

〈特 集〉

第6次酸性雨全国調査報告書（平成28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

岩崎綾, 久恒邦裕, 堀江洋佑, 西山亨, 宮野高光, 北岡宏道, 木戸瑞佳, 濱村研吾, 三田村徳子, 山口高志, 横山新紀, 佐藤由美, 松本利恵, 山添良太, 家合浩明, 仲井哲也, 宇野克之, 紺田明宏

はじめに

全国環境研協議会による酸性雨全国調査は1991年度からの第1次調査に始まり、現在2016年度からの第6次調査を実施しています。

当報告書では、第6次調査の初年度である2016年度の調査結果を報告します。

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む気塊が中国や朝鮮半島を通過していたこと、カルシウムイオンを多く含む気塊は、モンゴルや中国北東部を起源とする場合が多かったことなどを明らかにし、酸性物質の移流の可能性が示唆されました。

第3次調査（1999～2001年度）では、湿性沈着（降水時間開放型捕集装置法）に加えて、乾性沈着を把握するために、4段ろ紙法（フィルターパック法）によるガス・エアロゾル調査を実施しました。この結果、都市部における酸性雨の状況、硫酸化合物や窒素化合物の地域特性、さらに大気中のガス成分、粒子状成分について全国的な濃度分布とその季節変化を明らかにするとともに、乾性沈着量の推定を行いました。

第4次調査（2003～2008年度）では、乾性沈着量の空間分布について、より正確に把握するために、フィルターパック法では測定できない窒素化合物やオゾン濃度等が測定可能であるパ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。

第5次調査（2009～2015年度）では、これまでの湿性及び乾性沈着の調査に加えて、窒素成分のより高度な沈着量とバックグラウンドオゾン濃度の把握などを含めた調査を行いました。乾性沈着調査のパッシブ法については小川式（0式）に統一することにより、広域の解析・とり

まとめと、アンモニア・アンモニウムイオンの成分ごとの評価を実施しました。

今回の調査では、フィルターパック法による乾性沈着調査において、従来の4段ろ紙法から5段もしくは6段ろ紙法への移行を推奨し、さらに高精度かつ広域的な全国調査を実施しています。調査結果の解析では広域大気汚染についても検討を行っており、今後も継続したデータ収集および解析により、東アジア酸性雨モニタリングネットワークの充実に貢献したいと考えています。

このように、本部会の取組は、日本における酸性雨調査を全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・貢献が極めて大きいことを示していると思われます。われわれ地方環境研究機関が中心となって独自の調査研究を行っていくことは、環境行政の推進に必要な不可欠であり、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、行財政状況の大変厳しい中、本部会の活動にご参加いただきました全国環境研協議会会員機関と調査担当の皆様、本調査の企画・解析等にご尽力されました各委員、有益なご助言・ご指導をいただきました有識者の皆様、本調査に対し多大なご協力・ご支援をいただきました環境省、国立環境研究所、（一財）日本環境衛生センター／アジア大気汚染研究センター、ならびに、その他の多くの皆様に、この場をお借りしまして、深くお礼を申し上げます。今後も引き続き、当部会の活動に皆様のご支援・ご協力を賜りますようお願い申し上げます。

平成30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 四宮 博人

（愛媛県立衛生環境研究所 所長）

### 1. 調査目的

全国環境研協議会（以下、全環研）は、表1.1.1に示すように1991年度から酸性雨全国調査を行ってきた。その結果、全国の湿性および乾性沈着について、地域特性、季節変化、火山・大陸の発生源の影響、乾性沈着速度評価などの多くの知見を得てきた。第1次から第3次調査までは3年の調査の後、1年間の準備期間を経て次の調査を行ってきた。第4次調査は2003～2005年度の予定で開始したが、急速に増大し始めた中国のSO<sub>2</sub>およびNO<sub>x</sub>排出量の影響などが懸念されたことから、追加調査として3年、計6年間の調査を2008年度まで実施した。その後は準備期間をおかずに第5次調査を2009年度から実施し、これまでの調査に加え、窒素成分のより高度な沈着量の把握やバックグラウンドオゾン濃度の把握などを行った。調査の目的が果たされたことから2015年度で第5次調査を終了し、第6次調査を2016年度から開始した。

第6次調査は、日本全域における大気汚染物質濃度およびその沈着量の把握を目的として湿性沈着および乾性沈着のモニタリングを実施している。湿性沈着に関しては、国際標準の方法である降水時開放型捕集装置（ウェットオンリーサンプラー）による湿性沈着の把握を、乾性沈着に関しては、大気中のガス/エアロゾル濃度の測定により沈着量の見積りを行う。なお、乾性沈着調査は(i)ガス/エアロゾル濃度の測定を行うフィルターバック法（以下、FP法）、(ii)ガス濃度の測定を行うパッシブ法、(iii)自動測定機による測定の3つの手法を併用して行う。第6次調査の特徴としては、①第5次調査から準備年をおかずに継続して実施していること、②窒素沈着の実態把握をテーマの一つとしたこと、③FP法において粗大粒子と微小粒子（PM<sub>2.5</sub>）とを分けた採取を推奨していることである。②については、反応性窒素成分である湿性のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>およびNH<sub>4</sub><sup>+</sup>、乾性の粒子状NO<sub>3</sub><sup>-</sup>およびNH<sub>4</sub><sup>+</sup>、ガス状のHNO<sub>3</sub>（測定さ

表1.1.1 全国環境研協議会・酸性雨調査研究部会による酸性雨全国調査の主な調査内容

調査対象	第1次酸性雨全国調査		第2次酸性雨全国調査		第3次酸性雨全国調査		第4次酸性雨全国調査		
	降水成分		降水成分		湿性沈着	乾性沈着	湿性沈着	乾性沈着	
調査地点数	1991年度:158地点 1992年度:140地点 1993年度:140地点		1995年度:52地点 1996年度:58地点 1997年度:53地点		1999年度:47地点 2000年度:48地点 2001年度:52地点	1999年度:25地点 2000年度:27地点 2001年度:29地点	2003年度:61地点 2004年度:61地点 2005年度:62地点 2006年度:57地点 2007年度:61地点 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
調査手法	ろ過式採取法(バルク採取)による原則1週間単位の試料採取		バケツ(バルク採取)による1日単位の試料採取		降水時開放型捕集装置(ウェットオンリー採取)による原則1週間単位の試料採取	フィルターバック法による原則1-2週間単位の試料採取	降水時開放型捕集装置(ウェットオンリー採取)による原則1週間単位の試料採取	フィルターバ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	
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		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( <a href="http://www-cger.nies.go.jp/acid/acid0.htm">http://www-cger.nies.go.jp/acid/acid0.htm</a> )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( <a href="http://www-cger.nies.go.jp/acid2/acid2-0.htm">http://www-cger.nies.go.jp/acid2/acid2-0.htm</a> )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( <a href="http://www-cger.nies.go.jp/acid3/acid3-index.html">http://www-cger.nies.go.jp/acid3/acid3-index.html</a> )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( <a href="http://db.cger.nies.go.jp/dataset/acidrain/ja/04/index.html">http://db.cger.nies.go.jp/dataset/acidrain/ja/04/index.html</a> )に掲載		
報告書の公表	全国公害研究会誌 VOL.19, NO.2, (平成4年度酸性雨全国調査結果報告書) 全国公害研究会誌 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))		全国公害研究会誌 VOL.21, NO.4, (第2次酸性雨全国調査報告書(平成7年度)) 全国公害研究会誌 VOL.22, NO.4, (第2次酸性雨全国調査報告書(平成8年度)) 全国公害研究会誌 VOL.23, NO.4, (第2次酸性雨全国調査報告書(平成9年度))		全国環境研究会誌 VOL.26, NO.2, (第3次酸性雨全国調査報告書(平成11年度)) 全国環境研究会誌 VOL.27, NO.2, (第3次酸性雨全国調査報告書(平成12年度)) 全国環境研究会誌 VOL.28, NO.3, (第3次酸性雨全国調査報告書(平成11～13年度))		全国環境研究会誌 VOL.30, NO.2, (第4次酸性雨全国調査報告書(平成15年度)) 全国環境研究会誌 VOL.31, NO.3, 4, (第4次酸性雨全国調査報告書(平成16年度)) 全国環境研究会誌 VOL.32, NO.3, 4, (第4次酸性雨全国調査報告書(平成17年度)) 全国環境研究会誌 VOL.33, NO.3, 4, (第4次酸性雨全国調査報告書(平成18年度)) 全国環境研究会誌 VOL.34, NO.3, 4, (第4次酸性雨全国調査報告書(平成19年度)) 全国環境研究会誌 VOL.35, NO.3, 4, (第4次酸性雨全国調査報告書(平成20年度))		
	第5次酸性雨全国調査				第6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	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 2014年度:65地点 2015年度:68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 2014年度:34地点 2015年度:31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 2014年度:28地点 2015年度:26地点	2016年度:64地点	2016年度:30地点		2016年度:22地点
調査手法	降水時開放型捕集装置(ウェットオンリー採取)による原則1週間単位の試料採取		フィルターバック法によるガスおよび粒子状成分調査,原則1-2週間単位の試料採取		パッシブサンプラー(O式)によるガス成分調査,月単位の試料採取	降水時開放型捕集装置(ウェットオンリー採取)による原則1週間単位の試料採取	フィルターバ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								
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( <a href="http://db.cger.nies.go.jp/dataset/acidrain/ja/04/index.html">http://db.cger.nies.go.jp/dataset/acidrain/ja/04/index.html</a> )に掲載								
報告書の公表	全国環境研究会誌 VOL.36, NO.3, (第5次酸性雨全国調査報告書(平成21年度)) 全国環境研究会誌 VOL.37, NO.3, (第5次酸性雨全国調査報告書(平成22年度)) 全国環境研究会誌 VOL.38, NO.3, (第5次酸性雨全国調査報告書(平成23年度)) 全国環境研究会誌 VOL.39, NO.3, (第5次酸性雨全国調査報告書(平成24年度)) 全国環境研究会誌 VOL.40, NO.3, (第5次酸性雨全国調査報告書(平成25年度)) 全国環境研究会誌 VOL.41, NO.3, (第5次酸性雨全国調査報告書(平成26年度)) 全国環境研究会誌 VOL.42, NO.3, (第5次酸性雨全国調査報告書(平成27年度))								

れている場合はHONOも含む）、NO<sub>2</sub>、NOおよびNH<sub>3</sub>を対象に窒素沈着量を評価することを目標としている。③については、従来の4段ろ紙法の構成に加え、前段にインパクト（I0ろ紙）を装備した5段構成により行う。この利点として、(i)粒径別の成分の挙動を把握するとともに、乾性沈着量推計において粒径の影響を考慮することができる、

(ii)PM<sub>2.5</sub>成分データを得ることにより、PM<sub>2.5</sub>対策へ貢献することが可能となる、という点が挙げられる。

なお、第1～5次調査結果(2015年度まで)は国立環境研究所地球環境研究センターにおける地球環境データベース(<http://db.cger.nies.go.jp/dataset/acidrain/ja/index.html>)にて公開されている。

2. 調査内容

2.1 調査概要

2016年度の調査参加機関は表2.1.1に示す47機関であり、湿性沈着調査地点は64地点、乾性沈着調査地点は39地点(FP法:30地点,パッシブ法:22地点,自動測定機:19地点)であった。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

点で実施した。一部には他の学術機関との共同研究<sup>1) 2)</sup>や国設局との共用データも含まれる。なお、環境省のデータとは降水量の算出方法(気象データを用いる場合と貯水量を用いる場合)などデータの算出方法が一部異なるため、数値が一致しない場合がある。

2016年度の調査期間は原則として2016年4月4日~2017年4月3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。

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(km <sup>2</sup> y <sup>-1</sup> )			地域区分 <sup>(注1)</sup>	緯度(度)	経度(度)	湿性 <sup>(注2)</sup>	乾性 <sup>(注2)(注3)</sup>			標高(m)	海岸からの距離(0m)	サンプリング設置位置地上高	土地利用など
				SO <sub>2</sub>	NO <sub>x</sub>	NH <sub>3</sub>					FP	O式	自動				
北海道		利尻	北海道立総合研究機構 環境科学研究センター	1.27	0.51	0.02	NJ	45.12	141.21	☆	☆	○	☆	40	0.8	地上高3m,FPのみ4m	未指定(草、笹)
		天塩FRS	北海道立総合研究機構 環境科学研究センター	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 環境科学研究センター	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 環境科学研究センター	5.18	26.61	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 環境科学研究センター	0.03	0.30	1.00	NJ	43.56	144.51	○	▲	○	○	550	30	地上高1.5m	未指定(森林)
		里枝内	北海道立総合研究機構 環境科学研究センター	0.03	0.33	0.36	NJ	42.65	140.31	○	▲	○	○	87	13	地上高5m	未指定(森林)
		青森県 青森東遼道	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)
		青森県 藤ヶ沢舞戸	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
		岩手県 盛岡	岩手県環境保健センター	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
		宮城県 涌谷	宮城県環境保健センター	1.83	5.75	2.45	NJ	38.55	141.18	○	○	○	○	165	19	地上高3m	未指定(草、笹)
北海道・東北		秋田県 秋田千代	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 鶴岡	山形県環境科学研究センター	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 福島天栄	福島県環境創造センター	0.61	1.22	0.50	EJ	37.25	140.04	○	○	○	○	941	84	地上高1.2m	田園
		三春 <sup>(注4)</sup>	福島県環境創造センター	1.31	6.42	1.48	EJ	37.43	140.52	○	○	○	○	423	46	地上高10m	工業地域
		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	Wet:5m,O式:1.5m	第一種住居地域
		新潟県 新潟曾和	新潟県保健環境科学研究センター	2.60	9.49	1.28	JS	37.85	138.94	○	○	○	▲	2	3.1	Wet:2.5m,FP:2.1m	市街化調整区域
		長岡	新潟県保健環境科学研究センター	1.87	4.94	0.62	JS	37.45	138.87	○	○	○	○	27	19	地上高5m	住居地域
		新潟県 新潟大山	新潟市衛生環境研究所	2.75	12.68	1.74	JS	37.94	139.08	○	○	○	○	10	1.2	地上高4m	住宅地域
		新潟県 新潟小新	新潟市衛生環境研究所	2.64	9.73	1.66	JS	37.87	138.99	○	○	○	○	0	1.7	地上高15m	住宅地域
		栃木県 日光 <sup>(注5)</sup>	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
関東・甲信・静		宇都宮 <sup>(注6)</sup>	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 <sup>(注7)</sup>	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	農業地域
		さいたま	さいたま市健康科学研究センター	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	○	○	○	○	102	110	地上高20m	市街化調整区域
		千葉県 市川	千葉県環境研究センター	8.63	59.68	4.64	EJ	35.72	139.93	○	○	○	○	5	6.1	地上高20m	住居地域
		千葉県 市原	千葉県環境研究センター	13.96	44.28	3.14	EJ	35.53	140.07	○	○	○	▲	5	1.2	Wet:5m,FP:O式:10m	工業地域
		千葉県 鎌子	千葉県環境研究センター	10.17	8.98	3.92	EJ	35.74	140.74	○	○	○	○	50	4.5	地上高5m	農業地域
		千葉県 一宮	千葉県環境研究センター	0.23	1.97	0.97	EJ	35.35	140.38	○	○	○	○	5	1	地上高3m	農業地域
近畿・東海・北陸		旭	千葉県環境研究センター	7.68	8.66	4.12	EJ	35.73	140.72	○	○	○	▲	58	4.7	地上高0m	農業地域
		佐倉	千葉県環境研究センター	2.96	26.96	3.01	EJ	35.73	140.21	○	○	○	▲	25	19	地上高3m	住居地域
		清澄	千葉県環境研究センター	0.16	1.14	0.92	EJ	35.16	140.16	○	○	○	○	360	4.5	地上高0m	未指定(森林)
		勝浦	千葉県環境研究センター	0.16	1.06	0.66	EJ	35.18	140.27	○	○	○	○	97	4.4	Wet:5m,FP:3m	農業地域
		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	住宅地域(市街地)
		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
		神奈川県 川崎 <sup>(注8)</sup>	川崎市環境総合研究所	16.98	74.45	3.11	EJ	35.54	139.75	○	○	○	○	4	3.2	地上高20m	準工業用地
		長野県 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
		静岡県 静岡小黒	静岡市環境保健研究所	3.29	10.23	1.42	CJ	34.97	138.40	○	○	○	○	14	3.6	地上高8m	住宅地
		静岡県 静岡北安東	静岡県環境衛生科学研究センター	3.15	9.89	1.80	CJ	35.00	138.39	○	○	○	○	10	7.1	Wet:9.3m,FP:20m	住宅地域(市街地)
九州・沖縄		富山県 射水 <sup>(注9)</sup>	富山県環境センター	6.11	15.55	1.80	JS	36.70	137.10	○	○	○	▲	22	8	Wet:9m,FP:O式:12.5m	住宅専用地域
		石川県 金沢	石川県保健環境センター	2.74	6.93	1.12	JS	36.53	136.71	○	○	○	○	120	14	地上高14m	第2種住居専用地域
		福井県 福井	福井県衛生環境研究センター	2.41	7.77	0.80	JS	36.07	136.26	○	○	○	○	11	18	地上高9m	市街化調整区域
		岐阜県 伊自良崎	岐阜県保健環境研究所	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
		三重県 四日市桜	三重県保健環境研究所	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	琵琶湖環境科学研究センター	3.92	17.74	1.34	CJ	35.03	135.87	○	○	○	○	87	53	地上高28m	住宅地
		兵庫県 神戸須磨	(公)ゆここ環境創造協会 兵庫県環境研究センター	10.20	30.41	1.05	CJ	34.65	135.13	○	○	○	○	15	0.9	Wet:29m,FP:17m	準工業地域
		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	134.49	○	○	○	▲	800	28.4	地上高2.5m	未指定
		湯梨浜	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	未指定
		島根県 松江	島根県保健環境科学研究センター	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	広島市衛生研究所	3.35	12.32	1.04	WJ	34.46	132.41	○	○	○	○	73	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	住居地域
		徳島県 徳島	徳島県立保健製薬環境センター	2.04	8.03	1.76	CJ	34.07	134.56	○	○	○	○	2	3	地上高18m	住居地域
		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	○	○	○	○	30	15	Wet:16.4m,FP:5.1m	市街化調整区域
		福岡県 福岡	福岡市保健環境研究所	2.43	14.89	1.38	WJ	33.50	130.31	○	○	○	○	193	9.2	地上高1m	市街化調整区域
		佐賀県 佐賀	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 諫早	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		長崎県 長崎	長崎県環境保健研究所	1.17	4.99	0.62	WJ	32.76	129.86	◇	◇	◇	◇	4	1.3	地上高2.6m	商業地域
		佐世保	長崎県環境保健研究所	4.30	8.39	1.37	WJ	33.18	129.72	◆	◆	◆	◆	38	1.3	地上高38m	住居地域(市街地)
		阿蘇	熊本県保健環境研究所	0.30	1.33	1.72	WJ	32.97	131.05	○	○	○	○	481	46	地上高3m	未指定
		宇土	熊本県保健環境科学研究センター	2.07	8.38	1.47	WJ	32.67	130.65	○	○	○	○	20	2.7	地上高1m	未指定
		画図町 <sup>(注10)</sup>	熊本県環境総合センター	1.65	8.71	2.93	WJ	32.76	130.73	○	○	○	▲	5	12.0	Wet:14.7m,O式:15.7m	市街化調整区域
		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	○	○	○	○	14	3.5	地上高14m	都市地域(準工業地域)
		鹿児島県 鹿児島	鹿児島県環境保健センター	1.41	5.88	1.37	WJ	31.58	130.56	○	○	○	○	1	0.1	Wet:4.5m,FP:24m	準工業地域
		沖縄県 大里 <sup>(注11)</sup>	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
沖縄県 うるま <sup>(注12)</sup>	沖縄県衛生環境研究所	10.65	9.93	1.38	SW	26.38	127.83	※	※	※	※	34	3.0	地上高10m	未指定		
沖縄県 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4.5m			

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。2016～2017年度の部会組織および報告書の担当を表2.1.3に示す。

## 2.2 調査方法

### 2.2.1 湿性沈着

調査は通年調査とし、1週間単位での採取を原則とした。2週間単位あるいはそれ以上での採取も可とし、その場合冷蔵庫の設置等による試料の変質防止対策を推奨した。試料採取日は原則月曜日とした。なお、解析に用いたデータは表2.1.2に示す月単位であった。

降水の捕集装置は降水時間開放型であり、降雪地域においては、移動式の蓋の形状変更や凍結防止用ヒーターの装備などの対策をとることが望ましいが、ヒーターの使用が無理な場合は、冬季間バルク捕集となることも可とした。また、ロート部および導管部の洗浄については、月単位の切れ目の日に実施することとし、洗浄後にフィ

ールドブランク試料を採取し精度管理指標とした。

降水量は、貯水量を捕集面積で割って算出し、その他の測定項目、分析方法および手順については、湿性沈着モニタリング手引き書—第2版—<sup>3)</sup>（以下、手引き書）に従った。また、イオンバランス(R<sub>i</sub>)および電気伝導率バラ

表2.1.2 調査期間の季節・月区分

季節	月	2016年度	週
春	4	4月4日～5月2日	4
	5	5月2日～5月30日	4
夏	6	5月30日～6月27日	4
	7	6月27日～7月25日	4
秋	8	7月25日～9月5日	6
	9	9月5日～10月3日	4
冬	10	10月3日～10月31日	4
	11	10月31日～11月28日	4
春	12	11月28日～12月26日	4
	1	12月26日～2月6日	6
冬	2	2月6日～3月6日	4
	3	3月6日～4月3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	熊本市環境総合センター	藤井 幸三	H28	
	愛媛県立衛生環境研究所	四宮 博人	H29	
理事委員	宮崎県衛生環境研究所	濱田 洋彦	H28	
	高知県環境研究センター	西森 郷子	H29	
支部委員	岩手県環境保健研究センター	多田 敬子	H28	D, 6章
	宮城県保健環境センター	佐藤 由美	H29	D, 6章
	埼玉県環境科学国際センター	松本 利恵	H28-29	D, 5.3章
	福井県衛生環境研究センター	藤田 大介	H28	D, 4章
	滋賀県琵琶湖環境科学研究センター	三田村 徳子	H29	D, 2章
	徳島県立保健製薬環境センター	河野 明大	H28	D, 4章
	広島市衛生研究所	宮野 高光	H29	D, 4章
	沖縄県衛生環境研究所	友寄 喜貴	H28	D, 1-3章
	熊本県保健環境科学研究センター	北岡 宏道	H29	D, 4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	山口 高志	H28-29
新潟県保健環境科学研究センター		家合 浩明	H28-29	総括
千葉県環境研究センター		横山 新紀	H28-29	6章
富山県環境科学センター		木戸 瑞佳	H28-29	5.1-5.2章
三重県保健環境研究所		西山 亨	H28-29	4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	H28-29	4章
名古屋市環境科学調査センター		久恒 邦裕	H28-29	4章
鳥取県衛生環境研究所		山添 良太	H28-29	5.3章
福岡県保健環境研究所		濱村 研吾	H28-29	5.1-5.2章
沖縄県衛生環境研究所		岩崎 綾	H28-29	1-3, 5.1-5.2章
国立大学法人 東京農工大学 農学部		松田 和秀	H28-29	
法政大学 生命科学部		村野 健太郎	H28-29	
公立大学法人 北九州市立大学		藍川 昌秀	H28-29	
国立研究開発法人 国立環境研究所 地球環境研究センター	向井 人史	H28-29		
一般財団法人 日本環境衛生センター アジア大気汚染研究センター	箕浦 宏明	H28-29		
大気環境学会中国・四国支部	大原 真由美	H28-29		
環境省	石飛 博之	H29		
〃	船越 吾朗	H28-29		
事務局	熊本市環境総合センター	甲斐 勇	H28	
	〃	濱野 晃	H28	
	〃	吉田 芙美香	H28	
	愛媛県立衛生環境研究所	仲井 哲也	H29	
	〃	宇野 克之	H29	
〃	紺田 明宏	H29		

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。

ンス( $R_p$ )が許容範囲を超える場合は再分析を行うなど、測定値の信頼性を確保した。分析精度の確保に関しては、環境省のモニタリングネットワークの測定局を対象に行われている分析機関間比較調査に本調査参加機関も多数参加し、全環研として解析を行った。

### 2.2.2 乾性沈着

乾性沈着調査はFP法、パッシブ法および自動測定機による方法を採用した。FP法およびパッシブ法における捕集ろ紙を表2.2.1に示す。

#### 2.2.2.1 フィルターパック法

FP法は、1段目で粒子状物質を、2段目で $\text{HNO}_3$ などを、3段目で $\text{SO}_2$ と $\text{HCl}$ を、4段目で $\text{NH}_3$ を捕集する従来の4段ろ紙法<sup>4)</sup>の構成に加え、前段にインパクト（I0ろ紙）を装備し、粗大粒子と $\text{PM}_{2.5}$ 成分とを分けて採取する5段構成のFP法を推奨した。なお、従来の4段ろ紙法による採取も可とした。さらに、それらに $\text{HONO}$ 測定を加えた構成（F2で採取された妨害分の一部の $\text{NO}_2$ ガスを評価するためのF2'ろ紙をF2の後段に加える）をオプションとして設定した。

調査地点は、可能な限り湿性沈着調査地点と同一地点を選定することとし、通年調査で、採取単位は1週間～2週間であった。なお、解析に用いるデータは月単位であった。試料採取は、表2.2.1に示した5種または4種のろ紙を装着し、吸引速度は、インパクトを用いた場合は指定された流量である $2 \text{ L min}^{-1}$ で、その他の場合は $1\sim 5 \text{ L min}^{-1}$ の範囲で設定して連続採取を行い、積算流量計あるいは平均流量から採気量を求めた。

なお、全環研の4段ろ紙を用いたFP法に関するマニュアルは東アジア酸性雨モニタリングネットワーク（以下、EANET）でも英訳されて用いられている。詳細な手順などはこれまでの報告<sup>4)</sup>およびEANETの技術資料<sup>9)</sup>などを参照されたい。

#### 2.2.2.2 パッシブ法

パッシブ法は、目的のガス成分を捕集、あるいは目的のガス成分と反応する試薬が含浸されたろ紙を用い、捕集量あるいは試薬反応量を測定し、大気中ガス濃度を求める方法である。大気に直接ろ紙をさらすと風の影響や粒子状物質による汚染を受ける。これらの影響を除くため、パッシブ法には目的ガス成分がろ紙にたどり着くまでに適切な抵抗が必要である。本調査では抵抗として、細孔による拡散長抵抗方法を用いた小川式パッシブ法（以下、パッシブ法）を用いている。本方法は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。

パッシブ法の調査地点は大都市（例えば県庁所在地）・工業地域、中小都市地域、田園地域、山林地域などから

表2.2.1 FP法およびパッシブ法の捕集ろ紙

構造		捕集ろ紙名
FP法 4段	1段目 (F0)	テフロン(PTFE)
	2段目 (F1)	ポリアミド
	3段目 (F2)	$\text{K}_2\text{CO}_3$ 含浸セルロース
	4段目 (F3)	リン酸含浸セルロース
FP法 5段	1段目 (I0)	ポリカーボネート製PM2.5インパクト +石英繊維ドーナツろ紙
	2段目 (F0)	テフロン(PTFE)
	3段目 (F1)	ポリアミド
	4段目 (F2)	$\text{K}_2\text{CO}_3$ 含浸セルロース
	5段目 (F3)	リン酸含浸セルロース
項目		捕集ろ紙名
パッシブ 法	$\text{NO}_2$	トリエタノールアミン(TEA)含浸ろ紙
	$\text{NO}_x$	(TEA+PTIO)含浸ろ紙
	$\text{NH}_3$	クエン酸含浸ろ紙
	$\text{O}_3$	( $\text{NaNO}_2+\text{K}_2\text{CO}_3$ )含浸ろ紙

目的に応じ1地点以上選定することとしている。複数地点を選定する場合は、可能ならば1地点はFP法または自動測定機による測定地点とすることとしている。調査は通年であり、採取単位は原則1ヶ月であった。

$\text{SO}_2$ は $\text{NO}_x$ やオゾンに比べて大気中濃度が低く捕集量が少ない。このため都市部以外では精度の高い測定が困難であり、本調査では測定対象としていない。しかし、従来のトリメタノールアミンに代わり、 $\text{K}_2\text{CO}_3$ により改良された低濃度用ろ紙による $\text{SO}_2$ の測定結果と従来法との換算式が報告され<sup>8)</sup>、 $\text{K}_2\text{CO}_3$ 含浸ろ紙が市販されている。これを受け、従来のマニュアル<sup>7)</sup>に加えて、マニュアルとは異なる点を含む全環研用マニュアル改定版を作成した。詳細については全環研用パッシブ法のマニュアル改定版を参照されたい。

#### 2.2.2.3 自動測定機のデータ

自動測定機による測定値は、大気汚染常時監視測定局データなどを月単位に集計し用いた。本データはFP法およびパッシブ法による測定結果の精度確認のために用いた。また、一部は乾性沈着量の評価にも用いた。本データには高濃度地域に対応するための常時監視データも含まれており、一部はFP法より精度が低い場合もあった。

### 2.2.3 調査地点の属性および調査内容

広域的な環境調査データを解析する場合、目的に応じた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)<sup>9)</sup>による2000年度ベース

のSO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>およびNH<sub>3</sub>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。

#### － 引用文献 －

- 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/acid\\_rain/man/wet\\_deposi/index.html](http://www.env.go.jp/air/acid_rain/man/wet_deposi/index.html)（2018.1.5アクセス）
- 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パック法に関する技術資料，[http://www.eanet.asia/jpn/docea\\_f.html](http://www.eanet.asia/jpn/docea_f.html)（2018.1.5アクセス）
- 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，NO<sub>2</sub>，SO<sub>2</sub>，O<sub>3</sub>およびNH<sub>3</sub>濃度の測定方法（改訂版），2010年8月，<http://www.city.yokohama.lg.jp/kankyo/mamoru/kenkyu/shiryo/pub/d0001/d0001.pdf>（2018.1.5アクセス）
- 8) 恵花孝昭，野口泉，樋口慶郎，2009. 0式パッシブサンプラー法におけるSO<sub>2</sub>捕集剤の検討（第2報）. 第50回大気環境学会年会講演要旨集，p. 437
- 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、SO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>およびNH<sub>3</sub>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、ここでは気象庁発表の気象概況および大気汚染物質排出量の状況を示す。

#### 3.1 気象概況

2016年の概況は、次のとおりであった。高温が持続し、年平均気温は東日本以西でかなり高く、北日本で高くなった。北日本では、8月に台風第7号、第11号、第9号、第10号が相次いで上陸し、大雨や暴風となった。特に北海道と岩手県では記録的な大雨となり、河川の氾濫、浸水害、土砂災害などが発生した。秋は、低気圧や前線、台風の影響を受けやすく西日本では、降水量がかなり多かった。

春(3～5月)の概況は、次の通りであった。平均気温は、全国的にかなり高かった。降水量は、東日本日本海側ではかなり少なく、北日本太平洋側で少なかった。一方、西日本太平洋側と沖縄・奄美では多かった。北日本日本海側と東日本太平洋側、西日本日本海側は平年並だった。日照時間は、北・西日本で多く、東日本日本海側ではかなり多かった。東日本太平洋側、沖縄・奄美は平年並だった。

夏(6～8月)の概況は、次の通りであった。平均気温は、沖縄・奄美でかなり高く、北・東・西日本でも高かった。降水量は、北日本でかなり多く、西日本太平洋側でも多かった。一方、沖縄・奄美で少なかった。東日本、西日本日本海側では平年並だった。日照時間は、北・東日本日本海側、西日本、沖縄・奄美で多かった。北・東日本太平洋側では平年並だった。

秋(9～11月)の概況は、次の通りであった。平均気温は、西日本、沖縄・奄美でかなり高く、東日本で高かった。北日本で低かった。降水量は、西日本でかなり多く、東日本太平洋側、沖縄・奄美で多かった。北日本では少なかった。東日本日本海側では平年並だった。日照時間は、北日本日本海側、東日本太平洋側、西日本でかなり少なく、北日本太平洋側、東日本日本海側、沖縄・奄美で少なかった。

冬(12～2月)の概況は、次の通りであった。平均気温は、全国的に高く、沖縄・奄美はかなり高かった。降水量は、西日本日本海側で多かった。沖縄・奄美で少なかった。北・東日本、西日本太平洋側では平年並だった。降雪の深さ合計は北日本でかなり少なく、東日本で少なかった。西日本では平年並だった。最深積雪は、西日本で多いところが多く、北日本日本海側で少ないとこ

ろが多かった。日照時間は、東・西日本太平洋側でかなり多く、西日本日本海側で多かった。北日本日本海側で少なかった。北日本太平洋側、東日本日本海側と沖縄・奄美では平年並だった<sup>1)</sup>。

黄砂観測日数は2015年度が9日に対し、2016年度は11日で、4月に9日の観測があった<sup>2)</sup>。

2016年度の各月における降水量、気温および日照時間の概況を表3.1.1に示す。

#### 3.2 SO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>などの排出量のトレンドと分布

北東アジアにおける人為起源のSO<sub>2</sub>およびNO<sub>x</sub>排出量は、中国およびインド、極東ロシアが多い<sup>3)</sup>。また図3.2.1に示す中国のSO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>排出量のトレンド<sup>4,5)</sup>は、図3.2.2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<sup>6)</sup>ともほぼ合致している。1990年代半ばから2000年頃までは排出量がやや停滞したが、その後再び増加し、2007年以降、SO<sub>2</sub>排出量が漸減したとの報告<sup>7)</sup>もあるが、その排出量はいままでである。NO<sub>x</sub>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SO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>およびNH<sub>3</sub>排出量では、SO<sub>2</sub>およびNO<sub>x</sub>排出量は関東から北九州にかけての工業地帯および高速道路などの幹線道路近傍の排出量が多い<sup>8)</sup>。またNH<sub>3</sub>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SO<sub>2</sub>排出量は減少しており、軽油の硫黄分削減効果が認められている<sup>9)</sup>。

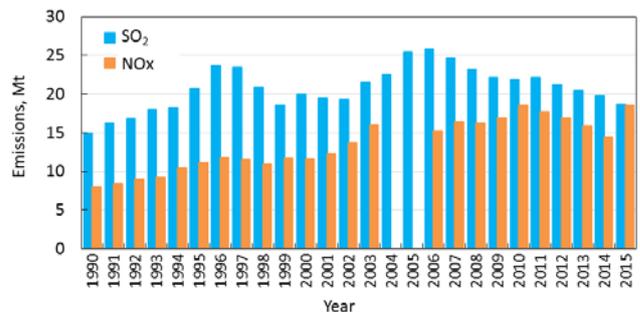


図3.2.1 中国におけるSO<sub>2</sub>およびNO<sub>x</sub>排出量

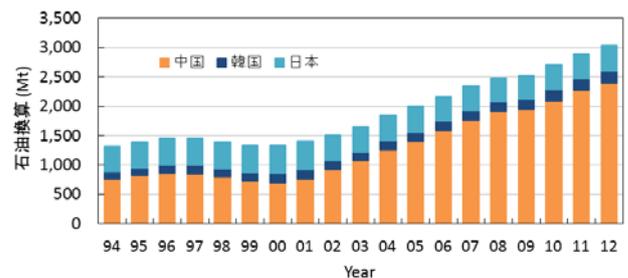


図3.2.2 中国、韓国および日本のエネルギー消費のトレンド

表3.1.1 気象概況<sup>1)</sup>

平均気温

4月	全国的に高く、東・西日本と沖縄・奄美ではかなり高かった。館山、勝浦(以上、千葉県)では4月の月平均気温の高い方から1位の値を更新した。
5月	全国的にかなり高かった。札幌(北海道)、長野(長野県)など25地点で5月の月平均気温の高い方から1位の値を更新し、釧路、根室(以上、北海道)、石垣島(沖縄県)など5地点で1位タイの値を記録した。
6月	沖縄・奄美ではかなり高く、東・西日本では高かった。石垣島(沖縄県)で6月の月平均気温の高い方から1位の値を更新した。北日本では平年並だった。
7月	沖縄・奄美ではかなり高く、東・西日本で高かった。久米島(沖縄県)では月平均気温の高い方から1位の値を更新し、与那国島、西表島、名護(以上、沖縄県)では1位タイの値を記録した。北日本では平年並だった。
8月	沖縄・奄美でかなり高く、北・東・西日本でも高かった。釧路(北海道)、人吉(熊本県)、西表島(沖縄県)で月平均気温の高い方から1位の値を更新し、雲仙岳(長崎県)、枕崎(鹿児島県)で1位タイの値を記録した。
9月	沖縄・奄美ではかなり高く、北・東・西日本で高かった。名瀬(鹿児島県)では月平均気温の高い方から1位の値を更新した。
10月	東・西日本、沖縄・奄美ではかなり高かった。福岡(福岡県)、那覇(沖縄県)など40地点では月平均気温の高い方から1位の値を更新し、厳原(長崎県)で1位タイの値を記録した。一方、北日本では低かった。
11月	沖縄・奄美で高かった。北日本ではかなり低かった。紋別(北海道)では、月平均気温の低い方から1位の値を更新し、広尾(北海道)では1位タイの値を記録した。東・西日本では平年並だった。
12月	東・西日本、沖縄・奄美でかなり高く高かった。那覇、名護(以上、沖縄県)など5地点で月平均気温の高い方から1位の値を更新した。北日本で平年並だった。
1月	沖縄・奄美でかなり高く、東・西日本で高かった。西表島(沖縄県)で月平均気温の高い方から1位の値を更新した。北日本では平年並だった。
2月	北・東日本で高かった。西日本、沖縄・奄美で平年並だった。
3月	西日本、沖縄・奄美で低かった。一方、北日本では高かった。東日本では平年並だった。

降水量

4月	全国的に多く、西日本日本海側と沖縄・奄美ではかなり多かった。西郷(島根県)、平戸(長崎県)では4月の月降水量の多い方から1位の値を更新した。
5月	北日本太平洋側と東日本で少なかつた。西日本太平洋側では多かつた。北日本日本海側と沖縄・奄美は平年並だった。
6月	北日本、西日本太平洋側ではかなり多く、西日本日本海側では多かつた。釧路(北海道)、福山(広島県)、高松(香川県)など6地点で6月の月降水量の多い方から1位の値を更新した。東日本では平年並、沖縄・奄美では少なかつた。
7月	北日本日本海側、沖縄・奄美で多かつた。一方、北・東日本太平洋側で少なかつた。白河(福島県)では、月降水量の少ない方から1位の値を更新した。東日本日本海側、西日本で平年並だった。
8月	北日本でかなり多く、東日本太平洋側でも多かつた。網走、根室(以上、北海道)など8地点では月降水量の多い方から1位の値を更新した。一方、西日本太平洋側と沖縄・奄美では少なかつた。東・西日本日本海側では平年並だった。
9月	西日本でかなり多く、東日本と沖縄・奄美で多かつた。延岡(宮崎県)では月降水量の多い方から1位の値を更新した。北日本は平年並だった。留萌(北海道)では月降水量の少ない方から1位タイの値を記録した。
10月	西日本日本海側ではかなり多く、西日本太平洋側、沖縄・奄美で多かつた。牛深(熊本県)では月降水量の多い方から1位の値を更新した。北日本太平洋側、東日本で少なかつた。北日本日本海側では平年並だった。
11月	東日本太平洋側、西日本日本海側で多かつた。東日本日本海側でかなり少なく、北日本で少なかつた。西日本太平洋側、沖縄・奄美で平年並だった。
12月	東日本太平洋側、西日本でかなり多く、北日本太平洋側で多かつた。山口、萩(ともに山口県)では月降水量の多いほうから1位の値を更新した。沖縄・奄美では少なかつた。北・東日本日本海側では平年並だった。稚内(北海道)で月降水量の少ない方から1位の値を更新した。降雪の深さ月合計は東・西日本でかなり少なく、北日本日本海側で少なかつた。北日本太平洋側では平年並だった。月最深積雪は、北日本で多いところが多く、東・西日本では少ないところが多かつた。
1月	沖縄・奄美でかなり少なく、北日本で少なかつた。留萌(北海道)、宮古島(沖縄県)で月降水量の少ない方から1位の値を更新した。東・西日本で平年並だった。降雪の深さ月合計は西日本太平洋側で多かつた。北日本日本海側でかなり少なく、北日本太平洋側と東日本日本海側で少なかつた。東日本太平洋側と西日本日本海側で平年並だった。月最深積雪は、西日本で多いところが多かつた。
2月	西日本日本海側で多かつた。東日本太平洋側で少なかつた。北日本、東日本日本海側、西日本太平洋側と沖縄・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多かつた。北日本日本海側でかなり少なく、北日本太平洋側、東日本で少なかつた。西日本太平洋側で平年並だった。月最深積雪は、西日本で多いところが多かつた。
3月	東日本日本海側と西日本でかなり少なく、北日本、東日本太平洋側で少なかつた。沖縄・奄美では平年並だった。降雪の深さ月合計は、北日本日本海側でかなり少なく、北・東日本太平洋側と西日本日本海側で少なかつた。東日本日本海側では平年並だった。月最深積雪は、北日本で少ないところが多かつた。

日照時間

4月	東日本太平洋側と西日本で少なかつた。北日本と東日本日本海側、沖縄・奄美では平年並だった。
5月	北日本ではかなり多く、東日本と西日本日本海側で多かつた。西日本太平洋側と沖縄・奄美では平年並だった。
6月	北日本日本海側、西日本では少なく、東日本日本海側、奄美・沖縄では多かつた。北・東日本太平洋側では平年並だった。
7月	北日本日本海側、西日本、沖縄・奄美で多く、北日本太平洋側、東日本で平年並だった。
8月	北日本日本海側と西日本でかなり多く、北日本太平洋側と東日本日本海側でも多かつた。佐世保(長崎県)、牛深(熊本県)など6地点では8月の月間日照時間の多い方から1位の値を更新し、宿毛(高知県)で1位タイの値を記録した。東日本太平洋側と沖縄・奄美では平年並だった。
9月	東・西日本と沖縄・奄美でかなり少なく、北日本で少なかつた。松江(島根県)、那覇(沖縄県)など8地点で月間日照時間の少ない方から1位の値を更新した。
10月	北日本太平洋側でかなり多く、沖縄・奄美で多かつた。広尾(北海道)では月間日照時間の多い方から1位の値を更新した。一方、北日本日本海側、西日本でかなり少なく、東日本太平洋側で少なかつた。山口(山口県)、佐世保(長崎県)など12地点で月間日照時間の少ない方から1位の値を更新した。東日本日本海側で平年並だった。
11月	東日本日本海側、沖縄・奄美で多かつた。北日本日本海側でかなり少なく、北・東日本太平洋側で少なかつた。むつ(青森県)では月間日照時間の少ない方から1位の値を更新した。西日本で平年並だった。
12月	北日本日本海側、東日本で多かつた。北日本太平洋側、西日本、沖縄・奄美では平年並だった。
1月	西日本でかなり多く、北日本日本海側と東日本で多かつた。北日本太平洋側と沖縄・奄美で平年並だった。
2月	西日本太平洋側でかなり多く、東日本太平洋側、西日本日本海側で多かつた。軽井沢(長野県)、熊谷(埼玉県)で月間日照時間の多い方から1位の値を更新した。北日本日本海側で少なかつた。北日本太平洋側、東日本日本海側と沖縄・奄美で平年並だった。
3月	北・東・西日本で多かつた。沖縄・奄美では平年並だった。

－ 引用文献 －

- 1) 気象庁報道発表資料, <http://www.jma.go.jp/jma/press/tenko.html> (2018.1.5アクセス)
- 2) 気象庁: 黄砂, [hhttp://www.data.jma.go.jp/gmd/env/kosahp/kosa\\_table\\_1.html](http://www.data.jma.go.jp/gmd/env/kosahp/kosa_table_1.html) (2018.1.5アクセス)
- 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, 2013
- 4) 国家环境保护总局: [http://www.mep.gov.cn/gzfw\\_13107/hjtj/hjtjnb/](http://www.mep.gov.cn/gzfw_13107/hjtj/hjtjnb/) (2018.1.5アクセス)
- 5) H. Tian, J. Hao, Y. Nie: Recent trends of NO<sub>x</sub> Emissions from energy use in China, *Proceeding of 7th International Conference on Acidic Deposition*, **32**, 2005
- 6) 環境省環境統計集, <http://www.env.go.jp/doc/toukei/contents/> (2018.1.5アクセス)
- 7) 大原利眞: 東アジアにおける広域越境大気汚染モデリングの最新動向, *水環境学会誌*, **35**, 6-9, 2013
- 8) 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、2016年度のとりまとめについて報告する。

2016年度の湿性沈着調査に対し、45機関65地点の参加があった。ただし、4.1で示すとおりデータの精度が基準を満たしていない地点については、参考値として扱い、解析からは除外した。

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

#### 4.1 データの精度

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

##### 4.1.1 データの完全度

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

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

2016年度は、月間データでは766個中23データ（3.0%）が除外され、年間データでは65地点中3地点が除外された。年間データが除外された3地点には、年度内でサンプリング地点を変更したため完全度が基準を満たさなかった1地点を含む。除外されたデータは参考値として扱った。

なお、装置の故障等により、ある期間常時開放捕集となった地点については、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 (R<sub>1</sub>) および電気伝導率バランス (R<sub>2</sub>) と分析精度管理調査結果

表4.1.1に示すように、「湿性沈着モニタリング手引き書（第2版）」<sup>2)</sup>に従って、イオンバランス（以下、R<sub>1</sub>）および電気伝導率バランス（以下、R<sub>2</sub>）による2つの検定方法を用い、測定値の信頼性を評価した。なお、各機関における試料の採取および分析は、原則週単位で行われているため、本来、R<sub>1</sub>およびR<sub>2</sub>は個々の試料毎に評価すべきである。しかし、全環研への報告値は月区切りを採用しているため、本報告では月単位の加重平均値を用いて、R<sub>1</sub>およびR<sub>2</sub>を評価した。

完全度の基準を満たした地点の月間データにおいて、R<sub>1</sub>による評価では、全ての項目が測定された766個のデータ中、R<sub>1</sub>が許容範囲内にあったデータは727個（適合率94.9%）であった。同様に、R<sub>2</sub>による評価では、R<sub>2</sub>が許容範囲内にあったデータは743個（適合率97.0%）であった。R<sub>1</sub>およびR<sub>2</sub>の分布を図4.1.1に示す。2005～2015年度におけるR<sub>1</sub>およびR<sub>2</sub>の適合率は、R<sub>1</sub>: 92～97%、R<sub>2</sub>: 94～99%の範囲にあり高いレベルで保たれている<sup>1,3,-12)</sup>。

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、2016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）18機関を除き39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31機関であった。

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

$\Sigma C_i + \Sigma A_i$ ( $\mu\text{eq L}^{-1}$ )	$R_1(\%) =$ $\{(\Sigma C_i - \Sigma A_i) / (\Sigma C_i + \Sigma A_i)\} \times 100$	$\Lambda_{\text{obs}}$ ( $\text{mS m}^{-1}$ )	$R_2(\%) =$ $\{(\Lambda_{\text{cal}} - \Lambda_{\text{obs}}) / (\Lambda_{\text{cal}} + \Lambda_{\text{obs}})\} \times 100$
< 50	±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 ( $\mu\text{eq L}^{-1}$ )

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

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

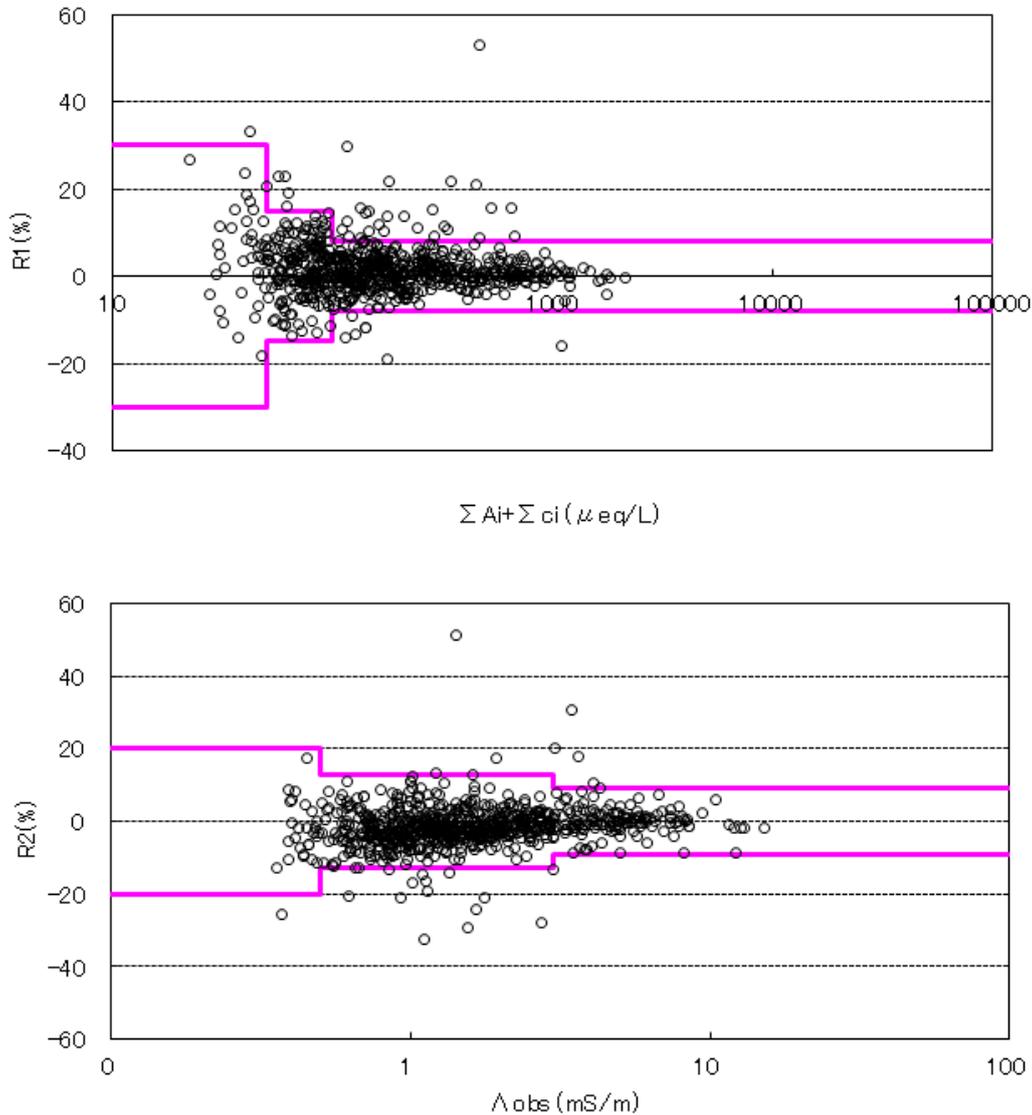


図4.1.1 イオンバランス ( $R_1$ ) と総イオン濃度 ( $\Sigma A_i + \Sigma C_i$ ) および電気伝導率バランス ( $R_2$ ) と実測値との比較

精度管理機関による測定成分毎のフラグ数と相対標準偏差を表4.1.2に示す。フラグ数は、東アジア酸性雨モニタリングネットワーク (EANET) の精度管理目標値 (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<sup>13)</sup>の方法に従い、平均値から標準偏差の3倍以上はずれている測定値は棄却した。高濃度試料ではDQOsを満たすデータが97.4%、フラグEまたはフラグXが付いたデータは、それぞれ2.1%および0.5%であった。また、低濃度試料では、DQOsを満たすデータが87.2%、フラグEまたはフラグXが付いたデータは、それぞれ8.5%および4.4%であった。2015年度<sup>12)</sup>に比較して、

フラグ付与率は高濃度試料で同程度であり、低濃度試料では増加した。フラグは陽イオンに多く、特に低濃度試料における付与数が多かったことは2015年度<sup>12)</sup>と同様であった。

一方、国設局管理機関 (18機関) の2016年度分析精度管理調査<sup>13)</sup>では、高濃度試料ではDQOsを満たすデータが99.4%、フラグEまたはフラグXが付いたデータは、それぞれ0.6%および0%であった。低濃度試料では、DQOsを満たすデータが98.3%、フラグEまたはフラグXが付いたデータは、それぞれ0.6%および1.1%であった。低濃度試料ではフラグは全て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3.5%以下で陽

イオンは5.6%以下、低濃度試料では陰イオンは7.3%以下で陽イオンは13.6%以下であった。2015年度<sup>13)</sup>と同様にK<sup>+</sup>、Ca<sup>2+</sup>およびMg<sup>2+</sup>のバラツキが大きかった。国設管理機関が2016年度に行った分析精度管理調査<sup>13)</sup>では、相対標準偏差は高濃度試料については4.2%以下、低濃度試料については8.5%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精度管理参加機関ともに高かった。おおむね精度よく測定が実施されているが、各機関において分析精度管理調査結果を有効に利用することでさらなる改善が期待できる。特に低濃度試料に関してはより一層の改善が望まれる。

精度管理参加機関の測定結果のバラツキが大きい成分は、表4.1.2に示すように、低濃度試料では陽イオンであり、陽イオンにフラグの付与数が多かった。これらの項目の分析精度のさらなる向上により、全体の精度改善に繋がることが期待される。また、pHではフラグ付与数が0であり、バラツキも小さいが、H<sup>+</sup>濃度に換算すると、大きなバラツキが予想される。R<sub>1</sub>およびR<sub>2</sub>の計算過程ではH<sup>+</sup>濃度として効いてくること、実際の降水試料の評価ではH<sup>+</sup>沈着量としての評価も重要であることなどから、pHについては、H<sup>+</sup>濃度として機関間のバラツキがより小さくなるよう努力していく必要性が考えられる。

続いて、イオン成分の定量下限値とフラグ付与の関係について調べた。定量下限値は、イオン成分分析用検量線を作成する際の最低濃度標準液を5回以上の繰り返し測定したときの標準偏差(s)から求められる。検出下限値

は3s (μmol L<sup>-1</sup>)、定量下限値は10s (μmol L<sup>-1</sup>)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に示した。定量下限値がDQOsを満たしていない機関数は、Ca<sup>2+</sup>およびMg<sup>2+</sup>でそれぞれ5機関および3機関と多く、次いでNa<sup>+</sup>で2機関、Cl<sup>-</sup>およびK<sup>+</sup>でそれぞれ1機関であった。定量下限値が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、定量下限値がDQOsを満たしていない機関があった全ての測定項目において1~2機関であった。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が、定量下限値>DQOsの機関はフラグが付与されることが多かった。

さらなる分析精度向上のためには、日常の実降水試料測定においてのR<sub>1</sub>およびR<sub>2</sub>の管理だけにとどまらず、酸性雨測定分析精度管理調査を積極的に活用し、配布される模擬酸性雨試料などを「標準参照試料」として利用した日常的な分析精度の管理を実施していくことが望ましいと考える。

4.1.3 フィールドブランク

フィールドブランク（以下、FB）試験を実施する毎に、各機関にて捕集装置の洗浄確認等の自主管理が実行できるようにとの目的から、FB試料濃度の上限値（暫定）を提案した<sup>4)</sup>。

FB試料から高濃度が検出された場合や、鳥の糞、黄砂、

表4.1.2 分析精度管理調査におけるフラグ数と相対標準偏差

	pH	EC	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	
高濃度試料	フラグE	0	1	0	2	0	0	1	0	3	1
	フラグX	0	0	0	0	0	1	1	0	0	0
	相対標準偏差	1.8% (n=39)	3.6% (n=39)	2.2% (n=39)	3.5% (n=39)	3.1% (n=39)	4.7% (n=39)	4.9% (n=39)	3.6% (n=39)	5.6% (n=39)	3.0% (n=39)
低濃度試料	フラグE	0	2	1	0	3	3	6	9	8	1
	フラグX	0	1	1	1	1	4	3	3	3	0
	相対標準偏差	2.1% (n=39)	6.3% (n=39)	5.7% (n=39)	4.4% (n=39)	7.3% (n=39)	11.0% (n=39)	13.6% (n=39)	12.4% (n=39)	12.1% (n=39)	5.4% (n=39)

表4.1.3 定量下限値が精度管理目標値を満たしていない機関数、およびその機関のうち分析精度管理調査でフラグが付与された機関数

	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>
定量下限値がDQOsを満たしていない機関数	0	0	1	2	1	5	3	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	0	1	0
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	1	2	1	2	2	0
定量下限値に係るDQOs(μmol L <sup>-1</sup> )	0.3	0.5	0.5	0.3	0.3	0.2	0.3	0.8
DQOs:精度管理目標値								



図4.2.1 地域区分

虫、植物片、種子などの汚染に気付いた際は、採取装置の洗浄を徹底し、チューブの交換などを実施することで、流路からの汚染を低減化する必要があると考えられる。また、現場においてはFB試料に濁りや不溶性のコンタミネーションがみられないかを確認することや、ポータブルの電気伝導率計により電気伝導率を測定することにより、流路からの汚染が少なく保たれているかをチェックすることが望ましい。各機関にてFB試験を実施し、捕集装置の自主管理を実行することを推奨する。

#### 4.2 ECおよびイオン成分濃度

ここでは、2016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。

表4.2.1 湿性イオン成分等の地点別年加重平均濃度

地点名	地域 区分 <sup>1)</sup>	排出量(t km <sup>-2</sup> y <sup>-1</sup> )			降水量 (mm)	pH	EC (mS m <sup>-1</sup> )	湿性イオン成分等の濃度 (μmol L <sup>-1</sup> )										
		SO <sub>2</sub>	NO <sub>x</sub>	NH <sub>3</sub>				SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	nss-Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	H <sup>+</sup>
利尻	NJ	1.27	0.51	0.02	1208	4.88	2.03	12.6	8.1	11.3	83.6	11.8	73.5	2.0	3.7	2.1	8.4	13.1
母子里	NJ	0.12	0.76	0.49	(1563.0)	(4.9)	(2.7)	(15.8)	(9.7)	(17.8)	(114.1)	(17.8)	(100.5)	(5.2)	(7.2)	(4.9)	(11.7)	(12.0)
札幌北	NJ	5.18	25.61	1.07	1235	4.87	1.70	10.6	7.6	9.9	60.2	13.1	50.4	1.5	3.0	1.9	5.8	13.4
青森東道	NJ	1.18	3.59	0.44	1359	4.84	3.94	22.1	12.1	17.4	191.8	19.6	164.4	4.2	9.0	5.3	18.9	14.4
鯉ヶ沢舞戸	NJ	0.20	1.15	0.51	1303	4.81	6.17	31.6	13.6	19.6	346.6	18.7	297.6	7.2	10.4	3.7	34.0	15.4
涌谷	NJ	1.83	5.75	2.45	1035	4.97	1.08	7.7	6.4	9.7	26.3	11.5	21.9	0.8	1.7	1.2	2.6	10.7
秋田千秋	NJ	4.37	6.14	0.53	1602	4.92	3.45	24.0	14.2	18.9	189.8	23.4	161.4	5.4	7.6	4.0	17.1	12.1
三春	EJ	1.31	6.42	1.00	1086	5.03	0.75	6.7	6.3	10.6	8.9	9.1	7.6	0.7	3.3	3.1	1.4	9.3
小名浜	EJ	13.81	16.92	0.99	1303	5.36	1.55	12.5	10.0	8.8	46.1	10.9	41.2	0.8	1.7	0.8	4.0	4.4
新潟曽和	EJ	2.60	9.49	1.28	1287	4.71	3.04	19.2	12.3	15.9	133.6	18.8	113.7	3.0	4.7	2.2	13.1	19.4
長岡	JS	2.88	10.93	2.79	2447	4.70	3.73	24.2	15.1	20.1	174.1	23.6	149.4	3.8	6.0	2.6	17.1	20.2
新潟大山	JS	2.75	12.68	1.74	1508	4.86	3.91	27.8	17.7	21.7	189.7	30.6	166.6	4.8	8.8	5.1	19.4	13.6
新潟小新	JS	2.64	9.73	1.66	1406	4.68	3.66	23.6	15.0	20.1	159.6	23.1	140.9	4.0	6.5	3.3	16.4	20.9
日光	EJ	2.49	18.24	3.51	1803	5.29	0.57	5.4	5.1	6.5	4.8	5.9	4.1	1.6	2.4	2.3	0.9	5.2
宇都宮	EJ	2.88	10.93	2.79	1623	5.06	1.20	11.9	11.1	20.9	13.7	25.4	11.8	1.1	3.5	3.2	1.8	8.7
小山	EJ	8.63	59.68	4.64	1226	5.31	1.09	12.8	11.9	21.2	16.4	30.8	13.7	1.4	7.9	7.5	2.8	5.0
加須	EJ	2.49	18.24	3.51	1096	5.10	0.99	9.3	8.7	20.4	15.5	19.1	10.7	1.1	5.3	5.0	2.5	8.0
さいたま	EJ	7.46	48.21	5.19	1344	4.84	1.42	11.6	10.5	23.0	20.6	25.1	17.6	0.8	3.7	3.3	2.5	14.5
土浦	EJ	1.44	7.73	3.20	1093	5.33	1.23	10.9	9.3	16.2	29.5	23.3	25.8	2.4	4.8	4.2	3.3	4.7
前橋	EJ	4.13	12.96	7.55	1129	5.17	1.07	9.4	9.1	23.6	7.6	37.0	4.9	0.4	2.7	2.6	0.9	6.7
市川	EJ	8.63	59.68	4.64	1317	5.05	0.82	8.6	7.6	10.6	21.1	11.7	15.4	0.4	1.6	1.2	1.8	9.0
市原	EJ	13.96	44.28	3.14	1573	4.99	1.25	14.6	12.8	11.0	36.8	14.6	29.3	0.5	4.1	3.4	3.7	10.1
銚子	EJ	10.17	8.98	3.92	1755	5.68	1.99	13.1	7.0	8.3	121.6	23.7	101.5	1.2	2.8	0.7	9.4	2.1
一宮	EJ	0.23	1.97	0.97	1661	5.14	1.73	11.4	6.5	8.0	98.3	10.7	81.1	0.8	2.4	0.8	7.9	7.2
旭	EJ	16.98	74.45	3.11	1947	5.86	1.92	11.3	6.2	12.7	101.9	39.3	83.6	0.8	2.2	0.5	6.7	1.4
佐倉	EJ	2.96	26.96	3.01	1562	5.23	0.88	8.8	7.3	10.7	29.6	10.1	24.4	0.8	2.9	2.4	2.8	5.9
清澄	EJ	0.16	1.14	0.92	1992	5.31	1.43	12.2	8.4	9.4	78.1	7.5	63.0	1.2	6.5	5.1	6.7	4.9
勝浦	EJ	0.16	1.06	0.66	2194	5.18	1.60	9.5	4.5	4.6	100.8	4.6	82.4	0.7	2.4	0.6	8.8	6.5
宮野木	EJ	12.33	42.86	3.97	1329	5.18	1.08	8.6	7.1	8.1	32.0	10.8	25.5	1.7	6.6	6.0	4.4	6.6
平塚	EJ	1.42	17.70	3.03	1210	5.11	1.65	13.7	10.8	21.9	52.9	30.4	48.1	1.8	5.0	4.0	4.9	7.7
川崎	EJ	6.11	15.55	1.80	1317	5.42	1.12	11.9	10.3	11.5	33.1	18.9	26.0	4.7	6.5	5.9	4.2	3.8
長野	CJ	1.35	4.76	0.61	742	5.05	0.78	6.7	6.3	10.1	8.8	11.9	6.3	0.6	1.8	1.6	1.1	8.9
静岡小黒	CJ	3.29	10.23	1.42	1930	5.02	1.22	9.1	7.3	10.8	36.1	8.6	30.6	1.1	2.4	1.7	4.0	9.6
静岡北安東	CJ	3.15	9.89	1.38	2333	5.04	1.09	5.4	4.1	7.7	27.2	8.3	20.8	0.7	2.5	2.0	2.8	9.1
射水	JS	6.11	15.55	1.80	1973	4.71	2.59	17.5	12.5	18.5	96.3	19.0	82.0	2.3	4.3	2.5	9.5	19.4
金沢	JS	2.74	6.93	1.12	2675	4.67	2.93	18.3	12.3	16.5	109.4	16.6	98.4	3.2	4.6	2.4	11.9	21.4
福井	JS	2.41	7.77	0.80	1141	4.67	2.54	16.6	12.0	18.7	86.9	13.6	75.7	2.2	3.4	1.7	8.5	21.4
伊自良湖	CJ	10.23	51.61	4.70	3068	4.74	1.39	12.0	11.2	15.1	16.5	14.6	13.5	0.5	1.8	1.5	1.7	18.4
豊橋	CJ	2.36	10.81	4.18	1571	5.15	1.22	10.0	8.2	14.5	34.6	14.2	30.9	1.2	6.0	5.3	4.4	7.1
名古屋南	CJ	10.23	51.61	4.70	1526	5.24	1.07	9.9	8.6	14.7	24.6	17.9	20.9	1.0	3.2	2.8	2.7	5.7
四日市桜	CJ	4.10	17.71	2.31	2225	4.68	1.56	12.1	10.4	16.1	28.6	23.6	26.8	1.3	1.6	1.0	2.7	21.0
大津柳が崎	CJ	3.92	17.74	1.34	1678	4.93	1.13	9.3	8.3	14.5	20.3	12.9	17.4	1.2	2.3	1.9	2.1	11.8
神戸須磨	CJ	10.20	30.41	1.05	1187	4.75	1.60	13.8	11.9	15.0	34.5	13.0	30.3	1.1	2.5	1.9	3.6	17.9
海南	CJ	9.97	14.10	1.12	1441	4.82	1.19	9.5	8.4	11.4	24.9	10.8	17.7	0.6	3.0	2.6	2.2	15.2
若桜	JS	0.03	0.50	0.30	2364	4.76	2.01	13.0	9.7	13.9	60.2	10.5	55.4	1.9	2.8	1.5	6.5	17.5
湯梨浜	JS	0.25	1.30	0.86	2057	4.62	4.42	22.8	12.2	18.7	191.1	14.0	173.9	4.3	5.6	1.8	18.6	23.8
松江	JS	0.46	2.49	0.56	1861	4.62	3.76	23.2	14.7	21.7	160.6	18.7	139.3	4.2	6.1	3.0	16.5	23.8
広島安佐南	WJ	3.35	12.32	1.04	2353	4.60	1.71	12.1	11.0	18.4	20.4	8.5	17.9	0.8	2.3	1.9	2.4	25.0
山口	WJ	2.28	5.84	0.63	2384	4.69	1.82	15.8	13.8	18.7	35.2	16.9	33.9	2.1	4.0	3.2	4.3	20.6
徳島	CJ	2.04	8.03	1.76	1555	4.84	1.20	8.7	7.3	12.6	26.6	10.9	23.0	1.1	3.0	2.4	2.8	14.6
太宰府	WJ	3.94	21.34	1.90	2396	4.82	1.25	11.0	9.8	11.4	21.2	11.5	18.8	1.0	2.7	2.3	2.3	15.1
福岡	WJ	2.43	14.89	1.38	2903	4.84	1.22	10.7	9.2	11.6	30.4	13.9	26.2	1.3	2.1	1.5	3.3	14.4
佐賀	WJ	2.50	6.92	1.63	2258	4.69	1.47	13.5	12.6	11.9	17.3	15.6	15.0	1.0	2.5	2.2	1.9	20.6
諫早	WJ	5.88	7.58	1.30	1907	4.72	1.62	13.2	11.2	14.0	38.4	15.4	32.8	1.1	3.1	2.4	4.9	19.2
長崎	WJ	1.17	4.99	0.62	1573	4.80	1.32	10.0	8.4	9.2	31.3	10.0	26.9	0.9	2.7	2.1	3.9	15.7
佐世保	WJ	4.30	8.39	1.37	2344	4.87	1.45	13.6	11.8	13.7	40.0	11.8	28.9	2.3	5.9	5.3	7.5	13.4
阿蘇	WJ	0.30	1.33	1.72	3802	4.61	1.56	15.3	14.7	10.7	15.5	16.1	8.8	0.9	1.9	1.8	1.3	24.8
宇土	WJ	2.07	8.38	1.47	2650	4.85	1.11	10.4	9.7	10.4	15.0	12.6	12.0	0.9	2.2	2.0	1.6	14.3
画図町	WJ	1.65	8.71	2.93	2426	4.87	1.03	11.0	10.4	10.5	11.5	13.8	8.9	1.0	2.2	2.0	1.5	13.5
大分	WJ	15.09	19.72	1.30	2423	4.65	1.99	34.5	33.8	11.0	18.6	9.6	11.7	0.7	14.9	14.7	3.4	22.4
宮崎	WJ	0.56	3.25	1.14	3400	5.04	1.24	10.3	8.2	9.6	39.8	11.7	35.0	1.1	2.5	1.8	4.4	9.0
鹿児島	WJ	1.41	5.88	1.37	2028	4.71	1.96	15.3	12.4	10.5	58.7	13.8	47.9	1.4	3.1	2.0	5.4	19.7
大里	SW	6.30	7.83	2.08	(2057.0)	(5.8)	(2.1)	(10.8)	(6.1)	(8.7)	(89.4)	(46.4)	(77.4)	(16.0)	(8.3)	(6.6)	(13.5)	(1.8)
辺戸岬	SW	0.00	0.05	0.35	1491	5.20	2.08	13.0	5.5	8.5	145.4	8.6	123.3	3.1	3.9	1.2	15.4	6.3
うるま	SW	10.65	9.93	1.38	(82.0)	(5.1)	(3.8)	(31.8)	(22.6)	(32.3)	(171.1)	(51.2)	(151.4)	(4.8)	(25.2)	(21.8)	(19.3)	(8.8)
最低値					742	4.60	0.57	5.4	4.1	4.6	4.8	4.6	4.1	0.4	1.6	0.5	0.9	1.4
最高値					3802	5.86	6.17	34.5	33.8	23.6	346.6	39.3	297.6	7.2	14.9	14.7	34.0	25.0
加重平均値 <sup>**</sup>					1800	4.87	1.81	13.8	10.7	13.6	61.4	15.5	52.3	1.7	4.0	2.8	6.2	13.9

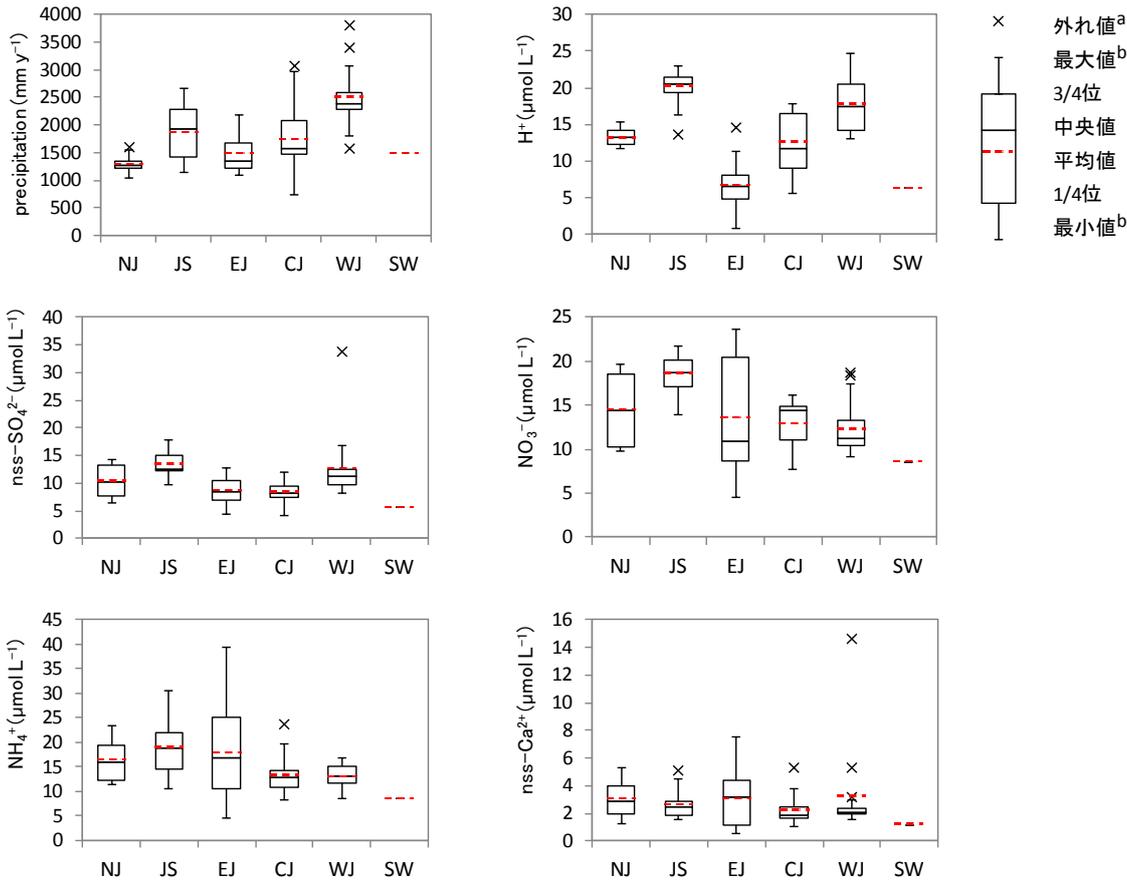
<sup>1)</sup>地域区分 (NJ: 北部、JS: 日本海側、EJ: 東部、CJ: 中央部、WJ: 西部、SW: 南西諸島)

<sup>\*\*</sup>降水量は、単純平均値

最大値: 白抜き

最小値: 斜体

参考値: (括弧)



※SWは2016年度の解析対象が1地点のみであった。

a:箱の端からの距離が箱の長さの1.5倍以上  
b:外れ値を除いた最大値又は最小値

図4.2.2 主要イオン成分の年加重平均濃度の分布

4.2.1 降水量および酸性成分濃度による地域区分

地域毎の特徴を把握するために、全国に分布する調査地点を、「北部 (NJ: Northern Japan area)」「日本海側 (JS: Japan Sea area)」「東部 (EJ: Eastern Japan area)」「中央部 (CJ: Central Japan area)」「西部 (WJ: Western Japan area)」および「南西諸島 (SW: Southwest Islands area)」の6つの地域区分に分類した。地点毎の地域区分を、図4.2.1および表4.2.1に示す。なお、地域区分の設定方法等については、既報<sup>1)</sup>を参照頂きたい。

4.2.2 pH, ECおよびイオン成分濃度の年加重平均値

2016年度の年間データが有効となった地点 (62地点) における、降水量および湿性イオン成分濃度等の年加重平均濃度を表4.2.1に示す。また、主要イオン成分濃度について、地域区分別に箱ひげ図を図4.2.2に示す。なお、“nss-”は「非海塩性 (nss: non sea salt)」を表し、海塩性イオン (Na<sup>+</sup>をすべて海塩由来として海塩組成比から

算出)を差し引いた残りであることを示している。

2016年度の年間降水量は、742 (長野)~3,802 mm (阿蘇) の範囲にあり、単純平均は1,800 mmであった。地域別では、西部で多く、北部で少ない傾向を示した。

年間平均pHは、4.60 (広島安佐南)~5.86 (旭) の範囲で、加重平均は4.87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<sup>+</sup>濃度としては、加重平均は13.9 μmol L<sup>-1</sup>であり、日本海側高く、東部で低い傾向がみられた。

年間平均ECは、0.57 (日光)~6.17 mS m<sup>-1</sup> (鯉ヶ沢舞戸) の範囲で、加重平均は1.81 mS m<sup>-1</sup>であった。

海塩粒子からの寄与を示す成分としてはNa<sup>+</sup>が用いられる。2016年度の年間平均Na<sup>+</sup>濃度では、4.1 (日光)~297.6 μmol L<sup>-1</sup> (鯉ヶ沢舞戸) の範囲で、加重平均は52.3 μmol L<sup>-1</sup>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<sub>4</sub><sup>2-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>およびnss-Ca<sup>2+</sup>) 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

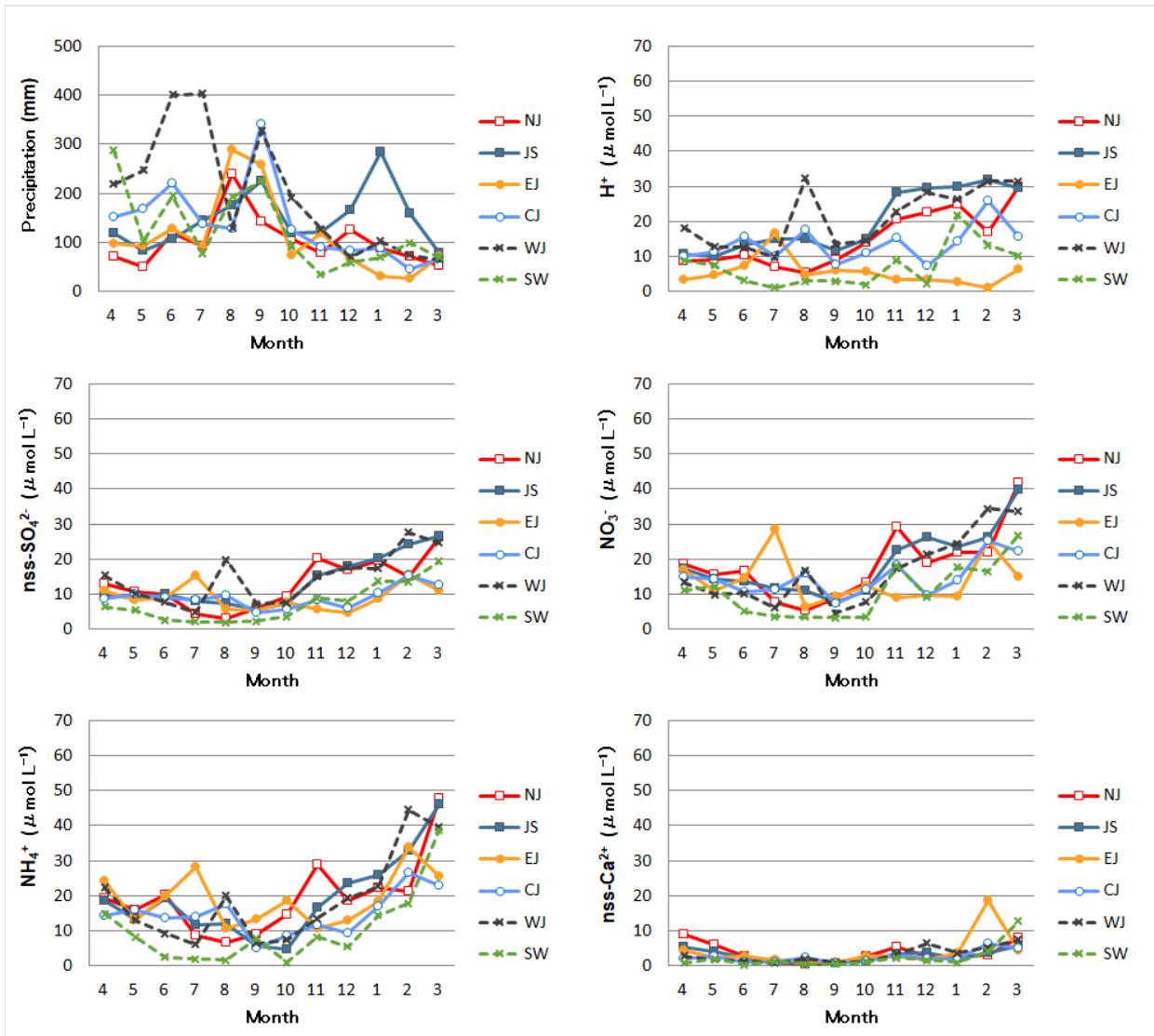


図4.2.3 イオン成分濃度の地域別季節変動（中央値）

とおりであった。

年間平均nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度は、4.1(静岡北安東)～33.8 μmol L<sup>-1</sup>(大分)の範囲で、加重平均は10.7 μmol L<sup>-1</sup>であった。大分で観測された高濃度は、2016年10月8日に発生した阿蘇山の噴火が大きく影響したと考えられる。地域別では、日本海側および西部で高く、南西諸島で低い傾向を示した。

年間平均NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度は、4.6(勝浦)～23.6 μmol L<sup>-1</sup>(前橋)の範囲で、加重平均は13.6 μmol L<sup>-1</sup>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。

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<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度は、4.6(勝浦)～39.3 μmol L<sup>-1</sup>(旭)の範囲で、加重平均は15.5 μmol L<sup>-1</sup>であった。地域別では、東部で高く、南西諸島で低い傾向を示した。

年間平均nss-Ca<sup>2+</sup>濃度は、0.5(旭)～14.7 μmol L<sup>-1</sup>(大

分)の範囲で、加重平均は2.8 μmol L<sup>-1</sup>であった。地域別では、西部で高く、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、2016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さいため、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、西部、および南西諸島では春季に、北部、東部、中央部では夏季に、日本海側では冬季に多い傾向を示した。

H<sup>+</sup>濃度は、東部では夏季に、北部、日本海側、中央部、西部および南西諸島では冬季に、高い傾向が見られた。

nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度は、おおむねどの地域も、冬季に高い傾

向が見られた。

NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度は、東部では夏季に、北部、日本海側、中央部、西部および南西諸島では冬季に、高い傾向が見られた。

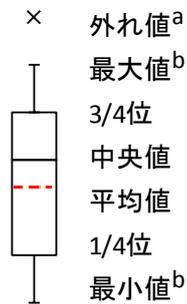
NH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度はおおむねどの地域も、冬季に高い傾向が見られた。

nss-Ca<sup>2+</sup>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、冬季に高濃度となる傾向が見られた。

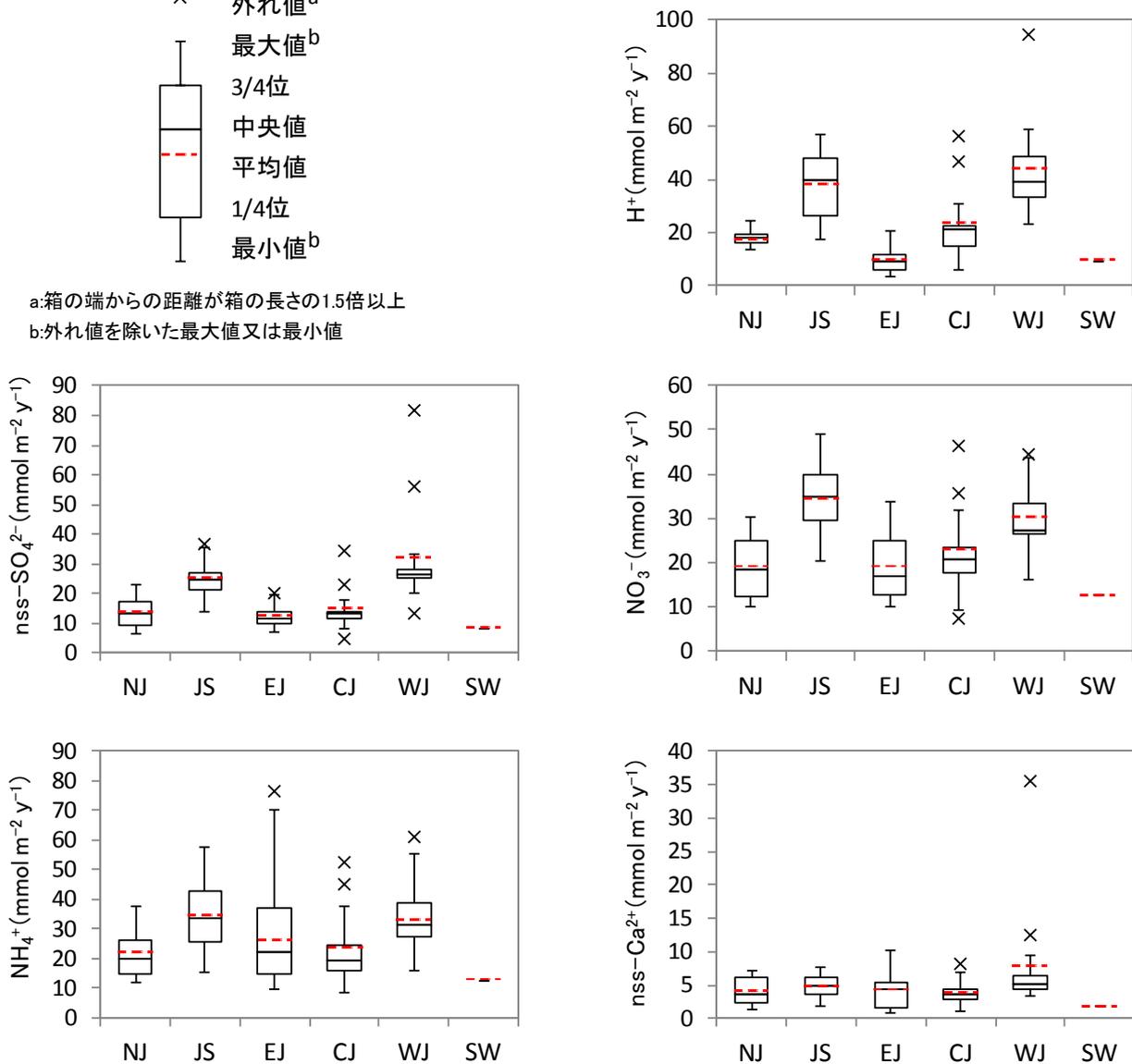
濃度の季節変動において特徴的なことの一つは、ほとんどの地域において冬季に、多くの物質の濃度が高くなったことが挙げられる。地理的要因や冬季の風向

表4.3.1 降水量と主要イオン成分の年間沈着量

項目	(単位)	中央値	最小値	(地点名)
			最大値	(地点名)
降水量	(mm y <sup>-1</sup> )	1573	742	(長野)
			3802	(阿蘇)
nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	(mmol m <sup>-2</sup> y <sup>-1</sup> )	14.4	4.7	(長野)
			81.9	(大分)
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	(〃)	24.0	7.5	(長野)
			49.2	(長岡)
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	(〃)	25.2	8.8	(長野)
			76.6	(旭)
nss-Ca <sup>2+</sup>	(〃)	4.5	1.0	(旭)
			35.5	(大分)
H <sup>+</sup>	(〃)	19.9	2.7	(旭)
			94.2	(阿蘇)



a:箱の端からの距離が箱の長さの1.5倍以上  
b:外れ値を除いた最大値又は最小値



※SWは2016年度の解析対象が1地点のみであった。

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

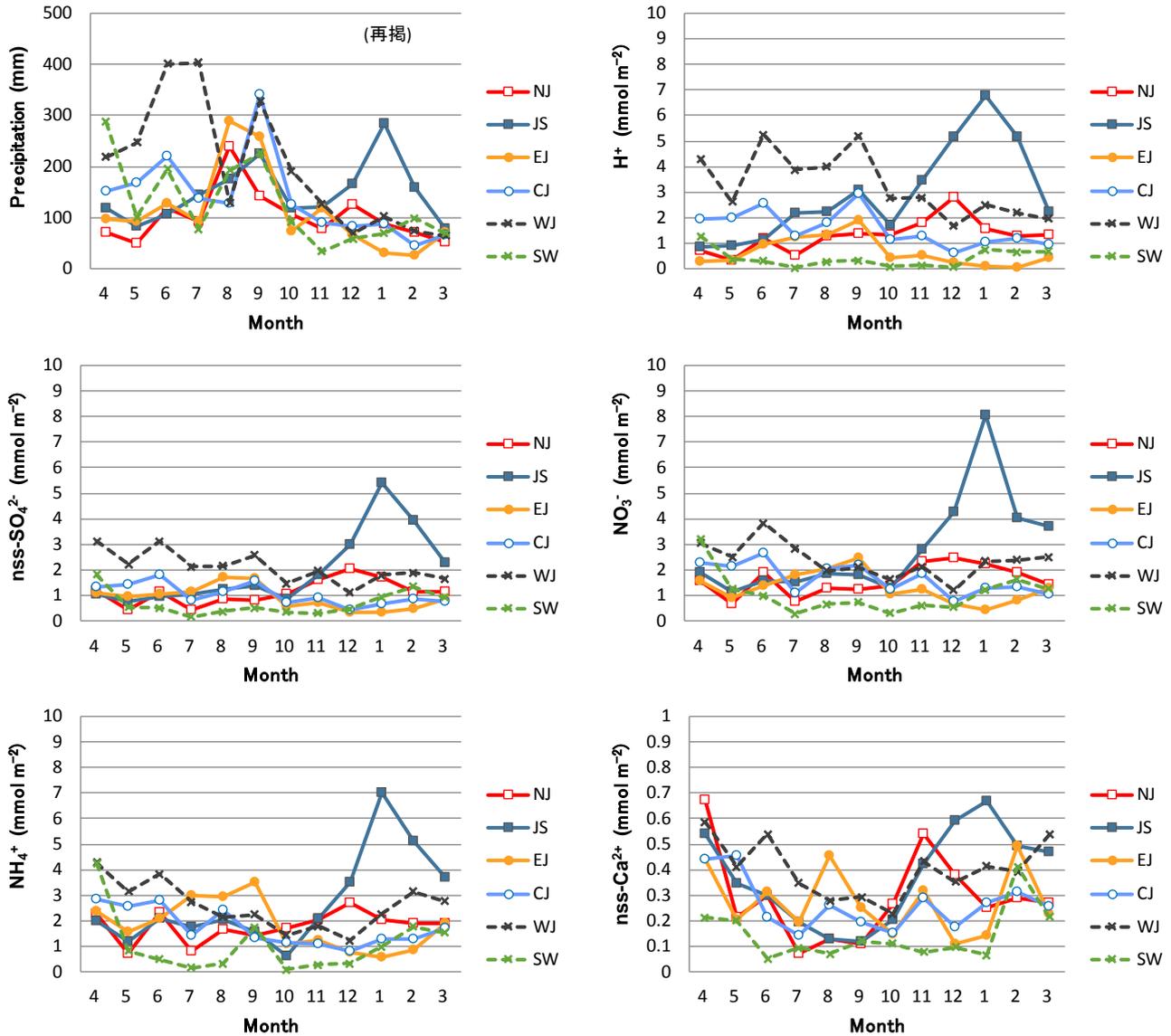


図4.3.2 イオン成分沈着量の地域別季節変動（中央値）

等を考慮すると、大陸からの汚染物質の移流が示唆された。なお、2005年度までは、この大陸からの越境大気汚染を示唆する傾向は、日本海側で顕著であった<sup>1)</sup>が、2006年度にはその傾向が西部でも確認され<sup>3)</sup>、2007～2015年度も引き続き同様の傾向がみられた<sup>4-12)</sup>。また、東部では夏季にも小さなピークが見られており、特にNO<sub>3</sub><sup>-</sup>で顕著なため地域汚染の影響を受けた可能性がある。

### 4.3 イオン成分湿性沈着量

イオン成分の年間沈着量や月間沈着量の、地点間や地域間の比較を行った。解析対象は4.2と同様に扱った。

#### 4.3.1 年間沈着量

2016年度の年間データが有効となった62地点における年間降水量および主要イオン成分の年間沈着量について、表4.3.1に要約した。また、図4.3.1には主要イオン成分

の沈着量について、地域区分別に箱ひげ図を示した。なお、年間沈着量は、年平均濃度に年間降水量を掛け合わせるにより算出した。

H<sup>+</sup>、nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>およびnss-Ca<sup>2+</sup>沈着量は西部で多く、西部における中央値はそれぞれ43.9、31.5および7.8 mmol m<sup>-2</sup> y<sup>-1</sup>であった。

NO<sub>3</sub><sup>-</sup>沈着量は日本海側で多い傾向を示し、中央値は34.5 mmol m<sup>-2</sup> y<sup>-1</sup>、それ以外の地域では中央値が12.7～30.2 mmol m<sup>-2</sup> y<sup>-1</sup>の間であった。

NH<sub>4</sub><sup>+</sup>沈着量は日本海側で多く中央値は34.7 mmol m<sup>-2</sup> y<sup>-1</sup>、それ以外の地域では中央値が12.8～32.6 mmol m<sup>-2</sup> y<sup>-1</sup>の間であった。

#### 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章と同様に、月間代表値として中央値を採用した。

H<sup>+</sup>沈着量は、日本海側では11月から2月に最も多い傾向であり、次いで9月に多く、西部では6月から9月にかけて、中央部では9月に多かった。同様の傾向がnss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>沈着量でみられた。

NO<sub>3</sub><sup>-</sup>沈着量は日本海側で12月～3月に多い傾向であり、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>沈着量でも同様の傾向が見られた。またNH<sub>4</sub><sup>+</sup>沈着量は東部では7月～9月に多い傾向であり、西部と南西諸島では1月に多くなった。

nss-Ca<sup>2+</sup>沈着量は、多くの地点で4月に最も多くなった。その他に多くなった月としては北部で11月、日本海側で12月～3月、南西諸島は2月で多くなった。

#### 4.4 高濃度現象について

本年度の調査では、H<sup>+</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>)およびCa<sup>2+</sup>(nss-Ca<sup>2+</sup>)について、西部で外れ値となる高い値が見られた(図4.2.2および図4.3.1)。これらはいずれも、大分(大分県)で観測されたデータで、高濃度となったのは2016年10月3日～11日に採取された雨である。この要因として考えられるのは2016年10月8日午前2時ごろにあった阿蘇山の爆発的噴火が挙げられる。しかし、測定地点の阿蘇(熊本県)では、当該期間に採取された雨について、イオン成分で特に高い値は測定されなかった。測定地点近隣の気象庁のデータを確認すると、爆発的噴火が起きてからは、両地点とも8日夕方から翌9日の未明ごろまで雨が降っていた。両地点共に、当該期間の雨が噴火による影響を受けることは十分に考えられるが、大分のみで影響が見られた。

この原因としては、火山噴出物への風の影響が挙げられる。阿蘇山の火山活動解説資料<sup>14)</sup>によると、降灰が確認されたのは阿蘇山以東の範囲であった。火山噴出物の多くは、同様に阿蘇山以東へ広がったと考えられる。大分は阿蘇山の東に位置しているが、阿蘇は阿蘇山から見て北に位置している。そのため、雨の降りだしたタイミングも影響して、直近の阿蘇では噴火の影響が見られなかったのに対し、大分で大きく影響が現れたと考えられる。火山活動解説資料<sup>14)</sup>によれば、降灰は香川県の方まで確認されており、瀬戸内海の南部は広域で影響を受けている。当該地域に酸性雨の測定地点があれば、同様に噴火の影響を受けていた可能性がある。

#### － 引用文献 －

- 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](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18年度），全国環境研会誌，**33**，126-196，2008
- 4) 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
- 5) 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
- 6) 全国環境研協議会 酸性雨広域大気汚染調査研究部会：第5次酸性雨全国調査報告書（平成21年度），全国環境研会誌，**36**，106-146，2011
- 7) 全国環境研協議会 酸性雨広域大気汚染調査研究部会：第5次酸性雨全国調査報告書（平成22年度），全国環境研会誌，**37**，110-158，2012
- 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23年度），全国環境研会誌，**38**，84-126，2013
- 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24年度），全国環境研会誌，**39**，100-146，2014
- 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25年度），全国環境研会誌，**40**，98-142，2015
- 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26年度），全国環境研会誌，**41**，3，2-37，2016
- 12) 全国環境研協議会 酸性雨広域大気汚染調査研究部会：第5次酸性雨全国調査報告書（平成27年度），全国環境研会誌，**42**，3，83-126，2017
- 13) 一般財団法人日本環境衛生センター アジア大気汚染研究センター：平成28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），2017
- 14) 福岡管区気象台 地域火山監視・警報センター：阿蘇山の火山活動解説資料（平成28年10月），2016  
[http://www.data.jma.go.jp/svd/vois/data/tokyo/STOCK/monthly\\_v-act\\_doc/fukuoka/16m10/503\\_16m10.pdf](http://www.data.jma.go.jp/svd/vois/data/tokyo/STOCK/monthly_v-act_doc/fukuoka/16m10/503_16m10.pdf)

## 5. 乾性沈着（フィルターパック法）

2016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。2016年度は30地点で乾性沈着調査を実施した。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、特に国設局については環境省が公表したデータ<sup>1)</sup>と異なる場合がある。また、成分名に付してある(g)はガス状成分を、(p)は粒子状成分をそれぞれ表す。

## 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。また、サンプリングや測定に不具合があると考えられた場合は参考値または欠測とした。



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	地点数	月平均濃度						年平均濃度							
		欠測数	データ数	完全度 60%未満	その他 参考値	適合数	定量下限 値未満	有効データ 割合(%)	欠測数	データ数	完全度 80%未満	その他 参考値	適合数	定量下限 値未満	有効データ 割合(%)
HNO <sub>3</sub> (g)	30	8	352	18	0	334	42	95	0	30	3	0	27	1	90
SO <sub>2</sub> (g)	30	8	352	18	0	334	7	95	0	30	3	0	27	0	90
HCl(g)	30	8	352	18	0	334	3	95	0	30	3	0	27	0	90
NH <sub>3</sub> (g)	30	8	352	18	0	334	0	95	0	30	3	0	27	0	90
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> (p)	30	8	352	18	0	334	0	95	0	30	3	0	27	0	90
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> (p)	30	8	352	18	0	334	0	95	0	30	3	0	27	0	90
Cl <sup>-</sup> (p)	30	8	352	18	0	334	2	95	0	30	3	0	27	0	90
Na <sup>+</sup> (p)	30	8	352	18	0	334	0	95	0	30	3	0	27	0	90
K <sup>+</sup> (p)	30	8	352	18	0	334	3	95	0	30	3	0	27	0	90
Ca <sup>2+</sup> (p)	30	8	352	18	0	334	1	95	0	30	3	0	27	0	90
Mg <sup>2+</sup> (p)	30	8	352	18	0	334	1	95	0	30	3	0	27	0	90
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> (p)	30	8	352	18	0	334	0	95	0	30	3	0	27	0	90

これまでの調査結果から、FP法は吸引流量の変動が大きいと異常値になりやすいことがわかっている<sup>2)</sup>。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。2016年度は、流量変動を理由として解析対象から除外された調査地点はなかった。

### 5.1.2 定量下限値の設定

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

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

### 5.1.3 非海塩成分の算出

SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p)およびCa<sup>2+</sup>(p)については、試料中のNa<sup>+</sup>(p)濃度と海水中でのモル濃度比とを用いて、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。

$$nss-SO_4^{2-}(p) = SO_4^{2-}(p) - 0.0607 \times Na^+(p)$$

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

### 5.1.4 ガス・粒子間反応の測定結果への影響

サンプリング期間中、大気中と同様に、フィルター上ではガスと粒子の間で様々な可逆あるいは不可逆反応が生じていると考えられるが、フィルターに捕集された後に生じるこれらの反応によるアーティファクトを分別して評価することは困難である。そこで、前年度<sup>4)</sup>までと同様に、平衡関係にあると考えられるガスと粒子については、全硝酸(HNO<sub>3</sub>(g)+NO<sub>3</sub><sup>-</sup>(p))、全アンモニア(NH<sub>3</sub>(g)+NH<sub>4</sub><sup>+</sup>(p))、全塩化物(HCl(g)+Cl<sup>-</sup>(p))のようにガスと粒子の総計でも評価した。

## 5.2 大気中のガス状および粒子状成分濃度

### 5.2.1 年平均濃度の地域特性

ガス状成分について、地点別年平均濃度を表5.2.1に、地域区分別の年平均濃度の箱ひげ図を図5.2.1に示す。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に示す。ガス状および粒子状成分の総計について、地点別年平均濃度を表5.2.3に、地域区分別の年平均濃度の箱ひげ図を図5.2.3に示す。箱ひげ図は、各地域区分の地点別年平均濃度の25%点と75%点がボックスの両端で表され、そのボックス内の黒線は中央値を、赤線は平均値を表す。エラーバーは10%点と90%点を表し、10~90%点から外れる値は○で示されている。

#### 5.2.1.1 ガス状成分

SO<sub>2</sub>(g)の年平均濃度の範囲は5.7~109.6 nmol m<sup>-3</sup>(平均値29.8 nmol m<sup>-3</sup>)であり、最高値は大分、次いで市原、最低値は利尻であった。大分は阿蘇山等を起源とする火山ガスの影響で、市原は重油ボイラーが多く存在する工業地帯の影響でSO<sub>2</sub>(g)濃度が高いと考えられる。SO<sub>2</sub>(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。

HNO<sub>3</sub>(g)の年平均濃度の範囲は2.3~34.1 nmol m<sup>-3</sup>(平均値13.8 nmol m<sup>-3</sup>)であり、最高値は大分、次いで神戸須磨、最低値は母子里であった。HNO<sub>3</sub>(g)は西部で高く、北部および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5.5~39.6 nmol m<sup>-3</sup>(平均値23.1 nmol m<sup>-3</sup>)であり、最高値は神戸須磨、次いで大分、最低値は母子里であった。HCl(g)は西部で高く、北部で低い傾向がみられた。

NH<sub>3</sub>(g)の年平均濃度の範囲は12.0~3510.8 nmol m<sup>-3</sup>(平均値234.5 nmol m<sup>-3</sup>)であり、最高値は旭、次いで前橋、最低値は利尻であった。NH<sub>3</sub>(g)濃度は東部の旭や前橋、

南西諸島の大里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みられた。

### 5.2.1.2 粒子状成分

$\text{SO}_4^{2-}(\text{p})$ の年平均濃度の範囲は16.8~83.5  $\text{nmol m}^{-3}$ (平均値34.6  $\text{nmol m}^{-3}$ ),  $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ は15.7~81.0  $\text{nmol m}^{-3}$ (平均値31.5  $\text{nmol m}^{-3}$ )であり、いずれも最高値は大分、次いで宮崎、最低値は母子里であった。

$\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ 濃度は西部で高く、北部で低くなり、西高東低の傾向がみられた。このような $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ 濃度の分布は、Aikawa et al. (2008)<sup>5)</sup>が指摘しているように、アジア大陸の汚染大気の流れの影響を反映していると考えられる。

$\text{NO}_3^-(\text{p})$ の年平均濃度の範囲は5.9~53.7  $\text{nmol m}^{-3}$ (平均値27.7  $\text{nmol m}^{-3}$ )であり、最高値は市原、次いで太宰府、最低値は母子里であった。 $\text{NO}_3^-(\text{p})$ 濃度は西部や東部で高く、北部で低い傾向がみられた。

$\text{Cl}^-(\text{p})$ の年平均濃度の範囲は1.9~152.1  $\text{nmol m}^{-3}$ (平均値36.9  $\text{nmol m}^{-3}$ )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。 $\text{Cl}^-(\text{p})$ 濃度は南西諸島で高い傾向がみられた。

$\text{Na}^+(\text{p})$ の年平均濃度の範囲は10.8~161.7  $\text{nmol m}^{-3}$ (平均値50.6  $\text{nmol m}^{-3}$ )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。 $\text{Na}^+(\text{p})$ 濃度は南西諸島で高い傾向がみられた。

$\text{K}^+(\text{p})$ の年平均濃度の範囲は1.1~6.1  $\text{nmol m}^{-3}$ (平均値3.3  $\text{nmol m}^{-3}$ )であり、最高値は大分、次いで福井、最低

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	$\text{SO}_2(\text{g})$	$\text{HNO}_3(\text{g})$	$\text{HCl}(\text{g})$	$\text{NH}_3(\text{g})$
			(nmol m <sup>-3</sup> )			
1	北海道	利尻*	3.7	3.2	14.1	12.0
2	北海道	母子里*	9.9	2.3	5.5	17.9
3	北海道	札幌北*	49.7	5.8	12.6	52.1
4	新潟県	新潟曾和	11.5	8.0	23.1	62.8
5	新潟県	長岡	12.1	11.1	16.5	77.2
6	群馬県	前橋	16.6	24.4	20.6	45.1
7	埼玉県	加須*	21.6	30.2	29.0	177.5
8	千葉県	旭	15.2	5.0	16.1	3510.8
9	千葉県	勝浦	23.0	5.9	29.0	74.0
10	千葉県	清澄	34.1	6.8	26.9	61.8
11	千葉県	市原	88.1	9.4	23.5	141.2
12	千葉県	佐倉	29.6	13.2	34.0	134.2
13	長野県	長野	14.7	16.2	23.2	102.4
14	静岡県	静岡北安東*	17.0	12.4	19.3	75.2
15	富山県	射水*	(15.8)	(7.6)	(11.6)	(71.6)
16	石川県	金沢	14.9	8.4	15.4	34.0
17	福井県	福井	29.8	14.5	31.7	80.3
18	岐阜県	伊自良湖	8.9	7.6	6.8	32.5
19	愛知県	豊橋	27.1	19.5	23.9	138.9
20	名古屋市	名古屋南	33.1	24.8	31.8	102.5
21	和歌山県	海南*	29.3	18.5	20.5	80.2
22	兵庫県	神戸須磨	70.9	32.1	39.6	83.5
23	鳥取県	湯梨浜	19.1	3.8	10.9	82.7
24	福岡県	太宰府	45.6	25.4	28.8	133.9
25	大分県	大分久住	(115.2)	(15.8)	(14.9)	(69.9)
26	大分県	大分	109.6	34.1	36.0	83.2
27	宮崎県	宮崎	43.3	12.8	27.5	138.6
28	鹿児島県	鹿児島*	(60.7)	(11.8)	(25.5)	(113.3)
29	沖縄県	大里	13.9	3.3	26.3	343.8
30	沖縄県	辺戸岬*	10.3	4.7	31.7	43.3
全国最低値			5.7	2.3	5.5	12.0
全国最高値			109.6	34.1	39.6	3510.8
全国中央値			21.6	11.7	23.5	82.7
全国平均値			29.8	13.8	23.1	234.5

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。  
注)\*はインパクタ付フィルターバック法による。

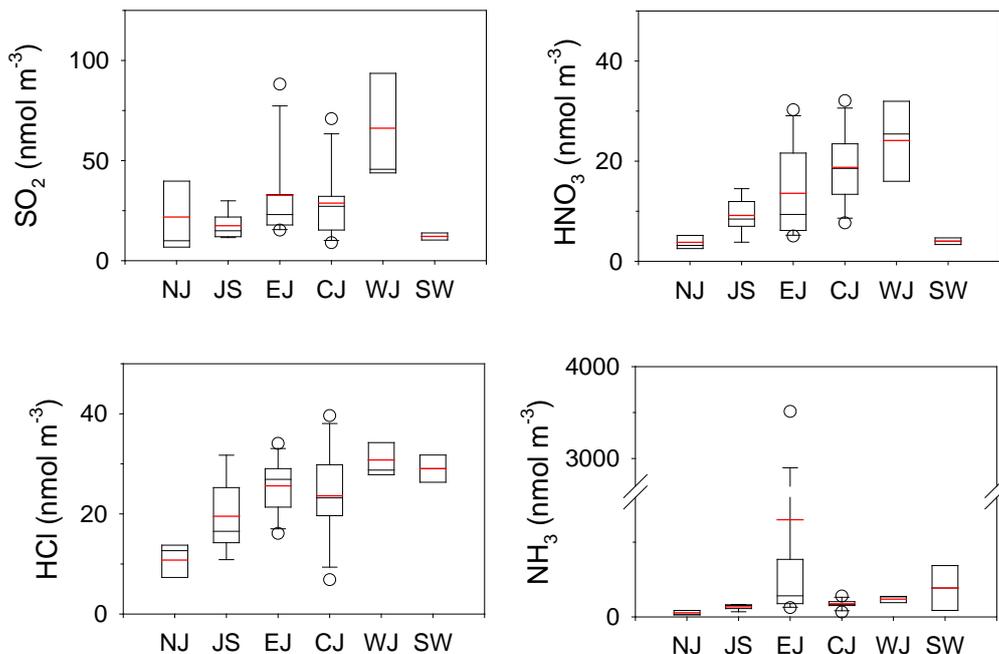


図5.2.1 ガス状成分の年平均濃度の分布 (地域区分別)

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 <sub>4</sub> <sup>2-</sup> (p)	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> (p)	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> (p)	Cl <sup>-</sup> (p)	Na <sup>+</sup> (p)	K <sup>+</sup> (p)	Ca <sup>2+</sup> (p)	nss-Ca <sup>2+</sup> (p)	Mg <sup>2+</sup> (p)	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> (p)
			(nmol m <sup>-3</sup> )									
1	北海道	利尻*	21.5	17.6	8.4	57.1	63.2	2.9	2.5	1.1	7.2	23.2
2	北海道	母子里*	16.8	15.7	5.9	13.2	17.4	2.1	1.4	1.0	2.0	29.2
3	北海道	札幌北*	24.9	22.5	20.9	37.8	39.6	2.9	4.8	3.9	4.3	50.4
4	新潟県	新潟管和	28.0	24.5	19.3	43.1	57.4	3.5	4.7	3.5	6.8	36.5
5	新潟県	長岡	26.4	24.3	19.8	23.9	35.9	3.0	4.7	3.9	4.4	41.5
6	群馬県	前橋	30.0	28.7	43.1	11.2	21.3	4.4	12.9	12.4	4.0	64.8
7	埼玉県	加須*	28.7	27.3	36.4	14.6	23.7	3.9	6.4	5.9	2.9	64.4
8	千葉県	旭	31.1	26.4	43.1	81.0	77.6	1.5	6.8	5.1	8.6	73.6
9	千葉県	勝浦	33.3	28.3	25.5	62.3	80.9	1.5	7.4	5.6	9.0	37.0
10	千葉県	清澄	30.2	26.8	23.2	33.0	56.1	1.1	5.1	3.9	6.1	33.9
11	千葉県	市原	41.6	36.2	53.7	83.7	88.7	2.0	39.9	37.9	12.8	47.5
12	千葉県	佐倉	30.9	28.7	32.1	15.7	36.4	1.6	6.0	5.2	4.5	44.0
13	長野県	長野	30.0	29.1	18.2	4.2	14.6	2.8	3.6	3.2	1.8	53.5
14	静岡県	静岡北安東*	25.9	24.6	17.0	8.7	20.5	5.0	3.9	3.4	2.8	44.6
15	富山県	射水*	(19.4)	(18.1)	(12.8)	(15.2)	(21.8)	(2.2)	(2.7)	(2.2)	(2.6)	(35.7)
16	石川県	金沢	27.0	25.2	12.3	16.0	30.0	3.0	3.6	2.9	4.1	37.3
17	福井県	福井	40.1	36.3	26.8	52.5	63.3	5.6	11.0	9.6	7.5	58.7
18	岐阜県	伊自良湖	28.5	27.8	6.8	1.9	10.8	2.3	2.8	2.5	1.2	42.1
19	愛知県	豊橋	34.1	31.6	40.7	21.2	41.7	3.6	7.8	6.9	5.5	59.8
20	名古屋市	名古屋南	33.6	31.7	34.0	15.1	30.6	3.0	8.0	7.4	4.0	56.8
21	和歌山県	海南*	34.5	32.7	22.4	15.0	30.8	4.0	5.9	5.3	4.1	64.5
22	兵庫県	神戸須磨	41.5	37.8	48.1	32.8	60.2	3.0	6.0	4.6	6.3	71.6
23	鳥取県	湯梨浜	21.3	18.9	12.2	28.2	39.0	1.6	2.0	1.1	3.0	34.5
24	福岡県	太宰府	53.6	50.8	49.7	27.3	47.2	4.5	10.6	9.6	6.1	97.5
25	大分県	大分久住	(49.0)	(48.0)	(15.0)	(3.0)	(17.0)	(2.5)	(4.1)	(3.8)	(2.5)	(78.8)
26	大分県	大分	83.5	81.0	40.7	9.2	41.7	6.1	9.3	8.4	5.9	134.8
27	宮崎県	宮崎	60.6	56.5	44.2	45.2	68.1	4.3	6.2	4.7	7.3	117.1
28	鹿児島県	鹿児島*	(44.8)	(42.3)	(29.9)	(29.0)	(41.3)	(2.9)	(6.7)	(5.8)	(4.4)	(86.8)
29	沖縄県	大里	35.4	29.0	21.9	89.3	106.8	4.0	8.9	6.6	13.5	33.4
30	沖縄県	辺戸岬*	40.2	30.4	21.7	152.1	161.7	4.9	7.2	3.6	21.0	35.5
		全国最低値	16.8	15.7	5.9	1.9	10.8	1.1	1.4	1.0	1.2	23.2
		全国最高値	83.5	81.0	53.7	152.1	161.7	6.1	39.9	37.9	21.0	134.8
		全国中央値	30.9	28.7	23.2	27.3	41.7	3.0	6.0	4.7	5.5	47.5
		全国平均値	34.6	31.5	27.7	36.9	50.6	3.3	7.4	6.3	6.2	55.1

注) 全国最低値は網掛け、全国最高値は白抜き、参考値は( )で示した。  
 注) 参考値は最低値、最高値、中央値、平均値から除外した。  
 注) \*はインパクト付フィルターパック法による。

値は清澄であった。K<sup>+</sup>(p)濃度は西部や南西諸島で高い傾向がみられた。

Ca<sup>2+</sup>(p)の年平均濃度の範囲は1.4~39.9 nmol m<sup>-3</sup>(平均値7.4 nmol m<sup>-3</sup>)、nss-Ca<sup>2+</sup>(p)は1.0~37.9 nmol m<sup>-3</sup>(平均値6.3 nmol m<sup>-3</sup>)であり、いずれも最高値は市原、次いで前橋、最低値は母子里であった。nss-Ca<sup>2+</sup>(p)濃度は、周辺のセメント工場や石灰工場の影響を受けていると考えられる市原を含むEJで高い傾向がみられた。

Mg<sup>2+</sup>(p)の年平均濃度の範囲は1.2~21.0 nmol m<sup>-3</sup>(平均値6.2 nmol m<sup>-3</sup>)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。Mg<sup>2+</sup>(p)濃度は南西諸島で高い傾向がみられた。

NH<sub>4</sub><sup>+</sup>(p)の年平均濃度の範囲は23.2~134.8 nmol m<sup>-3</sup>(平均値55.1 nmol m<sup>-3</sup>)であり、最高値は大分、次いで宮崎、最低値は利尻であった。NH<sub>4</sub><sup>+</sup>(p)濃度は西部で高く、北部および南西諸島で低い傾向がみられた。

全国中央値をみると、調査地点は若干異なるが、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、K<sup>+</sup>およびNH<sub>4</sub><sup>+</sup>の年中央値は昨年度と比べて17~20%減少していた。

### 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(SO<sub>2</sub>(g)+nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p))の年平均濃度の範囲は23.3~190.5 nmol m<sup>-3</sup>(平均値61.3 nmol m<sup>-3</sup>)であり、最高値は大分、次いで市原、最低値は利尻であった。全硫黄濃度は西部で高い傾向がみられた。

全硝酸(HNO<sub>3</sub>(g)+NO<sub>3</sub><sup>-</sup>(p))の年平均濃度の範囲は8.2~80.2 nmol m<sup>-3</sup>(平均値40.9 nmol m<sup>-3</sup>)であり、最高値は神戸須磨、次いで太宰府、最低値は母子里であった。全硝酸濃度は西部で高く、北部で低い傾向がみられた。

全塩化物(HCl(g)+Cl<sup>-</sup>(p))の年平均濃度の範囲は8.7~183.8 nmol m<sup>-3</sup>(平均値60.0 nmol m<sup>-3</sup>)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。全塩化物濃度は南西諸島で高い傾向がみられた。

全アンモニア(NH<sub>3</sub>(g)+NH<sub>4</sub><sup>+</sup>(p))の年平均濃度の範囲は35.3~3584.4 nmol m<sup>-3</sup>(平均値289.6 nmol m<sup>-3</sup>)であり、最高値は旭、次いで前橋、最低値は利尻であった。全アンモニア濃度は東部の旭や前橋、南西諸島の大里のように周辺の畜産の影響を受けている地点や都市部で高い傾向がみられた。

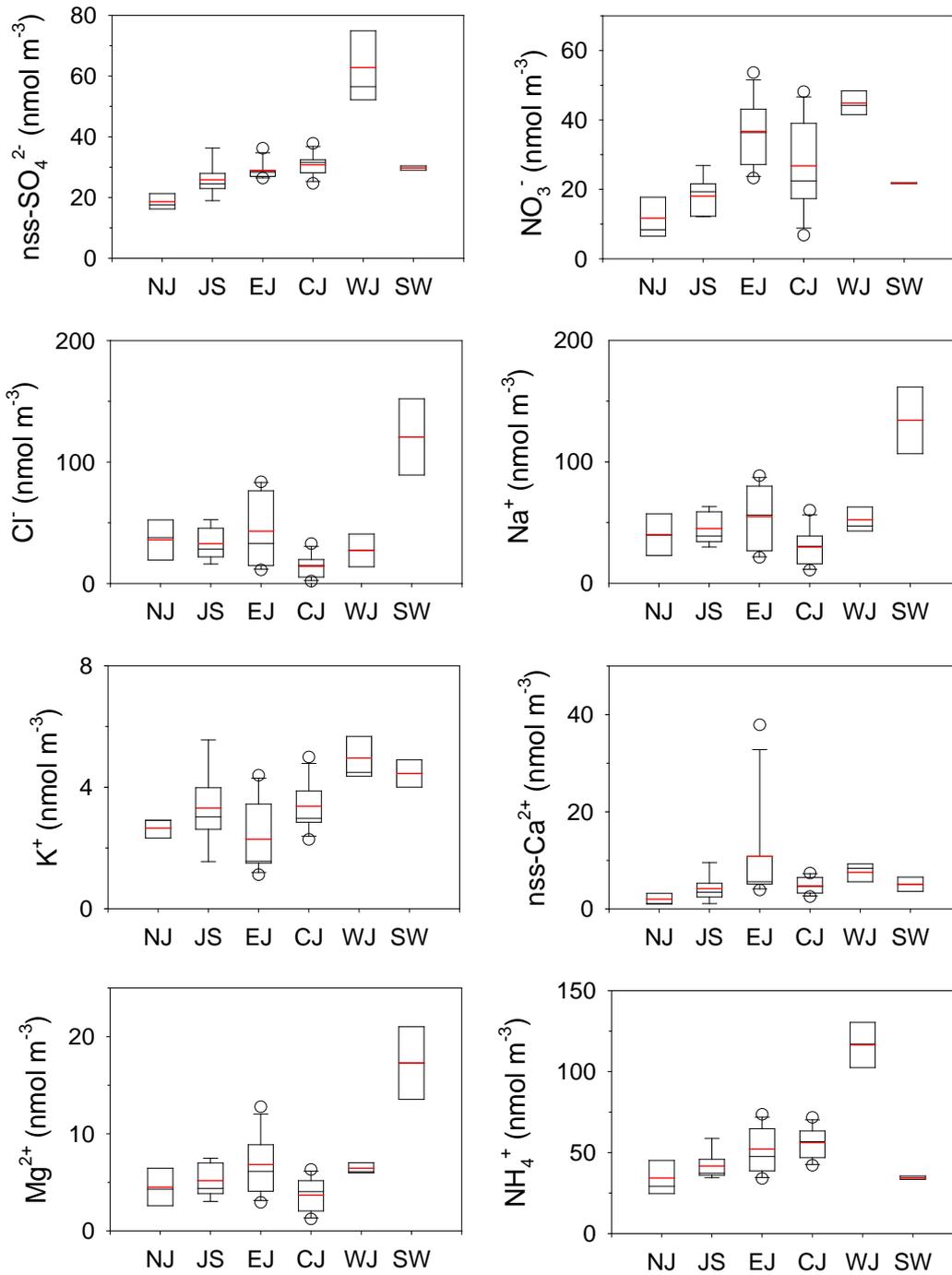


図5.2.2 粒子状成分の年平均濃度の分布 (地域区別)

表5.2.3 ガス状および粒子状成分の総計の年平均濃度 (地点別)

No.	都道府県市	地点名	全硫黄	全硝酸	全塩化物	全アンモニア
			SO <sub>2</sub> (g)+nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> (p)	HNO <sub>3</sub> (g)+NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> (p)	HCl(g)+Cl <sup>-</sup> (p)	NH <sub>3</sub> (g)+NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> (p)
(nmol m <sup>-3</sup> )						
1	北海道	利尻*	29.3	11.5	71.2	35.3
2	北海道	母子里*	25.7	8.2	18.8	47.1
3	北海道	札幌北*	72.2	26.7	50.4	102.5
4	新潟県	新潟曽和	36.0	27.3	66.2	99.3
5	新潟県	長岡	36.3	30.9	40.4	118.7
6	群馬県	前橋	45.3	67.5	31.8	518.9
7	埼玉県	加須*	48.9	66.6	43.6	241.9
8	千葉県	旭	41.6	48.1	97.1	3584.4
9	千葉県	勝浦	51.3	31.4	91.3	111.0
10	千葉県	清澄	60.9	30.0	59.9	95.8
11	千葉県	市原	124.3	63.0	107.2	188.7
12	千葉県	佐倉	58.3	45.3	49.7	178.3
13	長野県	長野	43.8	34.4	27.4	155.9
14	静岡県	静岡北安東*	41.7	29.4	28.0	119.8
15	富山県	射水*	(33.9)	(20.5)	(26.7)	(107.2)
16	石川県	金沢	40.1	20.7	31.4	71.3
17	福井県	福井	66.1	41.3	84.2	139.0
18	岐阜県	伊自良湖	36.7	14.4	8.7	74.5
19	愛知県	豊橋	58.7	60.1	45.1	198.8
20	名古屋市	名古屋南	64.8	58.8	46.9	159.3
21	和歌山県	海南*	62.0	41.0	35.5	144.7
22	兵庫県	神戸須磨	108.7	80.2	72.4	155.1
23	鳥取県	湯梨浜	38.0	8.4	39.1	117.2
24	福岡県	太宰府	96.4	75.2	56.1	231.4
25	大分県	大分久住	(163.3)	(30.8)	(17.9)	(148.7)
26	大分県	大分	190.5	74.8	45.2	218.0
27	宮崎県	宮崎	99.8	57.0	72.7	255.7
28	鹿児島県	鹿児島*	(103.0)	(41.7)	(54.5)	(200.1)
29	沖縄県	大里	42.8	25.3	115.6	377.2
30	沖縄県	辺戸岬*	40.7	26.3	183.8	78.8
全国最低値			23.3	8.2	8.7	35.3
全国最高値			190.5	80.2	183.8	3584.4
全国中央値			48.9	34.4	49.7	144.7
全国平均値			61.3	40.9	60.0	289.6

注) 全国最低値は網掛け, 全国最高値は白抜き, 参考値は( )で示した。

注) 参考値は最低値, 最高値, 中央値, 平均値から除外した。

注) \*はインパクタ付フィルターパック法による。

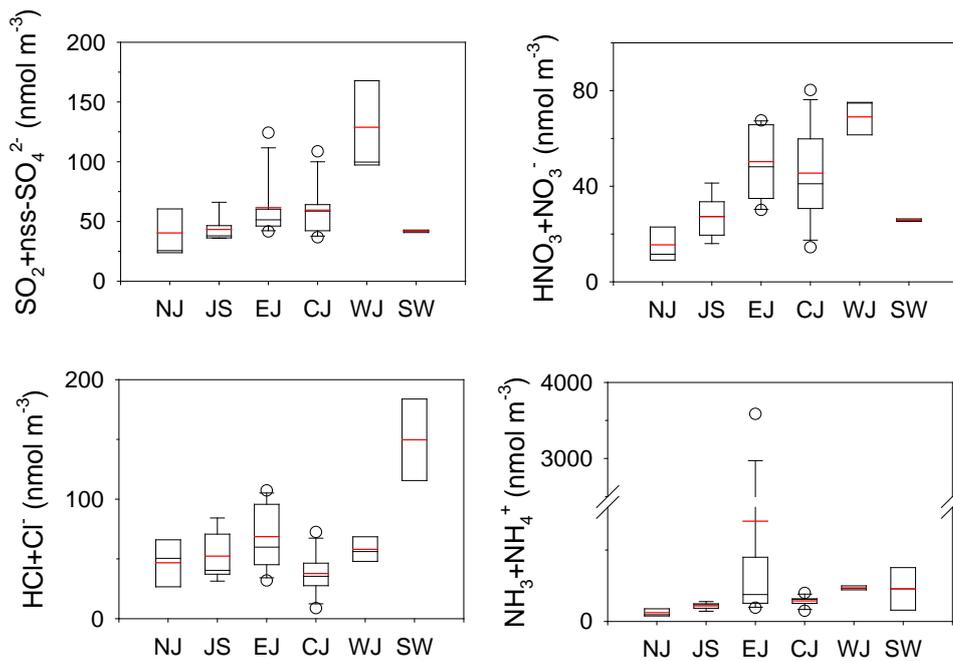


図5.2.3 ガス状および粒子状成分の総計の年平均濃度の分布 (地域区別)

### 5.2.2 経月変化および地域特性

地点別月平均濃度を見ると、ほとんどの成分は6つの地域区分(NJ, JS, EJ, CJ, WJ, SW)ごとに濃度変動パターンが似ていた。ここでは、外れ値の影響を小さくするため、地域区分別の中央値をもとに、月変化や包括的な地域特性を述べる。なお、気象庁の予報用語<sup>6)</sup>に従い、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

地域区分別のガス状成分濃度の経月変化を図5.2.4に示す。SO<sub>2</sub>(g)濃度は、冬季から春季に高くなる傾向がみられた。北部では夏季に低く冬季に増加する傾向が顕著であり、冬季の暖房等の使用に伴う地域汚染の影響が考えられる。SO<sub>2</sub>(g)濃度は西部で最も高く、アジア大陸に近いWJでは、大陸起源のSO<sub>2</sub>(g)の影響を強く受けている可能性がある。また、西部では活発な噴火活動が継続する桜島や阿蘇山、霧島山<sup>7)</sup>を起源とする火山ガスの影響を受けていることも考えられる。

HNO<sub>3</sub>(g)濃度は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た。春季から夏季にかけての高濃度は中央部および日本海側で特に顕著であった。春季から夏季にHNO<sub>3</sub>(g)濃度が高くなる要因としては、気温の上昇によって光化学反応が活発になり窒素酸化物からHNO<sub>3</sub>(g)への酸化が促進されるためや、揮発性粒子

であるNH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>などの解離が進むためなどが考えられる。

HCl(g)濃度は南西諸島を除いて冬季に低くなる傾向がみられた。HCl(g)の発生源としては、廃棄物焼却施設、火山ガス、海塩粒子のクロリンロスなどが考えられる。

NH<sub>3</sub>(g)濃度は、夏季に高く冬季に低くなる傾向がみられた。NH<sub>3</sub>(g)濃度の季節変化は、気温が上昇するとNH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>などの揮発性粒子が解離することによりガス化し、逆に気温が低下すると粒子化することによると考えられる。NH<sub>3</sub>(g)濃度の高い南西諸島および東部では地域汚染の影響が強いと考えられる。特に、東部の旭では、周辺に養豚場、養鶏場および肥料工場が立地するため、ごく近傍の発生源の影響を強く受けて一年中NH<sub>3</sub>(g)濃度が高い(月平均濃度：2290~6309 nmol m<sup>-3</sup>)。南西諸島では春季から夏季にかけての高濃度が顕著であるが、これは大里で極めて高い濃度を示したためである。大里も周辺の畜産業の影響を強く受けていると考えられる。

#### 5.2.2.2 粒子状成分

粒子状成分の地域別年平均当量濃度を図5.2.5に、年平均組成比を図5.2.6に示す。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、南西諸島で最も高かった。南西諸島ではNa<sup>+</sup>とCl<sup>-</sup>の占める割合が高く、海塩粒子の寄与が大きいと考えられる。南西諸島を除く

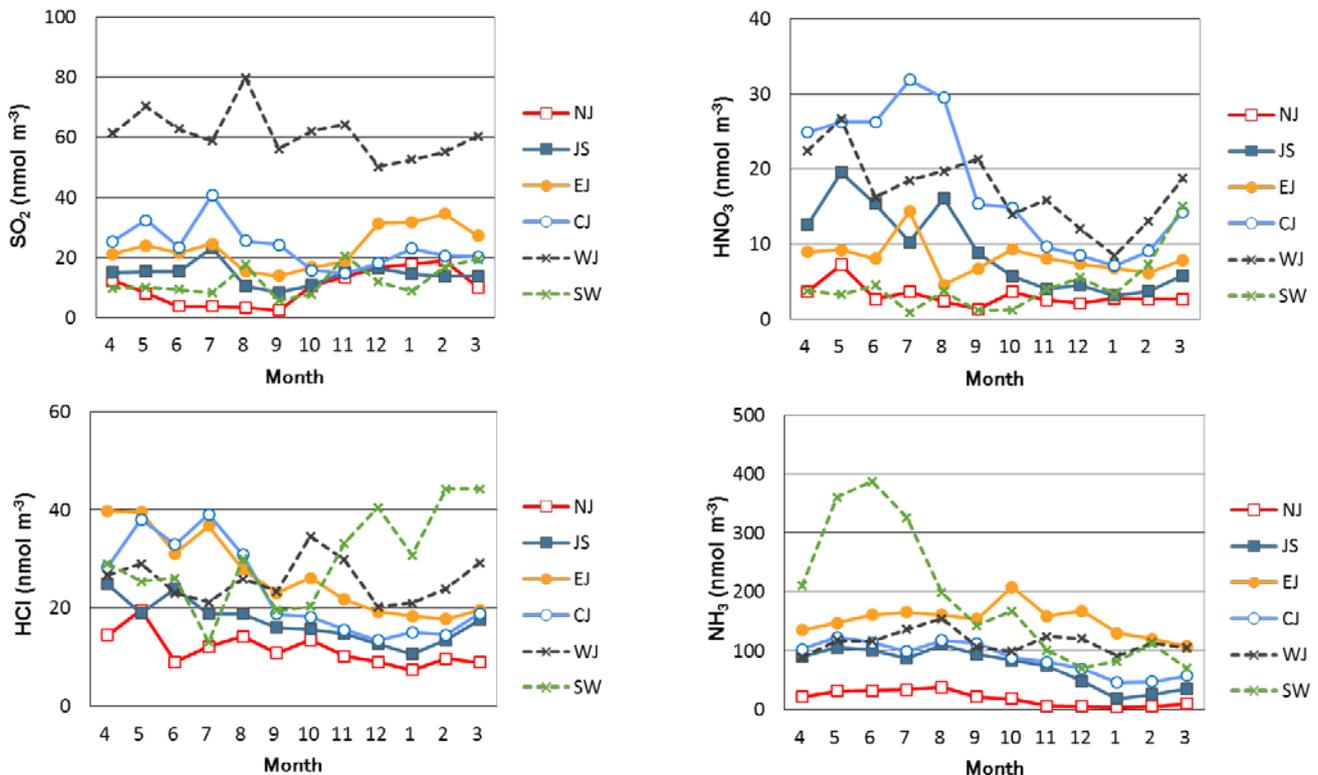


図5.2.4 ガス状成分濃度の経月変化（地域区分別）

地域では、陰イオンは $\text{SO}_4^{2-}$ 、陽イオンは $\text{NH}_4^+$ または $\text{Na}^+$ の占める割合が高かった。東部では、他の地域と比べて $\text{NO}_3^-$ の割合が高かった。

粒子状成分濃度の経月変化を図5.2.7に示す。

$\text{nss-SO}_4^{2-}$  (p)濃度は、西部と南西諸島を除いて春季から夏季にかけて高かった。また、西部で高く、北部で低い傾向がみられた。

$\text{NO}_3^-$  (p)濃度はどの地域も、夏季に低くなる傾向がみられた。夏季の低濃度は、 $\text{NH}_4\text{NO}_3$ などの揮発性粒子が解離した影響が考えられる。

$\text{NH}_4^+$  (p)濃度は西部で高い傾向がみられた。 $\text{NH}_4^+$  (p)濃度の変動は、 $\text{nss-SO}_4^{2-}$  (p)濃度とよく似ていた。

$\text{nss-Ca}^{2+}$  (p)濃度は春季に高い傾向がみられた。2016年度は4~5月に気象庁によって黄砂が観測されており<sup>8)</sup>、黄砂の飛来の影響を受けて $\text{nss-Ca}^{2+}$  (p)濃度は高くなったと考えられる。また、年平均 $\text{Ca}^{2+}$  (p)濃度が最も高い市原では、近傍のセメント工場や石灰工場の影響を受けている可能性が高いことから、 $\text{nss-Ca}^{2+}$  (p)の高濃度は、黄砂以外に地域的発生源の影響も大きいと考えられる。

$\text{K}^+$  (p)濃度は、南西諸島や西部においてやや高かった。 $\text{K}^+$  (p)は、海塩粒子やバイオマス燃焼の影響が考えられる。

$\text{Na}^+$  (p)、 $\text{Cl}^-$  (p)および $\text{Mg}^{2+}$  (p)濃度は、1年を通してSWで高かった。南西諸島の調査地点は海に近いので、海塩粒子の影響が大きいと考えられる。

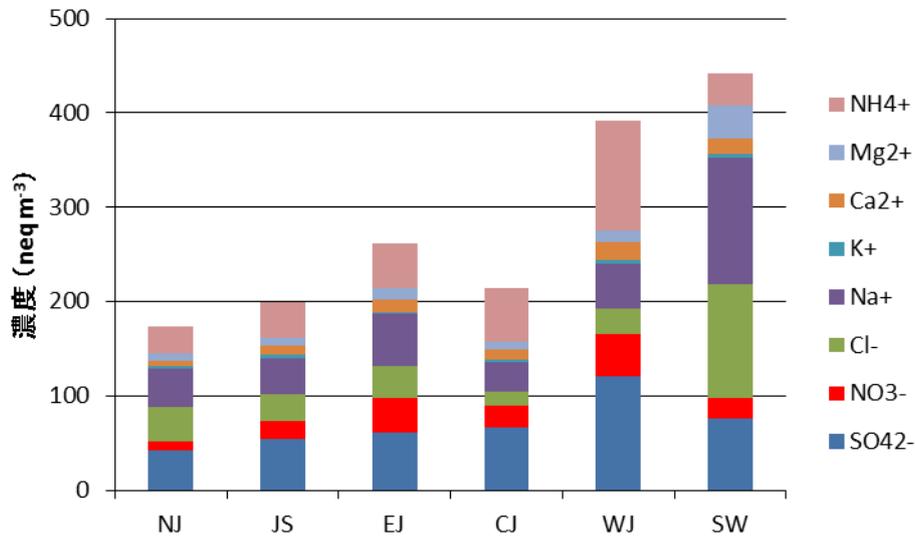


図5.2.5 粒子状成分の年平均当量濃度（地域区分別）

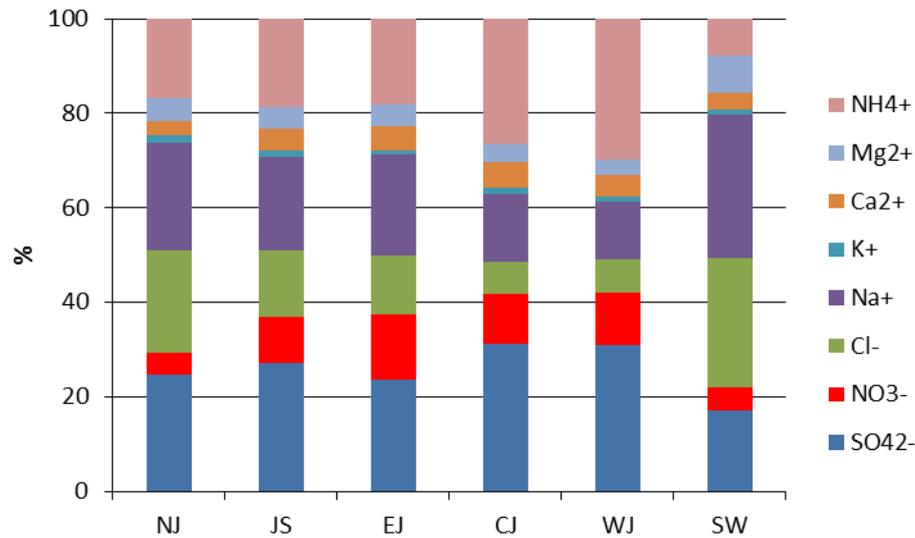


図5.2.6 粒子状成分の年平均組成比（地域区分別）



図5.2.7 粒子状成分濃度の経月変化 (地域区別)

### 5.2.2.3 ガス状および粒子状成分の総計

非海塩由来の全硫黄( $\text{SO}_2(\text{g})+\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ ), 全硝酸( $\text{HNO}_3(\text{g})+\text{NO}_3^-(\text{p})$ ), 全塩化物( $\text{HCl}(\text{g})+\text{Cl}^-(\text{p})$ ), 全アンモニア( $\text{NH}_3(\text{g})+\text{NH}_4^+(\text{p})$ )濃度の経月変化を図5.2.8に示す。

非海塩由来の全硫黄( $\text{SO}_2(\text{g})+\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ )濃度はどの地域も、春季から夏季にかけて高い傾向がみられた。地域分布をみると、越境汚染や火山ガスの影響を受けやすいと考えられる西部で高かった。

全硝酸( $\text{HNO}_3(\text{g})+\text{NO}_3^-(\text{p})$ )濃度は、西部以外の地域では、春季に高くなる傾向がみられた。

全塩化物( $\text{HCl}(\text{g})+\text{Cl}^-(\text{p})$ )濃度の季節変化は明確でなかった。南西諸島では1年を通して高濃度であった。

全アンモニア( $\text{NH}_3(\text{g})+\text{NH}_4^+(\text{p})$ )濃度は、東部と西部以外の地域では、春季から夏季に高い傾向がみられた。地域分布をみると、周辺の発生源からのアンモニアの寄与が大きいと考えられる南西諸島で高く、北部で低かった。

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

ここでは、インパクタを使用して粗大粒子と $\text{PM}_{2.5}$ とを粒径別に捕集した利尻、母子里、札幌北、射水、加須、静岡北安東、海南、鹿児島および辺戸岬の結果について述べる。 $\text{PM}_{2.5}$ イオン成分の地点別年平均質量濃度を図5.2.9に、各地点の組成比を図5.2.10に示す。参考値である射水と鹿児島を除くと、年平均濃度の範囲は $2.2\sim 5.0\ \mu\text{g m}^{-3}$ (平均値 $3.7\ \mu\text{g m}^{-3}$ )であり、最高値は加須、次いで

で海南、最低値は母子里であった。どの地点も $\text{SO}_4^{2-}$ の割合が最も高く、 $\text{PM}_{2.5}$ イオン質量濃度のうち48~68%を占めた。どの地点も $\text{SO}_4^{2-}$ に次いで多いのは $\text{NH}_4^+$ (15~24%)であるが、加須および札幌北は他の地点と比べて $\text{NO}_3^-$ の割合が高く、辺戸岬は $\text{Na}^+$ の割合が高い傾向がみられた。

各地点における粒径別粒子状成分の年平均濃度を表5.2.4に示す。イオン成分別にみると、 $\text{PM}_{2.5}$ 領域に優位に存在するのは $\text{SO}_4^{2-}$ と $\text{NH}_4^+$ であり、粗大領域に優位に存在するのは $\text{Cl}^-$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ および $\text{Mg}^{2+}$ であった。 $\text{NO}_3^-$ と $\text{K}^+$ は両方の領域に存在した。

$\text{PM}_{2.5}$ 成分濃度の経月変化を図5.2.11に示す。 $\text{PM}_{2.5}$ 中の $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ 濃度は、海南、鹿児島、辺戸岬で高かった。 $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ 濃度は、春季から夏季にかけて高くなる傾向がみられた。 $\text{NO}_3^-(\text{p})$ 濃度は加須および札幌北で高かった。ほとんどの地点で冬季に濃度が増加する傾向がみられた。 $\text{nss-Ca}^{2+}(\text{p})$ 濃度は、春季に高くなる傾向がみられた。 $\text{Na}^+(\text{p})$ および $\text{Mg}^{2+}(\text{p})$ 濃度は1年を通して辺戸岬で高かったが、どの地点も季節変化は明瞭でなかった。

全粒子状物質に占める $\text{PM}_{2.5}$ の割合の経月変化を図5.2.12に示す。 $\text{SO}_4^{2-}$ および $\text{NH}_4^+$ は1年を通して $\text{PM}_{2.5}$ の割合が高く、 $\text{Cl}^-$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ および $\text{Mg}^{2+}$ は1年を通して $\text{PM}_{2.5}$ の割合が低かった。

$\text{NO}_3^-$ は夏季に $\text{PM}_{2.5}$ の割合が低く、冬季に $\text{PM}_{2.5}$ の割合が高い傾向がみられた。 $\text{NO}_3^-$ の全粒子状物質に占める $\text{PM}_{2.5}$ の割

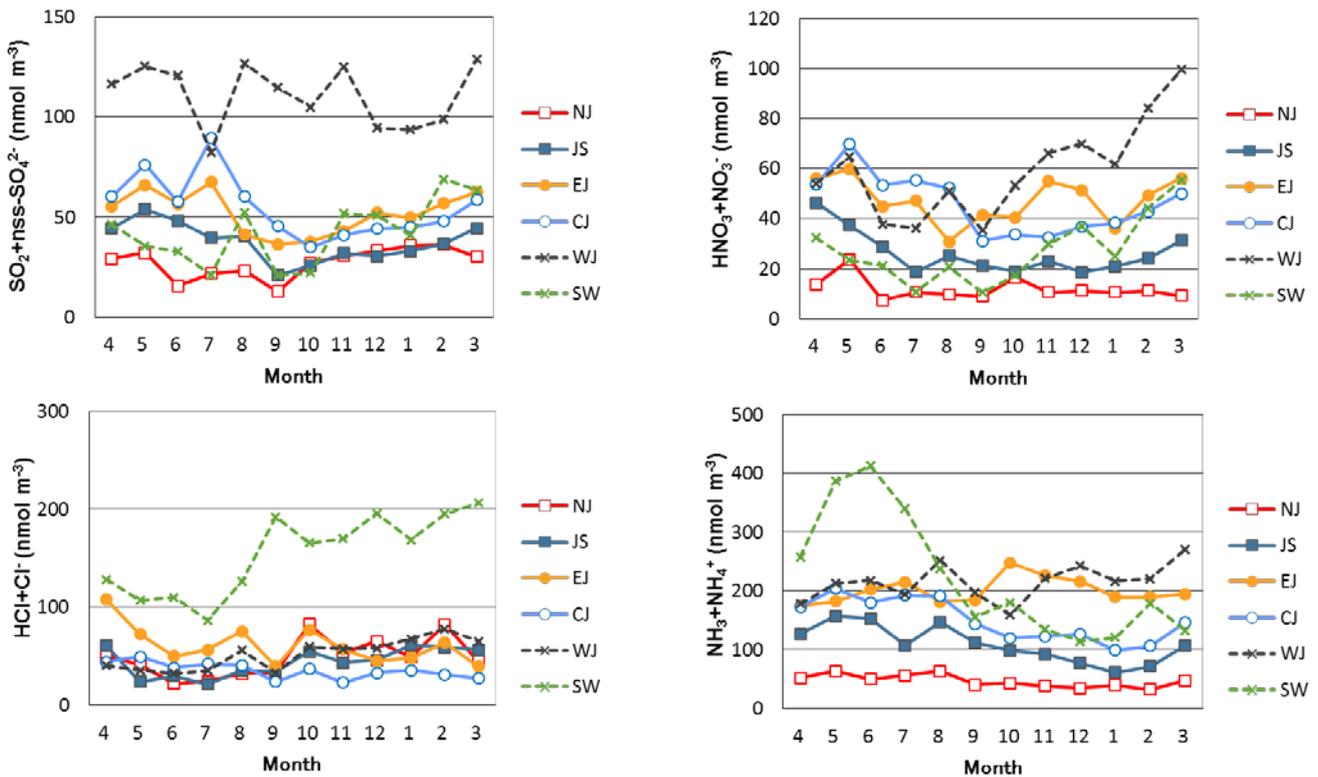


図5.2.8 ガス状および粒子状成分濃度の総計の経月変化（地域区別）

合に季節変化がみられる要因は、 $\text{NH}_4\text{NO}_3$ 等の $\text{NO}_3^-$ を含む粒子の温度依存性、海塩や黄砂粒子への $\text{HNO}_3$ の吸着、発生源の影響等が関係していると考えられる。特に、 $\text{PM}_{2.5}$ 中の $\text{NO}_3^-$ 濃度も $\text{PM}_{2.5}$ の割合も冬季に顕著に高い加須および札幌北では、窒素酸化物濃度との関係や発生源に興味を持たれる。

$\text{K}^+$ は辺戸岬では季節に関係なく $\text{PM}_{2.5}$ の割合が50%以下であった。これは辺戸岬の $\text{K}^+$ の起源が主に海塩であるためと考えられる。他の地点では、夏季に $\text{K}^+$ の $\text{PM}_{2.5}$ の割合は低くなっているが、夏季以外の $\text{PM}_{2.5}$ の割合は50%以上であり、発生源の影響を受けている可能性がある。

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

－ 引用文献 －

- 1) 環境省：平成28年度酸性雨調査結果について、  
[http://www.env.go.jp/air/acidrain/monitoring/h27/post\\_24.html](http://www.env.go.jp/air/acidrain/monitoring/h27/post_24.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

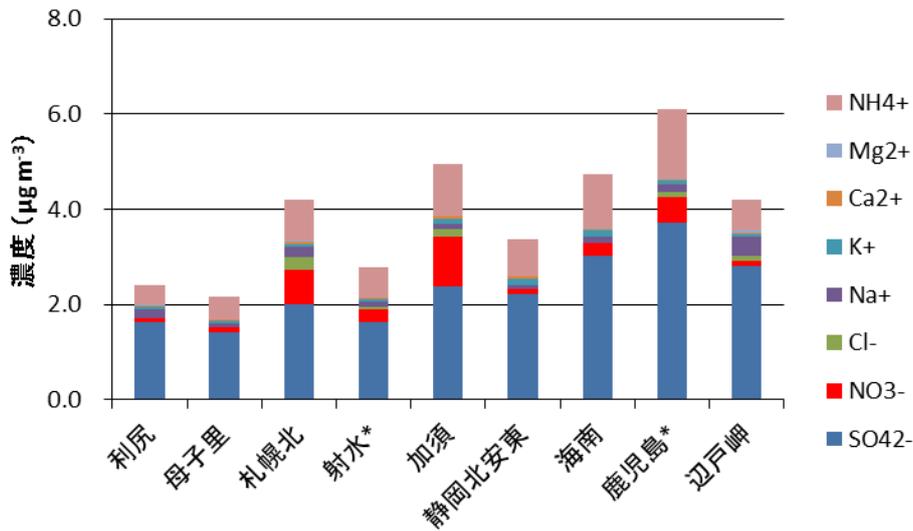


図5.2.9  $\text{PM}_{2.5}$ イオン成分の年平均質量濃度（調査地点別）（\*：参考値）

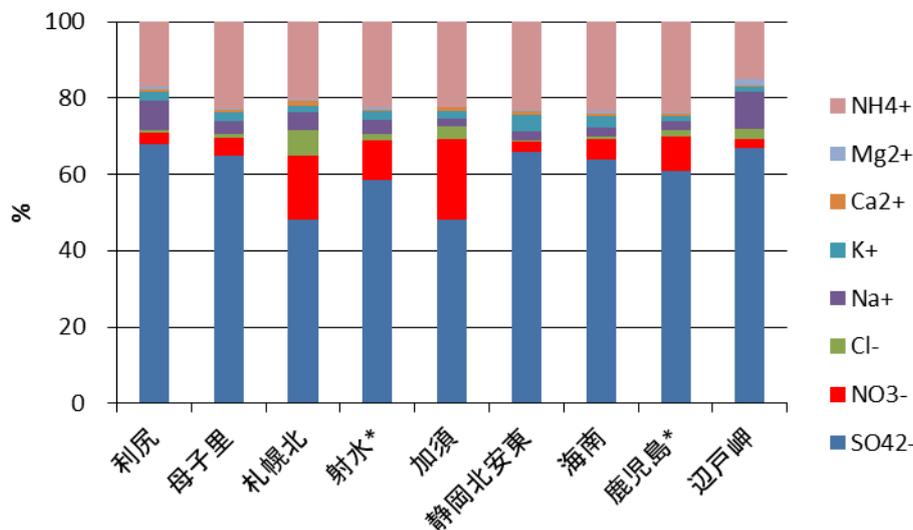


図5.2.10  $\text{PM}_{2.5}$ イオン成分の年平均組成比（調査地点別）（\*：参考値）

- 3) Acid Deposition Monitoring Network in East Asia : 東アジアにおけるフィルターパック法に関する技術資料, [http://www.eanet.cc/jpn/docea\\_f.html](http://www.eanet.cc/jpn/docea_f.html)
- 4) 全国環境研協議会 酸性雨広域大気汚染調査研究部会 : 第5次酸性雨全国調査報告書（平成27年度）. 全国環境研会誌, **42**(3), 2-45, 2017
- 5) M. Aikawa, T. Hiraki, M. Yamagami, M. Kitase, Y. Nishikawa, I. Uno: Regionality and particularity of a survey site form the viewpoint of the SO<sub>2</sub> and SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> concentrations in ambient air in a 250-km × 250-km

- region of Japan. *Atmos. Environ.*, **42**, 1389-1398, 2008
- 6) 気象庁：予報用語, [http://www.jma.go.jp/jma/kishou/yougo/yougo\\_hp/mokuji.html](http://www.jma.go.jp/jma/kishou/yougo/yougo_hp/mokuji.html)
- 7) 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](http://www.data.jma.go.jp/svd/vois/data/tokyo/STOCK/monthly_v-act_doc/annual.htm)
- 8) 気象庁：[地球環境のデータバンク] 黄砂, [http://www.data.jma.go.jp/gmd/env/kosahp/kosa\\_data\\_index.html](http://www.data.jma.go.jp/gmd/env/kosahp/kosa_data_index.html)



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

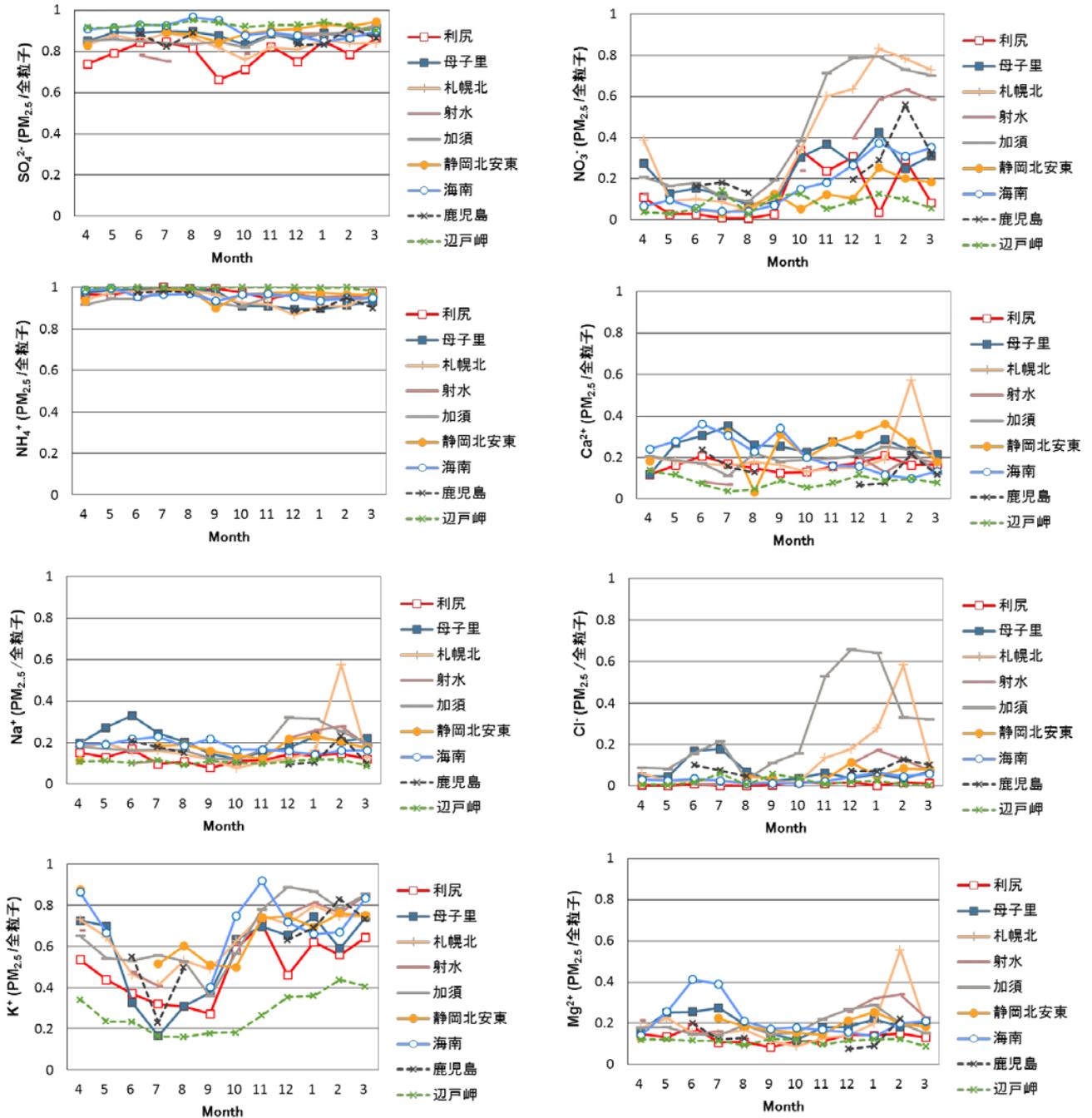


図5.2.12 全粒子状物質に占めるPM<sub>2.5</sub>の割合の経月変化（調査地点別）

### 5.3 乾性沈着量の推計

#### 5.3.1 乾性沈着推計ファイル

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

このモデルは以下の式で表される。

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

F: 沈着面への沈着物質のフラックス(沈着量)

$V_d(z)$ : 基準高さzにおける沈着速度

C: 沈着物質の大気中濃度

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

$V_d$ の算出には、野口らが表計算ソフト(MS Excel)のファイルとして開発した乾性沈着推計ファイルVer. 4-2を用いた<sup>2)</sup>。このファイルは、北海道立総合研究機構環境科学研究センターのHPで公開されており<sup>3)</sup>、ダウンロードが可能である。ファイルの詳細についてはそちらを参照していただきたい。

この乾性沈着推計ファイルは、現在も改良が続けられているため、今回用いたVer. 4-2による計算は、過去に報告した計算結果と必ずしも一致しない。また、乾性沈着推計ファイルVer. 4-2では、市街地の粒子状物質の $V_d$ に上限値が設定されているが、本報告では上限値を設定せずに計算した。

#### 5.3.2 乾性沈着量の推計方法

乾性沈着量の推計は、FP法で大気濃度の測定を実施した31地点について実施した。また、FP法調査地点のうち自動測定機またはパッシブ法で $\text{NO}_2$ 、 $\text{NO}$ 測定を実施した17地点は、 $\text{NO}_2$ 、 $\text{NO}$ 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<sup>4)</sup>、大気汚染常時監視測定局の1時間値を用いた。

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

$V_d$ は表面の状況により異なるため、土地利用状況別に、粒子状物質( $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{NH}_4^+$ 、以後(p)をつけて表示)およびガス状物質( $\text{SO}_2$ 、 $\text{HNO}_3$ 、 $\text{NH}_3$ 、以後(g)をつけて表示、 $\text{NO}$ 、 $\text{NO}_2$ )の $V_d$ をそれぞれ算出した。

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

乾性沈着量は、土地利用状況別 $V_d$ を調査地点周辺の土地利用割合で加重平均し、大気濃度との積により求めた。環境省の長期モニタリング報告書(平成15~19年度)<sup>5)</sup>では、測定局周辺約1kmの森林と草地の利用割合で計算されているが、本報告書では、測定局周辺半径約20kmを推計対象として、土地利用の分類を市街地(建物用地、幹線交通用地、その他)、森林地域(森林)、農地(田、その他の農用地)、草地(ゴルフ場などの草地、荒地)、水面(河川および湖沼、海浜)とした。土地利用状況によって $V_d$ が大きく異なるため(表5.3.1)、土地利用の割合は推計結果に大きな影響を及ぼす。市街地は $V_d$ 推計のためのパラメーターが十分に検証されていないなど不確実な部分が多いが、調査地点の多くが市街地にあることから、土地利用分類を上記のように設定した。また、気象データの測定地点が、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<sup>6)</sup>からFP法の測定地点周辺の海を除く半径20kmにかかるメッシュ値を抽出して求めた。最多頻度の季節が冬(積雪あり)となった月については、農地、草地の $V_d$ の代わりに、積雪の $V_d$ を推計に用いた。なお、これらの条件設定については、さらに検討が必要である。

大気濃度は、FP法で測定した $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ 、 $\text{NO}_3^-(\text{p})$ 、 $\text{NH}_4^+(\text{p})$ 、 $\text{SO}_2(\text{g})$ 、 $\text{HNO}_3(\text{g})$ 、 $\text{NH}_3(\text{g})$ 、自動測定機またはパッシブ法で測定した $\text{NO}_2$ 、 $\text{NO}$ の月平均濃度を用いた。月ごとに乾性沈着量を求め、それらを合計して年間乾性沈着量を算出した。

FP法では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 $\text{NH}_4^+(\text{p})$ 濃度を用いて乾性沈着量を算出している。そのため、これらの乾性沈着量はFP法におけるアーティファクトの影響を受けている可能性がある。

表5.3.1 土地利用状況別の平均沈着速度(2016年度)

	(単位: $\text{cm s}^{-1}$ )							
	$\text{SO}_4^{2-}(\text{p})$	$\text{NO}_3^-(\text{p})$	$\text{NH}_4^+(\text{p})$	$\text{SO}_2(\text{g})$	$\text{HNO}_3(\text{g})$	$\text{NH}_3(\text{g})$	$\text{NO}_2(\text{g})$	$\text{NO}(\text{g})$
市街地	0.17	0.17	0.17	0.18	4.5	0.047	0.031	5.2E-09
森林地域	0.58	0.83	0.64	1.3	4.2	0.54	0.11	0.0025
農地	0.14	0.14	0.14	0.65	1.3	0.39	0.15	0.0021
草地	0.17	0.17	0.17	0.69	1.7	0.36	0.10	0.0021
積雪	0.10	0.10	0.10	0.42	0.43	0.47	0.0014	0.00029
水面	0.088	0.088	0.088	0.29	0.29	0.31	0.0012	0.00023

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 $V_d$  ( $\text{cm s}^{-1}$ )の年間平均値

5.3.3 乾性沈着量の推計結果

各地点の年間乾性沈着量の推計結果は、表5.3.2のとおりである。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、SO<sub>2</sub>(g)が0.9(伊自良湖)～23.8(大分)(平均値6.5)mmol m<sup>-2</sup> y<sup>-1</sup>、HNO<sub>3</sub>(g)が1.0(母子里)～44.0(神戸須磨)(平均値12.7)mmol m<sup>-2</sup> y<sup>-1</sup>、NH<sub>3</sub>(g)が2.3(母子里)～582.2(旭)(平均値32.7)mmol m<sup>-2</sup> y<sup>-1</sup>だった。

粒子状物質の乾性沈着量は、nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p)が0.5(伊自良湖)～8.6(辺戸岬)(平均値3.2)mmol m<sup>-2</sup> y<sup>-1</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>(p)が0.2(伊自良湖)～9.1(宮崎)(平均値3.6)mmol m<sup>-2</sup> y<sup>-1</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>(p)が0.9(伊自良湖)～18.0(宮崎)(平均値5.8)

mmol m<sup>-2</sup> y<sup>-1</sup>だった。

ガス状物質と粒子状物質を合わせた乾性沈着量は、非海塩由来硫黄成分(SO<sub>2</sub>(g)+nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>(p))が1.4(伊自良湖)～31.2(大分)(平均値9.7)mmol m<sup>-2</sup> y<sup>-1</sup>、NO<sub>x</sub>(=NO<sub>2</sub>+NO)を含まない酸化態窒素成分(HNO<sub>3</sub>(g)+NO<sub>3</sub><sup>-</sup>(p))が1.4(母子里)～50.5(神戸須磨)(平均値16.3)mmol m<sup>-2</sup> y<sup>-1</sup>、還元態窒素成分(NH<sub>3</sub>(g)+NH<sub>4</sub><sup>+</sup>(p))が3.7(伊自良湖)～588.7(旭)(平均値38.5)mmol m<sup>-2</sup> y<sup>-1</sup>だった。

NO<sub>x</sub>測定地点のNO<sub>2</sub>乾性沈着量は、0.6(利尻)～19.2(神戸須磨)(平均値6.7)mmol m<sup>-2</sup> y<sup>-1</sup>、NO乾性沈着量は0.002(辺戸岬, 利尻)～0.036(神戸須磨)(平均値0.018)mmol m<sup>-2</sup> y<sup>-1</sup>だった。酸化態窒素成分にNO<sub>x</sub>を加えた窒素酸化物成分は2.1(母子里)～69.7(神戸須磨)(平均値21.8)mmol m<sup>-2</sup> y<sup>-1</sup>だった。

表5.3.2 年間乾性沈着量(2016年度地点別)

No.	都道府県市	地点名	SO <sub>2</sub>	HNO <sub>3</sub>	NH <sub>3</sub>	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	NO <sub>2</sub>	NO
			(g)	(g)	(g)	(p)	(p)	(p)	(p)	(g)	(g)
			mmol m <sup>-2</sup>								
1	北海道	利尻	1.7	3.1	3.1	2.4	2.9	1.6	3.5	0.6	0.002
2	北海道	母子里	1.1	1.0	2.3	0.8	0.9	0.4	1.6	0.7	0.035 PS
3	北海道	札幌北	6.9	6.0	4.5	1.9	2.1	2.0	4.1	6.7	0.019
4	新潟県	新潟曽和	2.1	6.2	6.4	1.4	1.6	1.2	2.1	7.2	0.012
5	新潟県	長岡	3.2	9.3	10.8	2.6	2.8	2.8	4.9	5.4	0.011
6	群馬県	前橋	2.5	18.3	44.0	2.0	2.1	3.5	4.7	6.9	0.021
7	埼玉県	加須	2.2	17.3	11.1	1.3	1.4	1.7	2.9	10.2	0.012
8	千葉県	旭	5.1	5.8	582.2	2.2	2.6	4.4	6.5	—	—
9	千葉県	勝浦	10.4	7.3	16.6	4.7	5.6	6.4	6.9	—	—
10	千葉県	清澄	15.2	8.7	14.6	4.7	5.3	6.1	6.6	—	—
11	千葉県	市原	13.0	9.1	9.7	2.2	2.5	3.7	3.0	—	—
12	千葉県	佐倉	4.8	11.2	10.6	2.1	2.3	2.6	3.1	—	—
13	長野県	長野	3.1	14.8	12.9	2.6	2.7	2.0	5.0	3.9	0.032
14	静岡県	静岡北安東	3.2	9.7	7.6	2.0	2.1	1.8	3.8	—	—
15	富山県	射水	(2.7)	(5.8)	(7.7)	(1.1)	(1.2)	(0.9)	(2.2)	8.7	0.026
16	石川県	金沢	2.9	7.0	3.4	1.9	2.1	1.2	3.0	—	—
17	福井県	福井	6.3	12.6	9.4	2.9	3.2	2.7	4.9	8.0	0.020
18	岐阜県	伊自良湖	0.9	1.5	2.8	0.5	0.5	0.2	0.9	1.1	0.013
19	愛知県	豊橋	7.9	24.9	19.1	4.3	4.7	7.3	8.8	—	—
20	名古屋市	名古屋南	3.3	25.8	5.2	1.8	1.9	1.9	3.1	—	—
21	和歌山県	海南	3.5	13.8	5.6	2.2	2.3	1.8	4.4	10.2	0.006
22	兵庫県	神戸須磨	12.9	44.0	6.2	4.2	4.6	6.5	8.1	19.2	0.036
23	鳥取県	湯梨浜	8.7	5.7	14.8	4.3	4.8	4.1	8.6	3.6	0.018
24	福岡県	太宰府	8.6	21.5	12.9	4.4	4.6	5.5	9.0	14.0	0.026
25	大分県	大分久住	(16.6)	(7.4)	(5.5)	(2.8)	(2.8)	(1.3)	(5.1)	—	—
26	大分県	大分	23.3	30.8	9.9	7.4	7.7	5.2	13.4	—	—
27	宮崎県	宮崎	14.3	13.1	23.3	7.8	8.3	9.1	18.0	—	—
28	鹿児島県	鹿児島	(13.0)	(8.4)	(12.2)	(2.8)	(2.9)	(2.6)	(6.3)	—	—
29	沖縄県	大里	2.6	6.1	27.3	3.0	3.7	2.7	3.6	—	—
30	沖縄県	辺戸岬	6.5	8.4	7.6	8.6	11.4	8.9	11.1	1.0	0.002
最低値			0.9	1.0	2.3	0.5	0.5	0.2	0.9	0.6	0.002
最高値			23.8	44.0	582.2	8.6	11.4	9.1	18.0	19.2	0.036
中央値			4.8	9.3	9.9	2.4	2.7	2.7	4.7	6.8	0.018
平均値			6.5	12.7	32.7	3.2	3.6	3.6	5.8	6.7	0.018

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。

### 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25地点について、湿性沈着(以後(wet)をつけて表示)と乾性沈着を合わせた総沈着量を図5.3.1に示す。ここで、総沈着量は、非海塩由来硫黄成分( $\text{SO}_2(\text{g})$ ,  $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ ,  $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{wet})$ ), 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、 $\text{NO}_x$ の乾性沈着量は、 $\text{NO}_2$ の乾性沈着量の年平均値が有効となった14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、非海塩由来硫黄成分が10.4(長野)~113.1(大分)(平均値29.3)  $\text{mmol m}^{-2} \text{y}^{-1}$ , 酸化態窒素成分が18.3(利尻)~68.3(神戸須磨)(平均値40.7)  $\text{mmol m}^{-2} \text{y}^{-1}$ , 還元態窒素成分が20.9(利尻)~665.3(旭)(平均値66.7)  $\text{mmol m}^{-2} \text{y}^{-1}$ だった。 $\text{NO}_x$ の乾性沈着量を含めた酸化態窒素成分は、18.9(利尻)~87.6(神戸須磨)(平均値47.0)  $\text{mmol m}^{-2} \text{y}^{-1}$ だった。

総沈着量に占める乾性沈着量の比率(=乾性沈着量/(乾性沈着量 + 湿性沈着量)×100(%))は、非海塩由来硫

黄成分が4%(伊自良湖)~65%(辺戸岬)(平均値37%),  $\text{NO}_x$ を除く酸化態窒素成分が3%(伊自良湖)~74%(神戸須磨)(平均値42%), 還元態窒素成分が8%(伊自良湖)~88%(旭)(平均値44%)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25地点を6つの地域区分(北部(NJ, 2地点), 日本海側(JS, 5), 東部(EJ, 7), 中央部(CJ, 7), 西部(WJ, 3), 南西諸島(SW, 1))に分類して集計した年間総沈着量の中央値を図5.3.2に示す。 $\text{NO}_x$ 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、非海塩由来硫黄成分はWJで、酸化態窒素成分は西部, 日本海側で、還元態窒素成分は西部, 日本海側, 東部で多かった。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。南西諸島では、いずれの成分も粒子の乾性沈着量が他の地域区分に比べ多かった。

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、非海塩由来硫黄成分は南西諸島で大きく、酸化態窒素成分は日本海側で、還元態窒素成分は日本海側,

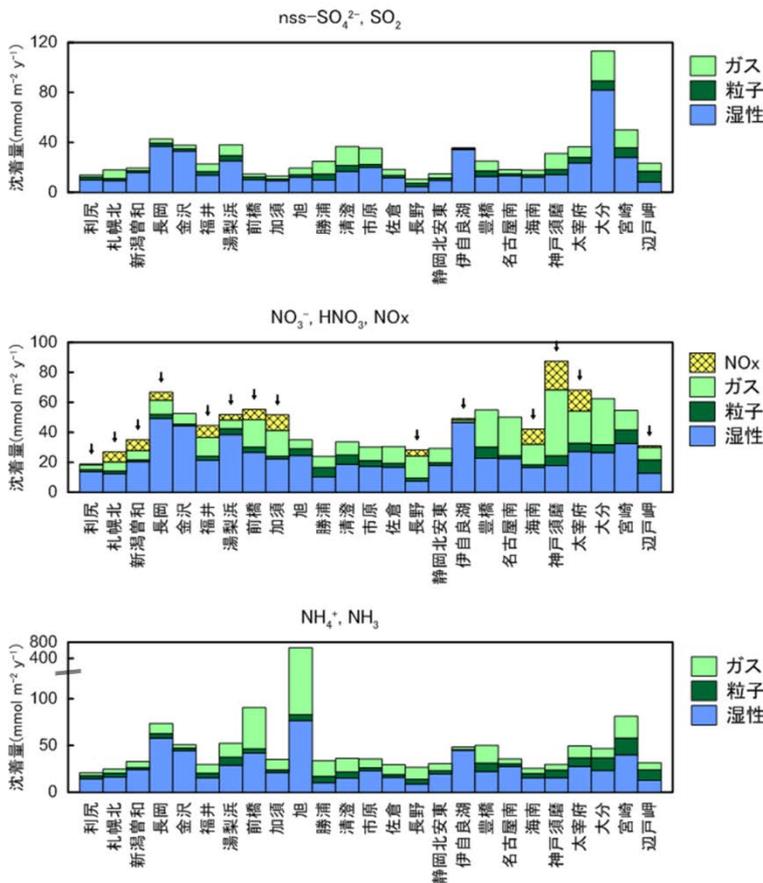


図5.3.1 調査地点の年沈着量(2016年度)

注)湿性沈着およびフィルターパック法による対象測定項目の年間値がすべて有効となった調査地点  
注) $\text{NO}_x$ ( $\text{NO}+\text{NO}_2$ )は、自動測定器または0式パッシブ法による測定を実施した地点のみ表示(図内↓印)

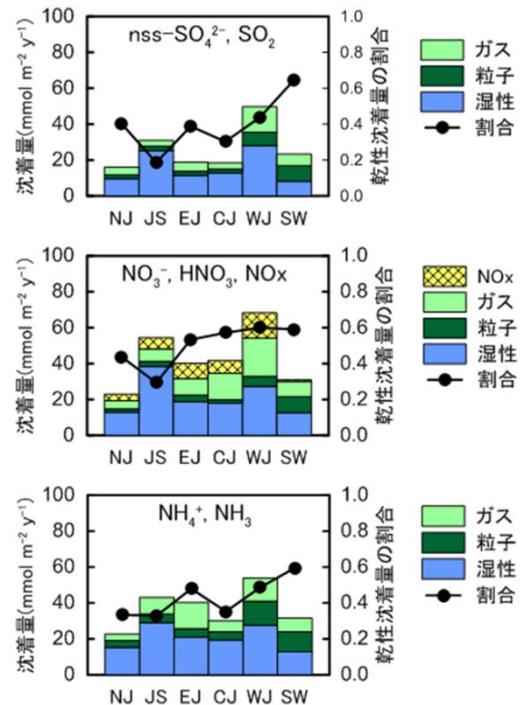


図5.3.2 各地域区別の年沈着量(2016年度中央値)

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

北部，中央部で小さかった。

### 5.3.5 乾性沈着量の経年変化

FP法による大気濃度測定の実施を継続して実施している地点のうち，札幌北，新潟曾和，加須，豊橋，神戸須磨，太宰府，辺戸岬の7地点について，2003年度からの乾性沈着量の経年推移を比較した(図5.3.3)。

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， $\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{p})$ と $\text{NH}_4^+(\text{p})$ 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。 $\text{NO}_3^-(\text{p})$ は，豊橋，神戸須磨，太宰府，辺戸岬で増加傾向を示していたが，ここ数年は横ばいまたは減少している。

ガス状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。

### － 引用文献 －

- 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，**30**，23-28，2003
- 3) 全国環境研協議会：乾性沈着推計ファイルVer.4-2 [http://www.ies.hro.or.jp/seisakuka/acid\\_rain/kanseichinchaku/kanseichinchaku.htm](http://www.ies.hro.or.jp/seisakuka/acid_rain/kanseichinchaku/kanseichinchaku.htm)
- 4) (財)気象業務支援センター：気象観測月報2016年3月 - 2017年4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>

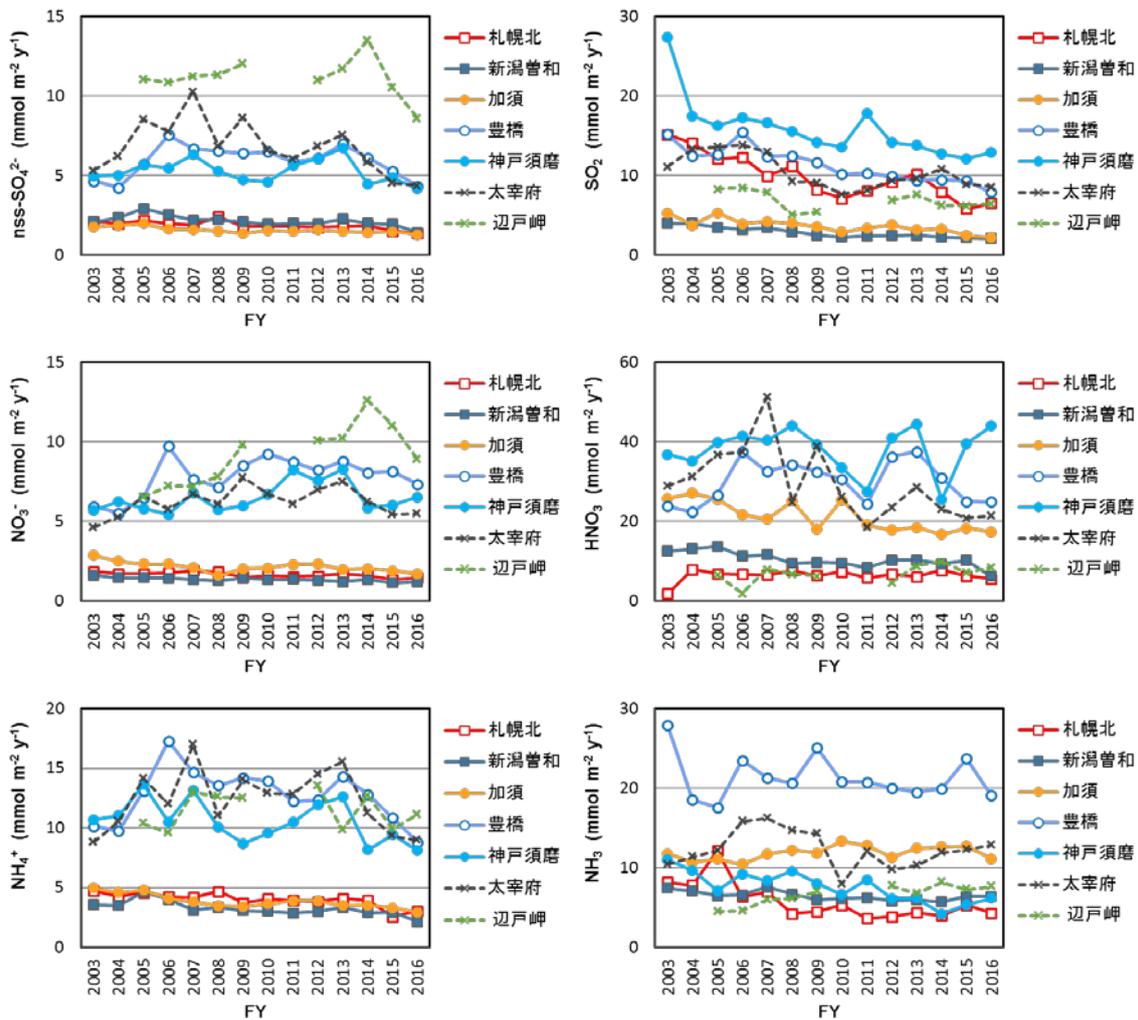


図5.3.3 継続調査地点における乾性沈着量の経年変化 (2003～2016年度)

## 6. パッシブ法によるガス成分濃度

### 6.1 経緯

パッシブサンプラー法ではFP法で測定できないNO<sub>x</sub>, NO<sub>x</sub>, O<sub>3</sub>と、FP法と共通で測定できるNH<sub>3</sub>濃度の測定を行っている。パッシブサンプラーは小型で電源が不要なため設置場所の自由度が高いことと安価なことから多地点の測定に有用な方法である。

FP法ではNH<sub>3</sub>(g)とアンモニウム塩粒子(NH<sub>4</sub><sup>+</sup>(p))を分離して測定する。しかしアーティファクトによりNH<sub>4</sub><sup>+</sup>(p)の一部はNH<sub>3</sub>(g)に変換されて測定される。パッシブサンプラーは原理的にはNH<sub>3</sub>(g)のみを捕捉するため、FP法の測定結果への検討データともなる。

測定値の定量下限値は全項目でEANETにおける定量下限値(大気中濃度0.1 ppb)を用いた。データの有効判定はFP法と同様に、月期間適合度60%以上を有効とした。測定方法については第5次調査と同様とした。調査は通年で行い、測定周期は1ヶ月(4週間または6週間)とした。

#### 地点情報

第5次調査までは地域ごとの評価を行っていたが、項目によっては地点数が少ない地域もあるため、第6次調査では地点毎の評価とする。図6.1.1に各項目の測定地点と年平均濃度を示す。O<sub>3</sub>は比較的地域差が少ない一方でNO<sub>x</sub>とNH<sub>3</sub>は地点ごとに大きく異なり、測定地点付近の排出量の影響が大きいがうかがえる。

項目ごとの地点数と欠測数を表6.1.1に示す。2016年度はNO<sub>x</sub>, O<sub>3</sub>, NH<sub>3</sub>がそれぞれ12, 11, 20地点だった。欠測の理由は月期間適合度が60%未満、年期間適合度が80%未満もしくはサンプラー紛失や測定上の問題などである。年間適合度が80%未満となったのは福島天栄のNH<sub>3</sub>だった。

### 6.2 測定結果

その他の測定結果の図表は以下のとおりである。

- ・ 月平均NO<sub>x</sub>濃度(図6.2.1)
- ・ 月平均O<sub>3</sub>濃度(図6.2.2)
- ・ 月平均PO濃度(図6.2.3)
- ・ 月平均NH<sub>3</sub>濃度(図6.2.4)
- ・ 旭以外の月平均NH<sub>3</sub>濃度(図6.2.5)
- ・ NO<sub>x</sub>の年平均濃度と周辺排出量の相関図(図6.2.6)
- ・ NH<sub>3</sub>の年平均濃度と周辺排出量の相関図(図6.2.7)
- ・ 表6.1.1: 項目別の欠測数
- ・ 表6.2.1: 全地点の年平均濃度

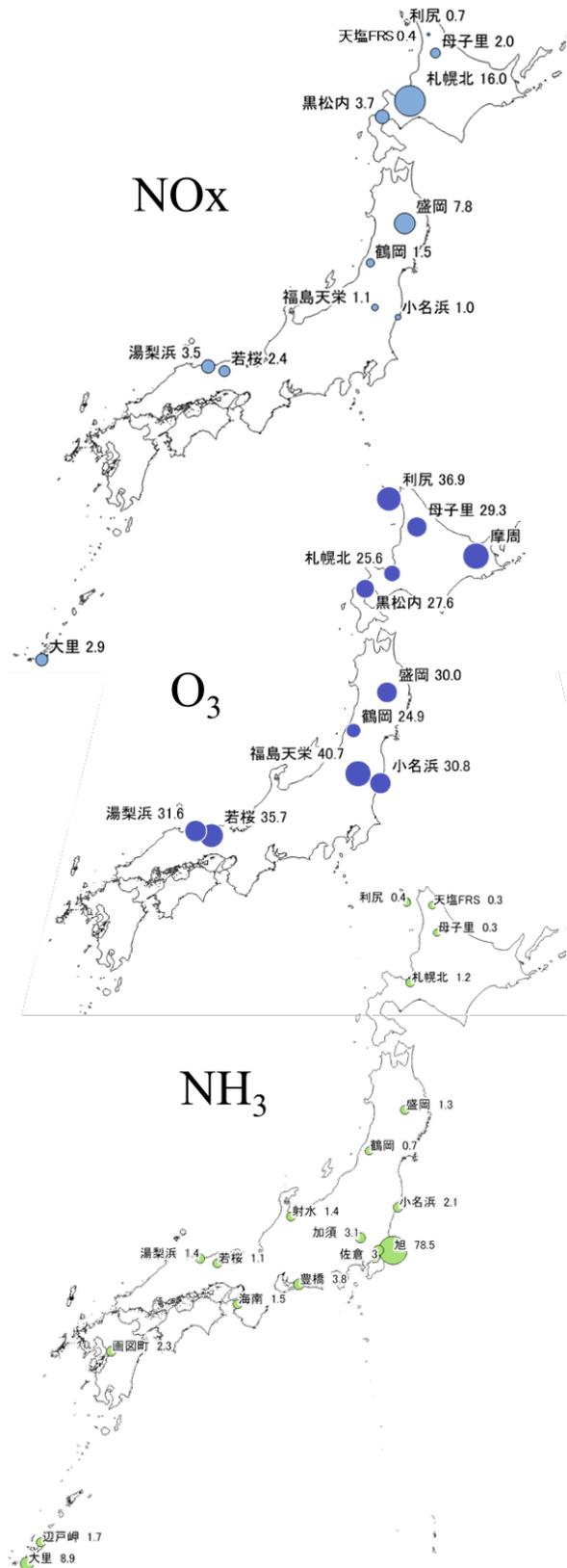


図 6.1.1 各測定項目の地点と年平均濃度 (ppb)

表 6.1.1 パッシブ法による調査地点数および有効データ数

項目	地点数	月平均濃度			年平均濃度		
		欠測数	有効データ数	有効割合	欠測数	有効データ数	有効割合
NH <sub>3</sub>	20	12	228	95%	1	19	95%
NO <sub>x</sub>	12	4	140	97%	0	11	100%
O <sub>3</sub>	12	5	139	97%	0	11	100%

各地点の濃度

6.2.1 NO<sub>x</sub>

年平均濃度の最高値は札幌の16.0 ppbだった(表6.2.1)。これは都市部で周辺排出量が高いためと考えられる(図6.2.5)。最小値は天塩FRSの0.4 ppbだった。月平均濃度では札幌、盛岡で秋から冬にかけて高かった。これは暖房などによる排出量増加と逆転層形成による高濃度化など気象的要因が原因と考えられる。

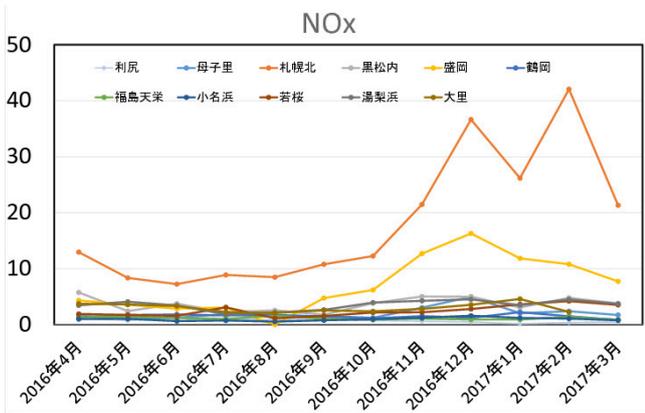


図6.2.1 各地点の月平均NO<sub>x</sub>濃度 (ppb)

6.2.2 O<sub>3</sub>およびPO

O<sub>3</sub>の年平均濃度では摩周の41.5 ppbが最も高く、これは標高が高いことが一因と考えられる。逆に最も低いのは鶴岡の24.9 ppbだった。これらはおおむね例年通りである。月平均濃度(図6.2.2)では例年どおり冬～春季(2～5月)に高く、夏季まで減少を続け、秋季(9～11月)以降増加傾向だった。

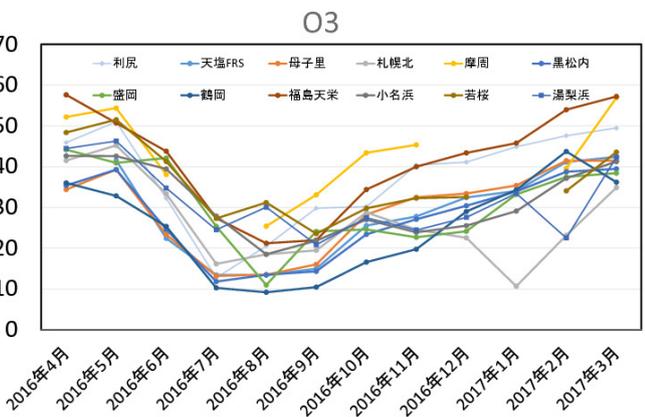


図6.2.2 各地点の月平均O<sub>3</sub>濃度 (ppb)

6.2.3 PO

PO(ポテンシャルオゾン)濃度は次式により算出した。  
 $PO = O_3 + NO_2 - 0.1NO_x$   
 濃度はO<sub>3</sub>とほぼ同程度であり(図6.2.3)、排出ガス由来のNOのNO<sub>2</sub>への酸化による消費の影響は小さいと思われる。このことから地点毎のオゾン濃度差はその地点にもたらされるオゾンと地形や気象により決定されていると考えられる。

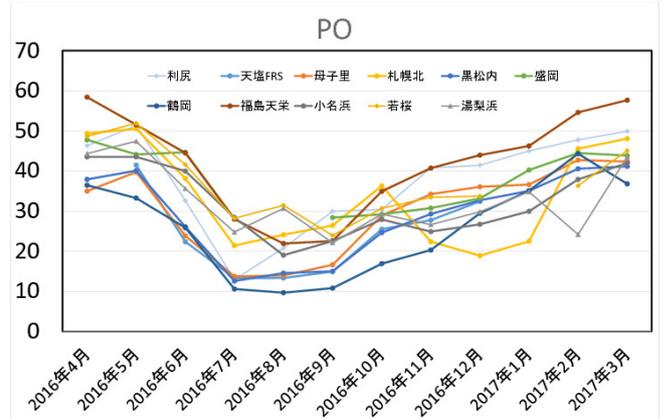


図6.2.3 各地点の月平均PO濃度 (ppb)

6.2.4 NH<sub>3</sub>

年平均濃度では旭が78.5 ppbで最も高く、最低は母子里0.2 ppbだった。低濃度の地点ではおおむね5 ppb未満程度で、鶴岡、佐倉、母子里などは冬季に低い傾向があるが、特段の季節変化は認められないところも多い。これは近傍の発生源の状況や地域の気温によると思われる。

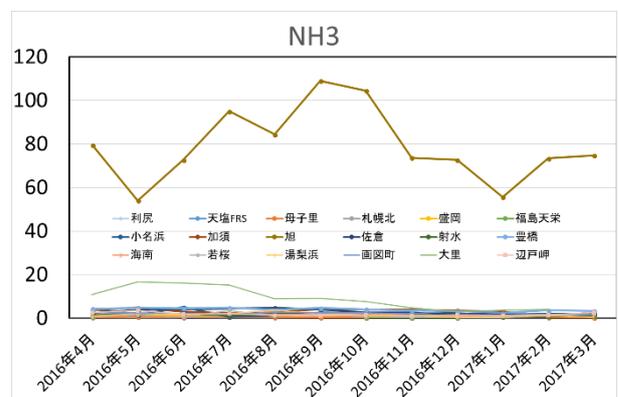


図6.2.4 各地点の月平均NH<sub>3</sub>濃度 (ppb)

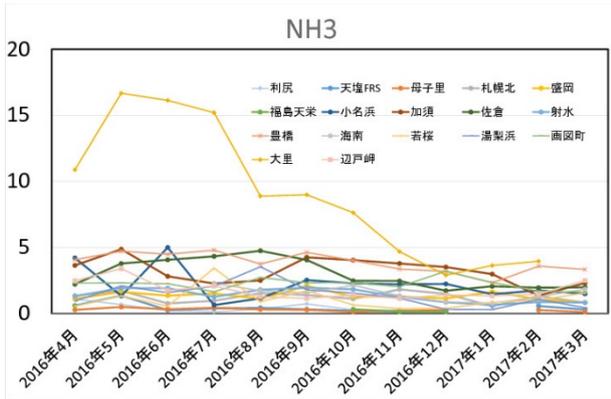


図6.2.5 旭以外のNH<sub>3</sub>濃度 (ppb)

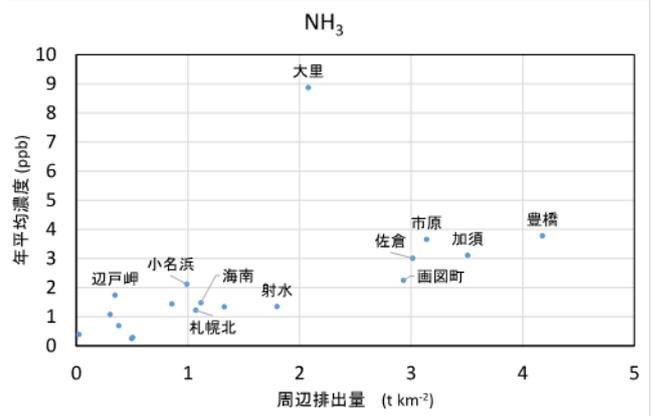


図6.2.7 NH<sub>3</sub>の年平均濃度と周辺排出量の相関図

6.2.5 周辺排出量との相関

NO<sub>x</sub>

札幌北や盛岡は周辺排出量が大きく、また年平均濃度も高い。一方で小名浜は周辺排出量が高い割には濃度が低い。小名浜の濃度は季節を通しておおむね一定で札幌や盛岡のように冬季に濃度が高くなるのとは異なるためと考えられる。

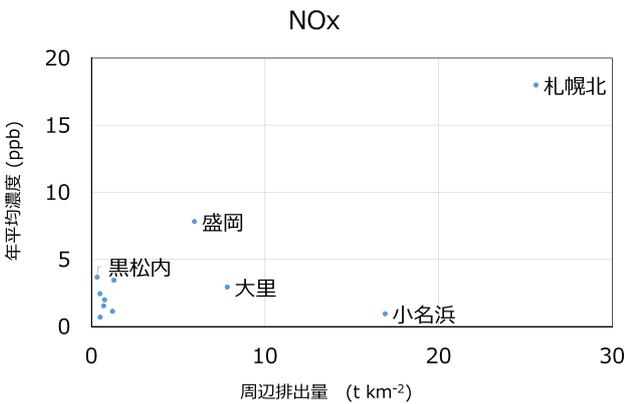


図6.2.6 NO<sub>x</sub>の年平均濃度と周辺排出量の相関図

NH<sub>3</sub>

旭は78.5 ppbと他地点よりきわめて大きいため除外した。大里を除くとおおむね年平均濃度と周辺排出量は高低がよく一致する。大里が周辺排出量の割に濃度が高いのは排出源が測定地点に近いこと、周辺20km円内に海が多いため、周辺排出量が低く計算されるためと考えられる。

表6.2.1 地点別年平均濃度 (ppb)

自治体	地点	NO <sub>x</sub>	O <sub>3</sub>	NH <sub>3</sub>	NH <sub>3</sub>
					(FP)
北海道	利尻	0.7	36.9	0.4	0.3
北海道	天塩FRS	0.4	30.5	0.3	
北海道	母子里	2.0	29.3	0.3	0.4
北海道	札幌北	16.0	25.6	1.2	1.3
北海道	摩周	-	41.5	-	
北海道	黒松内	3.7	27.6	-	
岩手県	盛岡	7.8	30.0	1.3	
山形県	鶴岡	1.5	24.9	0.7	
福島県	福島天栄	1.1	40.6	欠測	
いわき市	小名浜	0.9	30.8	2.1	
埼玉県	加須	-	-	3.1	4.3
千葉県	市原	-	-	3.7	3.5
千葉県	旭	-	-	78.5	85.8
千葉県	佐倉	-	-	3.0	3.3
富山県	射水	-	-	1.4	1.8
愛知県	豊橋	-	-	3.8	3.4
和歌山県	海南	-	-	1.5	2.0
鳥取県	若桜	2.4	35.7	1.1	
鳥取県	湯梨浜	3.5	31.6	1.4	2.0
熊本市	画図町	-	-	2.2	
沖縄県	大里	2.9	-	8.9	8.4
沖縄県	辺戸岬	-	-	1.7	1.1

注)全国最低値は網掛け、全国最高値は白抜きで示した。

注)フィルターパック (FP) のNH<sub>3</sub>濃度を参考として併記した。

## 7. まとめ

2016年度酸性雨全国調査の結果概要は以下のとおりである。

### 7.1 湿性沈着

H<sup>+</sup>およびnss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>は、日本海側および西部で高く、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>は東部で高くなり、例年と同様の傾向を示した。月ごとの変動を見ると、多くの地点で冬季の濃度が高くなる傾向があった。ただし、東部では7月に濃度が高くなっていた。沈着量については、冬季の高濃度と降水量の影響から日本海側で1月に高くなる傾向が、多くの成分で見られた。また、西部では春季～夏季に降水量が多かったことから、沈着量も同時期では高い値で推移する成分が多かった。

2016年度はH<sup>+</sup>、nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>およびCa<sup>2+</sup>の濃度が大幅に高くなった。これは、10月8日に起きた阿蘇山の爆発的噴火の影響だと考えられる。

### 7.2 FP法によるガスおよびエアロゾル濃度

全国30地点でFP法による乾性沈着調査を実施した。2016年度のSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、K<sup>+</sup>およびNH<sub>4</sub><sup>+</sup>の年中央値は、昨年と比べて17～20%減少した。地域区別に解析したところ、粒子状成分の総当量濃度は南西諸島で最も高く、北部で最も低かった。南西諸島ではCl<sup>-</sup>とNa<sup>+</sup>の占める割合が高いが、その他の地域ではSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>とNH<sub>4</sub><sup>+</sup>の占める割合が高かった。東部で

は、他の地域と比べてNO<sub>3</sub><sup>-</sup>の割合が高かった。

全国9地点においてインパクタを使用して粗大粒子と微小粒子（PM<sub>2.5</sub>）とを分けて捕集した結果、年平均イオン質量濃度は2.2～5.0 μg m<sup>-3</sup>であった。どの地点もSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の割合が最も高く、PM<sub>2.5</sub>イオン質量濃度のうち48～68%を占めた。SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>とNH<sub>4</sub><sup>+</sup>は1年を通してPM<sub>2.5</sub>の割合が高く、Cl<sup>-</sup>、Na<sup>+</sup>、Ca<sup>2+</sup>、およびMg<sup>2+</sup>は1年を通してPM<sub>2.5</sub>の割合が低かった。NO<sub>3</sub><sup>-</sup>は夏季にPM<sub>2.5</sub>の割合が低く、冬季にPM<sub>2.5</sub>の割合が高い傾向がみられた。

### 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。ガス状物質と粒子状物質を合わせた乾性沈着量の全国平均値は、非海塩由来硫黄成分が9.7 mmol m<sup>-2</sup> y<sup>-1</sup>、NO<sub>x</sub>を含まない酸化態窒素成分が16.3 mmol m<sup>-2</sup> y<sup>-1</sup>、還元態窒素成分が38.5 mmol m<sup>-2</sup> y<sup>-1</sup>だった。

### 7.4 ガス成分濃度（パッシブ法）

第6次調査からは地点ごとの評価とした。各地点の濃度は概ね例年程度だった。地点ごとに比較するとNO<sub>x</sub>とNH<sub>3</sub>の年平均濃度は数十倍の差があり、これは近隣の排出源に強く影響されているためと考えられた。