

第5次酸性雨全国調査報告書(平成25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, 岩崎綾, 濱村研吾, 木戸瑞佳, 遠藤朋美, 山口高志, 高嶋司, 菊谷有希, 川本長雄,
福田裕, 松本利恵, 横山新紀, 北村洋子, 野口泉, 家合浩明, 三浦誓也, 葛西正毅, 松倉祐介

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、夏季および冬季に日単位調査や流跡線解析を行いました。この結果、冬季に日本海側で沈着量が多く、硫酸イオンを多く含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法)に加えて乾性沈着を把握するために、4段ろ紙法(フィルターパック法)によるガス・エアロゾル調査を実施しました。この結果、都市部における酸性雨の状況、硫酸化合物や窒素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次調査の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、オゾン濃度等が測定可能であるパッシブ法を導入しました。また、乾性沈着速度を算出するプログラムを共同開発し、乾性沈着量の評価を実施しました。なお、第4次調査は当初2003～2005年度の予定でしたが、中国における硫酸化合物や窒素酸化物の排出量が急増する傾向が見られたため、2008年度までの3年間調査を延長しました。

第4次調査までの調査で得られた知見を活かし、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するため、2009年度に部会名称を「酸性雨調査研究部会」から「酸性雨広域大気汚染調査研究部会」と改め、準備期間を空けること

なく第5次調査を実施しております。

当報告書では、第5次調査の5年目である2013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の一助となれば幸いです。

また東アジア地域の経済発展に伴う酸性物質排出量増加の背景から、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および项目的に補完しており、環境省および国立研究開発法人国立環境研究所と連携して全国的な情報・知見の集積を行う上で、地方研究機関の役割・貢献がきわめて大きいことを示していると思われます。

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、地方環境研究機関が中心となって独自の調査研究を行っていくことは環境行政の推進に必要不可欠であり、今後も継続していくことが重要であると思われます。

最後になりましたが、行財政状況のたいへん厳しい中、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みなさま、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みなさま、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、国立研究開発法人国立環境研究所、(一財)日本環境衛生センター／アジア大気汚染研究センターならびにその他の多くのみなさまに、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、当部会の活動にみなさまの御支援・御協力を賜りますようお願い申し上げます。

平成27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 藤井 幸三
(熊本市環境総合センター所長)

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。

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(ウェ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・とりまとめをめざすこと、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。

なお、第1～5次調査結果(2011年度まで)は国立環境研究所地球環境研究センターにおける地球環境データベース(<http://db.cger.nies.go.jp/dataset/acidrain/ja/index.html>)にて公開されている。

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	
調査対象	降水成分		降水成分		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
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		降水時間放型捕集装置(ウェットオンリー採取)による原則1週間単位の試料採取	フィルターパック法による原則1-2週間単位の試料採取
調査期間	通年調査		夏季および冬季の2週間調査		通年調査	
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	
報告書の公表	全国公害研誌 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)) 全国環境研誌 VOL.28, NO.3, (第3次酸性雨全国調査報告書(平成11～13年度))	

	第4次酸性雨全国調査			第5次酸性雨全国調査		
調査対象	湿性沈着	乾性沈着		湿性沈着	乾性沈着	
調査地点数	2003年度：61地点 2004年度：61地点 2005年度：62地点 2006年度：57地点 2007年度：61地点 2008年度：60地点	2003年度：32地点 2004年度：34地点 2005年度：35地点 2006年度：28地点 2007年度：28地点 2008年度：29地点	2003年度：59地点 2004年度：61地点 2005年度：59地点 2006年度：39地点 2007年度：34地点 2008年度：37地点	2009年度：72地点 2010年度：67地点 2011年度：66地点 2012年度：66地点 2013年度：67地点	2009年度：32地点 2010年度：35地点 2011年度：36地点 2012年度：34地点 2013年度：35地点	2009年度：42地点 2010年度：41地点 2011年度：38地点 2012年度：36地点 2013年度：30地点
調査手法	降水時間放型捕集装置(ウェットオンリー採取)による原則1週間単位の試料採取	フィルターパック法によるガスおよび粒子状成分調査、原則1-2週間単位の試料採取	パッシブサンプラー(O式およびN式)によるガス成分調査、月単位の試料採取	降水時間放型捕集装置(ウェットオンリー採取)による原則1週間単位の試料採取	フィルターパック法によるガスおよび粒子状成分調査、原則1-2週間単位の試料採取	パッシブサンプラー(O式)によるガス成分調査、月単位の試料採取
調査期間	通年調査			通年調査		
データの公表	国立環境研究所地球環境研究センターホームページ(http://db.cger.nies.go.jp/dataset/acidrain/ja/04/index.html)に掲載			国立環境研究所地球環境研究センターホームページに掲載予定		
報告書の公表	全国環境研誌 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)) 全国環境研誌 VOL.37, NO.3, (第5次酸性雨全国調査報告書(平成22年度)) 全国環境研誌 VOL.38, NO.3, (第5次酸性雨全国調査報告書(平成23年度)) 全国環境研誌 VOL.39, NO.3, (第5次酸性雨全国調査報告書(平成24年度))		

表 2.1.1 調査地点の属性および調査内容

支部	都道府県名	地点名	調査機関名	排出量 ^(注1) (t km ⁻² y ⁻¹)			地域区分 ^(注2)	緯度(度)	経度(度)	湿性 ^(注3)	乾性 ^(注4)			標高(m)	海岸からの距離(km)	サンプラー設置位置 地上高	土地利用など
				SO ₂	NO _x	NH ₃					FP	O式	自動				
北海道	利尻	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(草、笹)	
	大塚 FRS	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	地上高8m	未指定(森林)	
	母子里	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	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	25.61	1.07	NJ	43.08	141.33	☆	○	○	☆	12	13	Wet: 8m (FP・O式: 9m)	住居地域(市街地)	
	摩周	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	地上高1.5m	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	0.02	0.33	0.36	NJ	42.65	140.31			▲		87	13	地上高5m	未指定(森林)	
	札幌白石	札幌市衛生研究所	5.23	25.81	1.19	NJ	43.06	141.38			○		14	17	地上高14m	近接商業地域、市街地	
青森県	青森東道造	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)	
	勝ヶ沢舞戸	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	
北海道・東北	岩手県	岩手県環境保健研究所	1.21	5.94	1.33	NJ	39.68	141.14			○		131	70	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	地上高5m	森林地域	
	宮城県	通谷	宮城県環境保健センター	0.00	0.00	0.00	NJ	38.55	141.18	○	○			174	19	地上高3m	未指定(草、雑)
	秋田県	秋田千秋	秋田県環境健康センター	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	鶴岡	山形県環境科学研究所	0.12	0.71	0.38	NJ	38.55	139.87		○	○		220	26	地上高5m	未指定(森林)
	福島県	福島大塚	福島県環境センター	0.61	1.22	0.50	EJ	37.25	140.04					941	84	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	地上高10m	都市
	新潟県	小浜沢	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	Wet: 5m (O式: 1.5m)	第一種住居地域
		新潟宮和	新潟県保健環境科学研究所	2.60	9.49	1.28	JS	37.85	138.94	○				2	3.1	Wet: 2.5m (FP: 2.1m)	市街地調整区域
		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	地上高5m	住居地域
新潟大山		新潟市衛生環境研究所	2.75	12.08	1.74	JS	37.94	139.08					10	1.2	地上高4m	住宅地	
新潟坂井		新潟市衛生環境研究所	2.62	9.59	1.64	JS	37.89	138.98		○	○		0	1.5	地上高3m	住宅地	
新潟小浜		新潟市衛生環境研究所	2.64	9.73	1.66	JS	37.87	139.00					0	1.7	地上高15m	住宅地	
栃木県		日光 ^(注5)	栃木県保健環境センター	0.13	0.97	0.16	EJ	36.74	139.48					1300	95	地上高1m	住宅地
	宇都宮 ^(注6)	栃木県保健環境センター	2.88	10.93	2.79	EJ	36.60	139.94					140	65	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	地上高6m	住宅地	
	埼玉県	加須 ^(注7)	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	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	5.19	EJ	35.86	139.65	○				15	35	地上高15m	商業地域	
	茨城県	土浦	茨城県霞ヶ浦環境科学センター	1.44	7.73	3.20	EJ	36.08	140.27	○				18	31	地上高1m	未指定(草地)
	群馬県	前橋	群馬県衛生環境研究所	4.13	12.96	7.55	EJ	36.40	139.10	○	○	○	120	110	地上高20m	市街地調整区域	
	関東・甲信・静岡	市川	千葉県環境研究所	8.63	59.68	4.64	EJ	35.72	139.93	○	▲			5	6.1	地上高20m	住居地域
		市原	千葉県環境研究所	13.96	44.28	3.14	EJ	35.53	140.07	○	▲			5	1.2	Wet・FP: 5m (O式: 10m)	工業地域
		香取	千葉県環境研究所	17.03	20.01	4.00	EJ	35.89	140.55	○	▲			40	15.0	地上高3m	調整地域
銚子		千葉県環境研究所	10.17	8.98	3.92	EJ	35.74	140.74	○	▲			50	4.5	Wet: 5m (O式: 0m)	商業地域	
一宮		千葉県環境研究所	0.23	1.97	0.97	EJ	35.35	140.38	○				5	1	地上高3m	商業地域	
旭		千葉県環境研究所	7.68	8.66	4.12	EJ	35.73	140.72	○	▲			58	4.7	地上高0m	商業地域	
佐倉		千葉県環境研究所	2.96	26.96	3.01	EJ	35.73	140.21	○	▲			25	19	地上高3m	住居地域	
清津		千葉県環境研究所	0.16	1.14	0.92	EJ	35.16	140.16	○				360	4.5	地上高0m	未指定(森林)	
宮野木		千葉県環境保健研究所	12.33	42.86	3.97	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22m	準工業地域
静岡県	川崎 ^(注8)	川崎市環境総合研究所	16.98	74.45	3.11	EJ	35.64	139.75	○				4	3.2	地上高20m	準工業地域	
	長野	長野県環境保全研究所	1.35	4.76	0.61	CJ	36.64	138.18	○		○		363	52.5	Wet: 15m (FP: 3m)	第一種住居	
	静岡小黒	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	住宅地	
	静岡北東	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	住宅地(市街地)	
	富山県	射水 ^(注9)	富山県環境科学センター	6.11	15.55	1.80	JS	36.70	137.10	○	▲	○	22	8	Wet: 0m (FP・O式: 12.5m)	第一種中高層住宅専用地域	
	石川県	金沢	石川県環境保健センター	2.74	6.93	1.12	JS	36.53	136.71	○				120	14	地上高14m	第二種住居専用地域
	福井県	福井	福井県衛生環境研究所	2.41	7.77	0.80	JS	36.07	136.26	○				11	18	地上高9m	市街地調整区域
	岐阜県	伊自良湖	2.00	5.52	1.54	CJ	35.57	136.70	☆	☆		☆	140	60	地上高4.3m	林地	
	愛知県	豊橋	愛知県環境調査センター東三河支所	2.36	10.81	4.18	CJ	34.74	137.38	○				20	6	地上高8m	住居地域
	名古屋	名古屋環境科学調査センター	10.23	51.61	4.70	CJ	35.10	136.92	○	▲			0	3	地上高19.2m	準工業地域	
近畿・東海・北陸	三重県	四日市板	4.10	17.71	2.31	CJ	34.99	136.49	○				190	15.1	地上高15m	原野	
	滋賀県	大津柳が崎	3.92	17.74	1.34	CJ	35.03	136.57	○				87	53	地上高28m	住宅地	
	京都府	京都津	京都府保健環境研究所	1.85	13.84	1.98	CJ	34.74	135.83	○				32	38	地上高15m	住宅地
	京都弥栄	京都府保健環境研究所	0.39	1.10	0.21	JS	35.70	135.16	○				80	7	地上高5m	未指定(森林)	
	京都壬生	京都市衛生環境研究所	3.96	17.81	1.65	CJ	35.00	135.73	○				26	47	地上高21m	準工業地域(市街地)	
	兵庫県	神戸須磨	(公財)ひょうご環境創造協会 兵庫県環境研究センター	10.20	30.41	1.05	CJ	34.65	135.13	○			○	15	0.8	地上高17m	準工業地域
	奈良	桜井 ^(注10)	奈良県景観・環境総合センター	1.49	7.81	1.45	CJ	34.52	135.84	○				72	36	地上高11m	近隣商業地域
	和歌山県	海南	和歌山県環境衛生研究センター	9.97	14.10	1.12	CJ	34.16	135.21	○	○	○	3	0.4	地上高12.5m	商業	
	中国・四国	鳥取県	若桜	鳥取県衛生環境研究所	0.03	0.50	0.30	JS	35.35	134.48	○	▲	▲	800	28.4	地上高2.5m	未指定
		鳥取県	湯梨浜	鳥取県衛生環境研究所	0.25	1.30	0.86	JS	35.48	133.88	○	▲			2	1.3	地上高11m
鳥取県		松江	鳥取県保健環境科学研究所	0.46	2.49	0.56	JS	35.47	133.01	○				5	6	地上高1.2m	区域外
広島県		広島安佐南	3.35	12.32	1.04	WJ	34.45	132.40	○				80	11	地上高10m	住居地域	
山口県		山口	山口県環境保健センター	2.28	5.84	0.63	WJ	34.15	131.43	○				13	13	地上高1m	住居
徳島		徳島県保健環境科学センター	2.04	8.03	1.76	CJ	34.07	134.56	○				18	3	地上高18m	住居地域	
高知県		香北	高知県環境研究センター	0.04	0.46	0.18	WJ	33.71	133.86	○				230	21	地上高11.4m	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	Wet: 16.4m (FP: 1.5m)	市街地調整区域
		福岡	福岡県保健環境研究所	2.43	14.89	1.38	WJ	33.50	130.31	○				193	9.2	Wet: 1m (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	地上高8.5m	第一種住居地域(市街地)
	長崎県	長崎	長崎県環境保健研究所	5.88	7.58	1.30	WJ	32.86	130.04	○				23	4	地上高10m	住居地域(市街地)
九州・沖縄	熊本県	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	○			▲	481	46	地上高1m	未指定
	熊本	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	熊本県環境総合センター	1.71	8.83	3.56	WJ	32.79	130.75	○	▲	○	40	12.9	Wet: 9m (O式: 10m)	住宅地	
	大分県	大分久住	大分県衛生環境研究所	2.07	8.38	1.47	WJ	33.04	131.25	○				560	35	地上高4.7m	未指定(牧草地)
	大分	大分県衛生環境研究所	15.09	19.72	1.30	WJ	33.16	131.61	○				90	11	地上高14.3m	住宅地	
	宮崎県	宮崎	宮崎県衛生環境研究所	0.56	3.25	1.14	WJ	31.83	131.42	○				20	3.5	地上高14m	都市地域(準工業地域)
沖縄県	鹿児島県	鹿児島	鹿児島県環境保健センター	1.47	5.88	1.37	WJ	31.35	130.94	○		▲	1	0.1	Wet: 4.5m (FP: 21m)	準工業(準工業地域)	
	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	未指定	
	辺戸岬	沖縄県衛生環境研究所	0.00	0.65	0.35	SW	26.87	128.25	☆	☆	☆	☆	60	0.2	地上高4.5m	特別地域	
調査地点合計																	
									66		35		30		20		

2. 調査内容

2.1 調査概要

2013年度の調査参加機関は表2.1.1に示す52機関であり、湿性沈着調査地点は67地点、乾性沈着調査地点は49地点(フィルターパック法:35地点、パッシブ法:30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。

2013年度の調査期間は原則として2013年3月25日～2014年4月7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。2013～2014年度の部会組織および報告書の担当を表2.1.3に示す。

表2.1.2 調査期間の季節・月区分

季節	月	平成25年度	週
春	4	3月25日～5月7日	6
	5	5月7日～6月3日	4
夏	6	6月3日～7月1日	4
	7	7月1日～7月29日	4
	8	7月29日～8月26日	4
秋	9	8月26日～10月7日	6
	10	10月7日～11月5日	4
	11	11月5日～12月2日	4
冬	12	12月2日～12月27日	4
	1	12月27日～1月27日	4
	2	1月27日～2月24日	4
春	3	2月24日～4月7日	6

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	青森県環境保健センター	工藤 真哉	H25-26	
理事委員	秋田県健康環境センター	高橋 浩	H25	
	〃	飯塚 政範	H26	
支部委員	秋田県健康環境センター	高嶋 司	H25-26	D, 4章
	埼玉県環境科学国際センター	松本 利恵	H25-26	D, 5.3章
	奈良県景観・環境総合センター	菊谷 有希	H25-26	D, 4章
	山口県環境保健センター	川本 長雄	H25-26	D, 4章
	福岡県保健環境研究所	濱村 研吾	H25-26	D, 5.1-5.2章
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	H25-26	
	〃	山口 高志	H25-26	6章
	宮城県保健環境センター	北村 洋子	H25-26	6章
	新潟県保健環境科学研究所	家合 浩明	H25-26	
	〃	遠藤 朋美	H25-26	5章
	千葉県環境研究センター	横山 新紀	H25-26	6章
	富山県環境科学センター	木戸 瑞佳	H25-26	5.1-5.2章
	公益財団法人ひょうご環境創造協会 兵庫県環境研究センター	堀江 洋佑	H25-26	1-4章
	広島市衛生研究所	福田 裕	H25-26	5.3章
	沖縄県衛生環境研究所	岩崎 綾	H25-26	1-4章
	国立大学法人東京農工大学 農学部	松田 和秀	H25-26	
	法政大学 生命科学部	村野 健太郎	H25-26	
有識者	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	H25-26	
	〃	藍川 昌秀	H25-26	
	一般財団法人日本環境衛生センター アジア大気汚染研究センター	大泉 毅	H25-26	
	大気環境学会中国・四国支部	大原 真由美	H25-26	
	環境省	後藤 隆久	H25	
事務局	〃	小林 登茂子	H26	
	青森県環境保健センター	米谷 康治	H25	
	〃	野澤 直史	H25	
	〃	三浦 誓也	H26	
	〃	葛西 正毅	H26	
	〃	松倉 祐介	H25-26	

注)「報告書担当部分」におけるDはデータ収集、数字は報告書の章を表す。

2.2 調査方法

2.2.1 湿性沈着

調査地点は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。

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。

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 HNO_3 などを、3段目で SO_2 、 HCl を、4段目で NH_3 を捕集する4段ろ紙法^{4,5)}を全環研として採用した。

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
	HNO_3
	SO_2
	HCl
	NH_3
パ ッシ ブ	NO_2
	NO_x
	NH_3
	O_3
	$(\text{SO}_2)^*$
	テフロン(PTFE) ポリアミド K_2CO_3 含浸ろ紙+ポリアミド K_2CO_3 含浸ろ紙+ポリアミド リン酸含浸ろ紙+ポリアミド トリエタノールアミン(TEA) (TEA+PTIO)含浸ろ紙 クエン酸 NaNO_2 TEA もしくは K_2CO_3

*第5次調査では測定対象外

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ろ紙、あるいは目的のガス成分と反応を起こすための試薬が含浸されろ紙を用い、捕集量あるいは試薬成分変化量を測定し、濃度を求める方法である。パッシブ法においては、そのまま試薬含浸ろ紙を晒す方が捕集量は多くなるが、粒子状物質の沈着や風の強さなどの影響を除くため、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。

2013年度のパッシブ法の調査地点は30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を作成した。

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。

2013年度の自動測定機の調査地点は20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年度のとまとめ)、全国環境研会誌、28、2-196、2003
- 5) 松本光弘、村野健太郎：インファレンシャル法による樹木等への乾性沈着量の評価と樹木衰退の一考察、日本化学会誌、1998(7)、495-505、1998
- 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式パッシブサンプラー法におけるSO₂捕集剤の検討(第2報)、第50回大気環境学会年会講演要旨集、p.437
- 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 2013年度の気象概況

2013年度の主な特徴は、全国的に暑夏となり各地で歴代第1位の高温を記録したことや、7月から10月にかけての記録的な豪雨、2月の関東甲信地方での記録的な大雪等である。

春の後半から秋の前半にかけて全国的に高温傾向が続いたことから、東・西日本と沖縄・奄美の年平均気温は高かった。また、東・西日本では、春から秋にかけて高気圧に覆われて晴れる日が多く、東・西日本の年間日照時間はかなり多かった。一方、一年を通じて低気圧や前線の影響を受けやすかった北日本の日本海側では年間日照時間が少なく、年降水量は多かった。

春の平均気温は、4月は全国的に平年を下回る日が多かったが、5月は北日本で低く、平年を1℃以上下回った一方、東日本と西日本で高く、沖縄・奄美では平年並だった。3月は東・西日本で高かった。一方、沖縄・奄美では低かった。北日本は平年並だった。春の降水量は、4月の月降水量は、北日本、東日本、沖縄・奄美で多かった。一方、西日本太平洋側では少なかった。5月の月降水量は、東日本と西日本でかなり少なく、北日本で少なかった。3月の月降水量は、北日本から西日本にかけて多かった。春の日照時間は、4月の月間日照時間は東日本太平洋側と西日本で多かった。一方、北・東日本、日本海側と沖縄・奄美で少なかった。5月は、東日本と西日本でかなり多かった。一方、北日本と沖縄・奄美で少なかった。3月の月間日照時間は、東日本太平洋側、西日本で多かった。

夏の平均気温は、東・西日本、沖縄・奄美ではかなり高く、北日本で高かった。沖縄・奄美を除いて平年を1℃以上上回った。数多くの地点で夏

の平均気温の高い方からの1位を更新した。夏の降水量は、東日本日本海側ではかなり多く、北日本日本海側で多かった。一方、東日本太平洋側、沖縄・奄美ではかなり少なかった。北日本太平洋側、西日本では平年並だった。夏の日照時間は、沖縄・奄美ではかなり多く、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、西日本日本海側では平年並だった。

秋の平均気温は、北・東日本で高かった。西日本と沖縄・奄美は平年並だった。秋の降水量は、北日本、東日本日本海側、西日本ではかなり多く、東日本太平洋側で多かった。一方、沖縄・奄美では少なかった。秋の日照時間は、東日本太平洋側ではかなり多く、東日本日本海側、西日本、沖縄・奄美で多かった。一方、北日本では少なかった。

冬の平均気温は、東日本、沖縄・奄美で低かった。北日本、西日本は平年並だった。冬の降水量は、北日本、東・西日本太平洋側で多かった。一方、東日本日本海側では少なかった。西日本日本海側、沖縄・奄美は平年並だった。冬の日照時間は、東・西日本太平洋側、沖縄・奄美で多かった。北日本、東・西日本日本海側は平年並だった。冬の降雪の深さ合計は、東日本太平洋側でかなり多く、西日本太平洋側で多かった。

黄砂観測日数は前年度13日に対し、7日と減少した²⁾。

2013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である。NO_x排出量については、2010年度以降減少傾向にあるが、排出量はいままでである。

国内における人為発生源由来のSO₂、NO_xおよ

表 3.1.1 気象概況¹⁾ (<http://www.jma.go.jp/jma/press/tenko.html>)

平均気温	
4月	北日本、西日本、沖縄・奄美で低く、東日本では平年並だった。
5月	北日本で低く、平年を1℃以上下回った。一方、東日本と西日本で高く、沖縄・奄美では平年並だった。
6月	沖縄・奄美でかなり高く、北日本、東日本、西日本で高かった。秋田、若松(福島県)では6月の月平均気温の高い方からの1位を更新した。
7月	西日本ではかなり高く、北・東日本、沖縄・奄美で高かった。米子(鳥取県)、浜田(鳥根県)、萩(山口県)、福岡など9地点では7月の月平均気温の高い方からの1位を更新した。
8月	東・西日本、沖縄・奄美ではかなり高く、北日本で高かった。東・西日本では平年を1℃以上上回った。浜松(静岡県)、宇和島(愛媛県)、巖原(長崎県)、鹿児島など16地点では8月の月平均気温の高い方からの1位を更新した。
9月	沖縄・奄美ではかなり高く、北・東日本で高かった。西日本は平年並だった。
10月	北・東・西日本でかなり高く、平年を1℃以上上回った。若松(福島県)、長野、彦根(滋賀県)など16地点では10月の月平均気温の高い方からの1位を更新した。沖縄・奄美は平年並だった。
11月	北日本で高かった。一方、東・西日本、沖縄・奄美では低かった。
12月	北日本で高く、平年を1℃以上上回った。一方、沖縄・奄美ではかなり低く、平年を1℃以下下回り、東・西日本で低かった。
1月	西日本で高かった。北・東日本、沖縄・奄美は平年並だった。
2月	沖縄・奄美で高かった。北日本から西日本にかけては平年並だった。
3月	東・西日本で高かった。一方、沖縄・奄美では低かった。北日本は平年並だった。
降水量	
4月	北日本日本海側でかなり多く、北日本太平洋側、東日本、沖縄・奄美で多かった。東京、横浜(神奈川県)では4月の月降水量の多い方からの1位を更新した。一方、西日本太平洋側では少なく、西日本日本海側では平年並だった。
5月	東日本と西日本でかなり少なく、北日本で少なかった。仙台(宮城県)、甲府(山梨県)、高松(香川県)、鹿児島など16地点では5月の月降水量の少ない方からの1位を更新した(高松は月降水量の平年比が全国で最も小さく10%だった)。一方、沖縄・奄美では平年並だった。
6月	北日本ではかなり少なく、沖縄・奄美では少なかった。釧路(北海道)、大船渡(岩手県)、青森、深浦(青森県)、秋田では6月の月降水量の少ない方からの1位を更新した。一方、西日本太平洋側で多かった。高松(香川県)では6月の月降水量の多い方からの1位を更新した。東日本、西日本日本海側では平年並だった。
7月	西日本太平洋側でかなり少なく、東日本太平洋側、西日本日本海側、沖縄・奄美で少なかった。鹿児島、那覇(沖縄県)、尾鷲(三重県)など11地点では7月の月降水量の少ない方からの1位を更新した。一方、北・東日本日本海側で多かった。盛岡(岩手県)、秋田、山形など6地点では7月の月降水量の多い方からの1位を更新した。北日本太平洋側では平年並だった。
8月	北・東・西日本日本海側でかなり多かった。浜田(鳥根県)では8月の月降水量の多い方からの1位を更新した。一方、東日本太平洋側と沖縄・奄美では少なかった。清水、室戸岬(以上、高知県)、久米島(沖縄県)では8月の月降水量の少ない方からの1位を更新した。北・西日本太平洋側では平年並だった。
9月	東日本日本海側でかなり多く、北・西日本で多かった。一方、沖縄・奄美では少なかった。沖縄県(鹿児島県)では9月の月降水量の少ない方からの1位を更新した。東日本太平洋側は平年並だった。
10月	北・東日本と西日本日本海側ではかなり多く、西日本太平洋側と沖縄・奄美で多かった。盛岡(岩手県)、大島(東京都)、萩(山口県)では10月の月降水量の多い方からの1位を更新した。
11月	北・東日本日本海側ではかなり多く、西日本日本海側で多かった。留萌(北海道)と新潟では11月の月降水量の多い方からの1位を更新した。一方、東日本太平洋側では少なかった。北・西日本太平洋側、沖縄・奄美は平年並だった。
12月	北日本日本海側ではかなり多く、北日本太平洋側、東日本日本海側、西日本、沖縄・奄美で多かった。東日本太平洋側は平年並だった。降雪の深さ月合計は、西日本太平洋側ではかなり少なく、北日本で少なかった。一方、西日本日本海側では多かった。東日本は平年並だった。月最深積雪は、北日本を中心に平年を下回ったところが多かった。
1月	沖縄・奄美ではかなり少なく、北日本太平洋側、東日本日本海側で少なかった。沖縄県(鹿児島県)、与那国島、西表島(以上、沖縄県)では1月の月降水量の少ない方からの1位を更新した。一方、北日本日本海側ではかなり多かった。東日本太平洋側、西日本は平年並だった。降雪の深さ月合計は、東日本ではかなり少なく、北日本、西日本で少なかった。月最深積雪は、東・西日本を中心に平年を下回ったところが多かった。
2月	東日本太平洋側ではかなり多く、北日本太平洋側、西日本、沖縄・奄美で多かった。前橋(群馬県)、熊谷、秩父(以上、埼玉県)では2月の月降水量の多い方からの1位を更新した。一方、東日本日本海側ではかなり少なく、北日本日本海側で少なかった。福井では2月の月降水量の少ない方からの1位を更新した。降雪の深さ月合計は、東・西日本太平洋側ではかなり多く、北日本太平洋側で多かった。前橋(群馬県)、熊谷(埼玉県)、甲府(山梨県)など16地点では2月の降雪の深さ月合計値の多い方からの1位を更新した。一方、北日本から西日本にかけての日本海側では少なかった。月最深積雪は、北日本、東日本太平洋側で平年を上回ったところが多かった。前橋(群馬県)、熊谷(埼玉県)、甲府(山梨県)など11地点では2月の月最深積雪の大きい方からの1位を更新した。
3月	北日本から西日本にかけて多く、特に北日本太平洋側、東日本日本海側でかなり多かった。仙台(宮城県)、金沢(石川県)など7地点では3月の月降水量の多い方からの1位を更新した。一方、沖縄・奄美では少なかった。北見枝幸(北海道)では3月の月降水量の少ない方からの1位を更新した。降雪の深さ月合計は、北日本太平洋側、西日本日本海側で多かった。網走、根室、函館(以上、北海道)、八戸(青森県)では3月の降雪の深さ月合計値の多い方からの1位を更新した。一方、東日本太平洋側では少なかった。北・東日本日本海側は平年並だった。月最深積雪は、北日本で平年を上回った所が多かった。根室(北海道)では3月の月最深積雪の大きい方からの1位を更新した。
日照時間	
4月	東日本太平洋側と西日本で多かった。一方、北・東日本日本海側と沖縄・奄美で少なかった。岩見沢(北海道)では4月の月間日照時間の少ない方からの1位を更新した。北日本太平洋側では平年並だった。
5月	東日本と西日本でかなり多かった。多くの地点で平年の120%以上となり、日光(栃木県)、飯田(長野県)、熊谷(埼玉県)、高知、熊本など23地点では5月の月間日照時間の多い方からの1位を更新した(日光と飯田は平年の150%以上となり、日光は月間日照時間の平年比が全国で最も大きく157%だった)。北日本日本海側でかなり少なく、北日本太平洋側と沖縄・奄美で少なかった。雄武、紋別(いずれも北海道)では5月の月間日照時間の少ない方からの1位を更新した。
6月	北・東日本日本海側でかなり多く、沖縄・奄美で多かった。一方、西日本太平洋側でかなり少なく、東日本太平洋側、西日本日本海側で少なかった。北日本太平洋側では平年並だった。
7月	沖縄・奄美でかなり多く、西日本で多かった。沖縄県(鹿児島県)では7月の月間日照時間の多い方からの1位を更新した。北・東日本では平年並だった。
8月	西日本太平洋側ではかなり多く、東日本太平洋側、西日本日本海側、沖縄・奄美で多かった。一方、北日本日本海側では少なかった。北日本太平洋側、東日本日本海側では平年並だった。
9月	東・西日本ではかなり多く、沖縄・奄美で多かった。水戸(茨城県)、甲府(山梨県)、鳥取、姫路(兵庫県)など8地点では9月の月間日照時間の多い方からの1位を更新した。北日本は平年並だった。
10月	北日本ではかなり少なく、東・西日本で少なかった。むつ(青森県)では10月の月間日照時間の少ない方からの1位を更新した。沖縄・奄美は平年並だった。
11月	北・東・西日本太平洋側で多かった。一方、東日本日本海側では少なかった。北・西日本日本海側、沖縄・奄美は平年並だった。
12月	沖縄・奄美ではかなり少なく、北日本太平洋側、東・西日本日本海側で少なかった。北日本日本海側、東・西日本太平洋側は平年並だった。
1月	東・西日本、沖縄・奄美ではかなり多く、北日本太平洋側では多かった。若松(福島県)、富山、宿毛(高知県)、平戸(長崎県)など24地点では1月の月間日照時間の多い方からの1位を更新した。一方、北日本日本海側では少なかった。
2月	東・西日本で少なかった。一方、北日本太平洋側、沖縄・奄美では多かった。北日本日本海側は平年並だった。
3月	東日本太平洋側、西日本で多かった。父島(東京都)では3月の月間日照時間の多い方からの1位を更新した。北日本、東日本日本海側、沖縄・奄美は平年並だった。

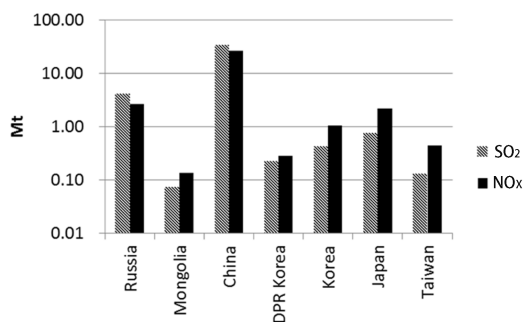


図 3.2.1 ロシアおよび北東アジアにおける SO₂ および NO_x 排出量 (2008年)²⁾

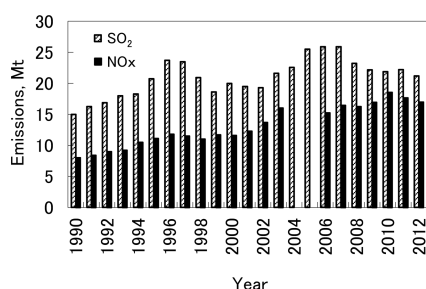


図 3.2.2 中国における SO₂ および NO_x 排出量^{3,4)}

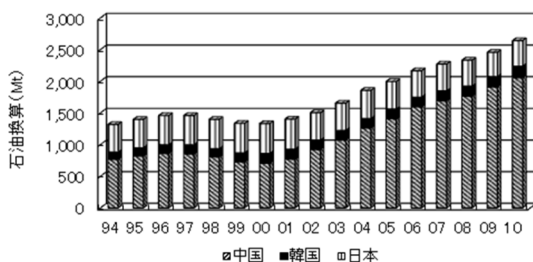


図 3.2.3 中国、韓国および日本のエネルギー消費のトレンド⁵⁾

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>, 2014
- 2) 気象庁: 黄砂, http://www.data.kishou.go.jp/obs-env/kosahp/kosa_data_index.html, 2014
- 3) J. Kurokawa, T. Ohara, T. Morikawa, S. Hanayama, G. Janssens-Maenhout, T. Fukui, K. Kawashima, and H. Akimoto: Emissions of air pollutants and greenhouse gases over Asian regions during 2000–2008: Regional Emission inventory in ASia (REAS) version 2, *Atmos. Chem. Phys.*, **13**, 11019–11058, 2014
- 4) 国家环境保护总局: http://jcs.mep.gov.cn/hjzl/zkgb/2011zkgb/201306/t20130606_231049.htm, 2013 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/>, 2013
- 7) 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, 2013
- 8) 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
- 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、2013年度のとりまとめについて報告する。

2013年度の湿性沈着調査に対し、47機関67地点の参加があった。ただし、4.1で示すとおりデータの精度が基準を満たしていない地点については、参考値として扱い、解析からは除外した。

なお、報告値の一部には、他の学術機関との共同研究および国設局との共用データも含まれている(表2.1.1 参照)。

4.1 データの精度

地域別・季節別のイオン成分の挙動等について解析する前に、各機関の測定データの精度について、以下の評価を行った。

4.1.1 データの完全度

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

完全度を基に月間データの場合は60%未満、年間データの場合は80%未満のデータについては解析対象から除外した。ただし、月間データの完全度は基準以下であるがデータが存在する場合、年間データの集計には用いている。

2013年度は、月間データでは704個中17データ

(2.4%)が除外され、年間データでは67地点中3地点が除外された。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。

4.1.2 イオンバランス(R₁)および電気伝導率バランス(R₂)と分析精度管理調査結果

表4.1.1に示すように、「湿性沈着モニタリング手引き書(第2版)」²⁾に従って、イオンバランス(以下、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および分析は、原則週単位で行われているため、本来、R₁およびR₂は個々の試料毎に評価すべきである。しかし、全環研への報告値は月区切りを採用しているため、本報告では月単位の加重平均値を用いて、R₁およびR₂を評価した。

完全度の基準を満たした地点の月間データにおいて、R₁による評価では、すべての項目が測定された710個のデータ中、R₁が許容範囲内にあったデータは691個(適合率97.3%)であった。同様に、R₂による評価では、R₂が許容範囲内にあったデータは704個(適合率99.2%)であった。R₁およびR₂の分布を図4.1.1に示す。2003～2012年度におけるR₁およびR₂の適合率は、R₁: 92～97%, R₂: 97～99%の範囲にあり高いレベルで保たれている^{1,3,4,5,6,7,8,9,10,11)}。

710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24個(3.4%)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(11個(46%))、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。R₁<0かつR₂<0となったデータが次に多く(6個(25%))、未測定カチオンの存在が示唆さ

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

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

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

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

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

Λ_{obs} : 降水試料の電気伝導率測定値

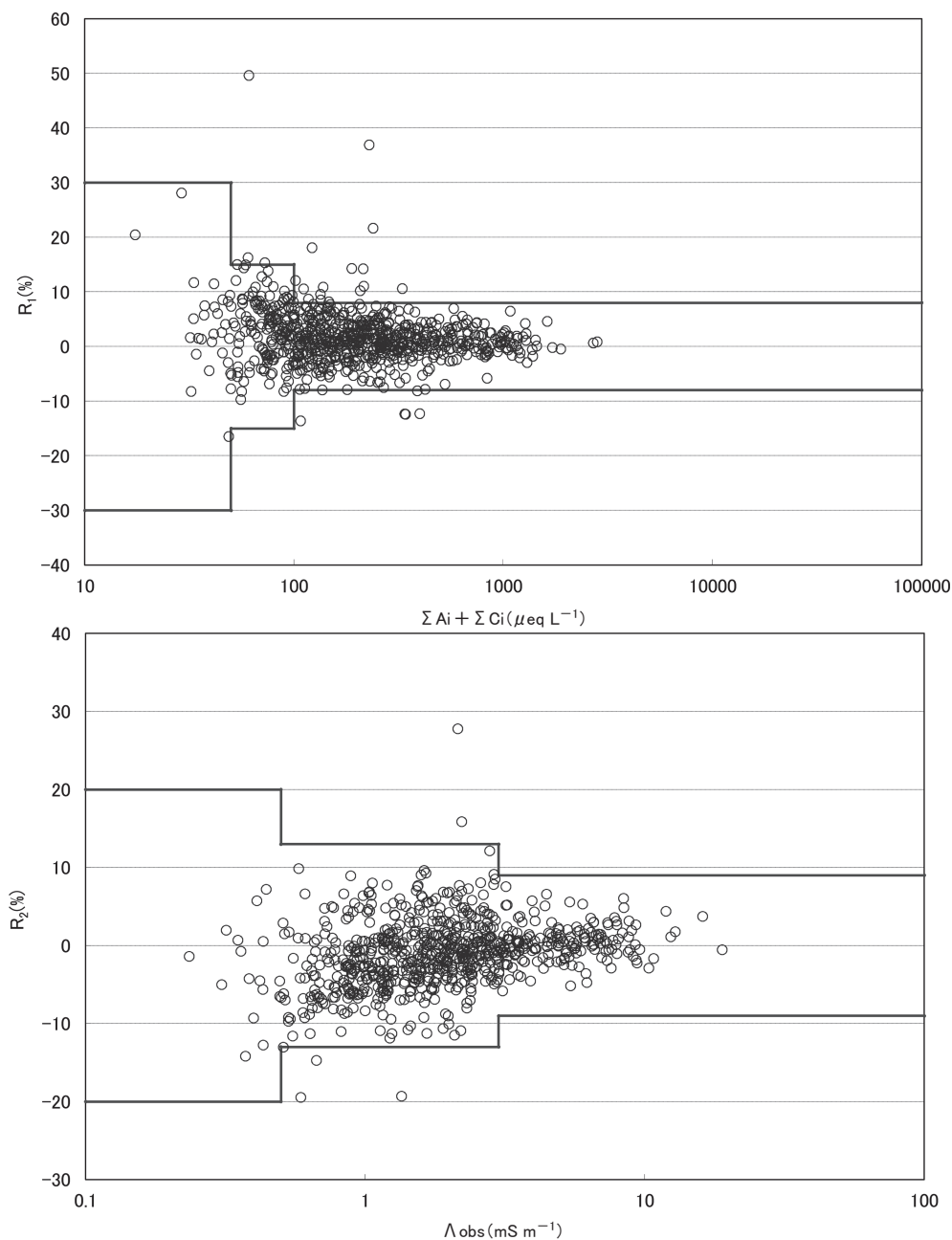


図 4.1.1 イオンバランス (R_1) と総イオン濃度 ($\Sigma A_i + \Sigma C_i$) および電気伝導率バランス (R_2) と実測値との比較

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、2013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)21機関を除き33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28機関であった。

精度管理機関による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95.2%, フラグEまたはフラグXが付いたデータは、それぞれ3.3%および1.5%であった。また、低濃度試料では、DQOsを満たすデータが89.4%, フラグEまたはフラグXが付いたデータは、それぞれ7.0%および3.6%であった。2012年度¹¹⁾に比較して、高濃度試料は、数値の悪化が見られたが、低濃度試料については、フラグの割合が減少し改善が見られた。フラグは陽イオン(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(21機関)が2013年度に行った精度管理調査¹²⁾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97.6%, フラグEまたはフラグXが付いたデータは、それぞれ1.4%および1.0%

であった。フラグのほとんどは陽イオンの分析データに付与された。

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、陰イオンは4%以下で陽イオンは13%以下、低濃度試料では陰イオンは6%以下で陽イオンは18%以下であった。 K^+ と Ca^{2+} 、 Mg^{2+} のバラツキが大きかった。国設局管理機関が2013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4%以下、低濃度試料は8%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、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。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^+ 濃度に換算すると大きなバラツキが予想される。 R_1 および R_2 の計算過程では H^+ 濃度として効いてくること、実際の降水試料の評価では H^+ 沈着量としての評価も重要であることなどから、pHについては H^+ 濃度として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

表 4.1.2 平成24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	4	1	5	0
	フラグ X	0	0	0	0	0	0	3	1	1	0
	相対標準偏差	1.3% (n=33)	2.6% (n=32)	3.1% (n=32)	3.0% (n=32)	3.6% (n=32)	3.5% (n=32)	13.1% (n=32)	6.7% (n=32)	8.8% (n=32)	3.3% (n=33)
低濃度試料	フラグ E	0	1	1	2	2	4	4	5	3	1
	フラグ X	0	0	0	0	0	1	4	2	5	0
	相対標準偏差	2.4% (n=33)	4.2% (n=32)	4.2% (n=32)	4.8% (n=32)	6.2% (n=32)	8.6% (n=32)	17.9% (n=33)	11.5% (n=32)	14.4% (n=32)	5.6% (n=33)

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+} (9機関 (27%))、 Mg^{2+} (4機関 (12%))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高濃度試料と低濃度試料でフラグが付与された機関数は、 Ca^{2+} と K^{+} が3機関でもっとも多かった。 Ca^{2+} と K^{+} に関しては、定量下限値>DQOsの場合にフラグ付与数が多かったが、それ以外の項目に関しては、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、日常の実降水試料測定における R_1 および R_2 の管理だけにとどまらず、酸性雨測定分析精度管理調査を積極的に活用し、配布される模擬酸性雨試料などを「標準参照試料」として利用した日常的な分析精度の管理を実施していくことが望ましいと考える。

4.1.3 フィールドブランク

フィールドブランク試験を実施するごとに、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⁾。

2013年度調査において、FB試験は44地点(全66地点の約67%)にて計513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 NO_3^- で2.9% (15回)、 Ca^{2+} および Mg^{2+} で1.2% (6回)、 Cl^- 、 NH_4^+ および電気伝導率(EC)で1.0% (5回)であり、その他イオンでは1%未満であった。

2012年度は3地点で全超過データの約9割を占めていたが、2013年度は地点の偏りは少なかった。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、一部の地点において高濃度のFB試料がみられた。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

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=33							
	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	2	2	2	1	3	9	4	1
上記機関のうち、低濃度試料のフラグがついた機関数	0	0	0	0	2	0	0	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	1	3	0	1
定量下限値に係るDQOs($\mu\text{mol L}^{-1}$)	0.3	0.5	0.5	0.3	0.3	0.2	0.3	0.8

DQOs：精度管理目標値

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

	44地点 n=513								
	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	15	5	5	4	4	6	6	5
全データ数に占める割合	0.6%	2.9%	1.0%	1.0%	0.8%	0.8%	1.2%	1.2%	1.0%

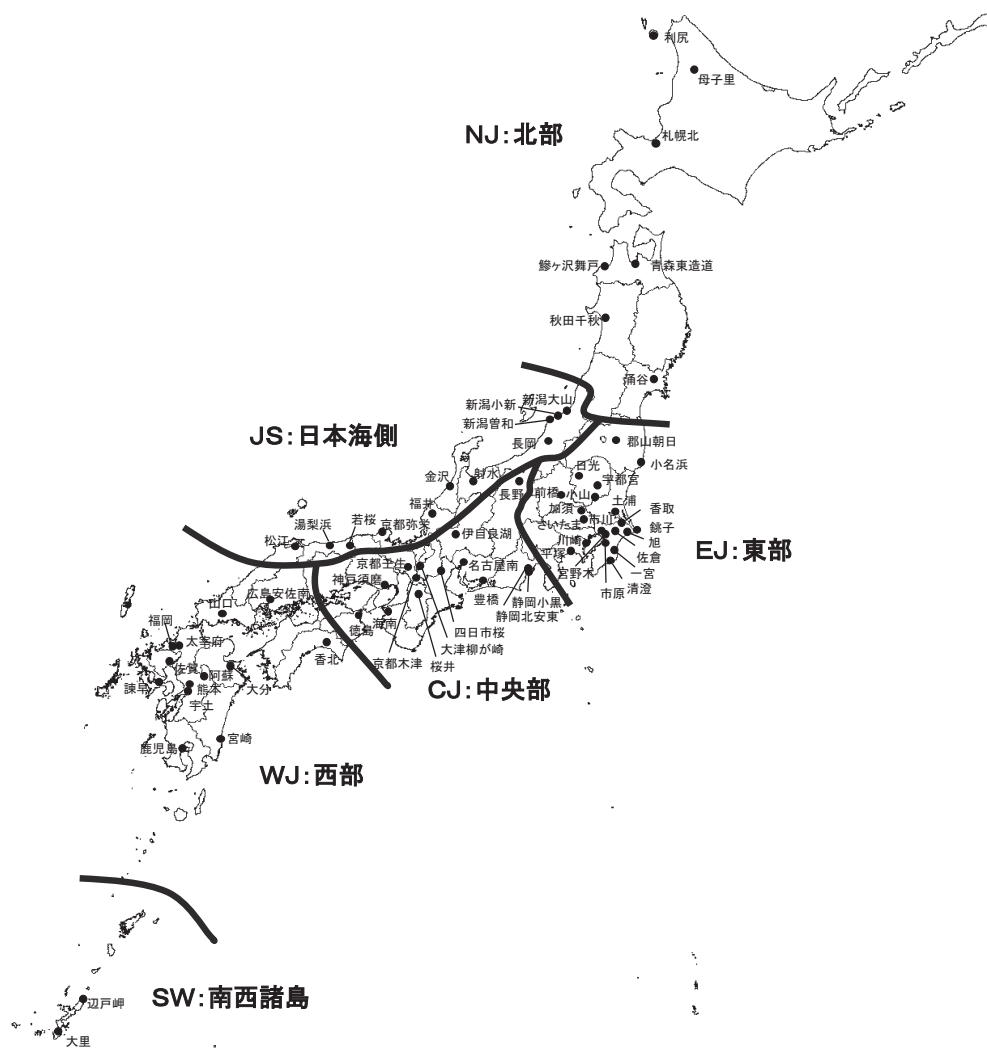


図4.2.1 地域区分

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、2013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。

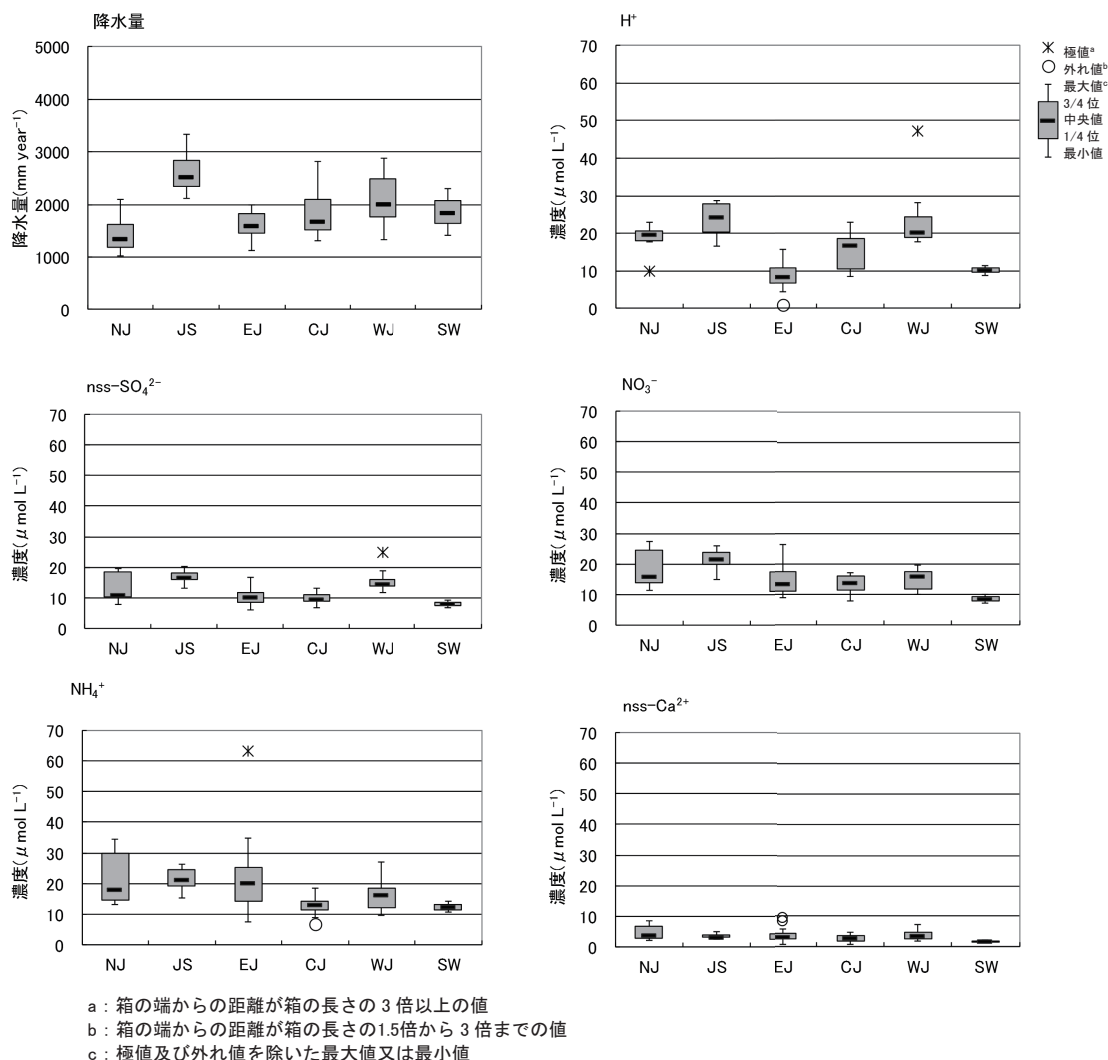
解析対象は、4.1.1で示したとおり完全度(測定期間の適合度を含む)が、月間データで60%以上、年間データで80%以上の地点のデータを有効とした。なお、試料採取時にオーバーフローがあり、降水量の算出ができない試料については、近接の気象観測所等の降水量データを採用した。

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⁾を参照頂きたい。

表 4.2.1 湿性イオン成分等の地点別年加重平均濃度

地点名	地域 区分 ¹⁾	排出量 (t km ⁻² y ⁻¹)			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				(μmol L ⁻¹)											
利尻	NJ	1.27	0.51	0.02	1024	4.68	4.03	21.6	10.1	12.7	212.3	13.3	189.7	4.4	7.0	2.8	21.3	20.8	
母子里	NJ	0.12	0.76	0.49	1795	4.70	2.26	14.9	10.9	16.1	73.8	15.7	66.5	3.1	4.8	3.4	7.9	19.8	
札幌北	NJ	5.18	25.61	1.07	1192	4.64	2.81	16.9	11.2	15.5	107.9	18.3	93.8	2.6	6.0	3.9	10.8	23.0	
青森東造道	NJ	1.18	3.59	0.44	1347	4.69	3.91	28.1	19.7	27.1	160.3	31.3	139.3	3.9	11.3	8.2	15.3	20.3	
鯉ヶ沢舞戸	NJ	0.20	1.15	0.51	1172	4.73	6.58	37.7	19.3	27.3	348.3	34.4	302.5	7.3	14.8	8.5	31.1	18.6	
通谷	NJ	1.83	5.75	2.45	1457	5.00	1.07	8.9	7.9	11.4	20.4	13.5	17.6	0.9	2.4	2.0	2.0	9.9	
秋田千秋	NJ	4.37	6.14	0.53	2087	4.75	3.21	25.3	17.8	21.9	137.4	28.4	122.9	3.7	7.9	5.2	13.8	17.7	
郡山朝日	EJ	1.32	6.08	1.37	1523	4.91	1.09	13.1	12.3	17.9	15.0	18.5	11.9	1.1	4.3	4.0	2.0	12.2	
小名浜	EJ	13.81	16.92	0.99	1644	4.83	1.91	15.8	12.5	12.2	63.4	16.2	54.5	1.5	3.9	2.7	6.1	14.9	
土浦	EJ	1.44	7.73	3.20	1365	5.00	1.27	10.9	9.2	14.3	33.0	18.9	29.4	1.6	4.0	3.3	3.8	10.0	
前橋	EJ	4.13	12.96	7.55	1128	5.14	1.13	10.8	10.2	22.9	12.5	34.7	9.5	0.8	3.0	2.8	1.6	7.2	
宇都宮	EJ	2.88	10.93	2.79	1652	4.82	1.55	15.1	14.4	26.3	16.6	31.5	12.1	0.8	4.6	4.3	2.5	15.1	
小山	EJ	3.13	12.59	3.08	(1337)	(5.09)	(1.62)	(16.4)	(15.1)	(27.2)	(24.3)	(38.3)	(21.3)	(4.6)	(8.1)	(7.6)	(4.2)	(8.2)	
日光	EJ	0.13	0.97	0.16	1987	5.16	0.68	6.5	6.3	9.7	5.3	8.5	4.3	0.9	3.5	3.4	1.2	6.9	
加須	EJ	2.49	18.24	2.31	1391	5.03	1.28	11.5	10.7	26.0	17.6	24.9	12.8	0.4	8.7	8.4	2.7	9.3	
さいたま	EJ	7.46	48.21	5.19	1440	4.80	1.48	12.6	11.4	23.0	22.3	25.4	19.8	0.7	4.7	4.3	2.2	15.8	
市川	EJ	8.63	59.68	4.64	1480	4.98	1.46	13.0	10.4	15.3	52.1	17.3	41.7	0.4	4.6	3.6	4.9	10.4	
市原	EJ	13.96	44.28	3.14	1790	5.07	1.81	20.8	16.9	13.5	75.4	20.2	63.7	0.6	10.6	9.2	8.2	8.5	
香取	EJ	17.03	20.01	4.00	1930	5.36	1.49	12.7	8.7	10.9	76.6	21.0	65.6	0.8	4.9	3.4	7.1	4.4	
銚子	EJ	10.17	8.98	3.92	1599	5.32	2.55	16.6	8.6	10.7	155.6	26.5	131.5	1.2	3.6	0.9	13.6	4.8	
一宮	EJ	0.23	1.97	0.97	1879	5.03	2.13	13.4	7.1	8.9	119.8	9.7	104.3	1.3	4.1	1.8	11.2	9.4	
旭	EJ	7.68	8.66	4.12	1901	6.04	2.83	17.1	8.9	11.8	159.2	63.2	134.0	1.4	3.8	1.1	12.3	0.9	
佐倉	EJ	2.96	26.96	3.01	1790	4.95	1.17	10.3	8.7	11.4	34.6	12.6	26.5	0.4	3.1	2.6	3.6	11.3	
清澄	EJ	0.16	1.14	0.92	1992	5.17	1.79	16.0	11.3	11.1	88.7	7.4	77.1	3.0	4.7	3.0	9.0	6.8	
宮野木	EJ	12.33	42.86	3.97	1272	5.23	1.04	9.4	7.9	10.3	29.5	11.3	24.8	1.4	5.4	4.9	3.8	5.9	
川崎	EJ	16.56	71.13	2.94	1530	5.09	1.47	15.6	13.6	13.8	37.3	23.9	32.3	2.7	6.5	5.8	5.0	8.1	
平塚	EJ	1.42	17.70	3.03	1463	5.09	1.82	13.3	9.5	16.9	72.8	20.9	62.6	1.5	5.4	4.0	7.1	8.2	
新潟大山	JS	2.75	12.68	1.74	2356	4.77	3.96	28.9	18.7	23.1	194.5	26.5	168.2	4.2	8.8	5.1	18.4	17.1	
新潟小新	JS	2.64	9.73	1.66	2259	4.62	3.96	26.1	16.5	21.7	182.8	21.4	158.3	4.1	6.0	2.4	17.5	23.9	
新潟曾和	JS	2.60	9.49	1.28	2429	4.63	3.82	25.0	16.4	21.1	163.9	20.9	141.3	4.4	6.6	3.4	16.2	23.7	
長岡	JS	1.87	4.94	0.62	2893	4.57	4.00	28.7	20.1	24.4	161.8	25.1	140.8	3.8	6.6	3.4	16.2	27.2	
射水	JS	6.11	15.55	1.80	3159	4.60	2.94	20.0	14.7	19.6	98.1	19.7	87.2	2.4	5.0	3.0	9.9	25.1	
金沢	JS	2.74	6.93	1.12	3323	4.54	3.59	22.8	15.9	20.4	126.3	19.0	112.9	3.5	5.8	3.3	13.2	28.6	
福井	JS	2.41	7.77	0.80	2667	4.54	3.69	26.4	19.8	25.5	121.1	24.9	108.4	3.2	6.3	3.9	13.2	28.8	
長野	CJ	1.35	4.76	0.61	(1152)	(4.96)	(0.97)	(9.7)	(9.4)	(14.2)	(5.8)	(16.8)	(5.1)	(1.3)	(3.9)	(3.8)	(1.2)	(11.1)	
伊豆良湖	CJ	2.00	5.52	1.54	2822	4.74	1.33	11.2	10.5	14.1	15.4	12.6	11.8	0.5	1.6	1.3	1.5	18.2	
静岡北安東	CJ	3.15	9.89	1.38	2191	4.97	1.24	8.8	6.9	7.8	41.4	6.7	31.1	1.6	4.3	3.6	4.2	10.7	
静岡小黒	CJ	3.29	10.23	1.42	2156	4.89	1.66	10.9	8.0	9.3	55.8	10.3	48.7	1.3	1.9	0.9	5.7	12.8	
名古屋南	CJ	13.05	53.43	4.44	1524	5.03	1.05	9.7	9.0	11.8	15.2	13.7	12.2	1.0	3.4	3.1	1.3	9.4	
豊橋	CJ	2.36	10.81	4.18	1413	5.06	1.63	11.9	9.0	12.3	55.4	11.6	46.7	1.2	5.9	4.8	5.5	8.8	
四日市桜	CJ	4.10	17.71	2.31	1959	4.64	1.68	14.0	12.2	16.1	32.6	18.7	28.7	1.6	2.6	2.0	3.5	22.9	
大津柳が崎	CJ	3.92	17.74	1.34	1673	4.77	1.37	11.9	11.1	17.2	15.5	15.5	13.1	0.9	3.5	3.2	1.9	17.0	
京都壬生	CJ	3.96	17.81	1.65	1702	4.73	1.29	10.2	9.6	14.3	11.7	14.3	10.0	0.9	3.2	3.0	1.6	18.7	
京都本津	CJ	1.85	13.84	1.98	1577	4.70	1.24	10.8	10.4	15.4	7.8	12.6	6.7	0.6	2.5	2.4	1.1	20.2	
京都弥栄	JS	0.39	1.10	0.21	2793	4.61	3.74	25.6	16.8	19.5	164.5	17.2	143.9	4.4	5.7	2.5	16.8	24.5	
神戸須磨	CJ	10.20	30.41	1.05	1474	4.71	1.56	14.5	13.2	16.2	28.1	13.3	22.3	0.5	7.5	7.0	3.5	19.6	
桜井	CJ	1.49	7.81	1.45	1571	5.08	1.05	12.0	11.2	17.2	14.5	17.4	14.1	1.1	4.9	4.6	2.1	8.4	
海南	CJ	9.97	14.10	1.12	1319	4.77	1.32	10.8	9.5	10.3	24.8	9.1	20.9	0.7	2.6	2.2	2.4	17.1	
若桜	JS	0.03	0.50	0.30	2529	4.78	1.78	16.3	13.3	15.1	55.0	15.4	50.3	2.5	4.4	3.3	6.9	16.6	
湯梨浜	JS	0.25	1.30	0.86	2116	4.77	3.51	26.2	17.1	22.8	169.9	24.3	149.2	4.4	8.2	4.8	18.9	17.0	
松江	JS	0.46	2.49	0.56	2319	4.55	3.56	24.6	17.7	25.9	128.7	22.6	112.6	3.3	6.6	4.1	13.5	28.5	
広島安佐南	WJ	3.35	12.32	1.04	1326	4.68	1.39	13.4	12.7	14.1	14.9	12.0	12.4	0.9	2.6	2.3	2.0	20.8	
山口	WJ	2.28	5.84	0.63	2478	4.73	1.84	16.5	14.3	18.4	37.2	16.3	36.9	2.0	4.8	3.9	4.6	18.5	
香北	WJ	0.04	0.46	0.18	1861	4.69	1.40	12.8	11.9	10.1	18.1	9.6	14.8	0.8	2.5	2.1	2.7	20.5	
徳島	CJ	2.04	8.03	1.76	2090	4.80	1.29	9.8	8.6	11.4	24.2	13.6	19.9	1.8	1.9	1.5	1.9	16.0	
太宰府	WJ	3.94	21.34	1.90	2110	4.70	1.93	17.3	14.4	17.6	51.9	21.6	47.0	1.2	4.7	3.7	6.0	20.0	
福岡	WJ	2.43	14.89	1.38	2562	4.59	2.61	20.5	16.5	19.5	77.5	19.1	65.5	2.4	4.9	3.4	7.9	25.9	
佐賀	WJ	2.50	6.92	1.63	1968	4.62	1.76	17.4	15.9	17.6	27.5	18.3	24.2	0.9	4.5	3.9	3.2	23.8	
諫早	WJ	5.88	7.58	1.30	2053	4.76	1.68	16.2	14.2	11.9	40.0	11.9	34.2	1.3	3.3	2.6	4.2	17.6	
阿蘇	WJ	0.30	1.33	1.72	2508	4.55	2.23	20.0	18.8	17.7	35.3	26.9	19.4	3.6	5.8	5.4	3.1	28.3	
宇土	WJ	2.07	8.38	1.47	(1989)	(4.69)	(1.50)	(13.7)	(12.3)	(12.2)	(18.6)	(14.8)	(15.2)	(1.0)	(2.9)	(2.3)	(1.9)	(19.3)	
熊本	WJ	1.71	8.83	3.56	1463	4.74	1.48	17.0	16.0	17.0	22.3	18.1	16.1	3.2	5.6	5.3	2.7	18.2	
大分	WJ	15.09	19.72	1.30	1901	4.55	1.89	18.3	14.6	15.3	23.3	14.7	17.5	1.3	4.7	4.6	2.8	18.9	
宮崎	WJ	0.56	3.25	1.14	2870	4.72	1.85	15.0	12.0	10.8	56.2	12.1	48.4	1.7	3.0	1.9	5.9	19.2	
鹿児島	WJ	1.41	5.88	1.37	1329	4.33	3.51	28.2	24.9	11.2	88.0	16.5	54.7	2.2	8.4	7.1	6.6		



4.2.2 pH, EC およびイオン成分濃度の年加重平均値

2013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。

2013年度の年間降水量は1,024(利尻)～

3,323mm(金沢)の範囲にあり、単純平均は1,874mmであった。地域別では、日本海側で多く、北部、東部および中央部で少ない傾向を示した。

年間平均pHは4.33(鹿児島)～6.04(旭)の範囲で、加重平均は4.84であった。最高値を観測した旭は周辺に大規模な畜産施設があり、その影響を受けたと考えられる。 H^+ 濃度としては加重平均は $16.4\mu mol L^{-1}$ であり、西部および日本海側で高く、東部および南西諸島で低い傾向がみられた。

年間平均ECは0.68(日光)～6.58 $mS m^{-1}$ (鰺ヶ

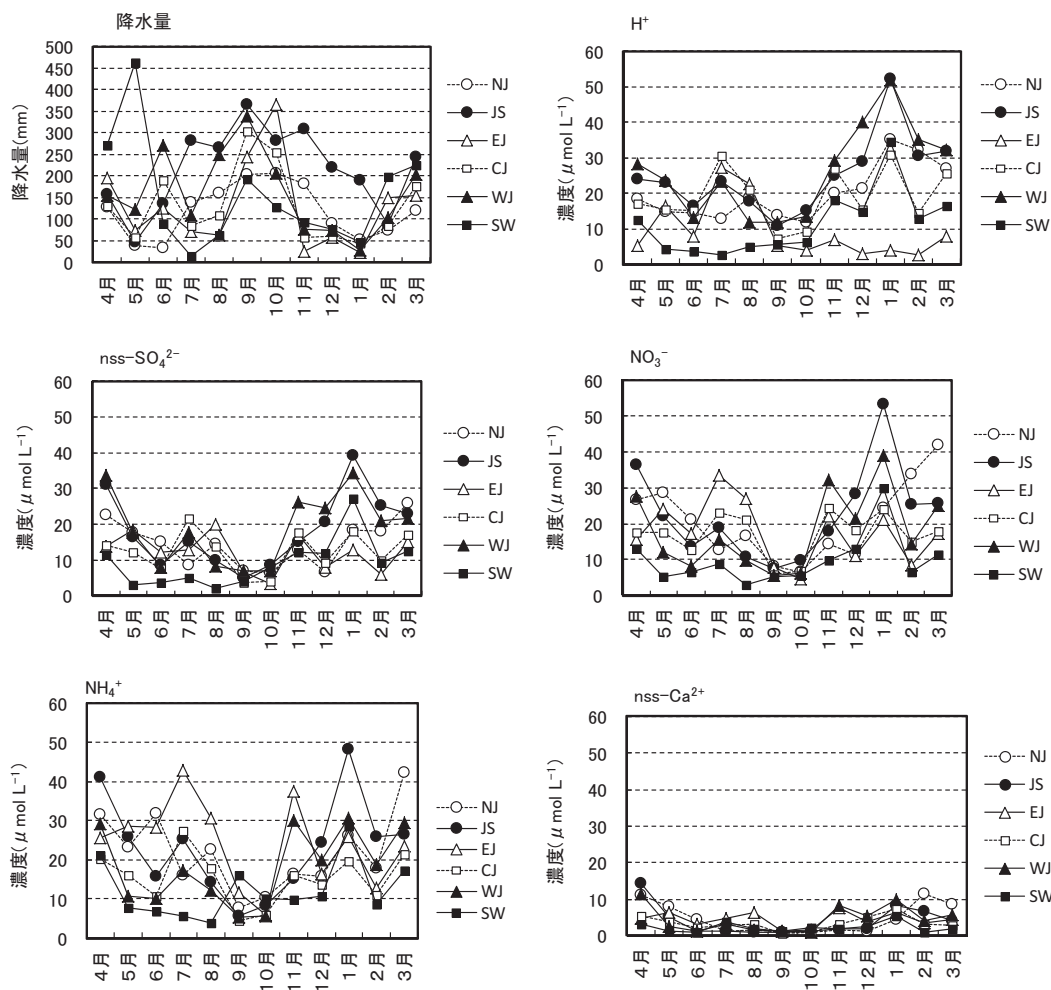


図 4.2.3 イオン成分濃度の地域別季節変動(中央値)

沢舞戸)の範囲で、加重平均は 2.17 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 4.3 (日光)～ $302.5 \mu\text{mol L}^{-1}$ (鯨ヶ沢舞戸)の範囲で、加重平均は $65.3 \mu\text{mol L}^{-1}$ 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。

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-SO_4^{2-} 濃度は 6.3 (日光) ～ $24.9 \mu\text{mol L}^{-1}$ (鹿児島) の範囲で、加重平均は $12.7 \mu\text{mol L}^{-1}$ であった。地域別では、西部およ

び日本海側で高く、南西諸島で低い傾向を示した。

年間平均 NO_3^- 濃度は 7.2 (大里) ～ $27.3 \mu\text{mol L}^{-1}$ (鯨ヶ沢舞戸) の範囲で、加重平均は $16.2 \mu\text{mol L}^{-1}$ であった。地域別では、日本海側および北部で高く、南西諸島で低い傾向を示した。

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 6.7 (静岡北安東) ～ $63.2 \mu\text{mol L}^{-1}$ (旭) の範囲で、加重平均は $19.0 \mu\text{mol L}^{-1}$ であった。地域別では、東部および日本海側で高く、南西諸島で低い傾向を示した。

年間平均 nss-Ca^{2+} 濃度は 0.9 (銚子) ～ $9.2 \mu\text{mol L}^{-1}$ (市原) の範囲で、加重平均は $3.7 \mu\text{mol L}^{-1}$ で

あった。地域別では、北部および西部、東部で高く、南西諸島で低い傾向を示した。

4.2.3 pH およびイオン成分濃度の季節変動

湿性沈着による汚染実態を把握するのに重要と考えられる項目について、2013年度の季節変動を地域区分別に図4.2.3に示す。地域区分別の月間代表値としては地域区分内での中央値を採用した。なお中央値を採用した理由は、データ数が比較的小ないため、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るためである。

降水量は、北部、日本海側、東部および中央部において秋季に多い傾向を示した。西部においては夏季および秋季に、南西諸島においては春季に多い傾向を示した。

表 4.3.1 降水量と主要イオン成分の年間沈着量

(単位)		2013年度	
降水量	(mm y ⁻¹)	1861	1024 (利尻) 3323 (金沢)
nss-SO ₄ ²⁻	(mmol m ⁻² y ⁻¹)	20.5	10.1 (宮野木) 58.3 (長岡)
NO ₃ ⁻	(μ)	24.9	13.0 (利尻) 70.6 (長岡)
NH ₄ ⁺	(μ)	32.7	12.0 (海南) 120.1 (旭)
nss-Ca ²⁺	(μ)	6.2	1.4 (銚子) 16.5 (市原)
H ⁺	(μ)	27.5	1.7 (旭) 95.1 (金沢)

※数値は、中央値 最小値(地点名) 最大値(地点名) を示す。

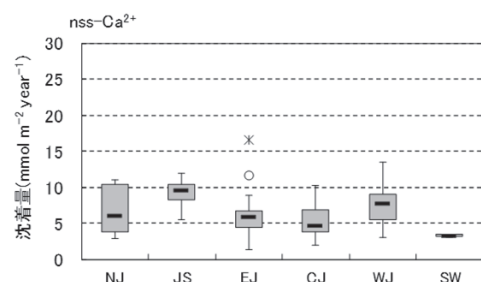
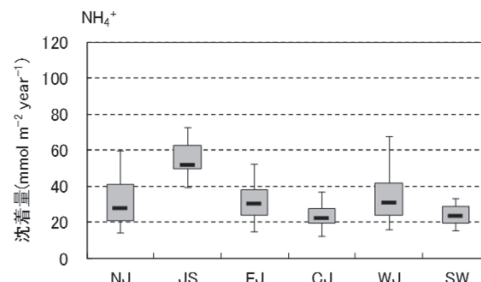
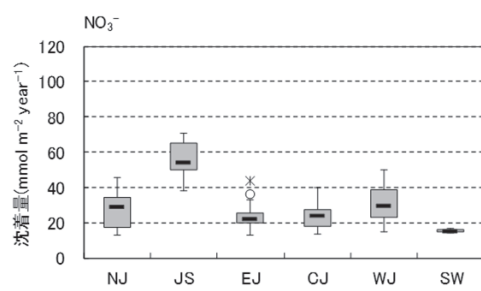
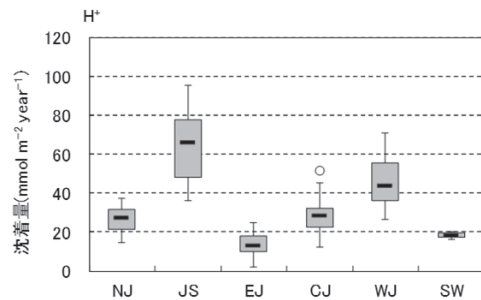
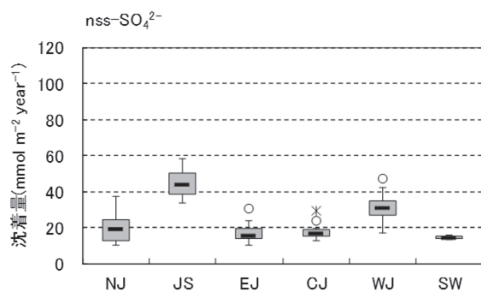
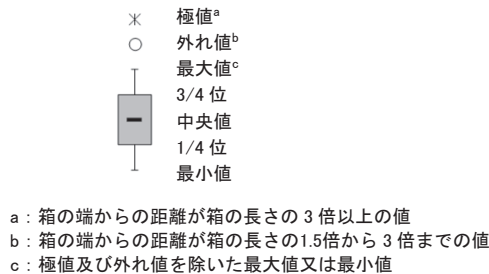


図 4.3.1 主要イオン成分年間沈着量および降水量の分布

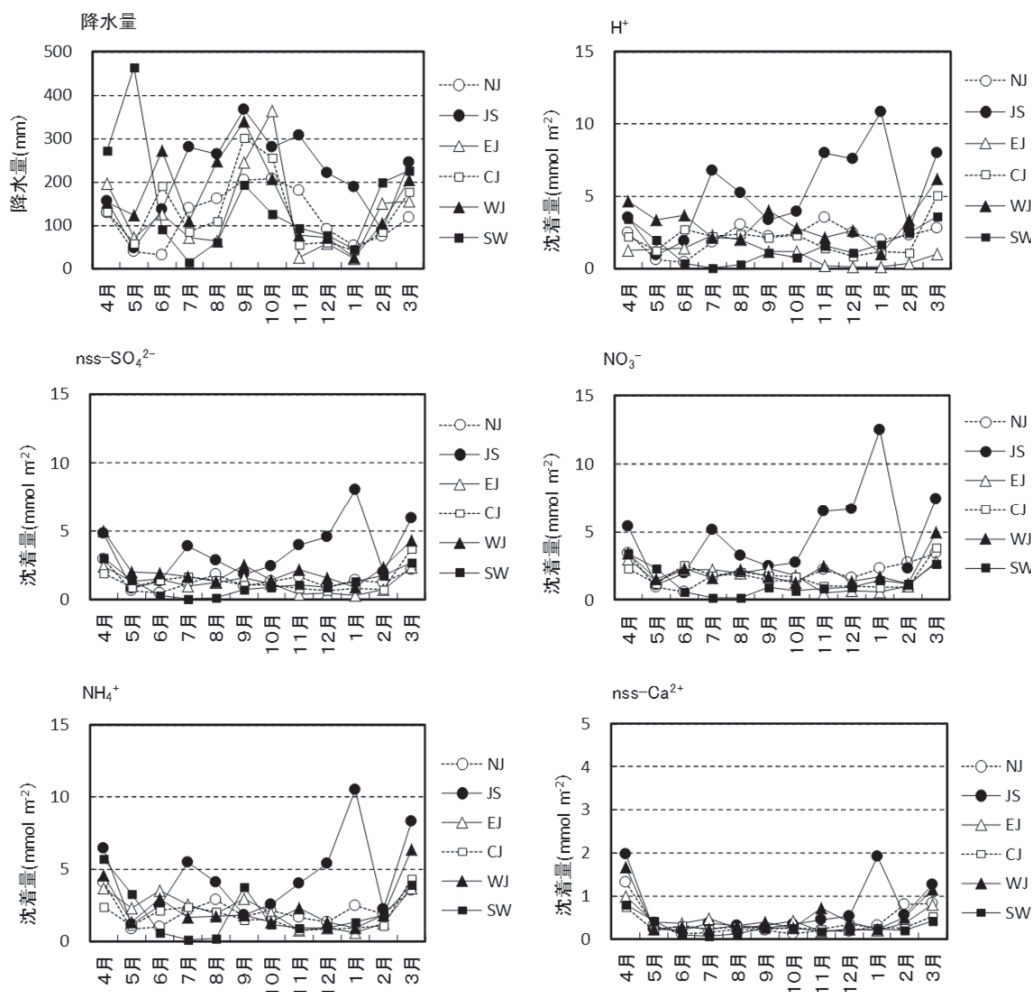


図 4.3.2 イオン成分沈着量の地域別季節変動(中央値)

H^+ 濃度は西部および日本海側で高く、北部、日本海側、西部および南西諸島では冬季に高く、東部および中央部では夏季に高い傾向が見られた。

$nss-SO_4^{2-}$ 濃度は西部および日本海で高く、冬季および春季に高い傾向が見られた。北部、東部および中央部においては春季に高く、南西諸島においては冬季に高い傾向が見られた。

NO_3^- 濃度は日本海側および北部で高く、日本海側では冬季に、北部では春季に高い傾向が見られた。東部は夏季に高く、中央部、西部および南西諸島は冬季に高い傾向が見られた。

NH_4^+ 濃度は東部および日本海側で高く、東部

では夏季に、日本海側では冬季に高い傾向が見られた。北部および中央部では春季に高く、西部および南西諸島では冬季に高い傾向が見られた。

$nss-Ca^{2+}$ 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が、春季および冬季に高濃度となる傾向が見られた。

濃度の季節変動において特徴的なことの一つは、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⁾、2007～2013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。

4.3.1 年間沈着量

2013年度の年間データが有効となった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ことで算出した。

nss-SO₄²⁻、NO₃⁻およびH⁺沈着量は日本海側、次いで西部で多い傾向を示した。

NH₄⁺沈着量は日本海側で多く、それ以外の地域では中央値が22.2～30.6mmol m⁻² y⁻¹の間であった。

nss-Ca²⁺沈着量は他の非海塩成分と比較して沈着量が1/4程度と少なく、日本海側で多い傾向を示し、西部や北部でも高い傾向を示す地点があった。

4.3.2 沈着量の季節変動

地域別の降水量(再掲)および主要イオン成分沈着量の季節変動を図4.3.2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11～1月および3月に多い傾向が顕著であり、中央部および西部では3月に増加する傾向があった。同様の傾向が nss-SO₄²⁻沈着量やNO₃⁻沈着量でみられた。

NH₄⁺沈着量は日本海側では4月、1月および3月に、その他の地域では4月および3月に増加する傾向を示した。

nss-Ca²⁺沈着量は日本海側で4月および1月に多い傾向を示し、その他の地域では4月および3月に増加する傾向を示した。

—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) 全国環境研協議会 酸性雨広域大気汚染調査研究部会：第5次酸性雨全国調査報告書(平成23年度)，全国環境研会誌，**38**，84-126，2013
- 11) 全国環境研協議会 酸性雨広域大気汚染調査研究部会：第5次酸性雨全国調査報告書(平成24年度)，全国環境研会誌，**39**，100-146，2014
- 12) 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25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)，2014

5. 乾性沈着(フィルターパック法)

2013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および地域区分を図5.1.1に示す。地域区分は、湿性沈着と同じく、北部[NJ]、日本海側[JS]、東部[EJ]、中央部[CJ]、西部[WJ]および南西諸島[SW]の6地域とした。

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

なる場合がある。また、成分名に付してある(g)はガス状成分を、(p)は粒子状成分をそれぞれ表す。

5.1 データ確定

5.1.1 完全度および流量変動による判定

FP法の有効データ数を表5.1.1に示す。データ確定においては完全度(測定期間の適合度を含む)を指標として、月データで60%以上、年データで80%以上の場合を有効データとし、それ以外を参考値として解析対象から除外した。ただし、月データの完全度が60%未満でも、年データが80%以上であれば、年平均値は解析対象とした。

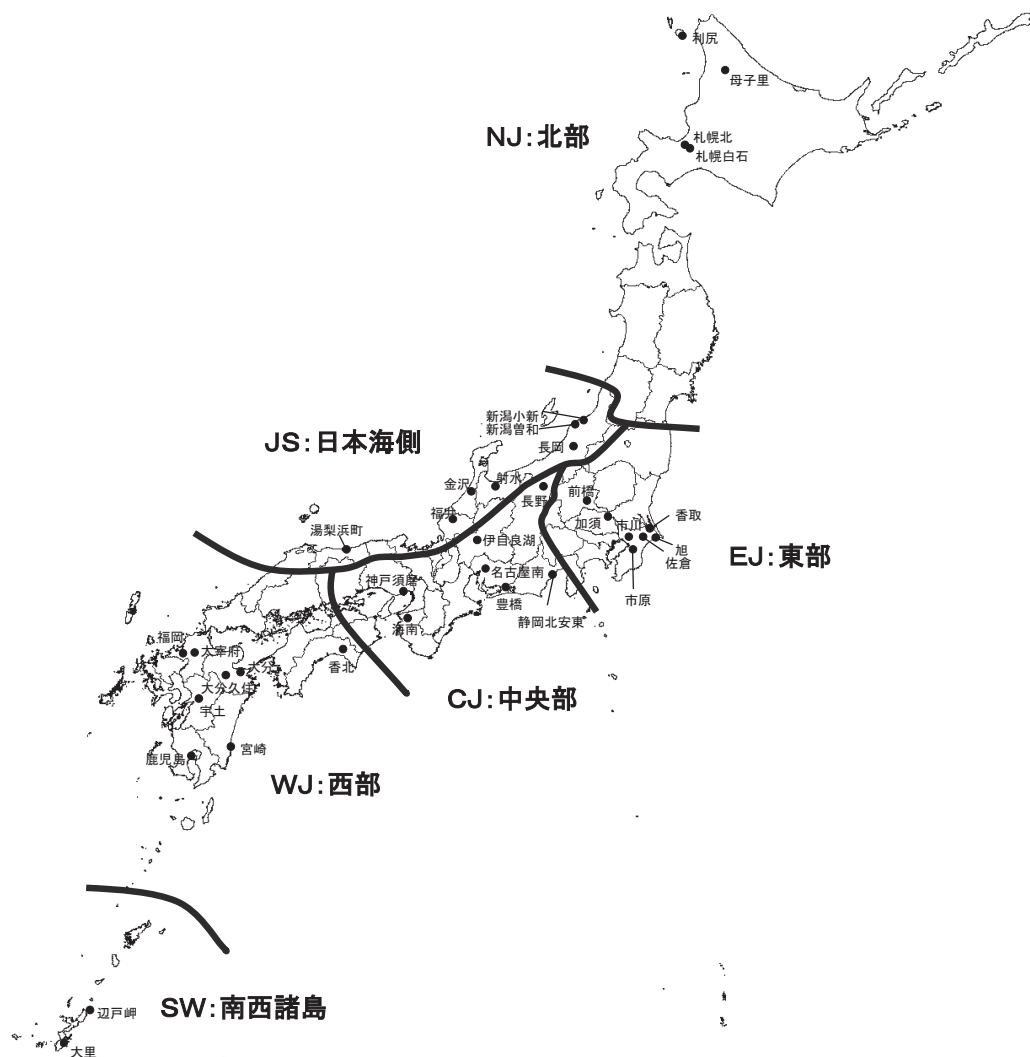


図 5.1.1 FP法の調査地点(地域区分は表2.1.1のとおり)

表 5.1.1 FP 法による調査結果の有効データ数

成分	月平均濃度						年平均濃度						
	地点数	欠測数	データ数	完全度 60% 未満	適合数	定量下限 値未満	有効データ 割合(%)	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 (g)	35	14	406	17	389	40	96	0	35	1	34	0	97
SO ₂ (g)	35	14	406	17	389	1	96	0	35	1	34	0	97
HCl(g)	35	14	406	17	389	8	96	0	35	1	34	0	97
NH ₃ (g)	35	17	403	18	385	0	96	0	35	2	33	0	94
SO ₄ ²⁻ (p)	35	14	406	17	389	0	96	0	35	1	34	0	97
NO ₃ ⁻ (p)	35	14	406	17	389	0	96	0	35	1	34	0	97
Cl ⁻ (p)	35	14	406	17	389	7	96	0	35	1	34	0	97
Na ⁺ (p)	35	14	406	17	389	0	96	0	35	1	34	0	97
K ⁺ (p)	35	14	406	17	389	0	96	0	35	1	34	0	97
Ca ²⁺ (p)	35	14	406	17	389	0	96	0	35	1	34	0	97
Mg ²⁺ (p)	35	14	406	17	389	1	96	0	35	1	34	0	97
NH ₄ ⁺ (p)	35	14	406	17	389	0	96	0	35	1	34	0	97

また、サンプリングや測定に不具合があると考えられた場合や実施要領に記載された方法に準拠していない場合も参考値または欠測とした。

これまでの調査結果から、FP 法は吸引流量の変動が大きいと異常値になりやすいことがわかっている²⁾。そのため、設定流量の変更等の明確な理由がないにも関わらず流量変動が大きかった場合(年間の平均流量と標準偏差から算出した変動係数が30%以上)は年間を通して参考値としている。2013年度は、流量変動を理由として解析対象から除外された調査地点はなかった。

5.1.2 定量下限値の設定

定量下限値は、EANET³⁾の基準値(粒子:0.01 μg m⁻³, ガス:0.1ppb)を用いた。吸引流量は1 L min⁻¹を基準とし、X L min⁻¹の場合は1/X 倍した値を定量下限値とした。

なお、定量下限値の判定は、月および年平均濃度に対して行い、定量下限値未満の場合は解析対象から除外した。

5.1.3 非海塩成分の算出

SO₄²⁻(p)およびCa²⁺(p)については、試料中のNa⁺(p)濃度と海水中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。

$$\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p}) = \text{SO}_4^{2-}(\text{p}) - 0.0607 \times \text{Na}^+(\text{p})$$

$$\text{nss-Ca}^{2+}(\text{p}) = \text{Ca}^{2+}(\text{p}) - 0.0224 \times \text{Na}^+(\text{p})$$

5.1.4 ガス・粒子間反応の測定結果への影響

サンプリング期間中、大気中と同様に、フィルター上ではガスと粒子の間でさまざまな可逆あるいは不可逆反応が生じていると考えられるが、

フィルターに捕集された後に生じるこれらの反応によるアーティファクトを分別して評価することは困難である。そこで、前年度⁴⁾までと同様に、平衡関係にあると考えられるガスと粒子については、全硝酸(HNO₃(g) + NO₃⁻(p))、全アンモニア(NH₃(g) + NH₄⁺(p))、全塩化物(HCl(g) + Cl⁻(p))のようにガスと粒子の総計でも評価した。

5.2 大気中のガス状および粒子状成分濃度

5.2.1 年平均濃度の地域特性

ガス状成分について、地点別年平均濃度を表 5.2.1 に、地域区分別の年平均濃度の箱ひげ図を図 5.2.1 にそれぞれ示す。粒子状成分について、地点別年平均濃度を表 5.2.2 に、地域区分別の年平均濃度の箱ひげ図を図 5.2.2 に、地域区分別年平均当量濃度(中央値)を図 5.2.3 にそれぞれ示す。ガス状成分および粒子状成分の総計について、地点別年平均濃度を表 5.2.3 に、地域区分別の年平均濃度の箱ひげ図を図 5.2.4 にそれぞれ示す。

5.2.1.1 ガス状成分

SO₂(g)の年平均濃度の範囲は11.6~123.9nmol m⁻³(平均値45.3nmol m⁻³)であり、最高値は鹿児島、次いで静岡北安東、最低値は母子里であった。SO₂(g)は西部で高く、日本海側および南西諸島で低い傾向がみられた。

HNO₃(g)の年平均濃度の範囲は2.5~40.7nmol m⁻³(平均値15.0nmol m⁻³)であり、最高値は静岡北安東、次いで神戸須磨、最低値は母子里であった。HNO₃(g)は中央部で高く、北部および

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	(5.3)	(4.0)	(21.7)	(24.4)
2	北海道	母子里	11.6	2.5	5.9	18.3
3	北海道	札幌北	64.7	6.5	14.3	45.1
4	札幌市	札幌白石	41.3	6.3	11.6	66.5
5	新潟県	新潟曾和	13.5	13.3	25.4	62.1
6	新潟県	長岡	15.5	16.5	17.0	84.8
7	新潟市	新潟小新	28.2	13.2	31.7	74.5
8	群馬県	前橋	16.2	13.2	11.7	322.0
9	埼玉県	加須	28.6	30.1	30.2	181.7
10	千葉県	市川	63.3	14.7	31.4	167.2
11	千葉県	市原	99.7	10.5	23.6	143.2
12	千葉県	香取	24.4	6.9	19.7	739.8
13	千葉県	旭	25.1	5.2	18.7	3761.4
14	千葉県	佐倉	35.6	12.6	28.2	130.3
15	長野県	長野	16.6	14.8	13.4	74.6
16	静岡県	静岡北安東	100.8	40.7	72.2	268.7
17	富山県	射水	17.8	15.3	20.1	73.4
18	石川県	金沢	25.3	7.6	18.3	37.0
19	福井県	福井	45.2	18.0	31.0	74.2
20	岐阜県	伊自良湖	28.1	9.0	5.7	49.5
21	愛知県	豊橋	38.2	26.9	27.8	163.6
22	名古屋市	名古屋南	41.0	25.2	31.9	103.5
23	和歌山県	海南	48.9	23.9	30.0	83.7
24	兵庫県	神戸須磨	79.8	30.5	32.5	85.4
25	鳥取県	湯梨浜町	13.1	5.7	24.5	(44.5)
26	高知県	香北	(19.7)	(13.2)	(12.5)	(34.6)
27	福岡県	太宰府	49.6	24.6	24.3	114.2
28	福岡市	福岡	26.9	14.6	20.9	50.9
29	熊本県	宇土	95.9	16.6	23.2	136.5
30	大分県	大分久住	86.0	13.8	17.3	55.5
31	大分県	大分	79.0	17.2	18.9	41.6
32	宮崎県	宮崎	63.0	11.0	25.8	95.3
33	鹿児島県	鹿児島	123.9	10.9	36.3	108.7
34	沖縄県	大里	31.0	11.3	69.1	598.0
35	沖縄県	辺戸岬	15.9	5.1	46.6	46.3
全国最低値			11.6	2.5	5.7	18.3
全国最高値			123.9	40.7	72.2	3761.4
全国中央値			35.6	13.3	24.3	85.1
全国平均値			45.3	15.0	26.0	251.8

注)全国最低値は網掛け、全国最高値は白抜き、参考値は()で示した。

注)参考値は最低値、最高値、中央値、平均値から除外した。

南西諸島で低い傾向がみられた。

HCl(g)の年平均濃度の範囲は5.7~72.2nmol m⁻³(平均値26.0nmol m⁻³)であり、最高値は静岡北安東、次いで大里、最低値は伊自良湖であった。HCl(g)は南西諸島で高く、北部で低い傾向がみられた。

NH₃(g)の年平均濃度の範囲は18.3~3761.4nmol m⁻³(平均値251.8nmol m⁻³)であり、最高値は旭、次いで香取、最低値は母子里であった。NH₃(g)は東部および南西諸島で高い傾向がみられた。

5.2.1.2 粒子状成分

SO₄²⁻(p)の年平均濃度の範囲は19.3~89.8nmol m⁻³(平均値49.3nmol m⁻³)、nss-

SO₄²⁻(p)は18.3~85.7nmol m⁻³(平均値45.7nmol m⁻³)であり、最高値は静岡北安東、次いで大里、最低値は母子里であった。nss-SO₄²⁻(p)は西部および南西諸島で高く、北部で低い傾向がみられた。

NO₃⁻(p)の年平均濃度の範囲は4.6~65.4nmol m⁻³(平均値32.1nmol m⁻³)であり、最高値は旭、次いで市川、最低値は伊自良湖であった。NO₃⁻(p)は東部で高く、北部および日本海側で低い傾向がみられた。

Cl⁻(p)の年平均濃度の範囲は0.9~247.0nmol m⁻³(平均値46.1nmol m⁻³)であり、最高値は旭、次いで辺戸岬、最低値は伊自良湖であった。Cl⁻(p)は南西諸島で高い傾向がみられた。

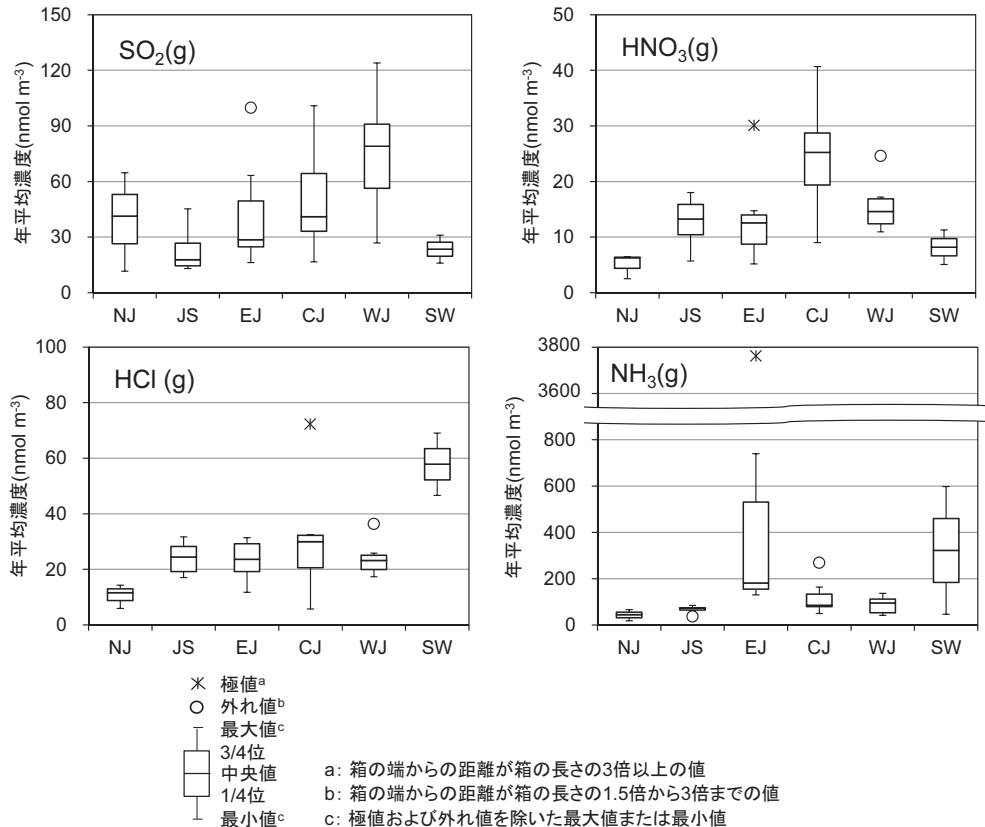


図 5.2.1 ガス状成分の年平均濃度の分布(地域区分別)

Na⁺(p)の年平均濃度の範囲は6.9~250.2nmol m⁻³(平均値60.2nmol 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。Na⁺(p)は南西諸島で高い傾向がみられた。

K⁺(p)の年平均濃度の範囲は1.9~10.0nmol m⁻³(平均値4.3nmol m⁻³)であり、最高値は旭、次いで大里、最低値は加須と伊自良湖であった。K⁺(p)は南西諸島で高く、北部で低い傾向がみられた。

Ca²⁺(p)の年平均濃度の範囲は1.7~50.4nmol m⁻³(平均値12.3nmol m⁻³)、nss-Ca²⁺(p)は1.3~48.3nmol m⁻³(平均値11.0nmol 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。nss-Ca²⁺(p)は東部で高く、北部および日本海側で低い傾向がみられた。

Mg²⁺(p)の年平均濃度の範囲は0.9~28.0nmol m⁻³(平均値7.9nmol 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。

Mg²⁺(p)は南西諸島で高く、北部で低い傾向がみられた。

NH₄⁺(p)の年平均濃度の範囲は30.4~135.4nmol m⁻³(平均値78.5nmol m⁻³)であり、最高値は静岡北安東、次いで宮崎、最低値は母子里であった。NH₄⁺(p)は西部で高く、北部と南西諸島で低い傾向がみられた。

地域区別に粒子状成分の年平均当量濃度をみると、いずれの地域でも陰イオンと陽イオンのイオンバランスはおおむねとれていた。総当量濃度は、南西諸島でもっとも高く、北部でもっとも低かった。南西諸島ではCl⁻(p)とNa⁺(p)の占める割合がもっとも高く、海塩粒子の寄与が大きいと考えられる。南西諸島以外の地域では、nss-SO₄²⁻(p)とNH₄⁺(p)の占める割合がもっとも高く、とくに西部ではnss-SO₄²⁻(p)が約7割、NH₄⁺(p)が約6割以上を占めていた。また、南西諸島を除く地域ではnss-SO₄²⁻(p)とNH₄⁺(p)

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	(29.3)	(25.7)	(10.5)	(42.1)	(59.7)	(2.5)	(3.9)	(2.6)	(6.9)	(27.4)
2	北海道	母子里	19.3	18.3	5.7	9.1	15.3	2.0	1.7	1.3	2.0	30.4
3	北海道	札幌北	29.6	27.5	21.9	28.8	33.8	3.0	5.5	4.7	3.7	60.5
4	札幌市	札幌白石	27.6	25.7	23.5	28.4	31.1	2.3	6.7	6.0	3.8	54.4
5	新潟県	新潟曽和	41.1	37.9	19.1	35.5	52.8	4.1	4.8	3.6	6.1	55.4
6	新潟県	長岡	40.1	38.2	20.8	19.3	31.3	3.6	5.2	4.5	3.7	65.1
7	新潟市	新潟小新	43.1	37.0	28.0	88.2	101.3	4.9	7.2	5.0	11.0	66.4
8	群馬県	前橋	25.5	24.7	32.6	10.6	14.0	3.3	10.9	10.5	2.8	58.0
9	埼玉県	加須	30.0	28.7	38.1	14.1	21.4	1.9	9.5	9.0	3.6	68.6
10	千葉県	市川	50.5	46.4	63.1	53.8	67.6	2.8	32.0	30.5	10.9	78.0
11	千葉県	市原	54.6	48.9	56.3	91.1	94.7	4.6	50.4	48.3	14.5	62.2
12	千葉県	香取	44.3	40.3	41.3	59.7	64.9	3.6	19.7	18.2	9.9	73.6
13	千葉県	旭	62.8	50.3	65.4	247.0	205.7	10.0	47.1	42.5	26.7	93.5
14	千葉県	佐倉	46.7	43.5	41.9	37.0	52.3	3.3	20.4	19.3	8.4	68.6
15	長野県	長野	33.6	33.1	14.5	2.9	8.9	2.5	3.8	3.6	1.3	61.2
16	静岡県	静岡北安東	89.8	85.7	53.7	26.0	68.7	7.5	15.6	14.0	9.7	135.4
17	富山県	射水	46.4	44.6	17.8	13.3	29.0	2.9	4.4	3.8	3.7	74.3
18	石川県	金沢	39.3	37.0	16.0	17.9	37.5	5.9	4.6	3.8	5.0	57.8
19	福井県	福井	56.8	53.1	27.8	42.2	60.1	5.3	12.9	11.6	7.8	89.6
20	岐阜県	伊自良湖	32.0	31.6	4.6	0.9	6.9	1.9	1.9	1.8	0.9	48.6
21	愛知県	豊橋	51.0	48.2	46.6	24.5	46.4	4.1	10.9	9.9	6.0	94.2
22	名古屋市	名古屋南	44.1	42.3	34.5	15.7	30.3	5.1	8.7	8.0	3.4	80.5
23	和歌山県	海南	54.9	52.7	27.3	11.5	36.1	4.1	9.1	8.3	4.9	84.4
24	兵庫県	神戸須磨	61.6	57.9	57.5	44.5	61.9	3.8	20.1	18.7	10.6	106.7
25	鳥取県	湯梨浜町	43.7	41.1	14.5	27.9	43.8	2.9	4.1	3.1	5.4	72.2
26	高知県	香北	(53.2)	(52.3)	(7.5)	(1.7)	(15.5)	(2.9)	(5.4)	(5.0)	(2.7)	(74.4)
27	福岡県	太宰府	66.4	63.6	49.9	25.7	46.5	5.7	12.3	11.2	7.2	125.3
28	福岡市	福岡	61.0	59.4	19.8	8.0	27.0	4.1	5.5	4.9	3.6	100.7
29	熊本県	宇土	65.2	62.9	29.5	18.0	38.1	4.9	7.8	6.9	5.4	114.1
30	大分県	大分久住	42.8	41.8	20.8	5.7	16.6	3.1	7.0	6.6	3.0	79.7
31	大分県	大分	54.6	53.3	21.3	6.0	21.3	4.0	5.9	5.4	3.3	100.7
32	宮崎県	宮崎	67.2	62.5	41.3	49.4	77.4	4.6	8.1	6.3	8.1	132.2
33	鹿児島県	鹿児島	59.8	56.1	33.1	43.2	62.2	5.0	12.4	11.0	7.2	98.5
34	沖縄県	大里	85.0	70.9	43.6	187.4	231.8	9.0	20.4	15.2	27.8	66.9
35	沖縄県	辺戸岬	56.8	41.6	26.4	227.2	250.2	7.1	10.5	4.9	28.0	33.0
全国最低値			19.3	18.3	4.6	0.9	6.9	1.9	1.7	1.3	0.9	30.4
全国最高値			89.8	85.7	65.4	247.0	250.2	10.0	50.4	48.3	28.0	135.4
全国中央値			46.7	43.5	28.0	26.0	43.8	4.1	8.7	6.9	5.4	73.6
全国平均値			49.3	45.7	32.1	46.1	60.2	4.3	12.3	11.0	7.9	78.5

注)全国最低値は網掛け、全国最高値は白抜き、参考値は()で示した。

注)参考値は最低値、最高値、中央値、平均値から除外した。

の占める割合がほぼ1対1であったのに対し、南西諸島ではほぼ2対1となっていた。

5.2.1.3 ガス状および粒子状成分濃度の総計

非海塩由来の全硫黄(SO₂(g) + nss-SO₄²⁻(p))の年平均濃度の範囲は30.0~186.5nmol m⁻³(平均値90.9nmol m⁻³)であり、最高値は静岡北安東、次いで鹿児島、最低値は母子里であった。全硫黄は西部で高く、日本海側で低い傾向がみられた。

全硝酸(HNO₃(g) + NO₃⁻(p))の年平均濃度の範囲は8.2~94.4nmol m⁻³(平均値47.0nmol m⁻³)であり、最高値は静岡北安東、次いで神戸須磨、最低値は母子里であった。全硝酸は中央部で高く、北部で低い傾向がみられた。

全塩化物(HCl(g) + Cl⁻(p))の年平均濃度の範囲は6.6~273.8nmol m⁻³(平均値72.1nmol 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。全塩化物は南西諸島で高い傾向がみられた。

全アンモニア(NH₃(g) + NH₄⁺(p))の年平均濃度の範囲は48.6~3854.9nmol m⁻³(平均値330.5nmol m⁻³)であり、最高値は旭、次いで香取、最低値は母子里であった。全アンモニアは東部および南西諸島で高い傾向がみられた。

5.2.2 経月変化および地域特性

地域区分別のガス状成分濃度の経月変化を図5.2.5に、粒子状成分濃度の経月変化を図5.2.6に、粒子状成分濃度の経月変化から作成した相関

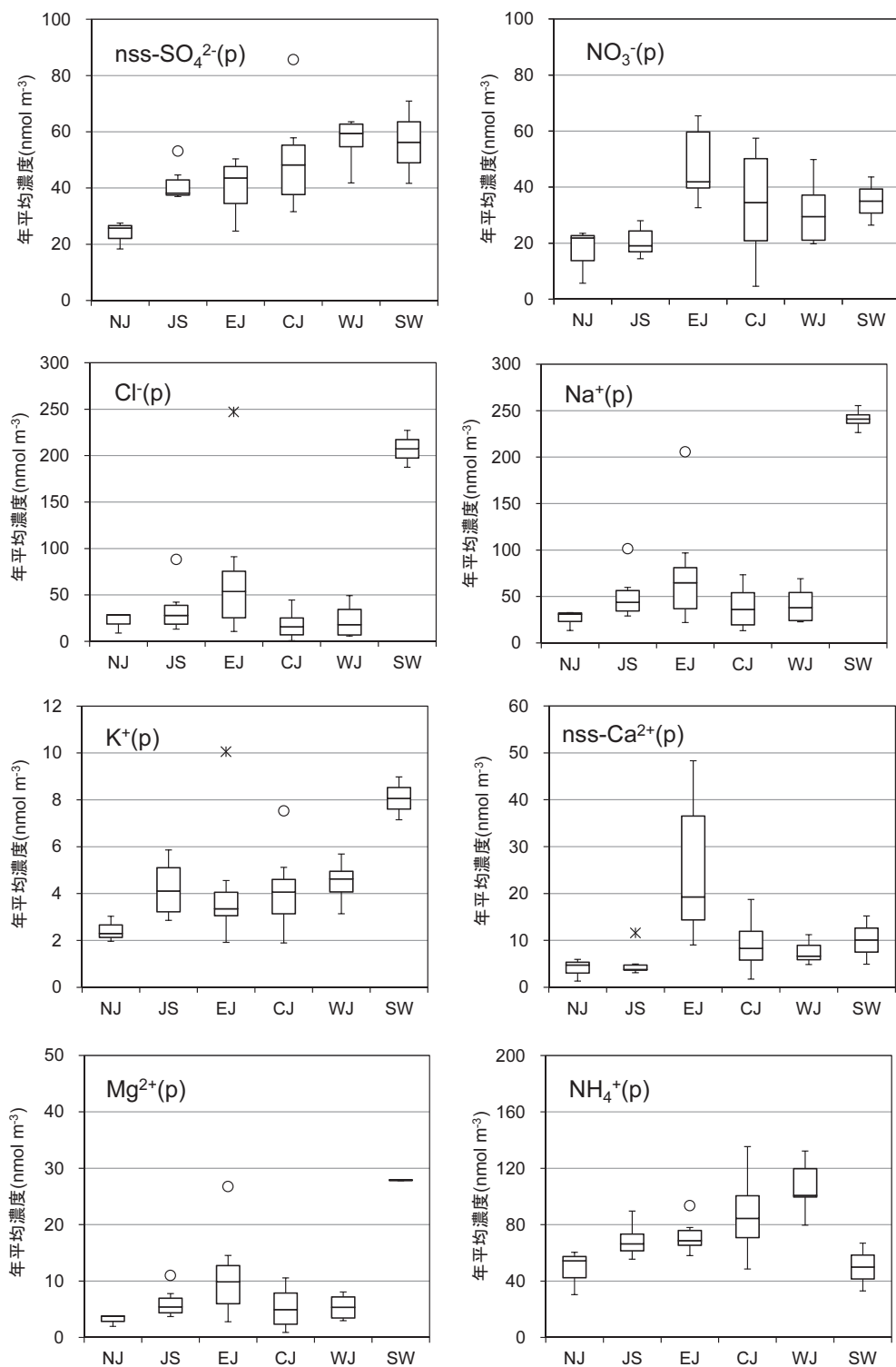


図 5.2.2 粒子状成分の年平均濃度の分布(地域区分別；凡例は図 5.2.1 のとおり)

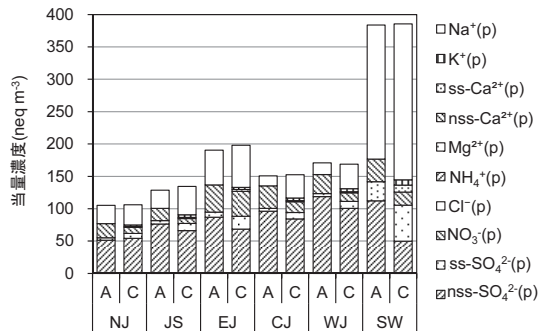


図 5.2.3 粒子状成分の年平均当量濃度 (地域区分別)

表 5.2.3 ガス状および粒子状成分の総計の年平均濃度 (地点別)

No.	都道府県市	地点名	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 $\text{NH}_3(\text{g}) + \text{NH}_4^+(\text{p})$
			(nmol m ⁻³)			
1	北海道	利尻	(31.1)	(14.5)	(63.8)	(51.8)
2	北海道	母子里	30.0	8.2	15.0	48.6
3	北海道	札幌北	92.2	28.3	43.1	105.6
4	札幌市	札幌白石	67.0	29.8	40.0	120.9
5	新潟県	新潟曽和	51.4	32.3	60.9	117.6
6	新潟県	長岡	53.7	37.3	36.4	149.9
7	新潟市	新潟小新	65.2	41.2	119.9	140.9
8	群馬県	前橋	40.9	45.9	22.4	380.0
9	埼玉県	加須	57.3	68.2	44.3	250.3
10	千葉県	市川	109.6	77.9	85.2	245.2
11	千葉県	市原	148.6	66.8	114.8	205.4
12	千葉県	香取	64.7	48.2	79.4	813.4
13	千葉県	旭	75.4	70.6	265.7	3854.9
14	千葉県	佐倉	79.2	54.5	65.2	198.9
15	長野県	長野	49.7	29.3	16.3	135.8
16	静岡県	静岡北安東	186.5	94.4	98.3	404.0
17	富山県	射水	62.4	33.1	33.4	147.7
18	石川県	金沢	62.3	23.6	36.2	94.8
19	福井県	福井	98.3	45.8	73.3	163.8
20	岐阜県	伊自良湖	59.7	13.6	6.6	98.1
21	愛知県	豊橋	86.4	73.6	52.3	257.8
22	名古屋市	名古屋南	83.3	59.8	47.6	184.0
23	和歌山県	海南	101.5	51.2	41.4	168.2
24	兵庫県	神戸須磨	137.7	88.0	77.0	192.1
25	鳥取県	湯梨浜町	54.1	20.2	52.4	(116.7)
26	高知県	香北	72.0	(20.8)	(14.2)	(109.0)
27	福岡県	太宰府	113.2	74.5	50.0	239.5
28	福岡市	福岡	86.3	34.4	29.0	151.6
29	熊本県	宇土	158.8	46.1	41.2	250.6
30	大分県	大分久住	127.8	34.6	23.1	135.2
31	大分県	大分	132.3	38.5	24.9	142.3
32	宮崎県	宮崎	125.5	52.3	75.2	227.5
33	鹿児島県	鹿児島	180.0	44.1	79.6	207.2
34	沖縄県	大里	101.9	54.9	256.4	664.9
35	沖縄県	辺戸岬	57.5	31.5	273.8	79.3
全国最低値			30.0	8.2	6.6	48.6
全国最高値			186.5	94.4	273.8	3854.9
全国中央値			83.3	45.8	50.0	176.1
全国平均値			90.9	47.0	72.1	330.5

注) 全国最低値は網掛け、全国最高値は白抜き、参考値は()で示した。

注) 参考値は最低値、最高値、中央値、平均値から除外した。

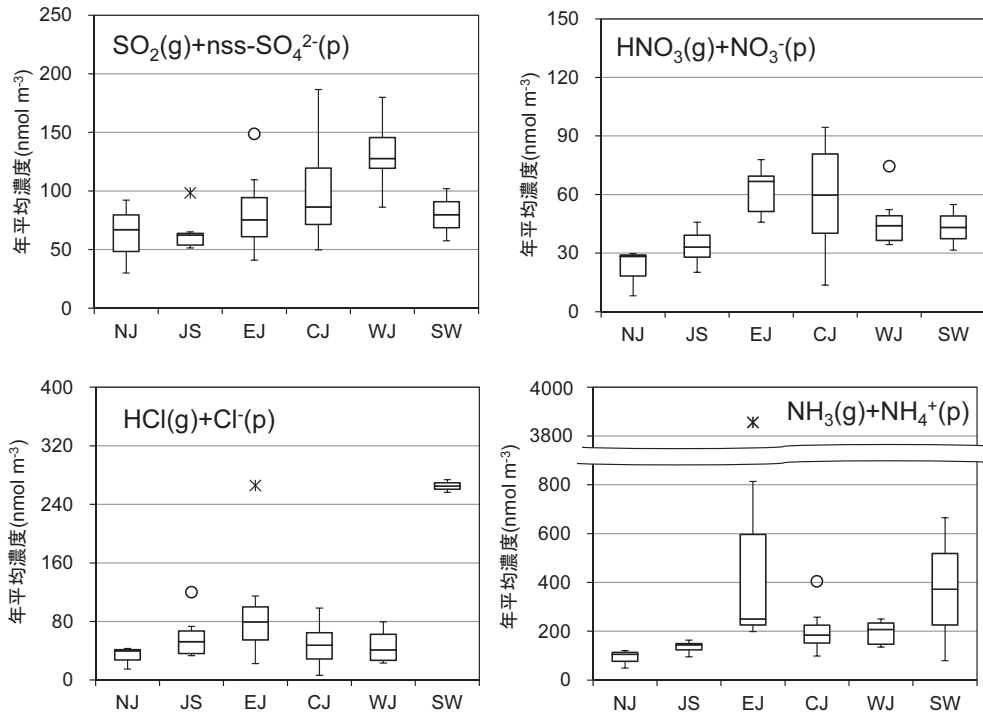


図 5.2.4 ガス状および粒子状成分の総計の年平均濃度の分布(地域区分別; 凡例は図 5.2.1 のとおり)

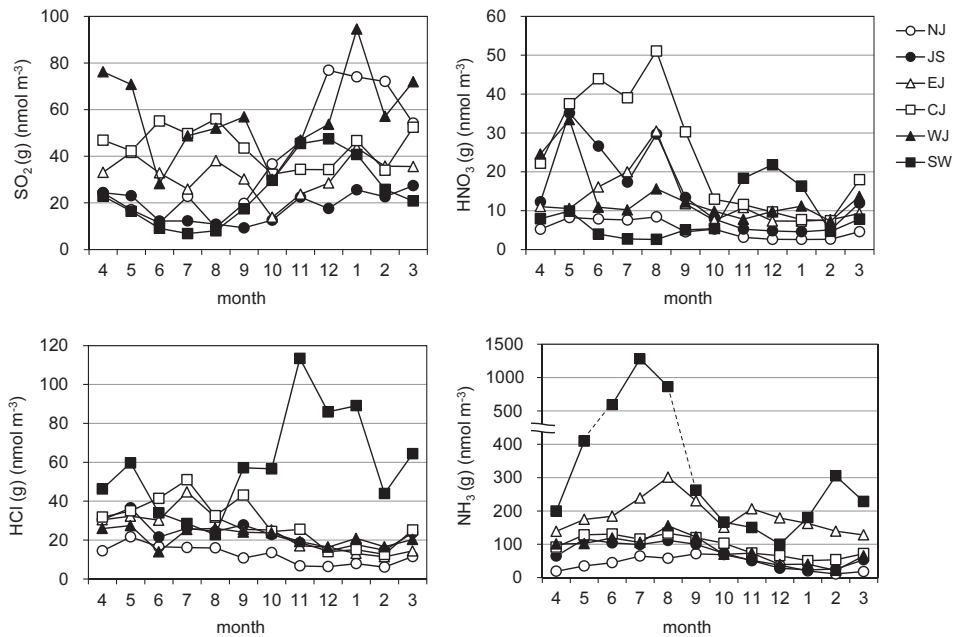


図 5.2.5 ガス状成分濃度の経月変化(地域区分別)

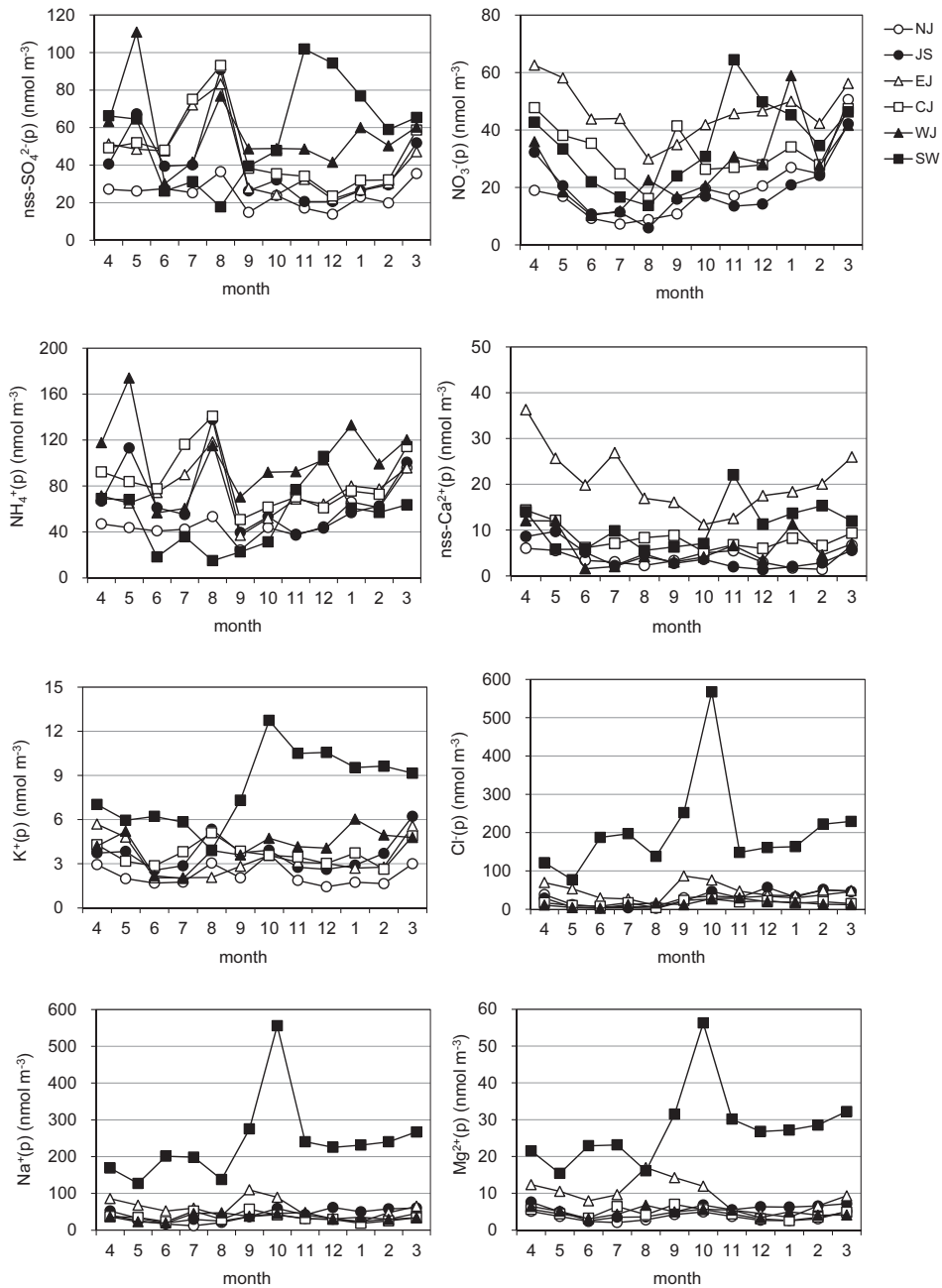


図 5.2.6 粒子状成分濃度の経月変化(地域区別)

表 5.2.4 粒子状成分濃度の相関行列 (n = 12)

NJ	nss-SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	Na ⁺	K ⁺	nss-Ca ²⁺	Mg ²⁺	NH ₄ ⁺
nss-SO ₄ ²⁻	1.000							
NO ₃ ⁻	0.240	1.000						
Cl ⁻	-0.265	0.740**	1.000					
Na ⁺	-0.064	0.618*	0.867***	1.000				
K ⁺	0.578*	0.236	0.240	0.573	1.000			
nss-Ca ²⁺	0.250	0.374	0.318	0.595*	0.494	1.000		
Mg ²⁺	0.138	0.483	0.660*	0.926***	0.711**	0.772**	1.000	
NH ₄ ⁺	0.577*	0.871***	0.414	0.270	0.256	0.135	0.189	1.000
JS	nss-SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	Na ⁺	K ⁺	nss-Ca ²⁺	Mg ²⁺	NH ₄ ⁺
nss-SO ₄ ²⁻	1.000							
NO ₃ ⁻	-0.069	1.000						
Cl ⁻	-0.571	0.484	1.000					
Na ⁺	-0.478	0.621*	0.960***	1.000				
K ⁺	0.645*	0.497	0.064	0.157	1.000			
nss-Ca ²⁺	0.595*	0.402	-0.357	-0.196	0.381	1.000		
Mg ²⁺	-0.357	0.746**	0.826***	0.932***	0.240	0.071	1.000	
NH ₄ ⁺	0.964***	0.116	-0.393	-0.295	0.726**	0.612*	-0.180	1.000
EJ	nss-SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	Na ⁺	K ⁺	nss-Ca ²⁺	Mg ²⁺	NH ₄ ⁺
nss-SO ₄ ²⁻	1.000							
NO ₃ ⁻	-0.123	1.000						
Cl ⁻	-0.575	0.228	1.000					
Na ⁺	-0.064	0.053	0.818**	1.000				
K ⁺	-0.099	0.814**	0.496	0.392	1.000			
nss-Ca ²⁺	0.433	0.702*	0.012	0.192	0.579*	1.000		
Mg ²⁺	0.563	-0.325	0.194	0.627*	0.107	0.135	1.000	
NH ₄ ⁺	0.754**	-0.078	-0.818**	-0.563	-0.118	0.249	0.116	1.000
CJ	nss-SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	Na ⁺	K ⁺	nss-Ca ²⁺	Mg ²⁺	NH ₄ ⁺
nss-SO ₄ ²⁻	1.000							
NO ₃ ⁻	-0.243	1.000						
Cl ⁻	-0.686*	0.079	1.000					
Na ⁺	0.196	0.141	0.408	1.000				
K ⁺	0.675*	0.113	-0.293	0.217	1.000			
nss-Ca ²⁺	0.240	0.648*	-0.296	0.135	0.391	1.000		
Mg ²⁺	0.290	0.227	0.331	0.957***	0.365	0.266	1.000	
NH ₄ ⁺	0.923***	-0.199	-0.685*	-0.054	0.705*	0.259	0.064	1.000
WJ	nss-SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	Na ⁺	K ⁺	nss-Ca ²⁺	Mg ²⁺	NH ₄ ⁺
nss-SO ₄ ²⁻	1.000							
NO ₃ ⁻	0.132	1.000						
Cl ⁻	-0.241	0.305	1.000					
Na ⁺	-0.121	0.065	0.718**	1.000				
K ⁺	0.530	0.737**	0.298	-0.069	1.000			
nss-Ca ²⁺	0.690*	0.639*	-0.072	-0.151	0.704*	1.000		
Mg ²⁺	0.508	0.168	0.326	0.621*	0.296	0.445	1.000	
NH ₄ ⁺	0.885***	0.496	-0.077	-0.224	0.787**	0.839***	0.363	1.000
SW	nss-SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	Na ⁺	K ⁺	nss-Ca ²⁺	Mg ²⁺	NH ₄ ⁺
nss-SO ₄ ²⁻	1.000							
NO ₃ ⁻	0.963***	1.000						
Cl ⁻	-0.204	-0.155	1.000					
Na ⁺	0.024	0.075	0.971***	1.000				
K ⁺	0.633*	0.646*	0.601*	0.757**	1.000			
nss-Ca ²⁺	0.750**	0.807**	-0.206	-0.037	0.479	1.000		
Mg ²⁺	0.113	0.175	0.941***	0.991***	0.810**	0.072	1.000	
NH ₄ ⁺	0.918***	0.832***	-0.343	-0.161	0.458	0.608*	-0.087	1.000

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

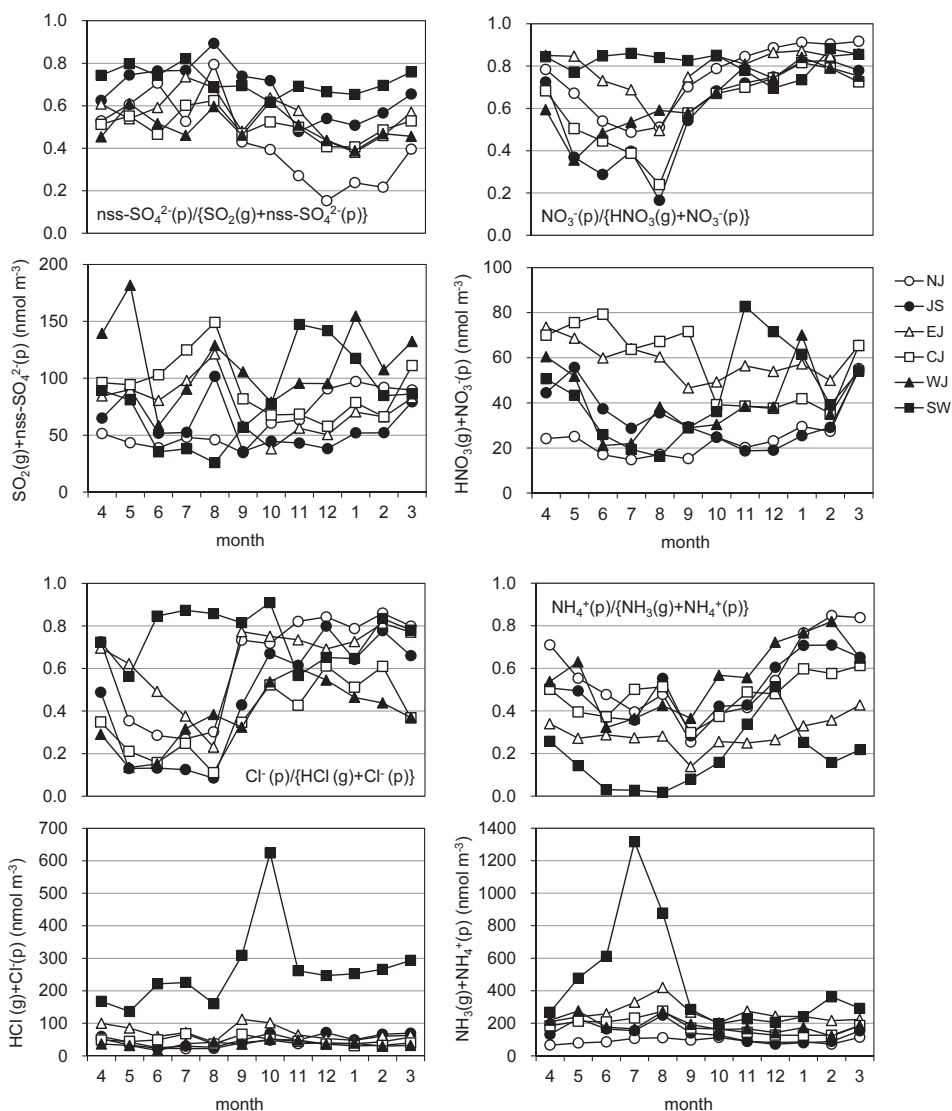


図 5.2.7 ガス状成分および粒子状成分濃度の総計ならびに粒子化率の経月変化(地域区分別)

行列を表 5.2.4 に、ガス状成分および粒子状成分濃度の総計ならびに粒子化率の経月変化を図 5.2.7 にそれぞれ示す。地域区分別の各月の成分濃度としては、外れ値の影響を小さくするため、参考値および定量下限値未満のデータを除いた中央値を用いた。

なお、気象庁の予報用語⁵⁾に従い、文中、春季(春)は3～5月、夏季(夏)は6～8月、秋季(秋)は9～11月、冬季(冬)は12～2月のことをそれぞれ指す。

5.2.2.1 ガス状成分

$\text{SO}_2(\text{g})$ 濃度は東部と中央部を除き、冬季に高くなる傾向がみられ、とくに西部と北部で顕著であった。大陸に近いところに位置する西部では、春季にも高濃度がみられた。西部では桜島や2013年末から活動が活発化している阿蘇山からの火山ガス⁶⁾の影響を受けている可能性もある。また、冬季の北部における高濃度は、暖房等の使用による地域汚染の影響も大きいと考えられる。

$\text{HNO}_3(\text{g})$ 濃度は西部と南西諸島を除き、春季から夏季にかけて高く、秋季から冬季にかけて低

くなる傾向がみられ、とくに中央部で顕著であった。気温が上昇すると光化学反応が活発になり窒素酸化物から $\text{HNO}_3(\text{g})$ への酸化が促進されることや、 NH_4NO_3 などの揮発性粒子の解離が進むことが考えられる。一方、西部では4月だけ高く、南西諸島では11～1月に高くなるという他の地域とは異なる傾向がみられた。

$\text{HCl}(\text{g})$ 濃度は南西諸島を除き、冬季に低くなる傾向がみられた。一方、南西諸島では11～1月に高く、 $\text{HNO}_3(\text{g})$ と同じ発生源の影響を受けている可能性がある。

$\text{NH}_3(\text{g})$ 濃度は全国的に、夏季に高く冬季に低くなる傾向がみられた。気温が上昇すると、 NH_4NO_3 などの揮発性粒子が解離することによりガス化し、逆に気温が低下すると粒子化することによって考えられる。なお、南西諸島における夏季の高濃度は、調査地点が2地点と少なく周辺に畜産業がある大里のデータが中央値に直接反映されていることによる。

5.2.2.2 粒子状成分

$\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ 濃度は、春季に西部、日本海側および南西諸島、夏季に中央部、日本海側、東部および西部、秋季から冬季にかけて南西諸島で高くなる傾向がみられた。 $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ 濃度は、日本海側、中央部、西部および南西諸島において、 $\text{NH}_4^+(\text{p})$ 濃度と非常に高い相関関係があり、これらの地域では $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ と $\text{NH}_4^+(\text{p})$ は同じような経月変化をしていると考えられる。南西諸島では $\text{NO}_3^-(\text{p})$ とも高い相関を示した。

$\text{NO}_3^-(\text{p})$ 濃度は全国的に、春季に高く夏季に低くなる傾向がみられた。 $\text{NH}_3(\text{g})$ 濃度と同じく NH_4NO_3 などの揮発性粒子の影響が考えられたが、中央部では9月、南西諸島では11月、西部では1月にもピークがみられた。 $\text{NO}_3^-(\text{p})$ 濃度と相関が比較的高い成分としては $\text{NH}_4^+(\text{p})$ 以外にも、 $\text{K}^+(\text{p})$ (東部および西部など)、 $\text{nss-Ca}^{2+}(\text{p})$ (南西諸島など)、 $\text{Mg}^{2+}(\text{p})$ (日本海側)、 $\text{Cl}^-(\text{p})$ (北部)があり、地域によって異なる発生源の影響を受けていると考えられた。

$\text{NH}_4^+(\text{p})$ 濃度は、春季に西部、日本海側および南西諸島、夏季に中央部、日本海側、東部および西部、冬季に南西諸島および西部で高くなる傾向がみられた。先に述べたとおり、 $\text{NH}_4^+(\text{p})$ 濃

度は日本海側、中央部、西部および南西諸島において $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ 濃度と非常に高い相関関係があり、これらの地域では $\text{NH}_4^+(\text{p})$ と $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ は同じような経月変化をしていると考えられる。北部および南西諸島では $\text{NO}_3^-(\text{p})$ とも高い相関を示した。

$\text{nss-Ca}^{2+}(\text{p})$ 濃度は、東部および南西諸島を除き1年を通して低い濃度で推移した。 $\text{nss-Ca}^{2+}(\text{p})$ は黄砂の指標とされるが2013年度は黄砂の観測日数が少なく、気象庁によると4月に3日(のべ日数として4日)、10月に2日(延べ日数として14日)、1月に2日(延べ日数として2日)小規模な黄砂が観測されただけであった⁷⁾。 $\text{nss-Ca}^{2+}(\text{p})$ 濃度は、東部と南西諸島において $\text{NO}_3^-(\text{p})$ 濃度と比較的高い相関があり、セメント工場等の影響を受けている可能性がある。

$\text{K}^+(\text{p})$ 濃度は、南西諸島においてやや高い濃度で推移したほかは1年を通して低い濃度で推移した。 $\text{K}^+(\text{p})$ 濃度は $\text{Na}^+(\text{p})$ や $\text{Mg}^{2+}(\text{p})$ といった海塩粒子の影響が大きい成分以外にも $\text{NH}_4^+(\text{p})$ (日本海側および西部など)や $\text{NO}_3^-(\text{p})$ (東部および西部など)とも比較的高い相関が高く、バイオマス燃焼の影響が考えられた。

$\text{Cl}^-(\text{p})$ 、 $\text{Na}^+(\text{p})$ および $\text{Mg}^{2+}(\text{p})$ は、中央部を除きほぼ同じような濃度推移を示し、海塩粒子の影響が大きいと考えられた。南西諸島においては10月に非常に高い濃度を示しているが、気象庁によると2013年10月沖縄地方には4つの台風が接近しており⁸⁾、海塩粒子の巻き上げがあったと考えられる。

5.2.2.3 ガス状および粒子状成分の総計

非海塩由来の全硫黄濃度($\text{SO}_2(\text{g}) + \text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$)は、春季に西部、夏季に中央部、西部、東部および日本海側、秋季から冬季にかけて南西諸島および西部で高くなる傾向がみられた。粒子化率に影響を与える因子としては、 $\text{SO}_2(\text{g})$ のローカルな発生源の有無、 O_3 等の酸化性物質の濃度および気温などが考えられる。北部において粒子化率が冬季に大きく減少している理由としては、農業用および家庭用暖房の影響が考えられる。西部において全硫黄濃度が高い割に粒子化率が低い理由としては、桜島や阿蘇山などの火山ガス⁶⁾の影響が考えられる。また、春季から秋季にかけて

全硫酸濃度が高くなっている月は大陸の影響を受けていることが多く、他の月に比べて粒子化率も高くなっている。

全硝酸濃度($\text{HNO}_3(\text{g}) + \text{NO}_3^-(\text{p})$)は全国的に春季に高く夏季に低くなる傾向がみられたが、中央部では夏季まで高い濃度が続いた。また、南西諸島では11月、西部では1月にもピークがみられた。粒子化率は南西諸島を除き夏季に低くなる傾向がみられた。 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4(\text{p})$ への粒子化が不可逆反応であるのに対し $\text{NH}_4\text{NO}_3(\text{p})$ への粒子化は可逆反応であり、気温の高い夏季は $\text{NH}_4\text{NO}_3(\text{p})$ が解離する方向に平衡が傾くため粒子化率が低くなる傾向がある。一方、南西諸島の粒子化率は1年を通して高い値で推移していた。南西諸島では夏季の $\text{NH}_3(\text{g})$ 濃度が非常に高いため、 $\text{NH}_4\text{NO}_3(\text{p})$ を生成する方向に平衡が傾いていると考えられる。

全塩化物濃度($\text{HCl}(\text{g}) + \text{Cl}^-(\text{p})$)は、東部では秋季に高く、日本海側では冬季に高い傾向がみられた。南西諸島では1年を通して高い濃度で推移していたが、とくに10月は高い濃度であった。冬季の日本海側は北西の季節風、10月の南西諸島は台風による海塩粒子の巻き上げの影響がそれぞれ考えられる。その他の地域では明確な傾向はみられなかった。粒子化率は南西諸島を除き夏季に低くなる傾向がみられた。気温が高い夏季に、 $\text{NaCl}(\text{p})$ が $\text{HNO}_3(\text{g})$ と反応して $\text{HCl}(\text{g})$ が揮散するクロリンロスの影響が考えられる。南西諸島では春季から夏季にかけて $\text{HNO}_3(\text{g})$ 濃度が低い値で推移しているためクロリンロスが起りにくいと考えられる。

全アンモニア濃度($\text{NH}_3(\text{g}) + \text{NH}_4^+(\text{p})$)は、夏季に高く冬季に低い傾向がみられた。西部と日本海側では5月にもピークがみられた。南西諸島では春季から夏季にかけて非常に高い濃度が観測されたが、調査地点が2地点しかないことから近傍の発生源の影響を反映していると考えられる。粒子化率は全硝酸と同様、夏季に低くなる傾向がみられたが、東部および南西諸島では他の地域とやや傾向が異なっており、近傍の発生源の影響を受けていると考えられた。

—参考文献—

- 1) 環境省：平成25年度酸性雨調査結果について、<http://www.env.go.jp/air/acidrain/monitoring/h25/index.html>
- 2) 全国環境研協議会 酸性雨調査研究部会：第3次酸性雨全国調査結果、全国環境研会誌、**28**、126-196、2003
- 3) Acid Deposition Monitoring Network in East Asia：東アジアにおけるフィルターバック法に関する技術資料、http://www.eanet.cc/jpn/docea_f.html
- 4) 全国環境研協議会 酸性雨広域大気汚染調査研究部会：第5次酸性雨全国調査報告書(平成24年度)、全国環境研会誌、**39**、100-146、2014
- 5) 気象庁：予報用語、http://www.jma.go.jp/jma/kishou/known/yougo_hp/mokuji.html
- 6) 気象庁：年間の日本の主な火山活動、http://www.data.jma.go.jp/svd/vois/data/tokyo/STOCK/monthly_v-act_doc/annual.htm
- 7) 気象庁：[地球環境のデータバンク] 黄砂、http://www.data.jma.go.jp/gmd/env/kosahp/kosa_data_index.html
- 8) 気象庁：台風の統計資料、<http://www.data.jma.go.jp/fcd/yoho/typhoon/statistics/index.html>

5.3 乾性沈着量の推計

5.3.1 乾性沈着推計ファイル

インファレンシャル法による乾性沈着量の推計を行った。インファレンシャル法は気象データなどから沈着速度(V_d)を算出し、乾性沈着量を求める方法である¹⁾。

このモデルは以下の式で表される。

$$F = V_d(z) \times C$$

F ：沈着面への沈着物質のフラックス(沈着量)

$V_d(z)$ ：基準高さ z における沈着速度

C ：沈着物質の大気中濃度

したがって、 V_d が決定されれば大気中の物質濃度から乾性沈着量が求められる。 V_d は沈着成分の輸送されやすさ、沈着しやすさによって変化し、風速や気温などの気象データ、また対象成分の溶解度や地表面の被覆状況(土地利用状況)などから推定する。

V_d の算出には野口らが表計算ソフト(MS Excel)のファイルとして開発した乾性沈着推計ファイル Ver. 4-2を用いた²⁾。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³⁾、ダウンロードが可能である。ファイルの詳細についてはそちらを参照していただきたい。

この乾性沈着推計ファイルは現在も改良が続けられているため、今回用いた Ver. 4-2による計算

は、過去に報告した計算結果と必ずしも一致しない。

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35地点について実施した。また、FP法調査地点のうち自動測定機またはパッシブ法でNO₂、NO測定を実施した17地点はNO₂、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 inputs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⁴⁾、大気汚染常時監視測定局の1時間値を用いた。

季節区分(春、夏、秋、冬(積雪なし)、冬(積雪あり))は、温量指数と季節区分指標を用いる方法とした。

V_dは表面の状況により異なるため、土地利用状況別に粒子状物質(SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺、以後(p)をつけて表示)およびガス状物質(SO₂、HNO₃、NH₃、NO、NO₂、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(沈着速度、cm s⁻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(平成15～19年度)⁵⁾では、測定局周辺約1kmの森林と草地の利用割合で計算されているが、本報告書では測定局周辺半径約20kmを推計対象として、土地利用の分類を市街地(建物用地、幹線交通用地、その他)、森林地域(森林)、農地(田、その他の農用地)、草地(ゴルフ場などの草地、荒地)、水面(河川および湖沼、海浜)とした。土地利用状況によってV_dが大きく異なるため(表

5.3.1)、土地利用の割合は推計結果に大きな影響を及ぼす。市街地のV_d推計のためのパラメーターについては検証が行われていないなど不確実な部分が多いが、本調査では市街地にある測定地点が多いことからこの条件設定とした。また、気象データの測定点がFP法の測定地点と異なる地点が多いことから半径20kmとした。土地利用割合は国土地理院のデータ⁶⁾からFP法の測定地点周辺の海を除く半径20kmにかかるメッシュ値を抽出して求めた。最多頻度の季節が冬(積雪あり)となった月については、農地、草地のV_dの代わりに積雪のV_dを推計に用いた。なお、これらの条件設定についてはさらに検討が必要である。

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)、自動測定機またはパッシブ法で測定した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HNO₃(g)とNO₃⁻(p)、NH₃(g)とNH₄⁺(p)濃度を用いて乾性沈着量を算出している。そのため、これらの乾性沈着量はFP法におけるアーティファクトの影響を受けている可能性がある。

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FP法で測定した大気濃度の年平均値が欠測または参考値となった調査地点を除いて評価した。

ガス状物質の乾性沈着量は、SO₂(g)が1.3(母子里)～27.6(鹿児島)(平均値8.6)mmol m⁻² y⁻¹、HNO₃(g)が0.9(母子里)～44.4(神戸須磨)(平均

表5.3.1 土地利用状況別の平均沈着速度(2013年度)

(単位: cm s⁻¹)

	SO ₄ ²⁻ (p)	NO ₃ ⁻ (p)	NH ₄ ⁺ (p)	SO ₂ (g)	HNO ₃ (g)	NH ₃ (g)	NO ₂ (g)	NO(g)
市街地	0.076	0.076	0.076	0.18	4.3	0.047	0.031	5.3E-09
森林地域	0.51	0.72	0.55	1.1	3.9	0.49	0.11	0.0021
農地	0.13	0.13	0.13	0.58	1.2	0.36	0.14	0.0017
草地	0.16	0.16	0.16	0.61	1.6	0.33	0.10	0.0018
積雪	0.10	0.10	0.10	0.39	0.40	0.44	0.0013	0.00027
水面	0.086	0.086	0.086	0.27	0.27	0.29	0.0011	0.00022

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(cm s⁻¹)の年間平均値

表 5.3.2 年乾性沈着量(2013年度地点別)

No.	都道府県市	地点名	SO ₂ (g)	HNO ₃ (g)	NH ₃ (g)	nss-SO ₄ ²⁻ (p)	SO ₄ ²⁻ (p)	NO ₃ ⁻ (p)	NH ₄ ⁺ (p)	NO ₂ (g)	NO (g)
mmol m ⁻²											
1	北海道	利尻	(1.1)	(1.3)	(3.1)	(1.4)	(1.7)	(0.9)	(1.7)	0.6	0.002
2	北海道	母子里	1.3	0.9	2.0	0.8	0.8	0.4	1.4	0.8	0.039
3	北海道	札幌北	9.7	6.7	3.8	2.2	2.3	2.1	4.9	8.4	0.025
4	札幌市	札幌白石	6.4	5.6	6.5	1.4	1.5	1.5	3.0		
5	新潟県	新潟曽和	2.5	10.2	6.0	1.9	2.1	1.1	2.9		
6	新潟県	長岡	4.2	14.3	11.7	4.0	4.2	3.1	7.5		
7	新潟県	新潟小新	5.0	10.3	7.2	1.7	2.0	1.4	3.2	9.3	0.032
8	群馬県	前橋	1.9	9.4	20.4	1.4	1.4	2.1	3.3	10.0	0.008
9	埼玉県	加須	2.9	15.6	11.9	1.1	1.2	1.5	2.6	12.7	0.025
10	千葉県	市川	5.4	14.0	6.2	1.6	1.8	2.3	2.7		
11	千葉県	市原	15.6	11.3	10.3	2.8	3.1	3.7	3.6		
12	千葉県	香取	5.8	4.6	78.0	2.8	3.0	3.2	4.9		
13	千葉県	旭	8.0	6.5	557.3	3.9	4.8	6.2	7.4		
14	千葉県	佐倉	6.0	11.6	10.5	2.9	3.1	3.3	4.6		
15	長野県	長野	3.3	13.5	9.2	2.8	2.9	1.6	5.4	5.7	0.038
16	静岡県	静岡北安東	18.5	33.8	26.0	6.6	6.9	5.5	11.0		
17	富山県	射水	4.0	13.3	9.3	2.9	3.0	1.5	5.0	10.6	0.055
18	石川県	金沢	6.3	8.2	4.5	3.3	3.5	1.9	5.5		
19	福井県	福井	12.7	15.9	10.8	4.3	4.5	3.1	7.8	10.5	0.054
20	岐阜県	伊自良湖	2.5	2.0	3.8	0.6	0.6	0.1	1.1	(1.4)	(0.004)
21	愛知県	豊橋	9.4	37.5	19.5	6.3	6.7	8.1	13.0	19.5	0.047
22	名古屋市	名古屋南	4.2	27.9	5.3	1.7	1.7	1.4	3.2		
23	和歌山県	海南	9.3	18.7	8.8	3.6	3.8	2.4	6.1	11.2	0.030
24	兵庫県	神戸須磨	13.8	44.4	6.2	5.8	6.2	7.4	11.0		
25	鳥取県	湯梨浜町	6.8	8.7	9.9	9.5	10.2	4.9	18.0		
26	高知県	香北	(1.8)	(5.8)	(2.7)	(2.5)	(2.5)	(0.5)	(3.8)	1.3	0.007
27	福岡県	太宰府	9.6	28.6	10.3	7.0	7.3	7.1	14.4	15.8	0.063
28	福岡市	福岡	4.4	13.6	4.9	4.3	4.4	1.8	7.6		
29	熊本県	宇土	16.8	9.4	14.8	3.3	3.5	1.9	6.3	13.0	0.117
30	大分県	大分久住	13.5	9.7	5.5	3.5	3.6	2.1	6.8		
31	大分県	大分	15.7	14.4	4.4	4.0	4.1	2.0	8.0		
32	宮崎県	宮崎	17.5	10.9	14.5	7.4	7.9	6.8	17.3		
33	鹿児島県	鹿児島	27.6	10.6	11.9	4.4	4.7	3.4	8.2		
34	沖縄県	大里	6.3	23.7	50.0	6.3	7.6	4.7	6.1	1.7	0.006
35	沖縄県	辺戸岬	7.7	8.8	6.7	11.7	16.5	10.2	9.8	1.2	0.003
		最低値	1.3	0.9	2.0	0.6	0.6	0.1	1.1	0.6	0.0
		最高値	27.6	44.4	557.3	11.7	16.5	10.2	18.0	19.5	0.1
		中央値	6.4	11.3	9.3	3.3	3.5	2.3	6.1	9.6	0.0
		平均値	8.6	14.4	29.3	3.9	4.3	3.3	6.8	8.3	0.0

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。

値14.4) mmol m⁻² y⁻¹, NH₃(g)が2.0(母子里)～557.3(旭)(平均値29.3) mmol m⁻² y⁻¹だった。

粒子状物質の乾性沈着量は、nss-SO₄²⁻(p)が0.6(伊自良湖)～11.7(辺戸岬)(平均値3.9) mmol m⁻² y⁻¹, NO₃⁻(p)が0.1(伊自良湖)～10.2(辺戸岬)(平均値3.3) mmol m⁻² y⁻¹, NH₄⁺(p)が1.1(伊自良湖)～18.0(湯梨浜町)(平均値6.8) mmol m⁻² y⁻¹だった。

ガス状物質と粒子状物質を合わせた乾性沈着量は、非海塩由来酸化態硫黄成分(SO₂(g) + nss-SO₄²⁻(p))が2.1(母子里)～32.0(鹿児島)(平均値12.5) mmol m⁻² y⁻¹, NO_x(=NO₂+NO)を含まない酸化態窒素成分(HNO₃(g) + NO₃⁻(p))が1.3(母子里)～51.8(神戸須磨)(平均値17.1)

mmol m⁻² y⁻¹, 還元態窒素成分(NH₃(g) + NH₄⁺(p))が3.4(母子里)～564.6(旭)(平均値34.5) mmol m⁻² y⁻¹だった。

NO_x測定地点のNOの乾性沈着量は0.002(利尻)～0.117(宇土)(平均値0.036) mmol m⁻² y⁻¹と少なく、NO₂の乾性沈着量は0.6(利尻)～19.5(豊橋)(平均値8.3) mmol m⁻² y⁻¹だった。酸化態窒素成分にNO_xを加えた窒素酸化物成分は2.1(母子里)～65.2(豊橋)(平均値26.6) mmol m⁻² y⁻¹だった。

5.3.4 乾性沈着量と湿性沈着量との比較

湿性沈着およびFP法による大気濃度の年平均値が全て有効となった29地点について、湿性沈着と乾性沈着を合わせた総沈着量を図5.3.1に示

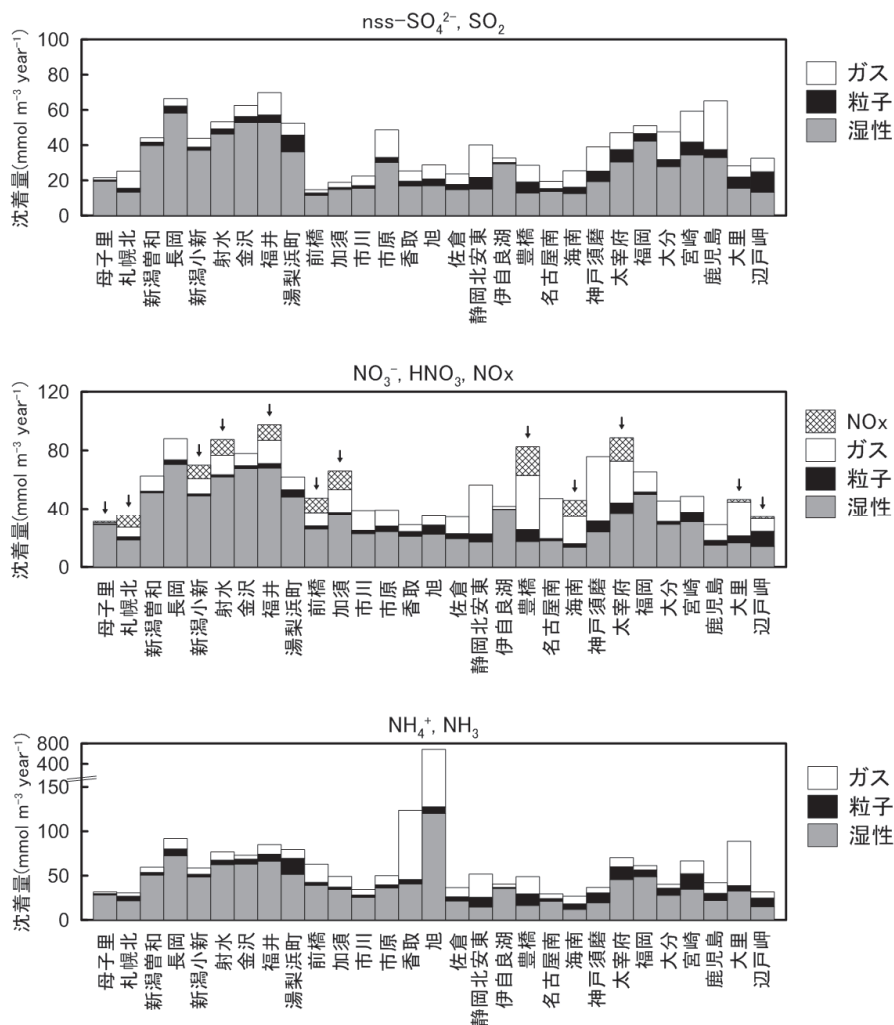


図 5.3.1 調査地点の年沈着量(2013年度)

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) NO_x ($\text{NO} + \text{NO}_2$) は、自動測定器またはO式パッシブ法による測定地点のみ表示(図内↓印)

す。ここで、総沈着量は、非海塩由来酸化態硫黄成分($\text{SO}_2(\text{g})$, $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$, $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{wet})$), 酸化態窒素成分($\text{HNO}_3(\text{g})$, $\text{NO}_3^-(\text{p})$, $\text{NO}_3^-(\text{wet})$)および還元態窒素成分($\text{NH}_3(\text{g})$, $\text{NH}_4^+(\text{p})$, $\text{NH}_4^+(\text{wet})$)に分類して考察した。また、 NO_x の乾性沈着量は年平均値が有効となった12地点について酸化態窒素成分と合わせて示した。

総沈着量の年間値は、非海塩由来酸化態硫黄成分が 14.7 (前橋)~ 69.8 (福井)(平均値 39.3) $\text{mmol m}^{-2} \text{ y}^{-1}$, 酸化態窒素成分が 27.3 (札幌北)~ 88.0 (長岡)(平均値 51.6) $\text{mmol m}^{-2} \text{ y}^{-1}$, 還元態窒素

成分が 26.9 (海南)~ 684.7 (旭)(平均値 78.0) $\text{mmol m}^{-2} \text{ y}^{-1}$ だった。 NO_x の乾性沈着量を含めた酸化態窒素成分は 31.1 (母子里)~ 97.6 (福井)(平均値 61.1) $\text{mmol m}^{-2} \text{ y}^{-1}$ だった。

総沈着量に占める乾性沈着量の比率(=乾性沈着量/(乾性沈着量+湿性沈着量) $\times 100(\%)$)は、非海塩由来酸化態硫黄成分が 10% (母子里)~ 63% (静岡北安東)(平均値 37), 酸化態窒素成分が 4% (母子里)~ 72% (豊橋)(平均値 34%), 還元態窒素成分が 11% (母子里)~ 82% (旭)(平均値 37%)だった。

湿性沈着および大気濃度の年平均値が有効となった29地点について、6つの地域区分別(北部(2地点)、日本海側(7)、東部(7)、中央部(6)、西部(5)、南西諸島(2))に年間総沈着量の中央値を図5.3.2に示す。NO_xの乾性沈着量についても酸化態窒素成分に合わせて示した。

総沈着量は、いずれの成分についても日本海側で多くなった。これは、日本海側の湿性沈着量が他の地域区分に比べ多いためと考えられる。また、非海塩由来酸化態硫黄では西部において湿性沈着量とSO₂(g)の乾性沈着量が多くなり、総沈着量が多くなった。北部ではいずれの成分の総沈着量も他の地域区分に比べ少なかった。

中央値から算出した総沈着量に乾性沈着量が占める割合は、いずれの成分についても中央と南西諸島で大きく、日本海側で小さかった。

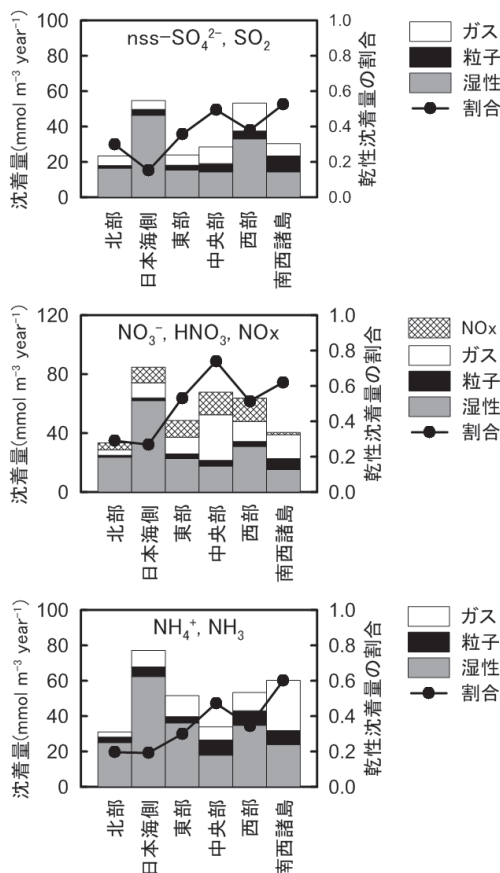


図5.3.2 各地域区分別の年沈着量(2013年度中央値)

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), 中央値より求めた。

大陸の影響を検討するために非海塩由来酸化態硫黄の総沈着量と経度を比較した(図5.3.3)。大陸に近い西部の地点と日本海側の地点で多くなる傾向がみられた。

5.3.5 乾性沈着量の経年変化

FP法による大気濃度測定の実験を継続して実施している地点のうち、札幌北、新潟曾和、加須、豊橋、神戸須磨、太宰府、辺戸岬の7地点について、2003年度からの乾性沈着量の経年推移を比較した(図5.3.4)。

粒子状成分の乾性沈着量は、豊橋、神戸須磨、太宰府、辺戸岬で多く、札幌北、新潟曾和、加須では少ない傾向がみられた。経年変化をみると、nss-SO₄²⁻(p)とNH₄⁺(p)は、豊橋と太宰府で2006~2007年まで増加し、それ以降横ばいまたは減少に転じる傾向がみられた。NO₃⁻(p)は、豊橋、神戸須磨、太宰府、辺戸岬で増加傾向を示した。

ガス成分の乾性沈着量の経年変化は、横ばいまたは減少傾向を示す地点が多かった。

5.3.6 乾性沈着の全無機態窒素沈着量

土壌の酸性化や湖沼の富栄養化への観点から乾性沈着量を含む無機態窒素沈着量について検討を行った。ただし、土壌の酸性化の指標である潜在水素イオン(Heff = H⁺ + 2NH₄⁺)については、大気中のH⁺を測定していないため評価できない。そのため湖沼の富栄養化の指標である全無機態窒素(ΣN = NO₃⁻ + NH₄⁺)についてのみ検討することとした。また、乾性沈着量についてはガス成分のHNO₃(g)とNH₃(g)も湖沼に付加すると

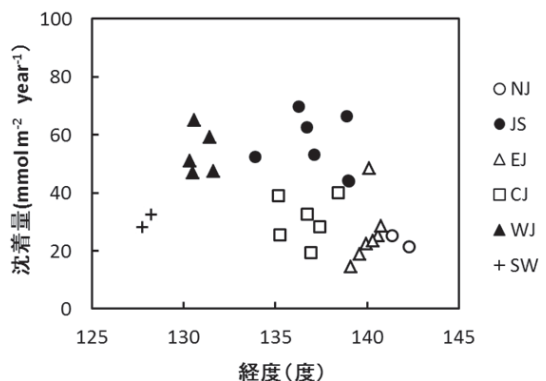


図5.3.3 地域区分別の非海塩由来酸化態硫黄の総沈着量と経度の関係

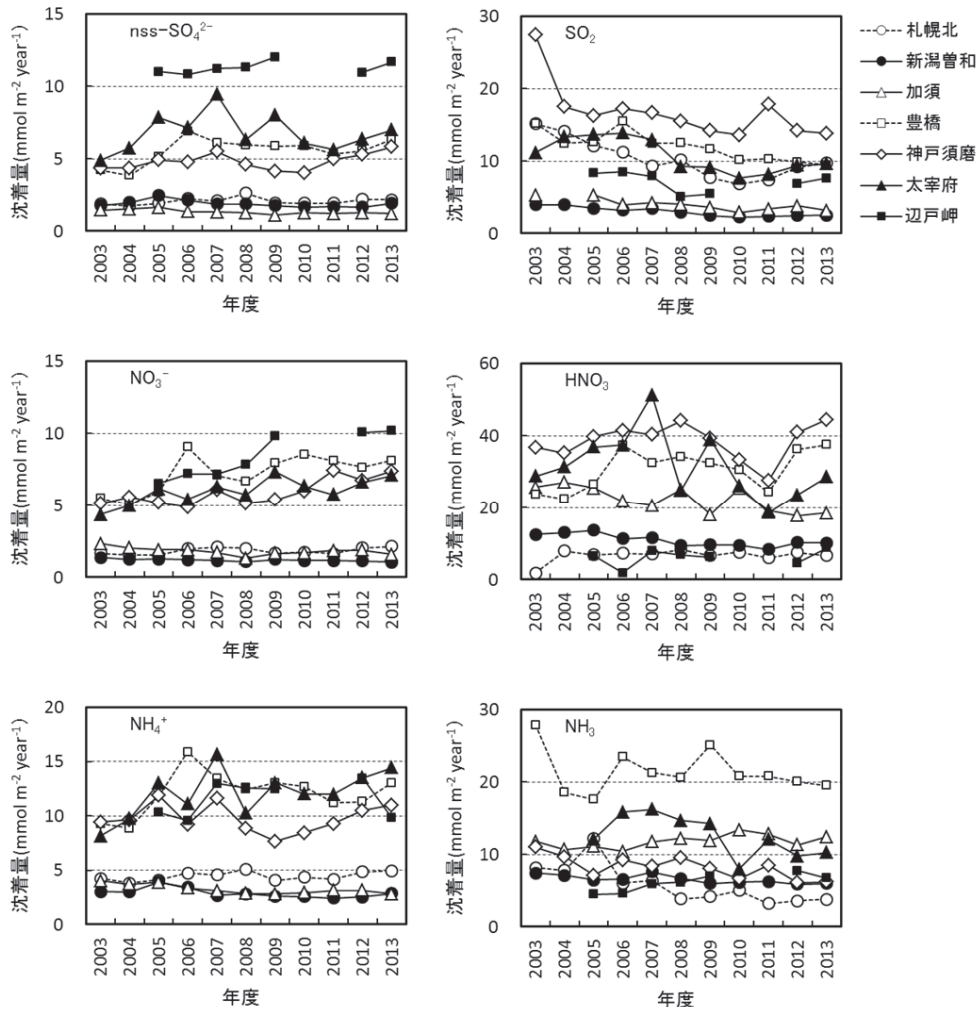


図5.3.4 継続調査地点における乾性沈着量の経年変化(2003～2013年度)

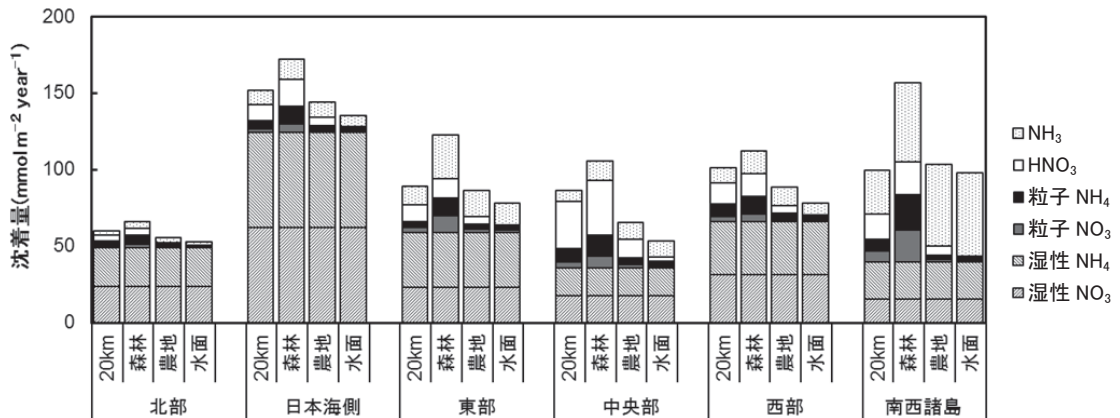


図5.3.5 地域区分別の無機態窒素沈着量(2013年度中央値)

硝酸イオン，アンモニウムイオンとして寄与すると考えられるので，粒子状成分(NO_3^- (p), NH_4^+ (p))とガス状成分(HNO_3 (g), NH_3 (g))を含めた全無機態窒素($\Sigma \text{N}_{(\text{p}+\text{g})}$)を対象とした。

図5.3.5に湿性沈着およびFP法による大気濃度の年平均値が全て有効となった29地点について，湿性沈着量および乾性沈着量の全無機態窒素の地域区別年間中央値を示す。乾性沈着量は5.3.3で示した調査地点周辺約20kmの土地利用割合を用いた推計値(20kmと表示)に加えて，森林，農地，水面100%とした場合の推計値も示す。

湿性沈着量による ΣN は日本海側で多く，中央部と南西諸島で少なかった。乾性沈着量による $\Sigma \text{N}_{(\text{p}+\text{g})}$ は南西諸島で多く，北部で少なくなり，湿性沈着量の ΣN とは異なる地域特性を示した。20km推計の $\Sigma \text{N}_{(\text{p}+\text{g})}$ は，湿性沈着量も含めた全無機態窒素の2～6割を占め，とくに中央部，西

部，南西諸島でその割合が高くなった。また，すべての地域区分で V_d の大きい森林への乾性沈着量が多かった。

—参考文献—

- 1) EANET: Technical Manual on Dry Deposition Flux Estimation in East Asia, <http://www.eanet.asia/product/manual/techacm.pdf>
- 2) 野口泉 松田和秀: 乾性沈着ファイルの開発，北海道環境科学研究センター所報，第30号，p.23-28，2003
- 3) 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
- 4) 財気象業務支援センター: 気象観測月報2013年4月～2015年3月，(CD-ROM)
- 5) 環境省: 長期モニタリング報告書(平成15～19年度)，2009
- 6) 国土交通省国土政策局国土情報課: 国土数値情報ダウンロードサービス，<http://nlftp.mlit.go.jp/ksj/index.html>

6. 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 NO_2 、 NO_x 、 O_3 と、FP法と共通で測定できる NH_3 濃度の測定を行っている。

窒素酸化物(NO 、 NO_2)では、排出量の少ない山間部や遠隔地では常時監視局がきわめて少ないが、パッシブサンプラーにより濃度情報が得られ

る。パッシブサンプラーは誤差や月平均濃度であるなどの課題はあるが、全窒素沈着量に対する NO 、 NO_2 の寄与率を評価することは可能と考えられる。

O_3 は近年越境大気汚染の影響により、国内の大都市地域以外の郊外や遠隔地でも高濃度が観測されている。このことから、パッシブサンプラーにより常時監視局の少ない郊外や遠隔地における O_3 濃度を把握することを目的としている。

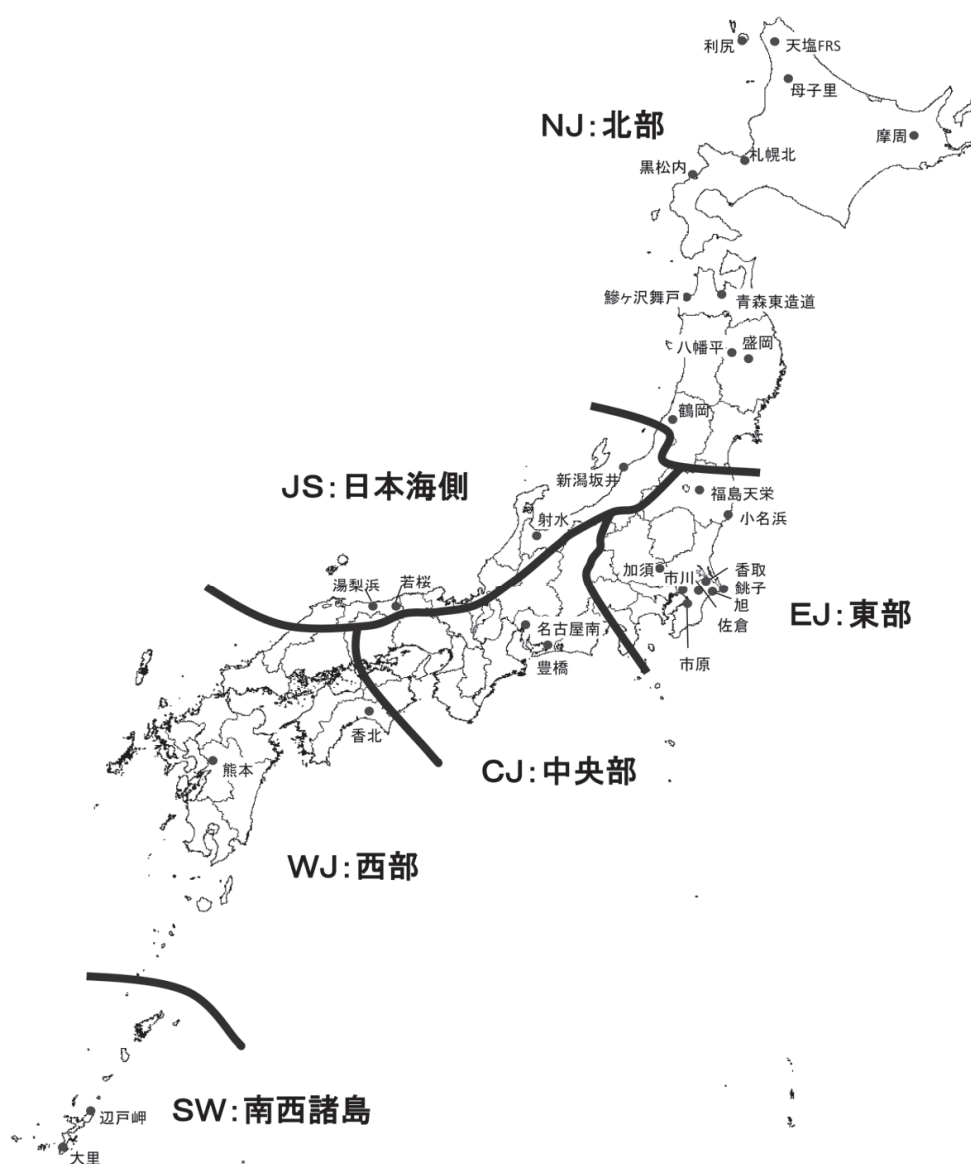


図 6.1.1 パッシブサンプラー測定地点および地域区分

NH_3 については、FP法では $\text{NH}_3(\text{g})$ とアンモニウム塩粒子($\text{NH}_4^+(\text{p})$)を分離して測定している。しかし、アーティファクトにより $\text{NH}_4^+(\text{p})$ の一部が $\text{NH}_3(\text{g})$ に変換されるため、とくに気温の高い夏期のガス/粒子の比率はアーティファクトの影響を強く受けている¹⁾。一方パッシブサンプラーは原理的には $\text{NH}_3(\text{g})$ のみを測定できるため、パッシブサンプラーとFPの結果と併せることで、より正確なガス/粒子濃度を測定できる可能性がある。

測定値について、いずれの項目も定量下限値としてEANETにおける定量下限値(0.1ppb)を用いた。データの有効判定はFP法と同様に、期間適合度60%以上を有効とした。測定方法については4次調査と同様とした²⁾。

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。2013年度は16機関30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、年平均濃度と周辺排出量の相関を図6.1.2に、地域別季節変動を図6.1.3に示す。また2013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/月ごとの予定された期間」、年の完全度は「年の観測期間/年の予定された期間」として計算している。全地点の年平均濃度を表6.1.2に示す。

6.2.1 NO_2

最高年平均濃度は札幌北(13.9ppb)、最低年平均濃度は摩周(0.2ppb)となった。これまでの調査でも札幌市内の地点が年平均濃度がもっとも高い結果であり地域排出の影響が窺える(表6.1.2)。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(6~9月)に低い傾向である(図6.1.3)。JSがもっとも高いが、これは測

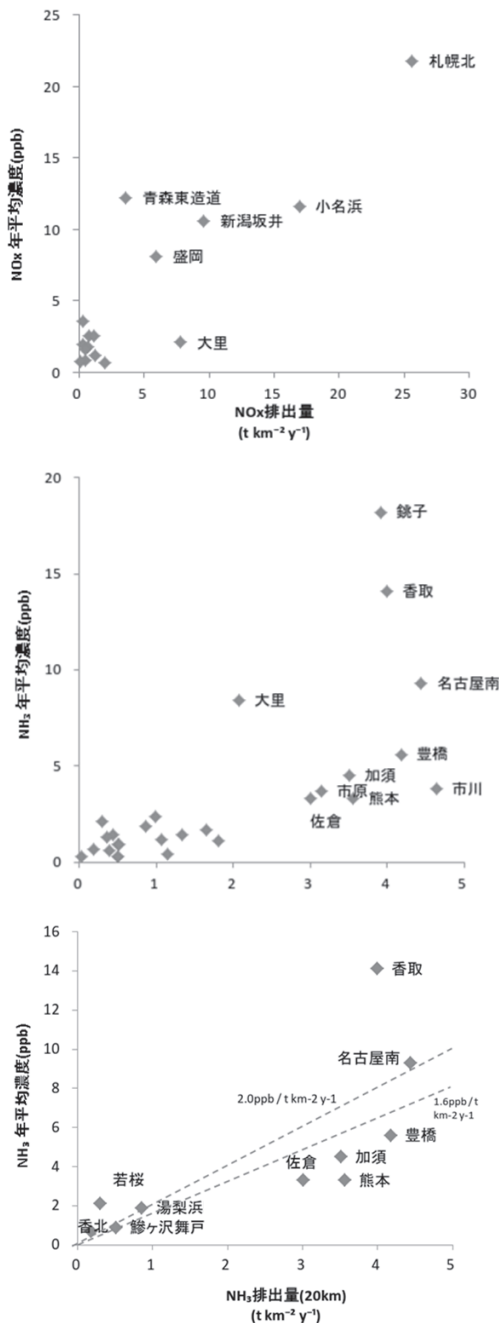


図6.1.2 年平均 NO_x 濃度(上)および NH_3 (中、旭以外)、 NH_3 の周辺排出量が一様な地点(下)の年平均濃度と排出量の散布図

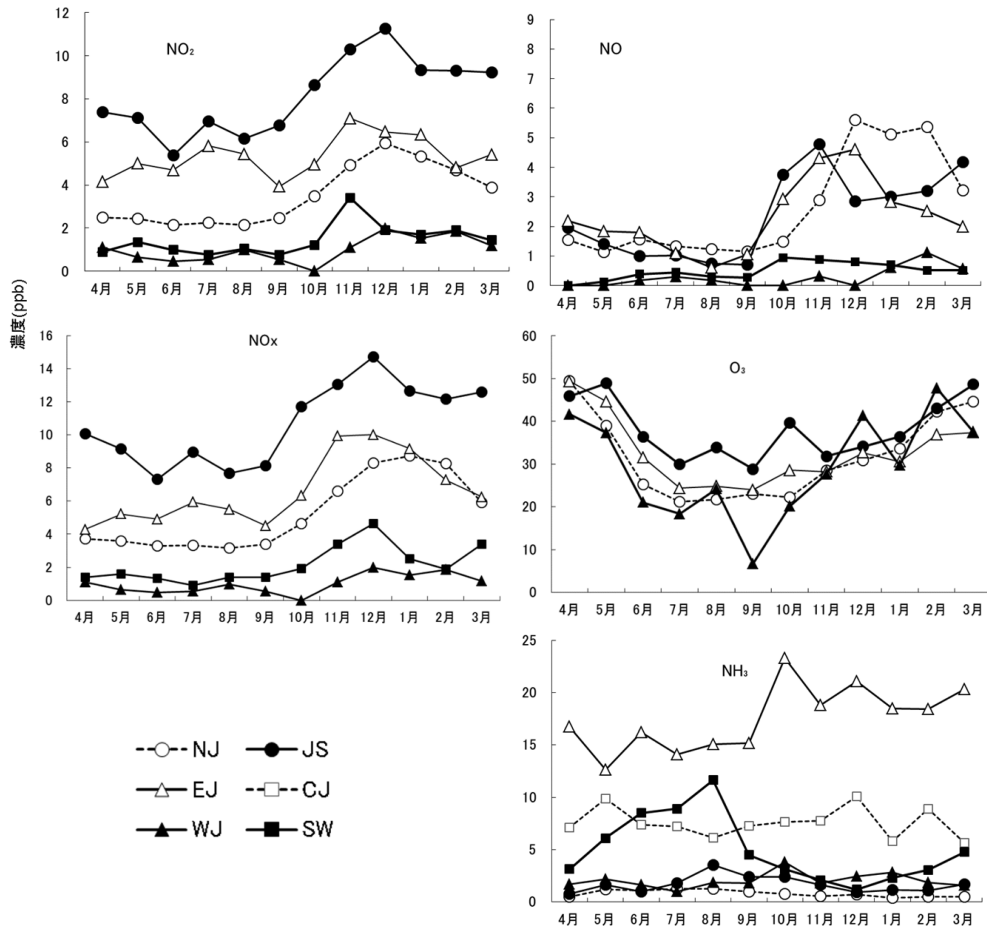


図 6.1.3 地域別季節変動

表 6.1.1 データ概況(平成25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	16	3	192	182	95%	7	2	0	16	16	100%	0	0
NO	16	3	189	179	95%	7	32	0	16	16	100%	0	0
NO _x	16	1	191	183	96%	7	3	0	16	16	100%	0	0
O ₃	17	1	204	195	96%	8	0	0	17	17	100%	0	0
NH ₃	28	1	336	329	98%	6	8	0	28	28	100%	0	0

(* : < DL 値は ND の数を示す)

表 6.1.2 ガス状物質の地点別年平均濃度 (ppb)

地域区分	自治体	地点	NO ₂	NO	NO _x	O ₃	PO	NH ₃	FP による NH ₃ (ppb)
NJ	北海道	利尻	0.5	0.4	0.9	37	38	0.3	0.4
NJ	北海道	天塩 FRS	0.3	0.5	0.8	29	30	0.3	
NJ	北海道	母子里	1.3	1.3	2.6	29	30	0.9	0.4
NJ	北海道	黒松内	2.1	1.5	3.6	27	29		
NJ	北海道	札幌北	13.9	7.9	21.8	26	38	1.2	1.1
NJ	北海道	摩周	0.2	1.7	2.0	44	44		
NJ	青森県	青森東造道	9.1	3.0	12.2	30	38	1.4	
NJ	青森県	鯉ヶ沢舞戸	1.7	0.9	2.6	35	36	0.9	
NJ	岩手県	盛岡	6.7	1.4	8.1	29	35	1.4	
NJ	岩手県	八幡平	0.5	0.1	0.7	43	44	0.4	
NJ	山形県	鶴岡	0.9	1.0	1.8	26	26	0.6	
EJ	福島県	福島天栄	0.9	0.3	1.2	40	41	0.3	
EJ	いわき市	小名浜	9.6	2.1	11.6	27	35	2.4	
JS	新潟市	新潟坂井	8.1	2.5	10.6	36	43	1.7	
EJ	埼玉県	加須						4.5	4.4
EJ	千葉県	市原						3.7	3.5
EJ	千葉県	銚子						18.2	
EJ	千葉県	旭						107.2	92.0
EJ	千葉県	佐倉						3.3	3.2
EJ	千葉県	市川						3.8	4.1
EJ	千葉県	香取						14.1	18.1
JS	富山県	射水						1.1	1.8
CJ	愛知県	豊橋						5.6	4.0
CJ	名古屋市	名古屋南						9.3	2.5
JS	鳥取県	若桜				42		2.1	
JS	鳥取県	湯梨浜				39		1.9	(1.1)
WJ	高知県	香北	1.4	0.2	1.6	29	31	0.7	(0.8)
WJ	熊本市	熊本						3.3	
SW	沖縄県	辺戸岬						1.3	1.1
SW	沖縄県	大里	1.4	0.7	2.1			8.4	14.6

* 全国最低値は網掛け、全国最高値は白抜きで示した。

** 括弧付き数値は参考値である。

定地点が都市部の新潟坂井のみのためであり、一方 NJ では遠隔地、田園地域と都市域が混在しているため、地域平均では低くなる。他の地域でも秋-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等が要因であり、都市域から離れた八幡平においても冬季には濃度が高い傾向にあるため、人為排出の影響が及んでいると考えられる。一方もっとも遠隔地と考えられる利尻では一定の傾向は見られず、人為影響が少なく、国内のバックグラウンド濃度を反映していると考えられる。

6.2.2 NO

最高年平均濃度は札幌北 (7.9ppb)、最低年平均濃度は八幡平 (0.1ppb) だった (表 6.1.2)。NO₂ と同様に全体的には冬季に高い傾向にある。とくに都市部の測定地点の割合が高い NJ, JS, EJ で冬季に高く、気象条件に加えて人為的排出の影響が示唆される (図 6.1.3)。

6.2.3 NO_x

最高年平均濃度は札幌北 (21.8ppb)、最低年平

表 6.2.1 NH₃ 周辺排出量が一様とした地点の周辺排出量 (t・km⁻²・y⁻¹)

半径	3km	5km	10km	20km
鯉ヶ沢舞戸	0.63	0.53	0.57	0.51
加須	2.73	3.28	3.73	3.51
佐倉	2.09	1.89	2.25	3.01
香取	2.53	3.18	3.61	4.00
豊橋	7.83	8.29	6.81	4.18
名古屋南	5.83	5.08	4.57	4.44
若桜	0.18	0.16	0.24	0.30
湯梨浜	1.07	0.90	0.79	0.86
香北	0.18	0.14	0.12	0.18
熊本	5.78	4.61	3.50	3.56

均濃度は八幡平 (0.7ppb) であり、昨年度とほぼ同様の結果である (表 6.1.2)。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る (図 6.1.3)。濃度と周辺排出量の散布図を示した図 6.1.2 (上) では、とくに周辺排出量の高い札幌では濃度も高い結果となった。周辺排出量がおおむね 10 t km⁻² y⁻¹ 以下の地点では、郡山朝日、青森東造道など札幌と比較して周辺排出量は低いが濃度の高い地点がある

など、地形や気象要素の影響が考えられる。

一方、 NO_2 では最も濃度の低かった摩周では、 NO 、 NO_x とも1～5 ppbとやや高くなっている。これは測定地点付近の駐車場からの車両排気ガスの影響と考えられる。

6.2.4 O_3

最低年平均濃度は札幌北および鶴岡(26ppb)だったが(表6.1.2)、小数点を考慮すると鶴岡がもっとも低くなる。一方、例年のもっとも標高の高い八幡平が最高年平均濃度であったが、今年度は摩周(44ppb)であった。これは夏に摩周のオゾン濃度が高いためである。このことから、未測定地点の O_3 濃度を推定するためには標高のみではなく各季節の O_3 濃度の変化が地域によって異なることを考慮する必要がある。

全体的な傾向は例年どおり冬～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(図6.1.3)。一般に本州の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。

PO(ポテンシャルオゾン)濃度は次式により算出した。

$$\text{PO} = \text{O}_3 + \text{NO}_2 - 0.1\text{NO}_x$$

NO_2 : 二酸化窒素濃度

NO_x : 窒素酸化物濃度

遠隔地や田園地域では O_3 との違いは小さいが、札幌市内など都市域では大幅に大きくなり、都市部では窒素酸化物による O_3 消費が大きいことが示唆される。

6.2.5 NH_3

最低年平均濃度は利尻、天塩FRS、福島天栄(0.3ppb)だった。年平均濃度は、千葉県の旭(107.2ppb)が突出して高い(表6.1.2)。千葉県を除いた地点では年平均濃度は名古屋南がもっとも

高い(9.3ppb)。地点ごとの年平均濃度と周辺排出量の関係を図6.1.2(中)に示す。なお、旭は濃度が突出して高いため省いてある。おおむね排出量が3～5 $\text{t km}^{-2} \text{y}^{-1}$ の豊橋、市川までは周辺排出量と年平均濃度に比例した関係が見られるが、千葉県内の地点や大里など、いくつかの地点で、その関係より大きく年平均濃度の高い地点が見られる。これらの地点は測定地点近傍の畜産業などの排出源の影響を強く受けていると考えられる。

今回このような近傍に大きな排出源がない地点、すなわち「周辺排出量が一様である地点」について考察した。「周辺排出量が一様」とは、半径3 kmでの周辺排出量を1とした場合に半径5 km, 10 km, 20 kmでの各周辺排出量の比率が0.5～2.0以内とした。この基準により選択された測定地点は表6.2.1に示す10地点である。また、この10地点のみの散布図を図6.1.2(下)に示す。大里、銚子など排出量と比較して濃度の高い2地点が省かれた。この結果から、定性的ではあるが周辺排出量が一様であれば、かつ周辺排出量が2 $\text{t km}^{-2} \text{y}^{-1}$ 以上ならば、おおむね排出量1 $\text{t km}^{-2} \text{y}^{-1}$ に対して1.0～2.0 ppbの濃度となる関係が見られた。

地域別季節変動では、EJは千葉の影響が大きく濃度が高い(図6.1.3)が明確な季節変動は認められない。一方、SWではとくに冬季に濃度が低くなる傾向にあった。気温の低下に加え、風向などの影響が考えられる。

—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) 全国環境研協議会 酸性雨広域大気汚染調査研究部会、全国環境研会誌、36(3)、193-223、2009
- 3) 全国環境研協議会 酸性雨広域大気汚染調査研究部会、全国環境研会誌、38(3)、2-44、2013

7. ま と め

2013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

南西諸島を除く5地域において春季の降水量が例年よりも少なかったことから、各成分において春季が高濃度となる傾向が見られた。とくに日本海側および西部では、冬季および春季に nss-SO_4^{2-} および H^+ 濃度が高い傾向を示しており、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、2013年度まで引続き同様の傾向にあった。 nss-SO_4^{2-} 、 NO_3^- および H^+ 沈着量は日本海側、次いで西部で多い傾向を示した。季節変動は H^+ 、 NO_3^- および nss-SO_4^{2-} 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、全国的には4月および3月に多い傾向があった。

7.2 FP法によるガスおよびエアロゾル濃度

全国35地点でFP法による乾性沈着調査を実施

した。年平均値は、昨年度とほぼ同じ濃度レベルであった。また、経月変化にも地域性が反映されており、地域によって異なる発生源の影響を受けていると考えられた。

7.3 乾性沈着量

全国35地点のFP法の測定結果から、乾性沈着推計ファイル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。年沈着量の平均(乾性沈着35地点/湿性+乾性沈着29地点)は、非海塩由来酸化態硫黄成分が $12.5/39.3\text{mmol m}^{-2}\text{y}^{-1}$ 、酸化態窒素成分 $17.1/51.6\text{mmol m}^{-2}\text{y}^{-1}$ 、還元態窒素成分が $34.5/78.0\text{mmol m}^{-2}\text{y}^{-1}$ 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。おおむね例年どおりの結果が得られた。 NH_3 については、周辺排出量が一様な地点を抽出し、濃度と排出量に $1.6\sim 2.0\text{ppb/t km}^{-2}\text{y}^{-1}$ 程度の関係が見出された。

<訂正とお詫び>

第5次酸性雨全国調査報告書(平成24年度)(全国環境研会誌 Vol. 39 No. 3 2014)に掲載の『5.3 乾性沈着量の推計』中、図5.3.1の NH_4^+ 、 NH_3 のグラフ左上部の○で囲った部分、省略波線上部の縦軸数値が200、250となっていたのは、400、450、500の誤りでした。ここにお詫び申し上げますとともに、訂正内容を記載致します。

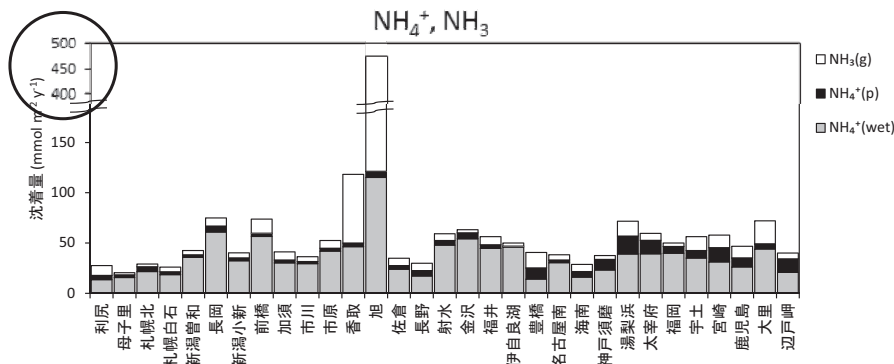


図 5.3.1 年間総沈着量(NH_4^+ 、 NH_3)のグラフ