(\text{p})$ 濃度を用いて算出している。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。また、表 5.3.1 に示した平均 V_d の数値から、大気濃度が同じ場合、たとえば、粒子状物質および $\text{SO}_2(\text{g})$ は調査地点周辺の森林地域の割合が大きいと乾性沈着量が多く、 $\text{NH}_3(\text{g})$ は市街地の割合が小さいと多く評価されることになる。

5.3.3 乾性沈着量の推計結果

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

た。

ガス状物質の乾性沈着量は、 $\text{SO}_2(\text{g})$ が 1.2(伊自良湖)～25.2(鹿児島) (平均値 7.7) $\text{mmol m}^{-2} \text{y}^{-1}$, $\text{HNO}_3(\text{g})$ が 1.5(母子里)～27.6(神戸須磨) (平均値 10.8) $\text{mmol m}^{-2} \text{y}^{-1}$, $\text{NH}_3(\text{g})$ が 2.0(母子里)～303.3(旭) (平均値 18.7) $\text{mmol m}^{-2} \text{y}^{-1}$ だった。

粒子状物質の乾性沈着量は、 $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ が 0.6(伊自良湖)～7.3(湯梨浜) (平均値 2.9) $\text{mmol m}^{-2} \text{y}^{-1}$, $\text{NO}_3^-(\text{p})$ が 0.2(伊自良湖)～8.1(豊橋) (平均値 2.8) $\text{mmol m}^{-2} \text{y}^{-1}$, $\text{NH}_4^+(\text{p})$ が 1.0(伊自良湖)～15.9(湯梨浜) (平均値 5.5) $\text{mmol m}^{-2} \text{y}^{-1}$ だった。

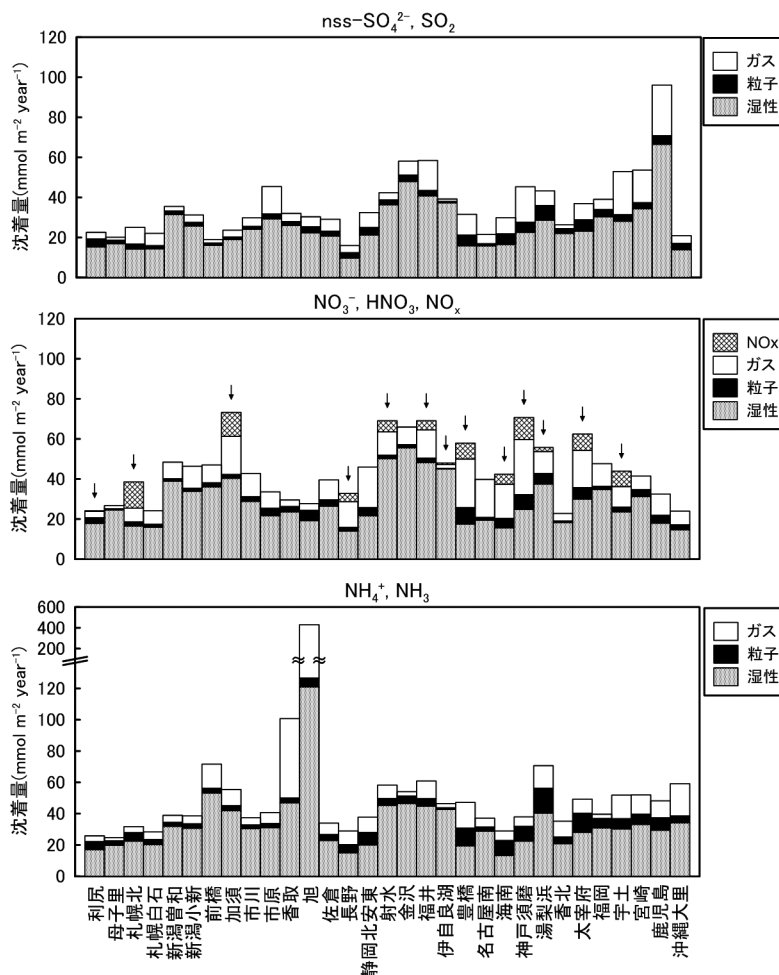


図 5.3.1 調査地点の年沈着量(2011年度)

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

注) $\text{NO}_x(\text{NO} + \text{NO}_2)$ は、自動測定器による測定地点のみ表示(図内 ↓ 印)

NOの乾性沈着量は0.005(利尻)～0.19(宇土)(平均値0.05)mmol m⁻² y⁻¹と少なく、NO₂の乾性沈着量は0.3(利尻)～13.0(札幌北)(平均値6.4)mmol m⁻² y⁻¹だった。

ガス状物質と粒子状物質を合わせた総乾性沈着量は、非海塩由来硫酸成分が1.9(伊自良湖)～29.8(鹿児島)(平均値10.9)mmol m⁻² y⁻¹、NO_x(=NO₂+NO)を含まない硝酸成分が2.1(伊自良湖)～35.0(神戸須磨)(平均値13.6)mmol m⁻² y⁻¹、アンモニウム成分が3.8(伊自良湖)～309.0(旭)(平均値24.2)mmol m⁻² y⁻¹だった。硝酸成分にNO_xを加えた窒素酸化物成分は3.0(伊自良湖)～45.9(神戸須磨)(平均値23.6)mmol m⁻² y⁻¹だった。

5.3.4 各調査地点の総沈着量

湿性沈着および大気濃度の年平均値が有効となった31地点について、湿性沈着と乾性沈着を合わせて図5.3.1に示す。NO_xの沈着量は推計を実施した13地点について硝酸成分に合わせて示した。

乾性沈着量と湿性沈着量を合計した総沈着量は、非海塩由来硫酸成分が16.1(長野)～99.6(鹿児島)(平均値43.7)mmol m⁻² y⁻¹、硝酸成分が22.7(香北)～65.9(金沢)(平均値41.6)mmol m⁻² y⁻¹、アンモニウム成分が24.6(母子里)～429.9(旭)(平均値58.1)mmol m⁻² y⁻¹だった。窒素酸化物成分は24.1(利尻)～72.9(加須)(平均値52.9)mmol m⁻² y⁻¹だった。

総沈着量に占める乾性沈着量の比率(=乾性沈着量/(乾性沈着量+湿性沈着量)×100(%))は、非海塩由来硫酸成分が4.5(伊自良湖)～47.6(神戸須磨)(平均値24.0)%, 硝酸成分が4.5(伊自良湖)～65.0(豊橋)(平均値33.2)%, アンモニウム成分が8.3(伊自良湖)～71.9(旭)(平均値33.9)%だった。窒素酸化物成分は6.2(伊自良湖)～69.8(豊橋)(平均値44.5)%だった。

5.3.5 乾性沈着量の地域特性

湿性沈着および大気濃度の年平均値が有効となった地点の年沈着量について、6つの地域区分別(北部(4地点)、日本海側(6)、東部(7)、中央部(7)、西部(6)、南西諸島(1))に平均沈着量を算出した。ただし、東部のアンモニウム成分は、NH₃(g)沈着量が平均値の10倍を超えた旭を除く

6地点とした。湿性沈着と合わせて図5.3.2に示す。測定地点数は少ないがNO_x測定を実施していない南西諸島を除いて、NO_xの沈着量についても硝酸成分に合わせて示した。また、総沈着量に占める乾性沈着量の比率(ただし、硝酸成分はNO_xを含まない。)の平均値も示す。

非海塩由来硫酸成分の総乾性沈着量は、西部で他地域に比べて多く、南西諸島、東部で少なかった。総沈着量は、日本海側、西部で多くなり、総乾性沈着量の比率は日本海側、東部が他地域に比べて小さくなった。

硝酸成分の総乾性沈着量は、中央部で多く、北部、南西諸島で少なかった。総沈着量は、日本海側で多くなった。乾性沈着量の比率は中央部で最も大きく、日本海側で小さくなった。

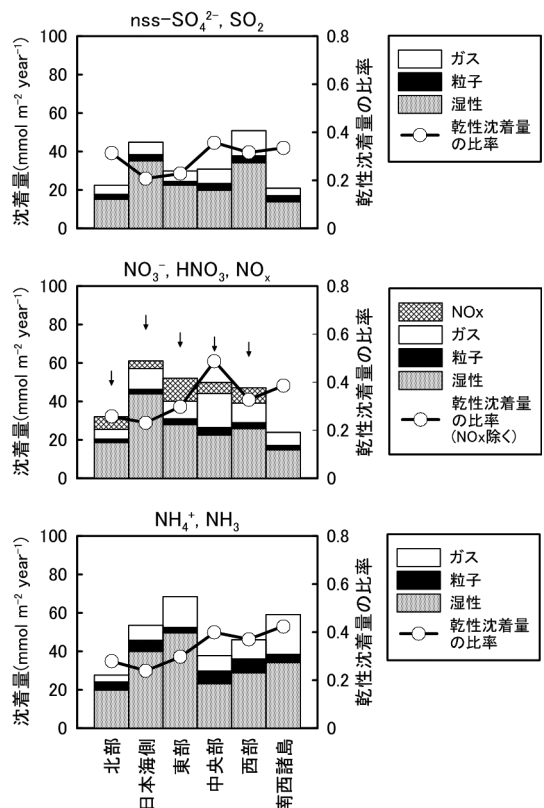


図5.3.2 各地域区分の年沈着量および総沈着量に占める乾性沈着量の比率(2011年度)

注) NO_xは、地域区分内に自動測定器による測定地点が存在する場合のみ表示(図内↓印)

注) 総沈着量に占める乾性沈着量の比率=乾性沈着量/(乾性沈着量+湿性沈着量)、ただし、硝酸成分は、NO_xを含まない。

アンモニウム成分の総乾性沈着量は、南西諸島で多く、北部で少なかった。乾性沈着量の比率は南西諸島がもっとも大きくなった。

日本海側では、非海塩由来硫酸成分、硝酸成分、アンモニウム成分のすべてで、乾性沈着量の比率が他地域に比べて小さく、湿性沈着によるものが多かった。

5.3.6 非海塩由来硫酸成分の地域区分別経月推移

非海塩由来硫酸成分の沈着量と総沈着量に占める乾性沈着量の比率の経月推移を、地域区分別に平均して、図 5.3.3 に示す。

総乾性沈着量は、全地域区域で5月に多くなっており、日本海側、中央部、西部で最大となった。北部、日本海側、西部、南西諸島では6月～9月に、東部、中央部では11月～1月に少なくなった。

総沈着量は全地域区分で5月に多くなり、北部、東部、中央部、西部では最大となった。東部と中央部は、5月に最大となった後、減少傾向を示し12月に最小となった。北部は、1月に最小となったが、東部や中央部ほど明らかな季節変化はみられなかった。日本海側と南西諸島では、6月～9月に減少したのち10月頃から増加して12月に最大となった。西部は、変動が大きく明らかな季節変化はみられなかった。

総沈着量に占める乾性沈着量の比率は、湿性沈着量が少ないときに高くなるが多かった。総乾性沈着量が多くなった5月は、湿性沈着も多かったため比率は高くならなかった。北部では、3月が最大値、8月が最小値となり、寒冷期に上昇した。日本海側は、総沈着量が最小となった9

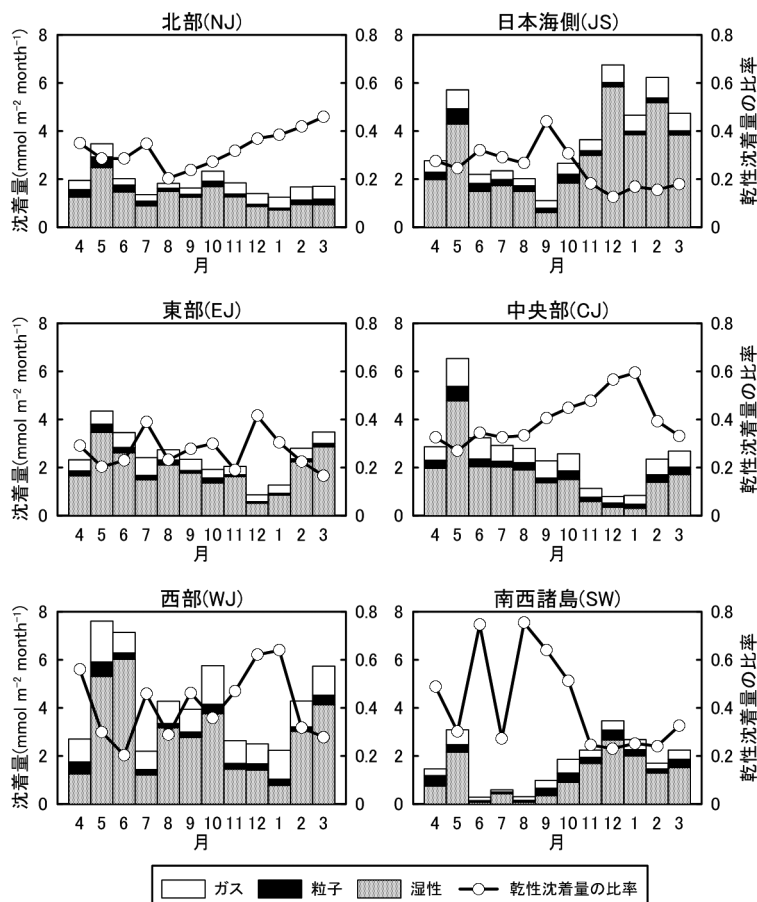


図 5.3.3 非海塩由来硫酸成分の各地域区分における沈着量および総沈着量に占める乾性沈着量の比率の経月推移 (2011年度)

(注) 総沈着量に占める乾性沈着量の比率 = 乾性沈着量 / (乾性沈着量 + 湿性沈着量)

月に乾性沈着量の比率が最大となり、その他の月は寒冷期より温暖期で比率が高くなった。中央部と西部では12月～1月をピークとする寒冷期に、南西諸島は温暖期に比率が上昇した。東部は明らかな季節変化はみられなかった。

一参考文献一

- 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：インフレーション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 Ver. 4-1-1, http://www.ies.hro.or.jp/seisakuka/acid_rain/kanseichinchaku/kanseichinchaku.htm
- 9) 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
- 10) ㈱気象業務支援センター：気象観測月報2011年4月～2012年3月，(CD-ROM)
- 11) 野口泉：乾性沈着速度評価モデル(インフレーション法)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
- 12) 野口泉，布和敷斯尔，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
- 13) 環境省：長期モニタリング報告書(平成15～19年度)，2009
- 14) 国土交通省国土政策局国情情報課：国土数値情報ダウンロードサービス，<http://nlftp.mlit.go.jp/ksj/index.html>

6. パッシブ法によるガス成分濃度

パッシブ法ではフィルターパック法(以下，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地点

間の濃度差が大きいこと，窒素酸化物由来成分およびアンモニア(ガス)由来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，総アンモニウム(アンモニア+アンモニウム塩)の濃度は把握できるが，アーティファクトとしてNH₄⁺の一部がNH₃に変換される場合があることも測定が必要とされる理由である¹⁾。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法と同様に，期間適合度60%以上を有効とした。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。

パッシブ法はNH₃濃度算出係数が改訂されるなど²⁾まだ検討課題があることからFP法で得られたデータと同様には扱えないとし，現段階では乾性沈着量の評価には用いていない。

6.1 測定地点

調査地点は大都市，工業地域，中小都市域，田園地域，森林地域から目的に応じ，1地点以上選定することとなっている。調査は通年で行い，試料捕集周期は1カ月(4週間または6週間)とした。2011年度は20機関38地点で実施された。なお地点により測定項目は異なる。また全国を地域区分しての評価を行っているが地点数が少ない地域，土地利用の偏りがある地域もあり，必ずしも地域を代表していない場合もある(図6.1.1)。

6.2 測定結果

測定地点図を図6.1.1に，年平均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に示す。また2010年度データの欠測数および期間適合度60%以上の割合を表6.1.1に示す。完全度の計算方法は，月ごとの完全度は「月ごとの観測期間/月毎の予定された期間」，年の完全度は「年の観測期間/年の予定された期間」として計算し

表 6.1.1 データ概況(平成23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	22	4	260	250	96%	10	1	0	22	22	100%	0	0
NO	22	4	260	250	96%	10	20	0	22	22	100%	0	0
NO _x	22	4	260	250	96%	10	0	0	22	22	100%	0	0
O ₃	24	6	282	269	96%	13	0	0	24	24	100%	0	0
NH ₃	36	7	425	411	96%	14	23	0	36	36	100%	0	0

(*: < DL 値は ND の数を示す)

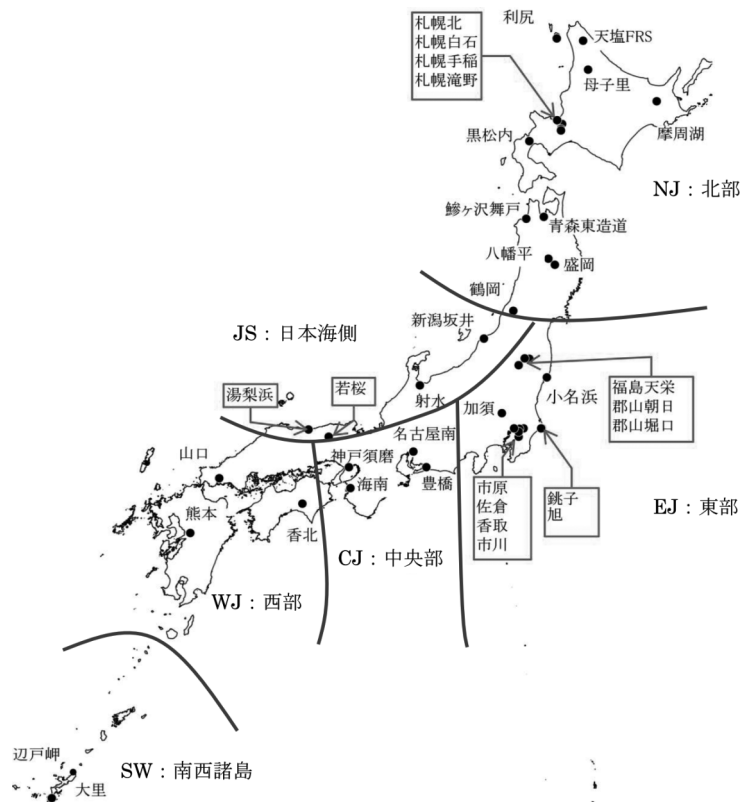


図 6.1.1 パッシブサンプラー測定地点および地域区分

ている。

6.2.1 NO₂

最高年平均濃度は札幌白石(16.1ppb), 最低年平均濃度は天塩 FRS, 摩周(0.3ppb)だった(付表 1)。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)に低い傾向となった。JS がもっとも高いが、これは都市部の新潟坂井のみの結果のためである。全体的にも秋~冬季にかけて高い傾向にある。これは暖房等による排出量増加によると思われる。利尻や天塩 FRS では一定の傾向は見られず、人為影響が少

ないことが示唆される。

6.2.2 NO

最高年平均濃度は札幌白石(9.9ppb), 最低年平均濃度は八幡平(0.2ppb)だった(付表 2)。NO₂ と同様に全体的には冬季に高い傾向にあり東部の郡山朝日, 小名浜でも同様の傾向である。

6.2.3 NO_x

最高年平均濃度は札幌白石(26.0ppb), 最低年平均濃度は八幡平(0.6ppb)であり、昨年度とほぼ同様の結果である(付表 3)。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

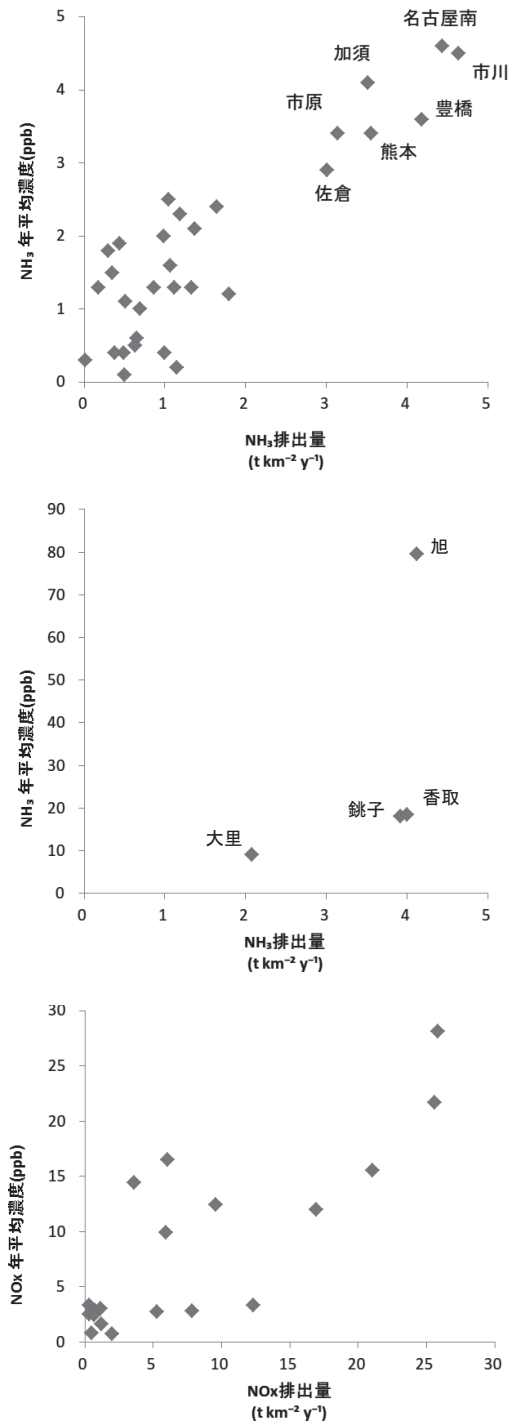


図 6.1.2 NH₃(低濃度地点, 上), NH₃(高濃度地点, 中) 及び NO_x(下)濃度と排出量の相関図

く夏季に低い傾向にある。また札幌、青森の都市部がとくに冬季に高い。これは暖房等による排出に加えて安定境界層の形成など気象要因も影響していることが考えられる。月平均最高濃度は札幌白石の51.7ppb(1月)だった。

6.2.4 O₃

最高年平均濃度は摩周湖(45.1ppb)で最低年平均濃度は山口(21.7ppb)だった(付表4)。例年どおり全体的に冬～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。これは夏季には清浄な空気塊により低濃度になり、逆に冬季の高濃度は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。一般に都市域では夏季に高濃度になるケースが多いが、パッシブサンプラーの設置地点は郊外が多いため、このような結果となったと考えられる。八幡平では例年3月は50-70ppbと高濃度であったが2012年3月は37ppbと低濃度だった。地域的な傾向として西部、中央部が年間を通じてやや低い。(図6.1.3)。

次にPO(ポテンシャルオゾン)濃度を検討した(付表5)。POは次式により算出した。

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

(NO₂: 二酸化窒素濃度, NO_x: 窒素酸化物濃度)

札幌市内、郡山市内など近接した地点では各地点の濃度差がO₃よりもPOで少なくなり、地点毎の窒素酸化物の影響が補正されたと思われる。

6.2.5 NH₃

千葉県内の地点がきわめて高濃度で中でも旭は年平均濃度で80.7ppbと突出している(付表6)。銚子、香取の千葉県内二地点もそれぞれ17.5、17.7ppbと高い濃度だった。旭は近隣に畜産施設が複数あることからその影響を強く受け、銚子、香取も同様の原因と考えられる。千葉県以外の年平均濃度は大里がもっとも高く(9.1ppb)、最低濃度は福島天栄、八幡平(0.2ppb)だった(付表6)。大里も畜産施設が近くにあることから、その影響と思われる。年平均濃度と周辺排出量の散布図を図6.1.2に示す。年平均濃度5ppb未満が観測された地点と上記の大里および千葉県内の旭、銚子および香取を別とした。年平均濃度5ppb未満の地点(図6.1.2, 上)では排出量と濃度に良好な関係性が見られた。高濃度の旭、大里、銚子お

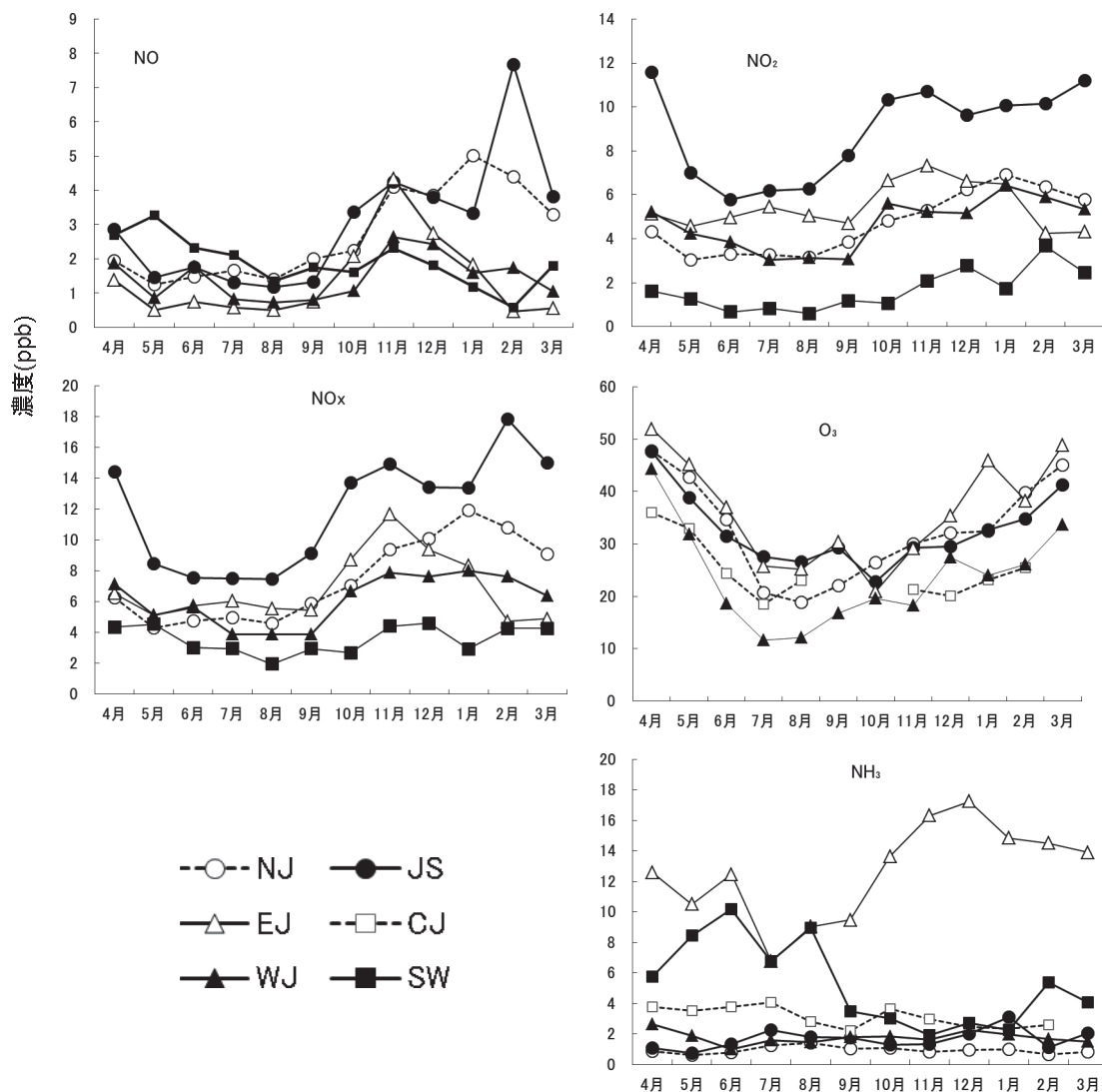


図 6.1.3 地域別季節変動

よび香取(図 6.1.2, 中)では明確な傾向はない。畜産施設からの距離と風向により強く影響されていると考えられ、これら千葉県内および大里については周辺施設と風向等について検討する必要があると思われる。

地域別季節変動を(図 6.1.3)に示す。東部は千葉の影響が大きく濃度が高い。また春-夏にやや少なく冬季に多い傾向となる。南西諸島(SW)は大里の影響が強く、春-夏季に高濃度となり秋-冬は大きく減少する。全国的な濃度分布では例年どおり1.0ppbを下回る地点は東北・北海道に多

かった。また東部、南西諸島以外では明確な季節変動は認められなかった。

— 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、フィルターバック法およびパッシブ法)，第48回大気環境学会講演要旨集，244-245，2007
- 2) 株式会社 小川商会
<http://ogawajapan.com/newpage4.html>

7. ま と め

平成23年度酸性雨全国調査結果の概要は以下の

通りである。

7.1 湿性沈着

日本海側および西部では、冬季に nss-SO_4^{2-} および H^+ 濃度が高い傾向を示した。この傾向は、2005年度までは日本海側で顕著であったが、2006年度には西部でも冬季に高濃度となる傾向が確認され、2011年度まで引き続き同様の傾向にあった。 nss-SO_4^{2-} および NO_3^- 沈着量は日本海側、次いで西部で多い傾向を示し、中央部および南西諸島では少ない傾向を示した。季節変動は H^+ 沈着量について日本海側で冬季に多い傾向が顕著であり、西部では初夏や夏に多い傾向があった。 nss-SO_4^{2-} および NO_3^- 沈着量についても H^+ 沈着量に類似した季節変動パターンを示した。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。

7.2 乾性沈着成分濃度(フィルターパック法)

全国36地点でFP法による乾性沈着調査を実施したところ、2011年度の大気中のガス状および粒子状成分の年平均濃度は、2010年度と同程度であった。地域特性の解析結果から、 $\text{SO}_2(\text{g})$ および $\text{NH}_3(\text{g})$ について地域汚染の影響を受けたと考えられる地点があった。2003年～2011年度の経年変化を調べたところ、 $\text{SO}_4^{2-}(\text{p})$ 、 $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$

および $\text{NH}_4^+(\text{p})$ が減少傾向を示した。 $\text{SO}_2(\text{g})$ および $\text{NH}_3(\text{g})$ は、2003年から2010年まで減少傾向が見られたが2011年度は横ばいに推移した。

7.3 乾性沈着量

FP法の測定結果から、乾性沈着推計ファイル Ver. 4-1-1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23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 $10.9\text{mmol m}^{-2}\text{y}^{-1}$ 、硝酸成分が $13.6\text{mmol m}^{-2}\text{y}^{-1}$ 、アンモニウム成分が $24.2\text{mmol m}^{-2}\text{y}^{-1}$ だった。

7.4 ガス成分濃度(パッシブ法)

パッシブ法により NO_2 、 NO 、 O_3 、および NH_3 の測定を行った。 NO_x 、 O_3 は概ね例年どおりであったが、例年、八幡平では春季に高濃度であるが2012年3月には37ppbと低かった。 NH_3 では千葉県内および沖縄大里の濃度が高く、近隣施設の影響が強いと考えられる。それ以外の地点では NH_3 に明確な季節変動はみられなかった。

本調査の詳細データは、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順次、公開予定である(<http://db.cger.nies.go.jp/dataset/acidrain/ja/index.html>)。

付表1 パッシブ法による月および年平均NO₂濃度(2011年度)

単位: ppb

ID	地域区分	NO _x 排出量 (t km ⁻² y ⁻¹)	自治体	地点	11/4月	11/5月	11/6月	11/7月	11/8月	11/9月	11/10月	11/11月	11/12月	12/1月	12/2月	12/3月	2011
1	NJ	0.51	北海道	利尻	0.5	0.3	0.5	0.5	0.3	0.2	0.5	0.3	0.5	0.5	0.6	0.5	0.4
2	NJ	0.09	北海道	天塩FRS	0.3	0.2	0.3	0.3	0.3	欠測	0.3	0.2	0.4	0.4	0.2	0.4	0.3
3	NJ	0.76	北海道	母子里	0.6	0.4	0.6	0.6	0.6	0.6	0.9	1.0	2.5	3.0	2.1	1.3	1.1
6	NJ	0.33	北海道	黒松内	1.5	1.4	1.2	1.6	1.5	0.9	1.3	1.7	2.7	2.5	3.0	1.4	1.7
4	NJ	25.61	北海道	札幌北	13.2	9.0	8.9	10.1	10.0	10.8	13.4	13.7	19.5	18.4	17.6	18.4	13.4
5	NJ	0.30	北海道	摩周	0.2	0.2	0.3	0.2	0.1	0.4	0.4	0.7	0.2	0.2	0.3	ND	0.3
7	NJ	25.81	札幌市	札幌白石	14.4	11.0	11.8	11.3	10.5	11.8	16.7	20.1	23.1	24.8	20.7	20.1	16.1
9	NJ	21.05	札幌市	札幌手稲	9.6	6.0	5.7	6.7	6.6	8.2	11.4	11.2	9.7	13.9	12.3	10.4	9.2
10	NJ	12.34	札幌市	札幌滝野	欠測	2.1	2.2	2.3	1.5	2.0	1.8	1.9	1.9	2.7	2.2	3.0	2.1
11	NJ	3.59	青森県	青森東造道	7.9	6.1	7.1	5.2	5.4	6.8	10.0	11.3	15.0	16.8	14.7	12.5	9.7
12	NJ	1.15	青森県	鯉ヶ沢舞戸	1.6	1.9	2.3	2.1	2.1	2.0	2.2	1.9	1.7	2.1	1.9	2.3	2.0
13	NJ	5.94	岩手県	盛岡	5.5	3.4	4.2	4.1	4.6	5.5	7.3	8.8	8.6	9.6	11.4	8.8	6.7
14	NJ	1.99	岩手県	八幡平	0.3	0.3	0.4	0.3	0.4	0.4	0.4	0.5	0.6	0.7	0.8	0.7	0.5
18	NJ	0.71	山形県	鶴岡	0.6	0.5	0.7	0.7	0.5	0.7	1.0	0.8	1.0	1.3	1.4	1.1	0.8
19	EJ	1.22	福島県	福島天栄	1.0	1.0	0.6	0.8	1.0	1.3	0.9	1.0	0.8	0.8	1.2	1.4	1.0
20	EJ	6.08	郡山市	郡山朝日	10.9	8.2	8.7	9.3	9.1	8.4	12.8	14.0	12.3	12.6	欠測	欠測	10.6
21	EJ	5.27	郡山市	郡山堀口	1.9	1.9	1.5	1.8	2.1	2.3	2.2	2.3	1.7	2.2	2.0	2.5	2.0
22	EJ	16.92	いわき市	小名浜	6.8	7.2	9.1	9.9	8.0	6.8	10.6	12.1	11.7	10.4	9.6	9.1	9.3
27	JS	9.59	新潟市	新潟坂井	11.6	7.0	5.8	6.2	6.3	7.8	10.3	10.7	9.6	10.1	10.2	11.2	8.9
76	WJ	5.84	山口県	山口	9.2	7.8	7.1	5.5	5.9	5.5	10.4	9.1	8.9	11.0	10.2	9.1	8.4
78	WJ	0.46	高知県	香北	1.3	0.8	0.7	0.6	0.4	0.6	0.8	1.4	1.4	1.9	1.5	1.5	1.1
87	SW	7.83	沖縄県	大里	1.6	1.3	0.7	0.8	0.6	1.2	1.1	2.1	2.8	1.7	3.7	2.5	1.6

: 欠測、EANETの定量下限値以下、または参考値(完全度及び期間適合度が60%未満の場合など)

年平均値はNDを0として算出。

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

付表2 パッシブ法による月および年平均NO濃度(2011年度)

単位: ppb

ID	地域区分	NO _x 排出量 (t km ⁻² y ⁻¹)	自治体	地点	11/4月	11/5月	11/6月	11/7月	11/8月	11/9月	11/10月	11/11月	11/12月	12/1月	12/2月	12/3月	2011
1	NJ	0.51	北海道	利尻	0.2	0.3	0.4	0.6	0.6	0.6	0.5	0.3	0.2	0.4	0.2	ND	0.4
2	NJ	0.09	北海道	天塩FRS	0.7	0.4	0.9	0.9	1.2	欠測	0.6	0.4	0.4	0.3	ND	ND	0.5
3	NJ	0.76	北海道	母子里	0.8	0.4	0.6	0.7	0.8	0.5	0.4	1.1	2.4	2.7	2.8	2.3	1.2
6	NJ	0.33	北海道	黒松内	1.3	1.2	1.0	0.9	0.8	1.0	0.7	1.4	2.1	3.1	2.3	1.5	1.4
4	NJ	25.61	北海道	札幌北	4.9	2.4	2.9	4.3	3.5	3.2	5.1	14.8	13.3	7.6	13.0	8.8	6.7
5	NJ	0.30	北海道	摩周	2.5	1.3	1.8	1.7	1.6	2.3	1.2	1.7	1.6	2.1	3.0	3.1	2.0
7	NJ	25.81	札幌市	札幌白石	6.5	5.0	4.3	5.8	3.6	5.0	8.0	13.0	14.5	26.9	16.4	14.0	9.9
9	NJ	21.05	札幌市	札幌手稲	3.5	2.4	2.4	2.9	3.2	4.4	8.4	10.4	7.7	12.0	7.9	4.8	5.8
10	NJ	12.34	札幌市	札幌滝野	欠測	0.9	1.4	1.3	1.0	1.1	0.9	0.6	1.2	1.6	1.6	1.7	1.2
11	NJ	3.59	青森県	青森東造道	2.1	1.6	1.7	1.9	1.6	2.3	3.1	4.3	5.9	7.2	6.7	4.8	3.5
12	NJ	1.15	青森県	鯉ヶ沢舞戸	0.6	0.6	0.9	1.1	0.9	0.8	0.8	0.7	0.8	1.0	1.0	0.8	0.8
13	NJ	5.94	岩手県	盛岡	0.7	0.3	1.2	ND	ND	3.6	0.4	6.4	2.5	3.0	4.9	2.3	2.0
14	NJ	1.99	岩手県	八幡平	ND	ND	ND	ND	ND	0.2	ND	0.1	0.3	0.4	0.4	0.6	0.2
18	NJ	0.71	山形県	鶴岡	1.5	0.8	1.1	1.3	1.1	1.2	1.4	2.1	1.0	1.9	1.5	1.3	1.3
19	EJ	1.22	福島県	福島天栄	0.4	0.5	0.3	0.7	0.4	0.3	0.7	0.7	0.8	1.0	0.5	0.6	0.6
20	EJ	6.08	郡山市	郡山朝日	4.6	1.4	2.2	1.6	1.6	2.2	6.6	13.3	9.0	6.2	欠測	欠測	4.8
21	EJ	5.27	郡山市	郡山堀口	0.6	0.2	0.4	ND	ND	0.5	0.7	1.0	0.7	0.2	0.8	1.1	0.5
22	EJ	16.92	いわき市	小名浜	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.2	2.3	0.5	ND	ND	ND	0.3
27	JS	9.59	新潟市	新潟坂井	2.9	1.5	1.8	1.3	1.2	1.3	3.4	4.2	3.8	3.3	7.7	3.8	3.0
76	WJ	5.84	山口県	山口	1.8	1.3	3.1	1.1	1.2	1.0	1.6	4.8	4.7	3.2	3.5	2.1	2.4
78	WJ	0.46	高知県	香北	1.9	0.5	0.4	0.5	0.2	0.7	0.5	0.5	0.1	ND	ND	ND	0.5
87	SW	7.83	沖縄県	大里	2.7	3.3	2.3	2.1	1.4	1.8	1.6	2.3	1.8	1.2	0.6	1.8	1.9

: 欠測、EANETの定量下限値以下、または参考値(完全度及び期間適合度が60%未満の場合など)

年平均値はNDを0として算出。

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

付表3 パッシブ法による月および年平均 NO_x 濃度(2011年度)

単位: ppb

ID	地域区分	NO _x 排出量 (t km ⁻² y ⁻¹)	自治体	地点	11/4月	11/5月	11/6月	11/7月	11/8月	11/9月	11/10月	11/11月	11/12月	12/1月	12/2月	12/3月	2011
1	NJ	0.51	北海道	利尻	0.7	0.6	0.9	1.1	0.9	0.8	1.0	0.5	0.7	0.9	0.8	0.5	0.8
2	NJ	0.09	北海道	天塩FRS	1.0	0.6	1.2	1.2	1.5	欠測	0.8	0.7	0.8	0.7	0.2	0.4	0.8
3	NJ	0.76	北海道	母子里	1.4	0.8	1.1	1.3	1.3	1.1	1.3	2.1	4.9	5.7	4.9	3.6	2.3
6	NJ	0.33	北海道	黒松内	2.8	2.6	2.2	2.5	2.3	1.9	2.0	3.1	4.8	5.6	5.2	3.0	3.1
4	NJ	25.61	北海道	札幌北	18.1	11.4	11.7	14.4	13.5	14.0	18.5	28.4	32.8	26.0	30.6	27.1	20.1
5	NJ	0.30	北海道	摩周	2.6	1.5	2.1	2.0	1.7	2.7	1.6	2.5	1.9	2.3	3.3	3.1	2.2
7	NJ	25.81	札幌市	札幌白石	20.9	16.0	16.1	17.1	14.1	16.7	24.7	33.1	37.6	51.7	37.0	34.1	26.0
9	NJ	21.05	札幌市	札幌手稲	13.1	8.4	8.1	9.6	9.9	12.6	19.8	21.6	17.4	25.9	20.2	15.2	15.0
10	NJ	12.34	札幌市	札幌滝野	欠測	3.0	3.7	3.5	2.5	3.0	2.7	2.5	3.0	4.3	3.8	4.7	3.3
11	NJ	3.59	青森県	青森東造道	9.9	7.7	8.8	7.1	6.9	9.1	13.0	15.6	20.9	23.9	21.5	17.3	13.2
12	NJ	1.15	青森県	鯉ヶ沢舞戸	2.2	2.6	3.2	3.2	3.0	2.8	3.0	2.5	2.5	3.1	2.9	3.1	2.8
13	NJ	5.94	岩手県	盛岡	6.2	3.7	5.4	4.1	4.6	9.1	7.7	15.2	11.0	12.6	16.4	11.1	8.7
14	NJ	1.99	岩手県	八幡平	0.3	0.3	0.4	0.3	0.4	0.6	0.4	0.6	0.9	1.1	1.3	1.2	0.6
18	NJ	0.71	山形県	鶴岡	2.2	1.3	1.8	2.0	1.6	1.9	2.4	2.9	2.0	3.2	2.9	2.4	2.2
19	EJ	1.22	福島県	福島天栄	1.4	1.5	0.9	1.5	1.4	1.6	1.6	1.7	1.6	1.7	1.8	2.0	1.5
20	EJ	6.08	郡山市	郡山朝日	15.4	9.6	10.9	10.9	10.7	10.5	19.4	27.3	21.2	18.8	欠測	欠測	15.3
21	EJ	5.27	郡山市	郡山堀口	2.5	2.0	1.9	1.8	2.1	2.9	3.0	3.3	2.5	2.4	2.8	3.6	2.6
22	EJ	16.92	いわき市	小名浜	6.8	7.2	9.1	9.9	8.0	6.8	10.9	14.4	12.2	10.4	9.6	9.1	9.5
27	JS	9.59	新潟市	新潟坂井	14.4	8.5	7.5	7.5	7.5	9.1	13.7	14.9	13.4	13.4	17.8	15.0	11.8
76	WJ	5.84	山口県	山口	11.0	9.0	10.2	6.6	7.1	6.5	12.0	13.9	13.6	14.2	13.7	11.2	10.7
78	WJ	0.46	高知県	香北	3.2	1.2	1.1	1.2	0.6	1.2	1.4	1.8	1.6	1.9	1.5	1.5	1.5
87	SW	7.83	沖縄県	大里	4.3	4.5	3.0	2.9	2.0	2.9	2.7	4.4	4.6	2.9	4.3	4.3	3.6

: 欠測、EANETの定量下限値以下、または参考値(完全度及び期間適合度が60%未満の場合など)

年平均値はNDを0として算出。

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

付表4 パッシブ法による月および年平均 O₃ 濃度(2011年度)

単位: ppb

ID	地域区分	標高(m)	自治体	地点	11/4月	11/5月	11/6月	11/7月	11/8月	11/9月	11/10月	11/11月	11/12月	12/1月	12/2月	12/3月	2011
1	NJ	40	北海道	利尻	45.5	46.4	37.3	25.1	16.2	14.4	26.3	23.3	31.3	45.2	46.1	56.9	36.5
2	NJ	70	北海道	天塩FRS	32.3	37.6	30.4	16.2	9.4	17.7	20.0	26.6	22.4	35.6	49.1	51.8	28.3
3	NJ	287	北海道	母子里	39.1	36.6	26.9	14.2	8.9	19.0	17.5	27.7	22.2	28.6	36.8	44.3	26.8
6	NJ	87	北海道	黒松内	40.8	35.7	26.5	15.2	9.6	15.1	14.0	26.0	30.6	29.4	35.5	42.5	26.6
4	NJ	12	北海道	札幌北	39.1	38.2	32.8	19.7	11.5	23.8	15.6	16.7	欠測	17.9	25.4	32.4	25.0
5	NJ	550	北海道	摩周	56.9	49.7	40.9	33.8	29.3	44.6	41.6	42.8	44.7	41.6	52.6	61.4	45.1
7	NJ	14	札幌市	札幌白石	52.3	40.4	37.8	21.8	24.9	24.4	23.9	21.9	21.4	20.7	29.4	39.9	30.1
9	NJ	5	札幌市	札幌手稲	46.0	35.9	26.0	13.6	14.9	16.1	18.0	22.2	33.0	28.7	34.3	40.3	27.4
10	NJ	295	札幌市	札幌滝野	欠測	50.0	37.8	25.4	26.9	28.6	34.9	36.7	35.8	35.0	41.4	45.9	36.8
11	NJ	3	青森県	青森東造道	53.1	40.3	36.2	21.7	24.2	21.5	23.2	30.5	28.4	25.7	33.1	44.6	31.9
12	NJ	30	青森県	鯉ヶ沢舞戸	55.2	45.7	40.7	24.6	25.1	24.9	34.9	50.6	48.0	48.9	54.9	58.9	42.5
13	NJ	131	岩手県	盛岡	45.4	47.1	48.1	19.5	21.6	17.0	19.5	21.6	19.9	23.3	30.3	31.4	29.1
14	NJ	830	岩手県	八幡平	67.9	63.2	42.7	26.4	29.0	26.0	38.4	51.3	49.3	38.9	48.9	37.0	43.9
18	NJ	220	山形県	鶴岡	46.6	31.3	20.4	12.5	11.9	15.2	16.0	21.8	29.5	35.3	39.2	43.6	26.5
19	EJ	941	福島県	福島天栄	65.9	52.6	45.0	37.4	30.0	36.7	35.4	35.2	37.1	43.9	35.3	53.5	42.4
20	EJ	242	郡山市	郡山朝日	42.5	43.0	37.0	25.8	17.6	24.1	12.9	27.2	33.8	59.5	欠測	欠測	31.2
21	EJ	392	郡山市	郡山堀口	56.7	47.4	37.6	21.3	34.6	43.5	14.8	35.1	46.8	53.2	52.1	55.6	40.7
22	EJ	3	いわき市	小名浜	42.7	37.6	28.4	18.5	18.6	17.2	20.7	19.2	23.7	26.8	27.4	37.5	26.7
27	JS	0	新潟市	新潟坂井	41.2	42.7	31.6	26.6	25.7	24.2	25.5	25.7	29.7	31.2	28.4	39.0	31.2
68	CJ	15	兵庫県	神戸須磨	36.0	32.9	24.3	18.5	23.1	欠測	欠測	21.3	20.0	23.1	25.4	27.9	25.6
72	JS	800	鳥取県	若桜	54.9	36.8	34.0	31.2	27.5	30.8	14.4	33.7	30.0	36.7	44.3	46.5	34.3
73	JS	2	鳥取県	湯梨浜	46.9	36.8	28.7	24.9	26.5	32.8	28.5	28.2	28.9	30.2	31.6	38.1	31.9
76	WJ	13	山口県	山口	39.5	31.7	21.3	11.1	13.9	16.8	18.8	14.4	17.1	17.6	22.1	32.4	21.7
78	WJ	230	高知県	香北	49.2	32.0	16.0	12.2	10.4	16.8	20.5	22.1	37.8	30.3	30.0	34.9	26.1

: 欠測、EANETの定量下限値以下、または参考値(完全度及び期間適合度が60%未満の場合など)

年平均値はNDを0として算出。

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

付表5 パッシブ法による月および年平均 PO 濃度 (2011年度)

単位: ppb

ID	地域区分	標高(m)	自治体	地点	11/4月	11/5月	11/6月	11/7月	11/8月	11/9月	11/10月	11/11月	11/12月	12/1月	12/2月	12/3月	2011
1	NJ	40	北海道	利尻	46.0	46.7	37.7	25.4	16.5	14.5	26.7	23.6	31.7	45.6	46.6	57.4	36.9
2	NJ	70	北海道	天塩FRS	32.5	37.7	30.5	16.4	9.6	欠測	20.2	26.7	22.7	35.9	49.3	52.1	28.5
3	NJ	287	北海道	母子里	39.6	36.9	27.4	14.7	9.4	19.5	18.2	28.4	24.2	31.0	38.4	45.2	27.7
6	NJ	87	北海道	黒松内	42.0	36.8	27.5	16.6	10.8	15.8	15.1	27.4	32.8	31.3	37.9	43.7	27.9
4	NJ	12	北海道	札幌北	50.5	46.1	40.5	28.3	20.2	33.2	27.1	27.5	欠測	33.7	39.9	48.0	36.4
5	NJ	550	北海道	摩周	56.8	49.7	41.0	33.8	29.2	44.7	41.8	43.2	44.7	41.5	52.6	61.4	45.2
7	NJ	14	札幌市	札幌白石	64.7	49.9	48.0	31.3	34.0	34.4	38.2	38.7	40.7	40.3	46.3	56.5	43.6
9	NJ	5	札幌市	札幌手稲	54.3	41.0	30.9	19.3	20.5	23.1	27.4	31.2	40.9	40.0	44.5	49.2	35.1
10	NJ	295	札幌市	札幌滝野	欠測	51.8	39.7	27.3	28.2	30.3	36.4	38.4	37.3	37.3	43.2	48.4	38.5
11	NJ	3	青森県	青森東造道	60.0	45.6	42.4	26.2	28.9	27.4	31.9	40.2	41.3	40.1	45.7	55.4	40.3
12	NJ	30	青森県	鯉ヶ沢舞戸	56.5	47.4	42.8	26.4	26.9	26.6	36.8	52.2	49.5	50.6	56.6	60.9	44.2
13	NJ	131	岩手県	盛岡	50.3	50.1	51.8	23.2	25.7	21.6	26.0	28.9	27.3	31.7	40.1	39.1	34.9
14	NJ	830	岩手県	八幡平	68.2	63.4	43.0	26.7	29.4	26.3	38.8	51.7	49.8	39.5	49.6	37.6	44.3
18	NJ	220	山形県	鶴岡	47.0	31.7	20.9	13.0	12.2	15.7	16.7	22.3	30.4	36.3	40.3	44.5	27.2
19	EJ	941	福島県	福島天栄	66.7	53.4	45.4	38.0	30.8	37.8	36.1	36.0	37.7	44.5	36.3	54.7	43.2
20	EJ	242	郡山市	郡山朝日	51.8	50.2	44.6	34.0	25.6	31.4	23.8	38.5	43.9	70.2	欠測	欠測	40.2
21	EJ	392	郡山市	郡山堀口	58.4	49.1	38.9	23.0	36.5	45.5	16.8	37.1	48.3	55.2	53.8	57.8	42.5
22	EJ	3	いわき市	小名浜	48.8	44.1	36.6	27.4	25.9	23.4	30.3	29.8	34.1	36.2	36.0	45.6	35.0
27	JS	0	新潟市	新潟坂井	51.3	48.8	36.6	32.0	31.2	31.0	34.5	34.9	38.0	39.9	36.8	48.6	38.9
76	WJ	13	山口県	山口	47.5	38.5	27.3	16.0	19.1	21.7	28.0	22.1	24.6	27.2	30.9	40.4	29.0
78	WJ	230	高知県	香北	50.2	32.6	16.5	12.7	10.7	17.2	21.2	23.3	39.1	32.0	31.4	36.3	27.0

: 欠測, EANET の定量下限値以下, または参考値(完全度及び期間適合度が 60%未満の場合など)

地域区分は, NJ: 北部, JS: 日本海側, EJ: 東部, CJ: 中央部, WJ: 西部, SW: 南西諸島

付表6 パッシブ法による NH₃ ガス月および年平均濃度 (2011年度)

単位: ppb

ID	地域区分	NH ₃ 排出量 (t km ⁻² y ⁻¹)	自治体	地点	11/4月	11/5月	11/6月	11/7月	11/8月	11/9月	11/10月	11/11月	11/12月	12/1月	12/2月	12/3月	2011
1	NJ	0.02	北海道	利尻	0.2	0.2	0.3	0.5	0.6	0.3	0.6	0.3	ND	ND	0.2	0.2	0.3
2	NJ	0.50	北海道	天塩FRS	0.3	0.3	0.6	0.4	0.8	0.3	0.3	0.1	ND	ND	0.2	0.6	0.3
3	NJ	0.49	北海道	母子里	0.3	0.4	0.9	0.9	1.1	0.2	0.4	ND	ND	ND	0.2	ND	0.4
4	NJ	1.07	北海道	札幌北	1.8	1.0	1.5	1.8	2.6	1.8	2.0	2.2	1.1	1.2	0.8	0.9	1.5
7	NJ	1.19	札幌市	札幌白石	2.3	1.4	1.0	2.3	2.9	2.4	2.8	2.2	2.4	3.1	2.3	2.0	2.2
9	NJ	0.69	札幌市	札幌手稲	1.1	0.6	0.5	1.4	1.9	1.6	1.2	1.0	0.8	0.9	0.9	0.8	1.0
10	NJ	0.65	札幌市	札幌滝野	欠測	0.3	ND	0.5	0.9	0.7	0.6	0.6	0.6	0.9	0.4	0.8	0.6
11	NJ	0.44	青森県	青森東造道	1.1	1.1	1.4	2.5	2.4	1.8	1.9	1.6	3.5	2.7	1.6	1.6	1.9
12	NJ	0.51	青森県	鯉ヶ沢舞戸	1.0	0.8	1.4	2.1	1.5	1.0	1.1	0.6	1.1	1.3	0.6	0.8	1.1
13	NJ	1.33	岩手県	盛岡	0.9	0.9	1.0	1.5	1.7	1.5	1.7	1.1	1.3	1.4	0.6	1.8	1.3
14	NJ	1.15	岩手県	八幡平	0.3	0.3	0.4	0.3	0.4	0.2	0.3	0.2	0.2	0.1	0.1	0.2	0.2
18	NJ	0.38	山形県	鶴岡	0.3	0.4	0.7	0.6	0.6	0.3	0.2	0.3	0.3	0.3	0.3	0.2	0.4
19	EJ	0.50	福島県	福島天栄	欠測	0.6	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.4	0.1	0.2	0.3	0.2
20	EJ	1.37	郡山市	郡山朝日	1.7	1.9	2.6	3.0	2.5	2.5	1.9	1.9	1.3	2.3	欠測	欠測	2.1
21	EJ	1.00	郡山市	郡山堀口	0.6	0.8	0.7	1.0	ND	0.6	0.4	0.2	0.1	0.2	ND	0.1	0.4
22	EJ	0.99	いわき市	小名浜	ND	1.3	3.4	4.8	4.1	1.5	2.0	1.7	1.9	1.3	1.3	1.2	2.0
27	JS	1.64	新潟市	新潟坂井	2.2	1.9	2.7	4.0	3.5	4.7	3.1	2.3	1.6	0.8	0.8	1.0	2.4
32	EJ	3.51	埼玉県	加須	3.5	4.0	4.6	4.3	3.8	2.2	3.9	4.1	7.5	5.0	3.4	2.5	4.1
37	EJ	3.14	千葉県	市原	2.9	3.3	3.8	4.5	3.4	3.6	3.6	3.3	3.2	4.0	2.8	2.6	3.4
40	EJ	3.92	千葉県	銚子	12.1	9.4	13.4	7.2	7.4	6.8	15.6	26.0	38.2	32.3	23.2	24.1	17.5
44	EJ	4.12	千葉県	旭	85.5	78.9	91.1	32.4	60.9	70.4	106.7	114.2	87.0	71.6	67.5	89.6	80.7
45	EJ	3.01	千葉県	佐倉	2.2	2.5	3.6	3.9	3.6	3.6	2.9	2.7	2.5	3.1	2.0	2.4	2.9
35	EJ	4.64	千葉県	市川	3.5	3.5	5.1	4.1	4.9	4.6	5.1	5.1	5.3	5.1	3.5	4.0	4.5
38	EJ	4.00	千葉県	香取	14.0	9.4	8.9	9.1	8.9	8.2	8.1	20.5	42.3	38.4	41.3	12.2	17.7
56	JS	1.80	富山県	射水	1.3	1.1	1.6	1.8	1.8	2.1	1.5	1.1	0.5	0.7	0.6	0.5	1.2
60	CJ	4.18	愛知県	豊橋	3.5	4.2	6.5	5.9	3.1	欠測	4.1	3.4	2.8	2.2	2.4	2.1	3.7
90	CJ	4.44	名古屋	名古屋南	5.7	4.9	5.6	4.4	4.1	3.2	5.2	5.4	4.3	4.8	5.5	2.5	4.6
68	CJ	1.05	兵庫県	神戸須磨	4.5	3.7	2.2	4.0	2.2	欠測	欠測	1.9	2.0	1.4	1.7	1.5	2.6
70	CJ	1.12	和歌山県	海南	1.5	1.3	0.8	2.0	1.8	1.3	1.7	1.3	0.8	0.9	0.8	1.0	1.3
72	JS	0.30	鳥取県	若桜	ND	ND	ND	1.3	0.3	ND	ND	0.4	1.4	10.9	1.2	5.7	1.6
73	JS	0.86	鳥取県	湯梨浜	0.8	ND	1.0	1.9	1.7	0.3	0.7	1.6	4.5	0.1	1.9	0.9	1.2
76	WJ	0.63	山口県	山口	1.0	0.6	ND	0.4	0.5	0.3	0.5	0.3	0.7	0.2	0.3	1.7	0.6
78	WJ	0.18	高知県	香北	1.6	1.5	1.4	1.7	1.2	1.7	2.2	0.2	0.9	1.2	1.2	1.2	1.4
84	WJ	3.56	熊本市	熊本	5.4	3.6	1.6	2.6	2.7	3.4	2.8	4.5	5.2	4.5	3.5	1.5	3.4
88	SW	0.35	沖縄県	辺戸岬	1.4	1.3	2.6	2.2	2.1	1.7	1.1	ND	1.2	1.8	1.4	1.8	1.5
87	SW	2.08	沖縄県	大里	10.1	15.6	17.8	11.3	15.8	5.3	4.9	3.8	4.3	2.7	9.4	6.4	9.1

: 欠測, EANET の定量下限値以下, または参考値(完全度及び期間適合度が 60%未満の場合など)

年平均値は ND を 0 として算出。

地域区分は, NJ: 北部, JS: 日本海側, EJ: 東部, CJ: 中央部, WJ: 西部, SW: 南西諸島